

# 非晶态铁基合金退火样品的偏移回线

李印峰<sup>1,2)</sup> 陈笃行<sup>2)</sup> 沈保根<sup>3)</sup> M. Vazquez<sup>2)</sup> A. Hernando<sup>2)</sup>

<sup>1)</sup> 河北邢台师范高等专科学校物理系, 邢台 054054)

<sup>2)</sup> Instituto de Magnetismo Aplicado, UCM-RENFE-CSIC, P. O. BOX 155 Las Rozas 28230, Madrid Spain)

<sup>3)</sup> 中国科学院物理研究所, 磁学国家重点实验室, 北京 100080)

(2000 年 8 月 25 日收到, 2000 年 11 月 17 日收到修改稿)

报道了非晶态铁基合金 ( $\text{Fe}_{65.9}\text{Cr}_{11.6}\text{Si}_{7.5}\text{B}_{15}$  和  $\text{Fe}_{60}\text{Co}_{5.9}\text{Cr}_{11.6}\text{Si}_{7.5}\text{B}_{15}$ ) 退火样品的回线偏移现象. 研究了偏移回线与测量磁场  $H_m$ , 温度  $T$  和时间  $t$  的关系. 基于退火产生的硬磁颗粒与剩余非晶软磁母体之间的静磁相互作用机制, 利用等效的单向各向异性模型可以很好地分析和解释实验结果.

关键词: 铁基非晶合金, 偏移回线, 单向各向异性.

PACC: 7530H, 7550K, 7560

## 1 引 言

磁滞回线偏移的现象可以追溯到近半个世纪前 Meiklejohn 和 Bean 的发现<sup>[1]</sup>. 铁磁的 Co 微粒表面被反铁磁的 CoO 膜所覆盖, 将样品加场冷却至 CoO 的奈耳点  $T_N$  以下测量其磁滞回线发现, 回线偏移其正常的对称中心  $H = 0$  达 kOe. 他们进一步测量了转矩曲线, 从而将产生这一现象的机制归因于铁磁—反铁磁交换耦合各向异性. 最近基于此机制对交换偏置自旋阀的研究形成了一个热点<sup>[2-4]</sup>. 非晶态 Co 基合金经过退火处理也存在回线偏移的现象<sup>[5-8]</sup>. 通常认为偏移是由于退火造成的不均匀区的存在或析出的高  $H_C$  微晶与剩余非晶母体之间的偶极相互作用所致, 偏移在 A/m 量级. 一般认为<sup>[5,6]</sup> 这种偏移现象只能在 Co 基非晶合金中存在, 因为 Co 的磁晶各向异性比 Fe 高一个数量级, 是 Ni 的 100 倍. 然而, 我们在非晶态 ( $\text{Fe}_{1-x}\text{Cr}_x$ )<sub>77.5</sub>Si<sub>7.5</sub>B<sub>15</sub> ( $x = 0, 0.05, 0.1$  和  $0.15$ ) 合金退火样品中观察到了回线偏移现象<sup>[9]</sup>, 尤其是  $x = 0.15$  样品的偏移比 Co 基合金高两个数量级, 达  $10^2$  A/m. 非对称的磁滞回线是一种反常的磁化行为, 探讨和揭示其磁化的机制不仅是出于科学研究的兴趣, 而且对于特殊磁性能材料的研制具有重要的实际意义.

## 2 实 验

非晶态  $\text{Fe}_{65.9}\text{Cr}_{11.6}\text{Si}_{7.5}\text{B}_{15}$  ( $S_1$ ) 和  $\text{Fe}_{60}\text{Co}_{5.9}\text{Cr}_{11.6}$

$\text{Si}_{7.5}\text{B}_{15}$  ( $S_2$ ) 合金采用旋转水冷却方法制备, 丝的直径分别为  $140\mu\text{m}$  和  $148\mu\text{m}$ . 取 15 cm 长的样品在 Ar 气保护下退火处理后置入水中淬火. 磁滞回线的测量磁场由微机控制的稳压电源调节, 磁化线圈长 28 cm, 探测线圈长 5 cm. 测量结果由与磁通计相连的微机收集. 为了排除外界的干扰和减少测量误差, 将测量装置部分置入一磁屏蔽桶内.

此外, 用 VSM 测量了样品的热磁曲线, 测量温度从室温到  $300^\circ\text{C}$ , 测量磁场为 5kOe, 从而确定出  $S_1$  和  $S_2$  的居里温度分别为  $T_{C1} = 122.5^\circ\text{C}$  和  $T_{C2} = 151^\circ\text{C}$ .

## 3 结 果

### 3.1 偏移回线

定义矫顽力  $H_C$  和偏移  $H_D$  分别为

$$H_C = \frac{H_{C2} - H_{C1}}{2}, \quad H_D = \frac{H_{C2} + H_{C1}}{2}, \quad (1)$$

式中  $H_{C1}$  和  $H_{C2}$  分别相应于  $M(H)$  回线的下降支和上升支的  $M = 0$  时的磁场.

如图 1 所示,  $S_1$  和  $S_2$  经  $500^\circ\text{C}$  退火处理 30 min 后, 回线的偏移分别为  $H_D = 13\text{A/m}$  和  $-85.8\text{A/m}$ . 退火样品经  $60\text{kA/m}$  的正向磁场预磁化后, 回线一致地偏向负场方向, 且偏移分别增至  $-75\text{A/m}$  和  $-288.7\text{A/m}$ .  $S_1$  经不同温度和时间退火处理且经  $60\text{kA/m}$  磁场的正向预磁化后, 其偏移  $H_D$  和矫顽力

$H_C$  与退火温度  $T_a$  和时间  $t_a$  的关系示于图 2. 退火温度  $T_a$  的升高和退火时间  $t_a$  的增加都使得  $H_D$  和

$H_C$  增大, 这与  $Co$  基合金的结果是一致的<sup>[6]</sup>.

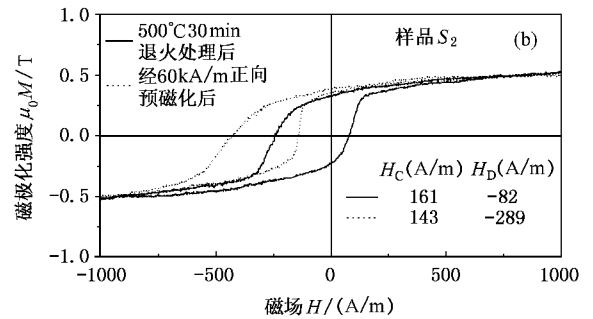
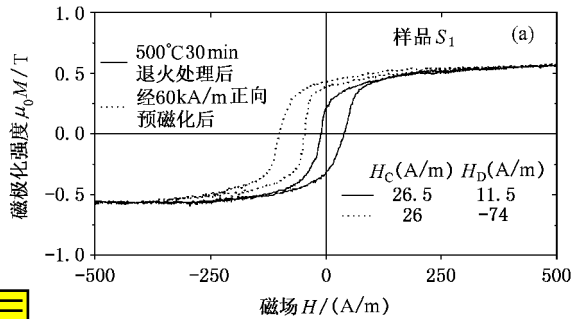


图 1 样品  $S_1$  和样品  $S_2$  的 500°C, 30 min 退火样品的偏移回线

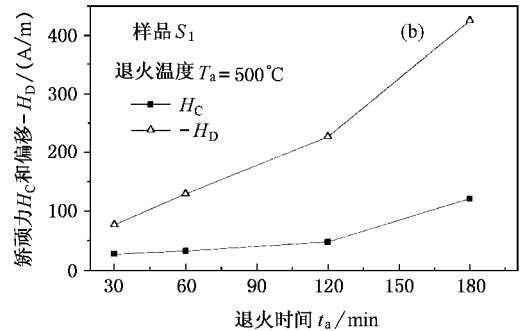
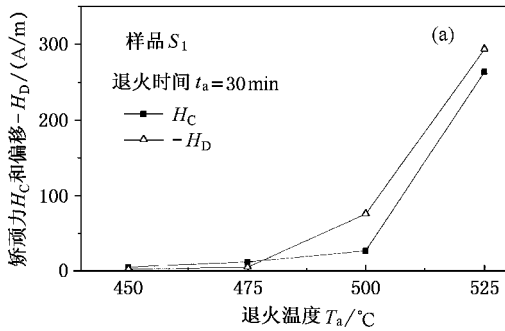


图 2 样品  $S_1$  退火样品的矫顽力  $H_C$  和偏移  $H_D$  与退火温度  $T_a$  和退火时间  $t_a$  的关系

### 3.2 偏移 $H_D$ 与磁场 $H_m$ 的关系

用不同的最大场  $H_m$  测量  $S_1$  的 500°C 120 min 和  $S_2$  的 500°C 30 min 退火处理样品经 60kA/m 正向预磁化后的回线(图 3)表明, 随  $H_m$  的增大,  $H_C$  增

大,  $H_D$  减小, 但  $H_D - H_C = H_{Cl}$  保持不变. 因此, 偏移回线是一种未饱和回线, 当  $H_m$  足够大时,  $H_D \rightarrow 0$ , 偏移现象将消失. 而  $H_{Cl}$  与  $H_m$  无关,  $G_{C2}$  随  $H_m$  的增加而增大表明, 样品在正反两个方向上的磁化是不同的.

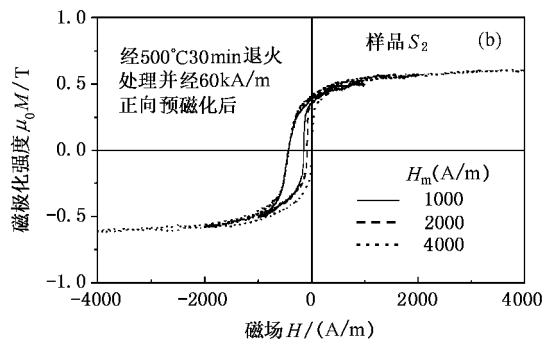
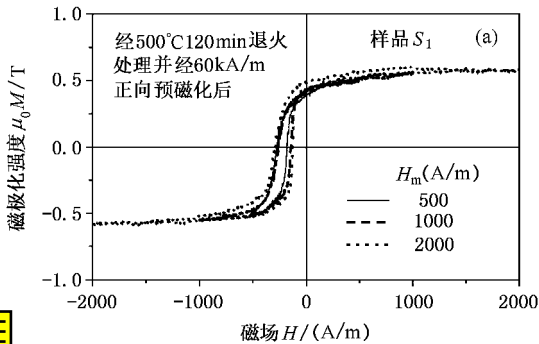


图 3 样品  $S_1$  和 500°C 120 min 和样品  $S_2$  的 500°C 30 min 退火样品在不同测量磁场  $H_m$  下的偏移回线

### 3.3 偏移 $H_D$ 与温度 $T$ 的关系

用电加热装置辅助测量了  $S_1$  和  $S_2$  的 500°C

30min 退火样品经 60kA/m 正向预磁化后的磁滞回线. 测量温度从室温至 180°C, 测量磁场分别为  $H_m = 300A/m$  和  $500A/m$ . 结果表明, 矫顽力  $H_C$ , 偏移

$H_D$  和最大磁极化强度  $\mu_0 M_m$  随温度  $T$  的升高而减小,在接近淬态非晶的居里点  $T_C$  时,  $H_C$ ,  $H_D$  和  $\mu_0 M_m$  均为零. 图 4(a) 给出了  $S_1$  的  $H_C$ ,  $H_D$  和  $\mu_0 M_m$  随温度  $T$  的变化关系. 图 4(b) 表明,  $S_1$  的  $H_D$  和  $\mu_0 M_m$  有相同的温度关系, 这与 X 射线衍射实验的结果是相符的, 即  $S_1$  经 500℃ 300 min 处理后, 没有观察到明显的晶化峰, 表明样品主相仍为非晶态, 晶化相的体积份数很小.

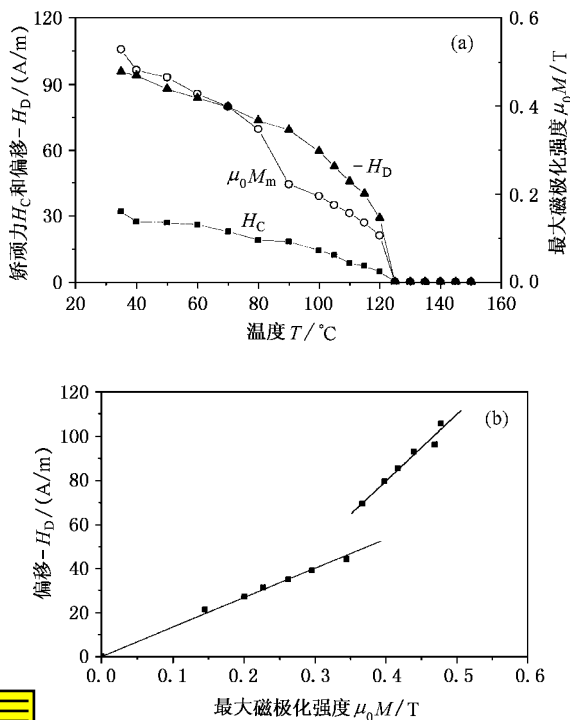


图 4 样品  $S_1$  的矫顽力  $H_C$ , 偏移  $H_D$  和最大磁极化强度  $\mu_0 M_m$  随温度  $T$  的变化(a);  $H_D$  与  $\mu_0 M_m$  的关系曲线(b)

### 3.4 偏移 $H_D$ 与时间 $t$ 的关系

$S_1$  和  $S_2$  的 500℃ 30 min 退火样品经 60kA/m 正向预磁化后, 在不同时间内测量其回线表明,  $S_2$  的  $H_D$  随时间  $t$  的增加而减小, 且呈对数关系  $H_D = H_{D0} - \ln t$  (如图 5 所示). 而  $S_1$  的  $H_D$  在数十天内无明显变化.

## 4 讨 论

我们认为, 铁基非晶合金的偏移回线起源于退火产生的晶化颗粒的有序取向排列. 晶化相与剩余非晶相的静磁相互作用可以等效于一单向各向异性

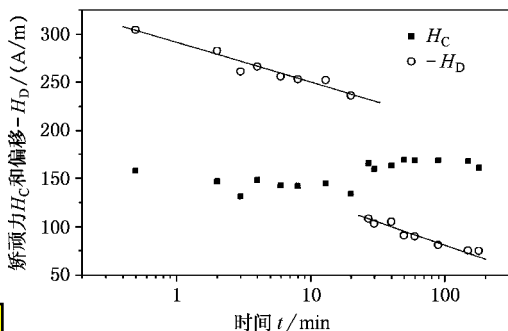


图 5 样品  $S_2$  的矫顽力  $H_C$  和偏移  $H_D$  随时间  $t$  的变化

$K_{int}$  的存在. 下面通过一个简单的模型对此进行分析.

考虑一半径为  $r_0$ , 磁化强度为  $M_1$  沿  $z$  方向均匀磁化的球形颗粒处于磁化强度为  $M_2$  的非晶母体之中. 设  $M_1 > M_2$ , 那么两个特殊情形下球形颗粒表面上的磁极密度可以表示为

$$\sigma(r_0, \theta) = \mu_0 (M_1 - M_2) \cos\theta, \quad \text{当 } M_1 // M_2 \text{ 时}, \quad (2a)$$

$$\sigma'(r_0, \theta) = \mu_0 (M_1 + M_2) \cos\theta, \quad \text{当 } M_1 \text{ 反} // M_2 \text{ 时}, \quad (2b)$$

这里  $\theta$  为极角, 其外偶极场在球坐标系中有两个分量:

$$H_r = \frac{\chi (M_1 \pm M_2) r_0^3}{3r^3} \cos\theta, \quad (3a)$$

$$H_\theta = \frac{(M_1 \pm M_2) r_0^3}{3r^3} \sin\theta, \quad (3b)$$

式中符号  $- (+)$  相应于  $M_1$  平行 (反平行) 于  $M_2$  的情况. 现在计算圆柱体样品内沿  $z$  方向 (轴向) 的平均外偶极场  $\langle H_z \rangle$ . 为简单起见, 考虑第  $i$  个颗粒位于柱坐标系  $-\rho, z, \phi$  的原点上, 其在  $z$  方向上的平均外偶极场为

$$\begin{aligned} \langle H_{zi} \rangle &= \frac{1}{V} \iiint (H_r \cos\theta - H_\theta \sin\theta) dV \\ &= \frac{\chi (M_1 \pm M_2) r_0^3}{3a^2 l} \int_0^a \int_0^l \frac{\rho (2z^2 - \rho^2)}{(z^2 + \rho^2)^{3/2}} d\rho dz \\ &= \frac{1}{2} (M_1 \pm M_2) \frac{v_0}{V} \sin\left(\arctg \frac{l}{a}\right), \quad (4) \end{aligned}$$

式中  $a$  和  $l$  分别为圆柱体的横截面半径和长度,  $v_0 = \frac{4}{3} \pi r_0^3$  和  $V = \pi a^2 l$  分别为颗粒和圆柱体的体积. 由于  $l \gg a$ ,  $\sin[\arctg(l/a)] \approx 1$ , 所以, 在整个圆柱体内沿  $z$  方向上的平均偶极场为

$$\langle H_x \rangle = \frac{1}{2}(M_1 \pm M_2) \frac{Nv_0}{V}, \quad (5)$$

式中  $N$  为颗粒的数目, 而  $Nv_0/V$  为晶化相的体积份数. 如果晶化产生的颗粒相对于剩余非晶母体是相当硬的, 而且测量磁场又不太高时, 硬磁颗粒的磁化强度矢量  $M_1$  将不仅不随外磁场方向的改变而改变, 而且其产生的偶极场会阻碍母体的磁化强度矢量  $M_2$  随外场的变化. 那么,  $M_1$  平行和反平行于  $M_2$  的情况有可能共存于磁化和反磁化的过程中, 在这种情况下, 从(5)式看出这等效于存在一单向各向异性场  $H_{ud}$ .

$$H_{ud} = M_2 \left( \frac{Nv_0}{V} \right). \quad (6)$$

正是这一  $H_{ud}$  的存在导致了磁滞回线的偏移. 从(6)式看出,  $H_{ud}$  正比于晶化相的体积份数  $Nv_0/V$  和非晶母体的磁化强度  $M_2$ . 据此可以很好地解释前面的实验结果.

随着退火温度  $T_a$  的升高和退火时间  $t_a$  的增加, 都会使晶化相的体积份数  $Nv_0/V$  增加, 因而  $H_{ud}$  增大, 即  $H_D$  增大. 在前面的模型中认为所有颗粒是相同的, 且磁化强度矢量均沿  $z$  轴一致取向, 实际情况并非如此, 考虑到这一点可以用有效粒子数  $N^*$  来代替  $N$ . 预磁化场使  $H_D$  增大是由于预磁化使晶粒沿轴向取向的有效粒子数  $N^*$  增加的缘故. 而随测量磁场  $H_m$  的增大,  $N^*$  将减小, 因而  $H_D$  减小. 此外, 经过正向预磁化后的样品, 在正方向上接近饱和磁化, 而在反方向上却远未饱和, 故此, 随  $H_m$  的增

大,  $H_{C2}$  增大, 而  $H_{C1}$  保持不变. 从(6)式显而易见, 随着温度  $T$  从室温逐渐地升高时, 非晶相的磁化强度  $M_2$  不断地减小, 因此,  $H_{ud}$  也不断地减小. 由于晶化相的体积份数很小, 所以, 退火样品的主相仍为非晶态, 当  $T$  升至非晶相的居里点时,  $H_C$ ,  $H_D$  和  $\mu_0 M_m$  将趋于零.

我们的铁基样品的偏移  $H_D$  比钴基的大两个数量级, 而其矫顽力  $H_C$  也比钴基的大两个数量级. 在主要由畴壁移动决定的磁化过程中, 矫顽力主要由掺杂密度决定. 非晶在退火过程中产生的少量的微晶颗粒作为磁杂质将阻碍畴壁的移动. 一般而言, 铁基非晶合金的磁化强度仅是钴基的 2 倍, 根据(6)式, 我们认为铁基非晶合金退火后产生的晶化相的体积份数可能比钴基的大两个数量级.

$S_2$  的  $H_D$  随时间  $t$  的增加而减小可以看成是由于颗粒之间的相互作用以及结构弛豫效应造成的. 因为  $S_2$  的  $H_C$  和  $H_D$  都远大于  $S_1$ ,  $S_1$  的晶化颗粒的尺寸和数目可能远小于  $S_2$ , 所以,  $S_1$  的  $H_D$  的时间效应远不如  $S_2$  明显.

## 5 结 论

对非晶态铁基合金退火样品偏移回线的研究表明, 偏移现象起源于退火造成的硬磁颗粒与剩余非晶软磁母体之间的静磁相互作用, 利用一等效单向各向异性模型可以很好地解释实验结果.

- [1] W. H. Meiklejohn, C. D. Bean, *Phys. Rev.*, **102** (1956), 1413.  
 [2] J. Nogués, D. Lederman, T. J. Moran, Ivan K. Schuller, *Phys. Rev. Lett.*, **76** (1996) A627.  
 [3] N. C. Koon, *Phys. Rev. Lett.*, **78** (1997) A865.  
 [4] J. C. S. Kools, *IEEE Trans. MAG.*, **32** (1996) 3165.  
 [5] O. Kohmoto, N. Yamaguchi, K. Ohya, H. Fujishima, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **17** (1978) 257.  
 [6] A. K. Shaikh, D. Wexler, G. W. Delamore, *J. Magn. Magn. Ma-*

*ter.*, **152** (1996) 345.

- [7] D. X. Chen, X. S. Pan, *Acta Metall. Sinica*, **19** (1983) A176.  
 [8] K. H. Shin, C. D. Graham, Jr., Peter Y. Zhou, *IEEE Trans. MAG.*, **28** (1992) 2772.  
 [9] Y. F. Li, D. X. Chen, M. Vazquez, A. Hernando, The 10th National Conference of Magnetism and Magnetic Materials, Beijing (1999), 363.

## DISPLACED HYSTERESIS LOOPS IN ANNEALED Fe-BASED AMORPHOUS ALLOYS

LI YIN-FENG<sup>1)2)</sup> CHEN DU-XING<sup>2)</sup> SHEN BBAO-GEN<sup>3)</sup> M. VAZQUEZ<sup>2)</sup> A. HERNANDO<sup>2)</sup>

<sup>1)</sup>*Department of Physics, Xingtai Normal College, Xingtai 054054, China*

<sup>2)</sup>*Instituto de Magnetismo Aplicado, UCM-RENFEC-CSIC, P. O. BOX155, Las Rozas 28230, Madrid, Spain*

<sup>3)</sup>*State Key Laboratory for Magnetism, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080, China*

(Received 25 August 2000; revised manuscript received 17 November 2000)

### ABSTRACT

We report the displaced hysteresis loops in the annealed amorphous alloys  $\text{Fe}_{65.9}\text{Cr}_{11.6}\text{Si}_{7.5}\text{B}_{15}$  and  $\text{Fe}_{60}\text{Co}_{5.9}\text{Cr}_{11.6}\text{Si}_{7.5}\text{B}_{15}$ . The effects of measuring field  $H_m$ , temperature  $T$  and time  $t$  on the displacement  $H_D$  have been studied. On the basis of the magnetostatic interaction between the hard particle resulting from the annealing and the residual amorphous soft matrix, the experiments could be well explained by the unidirectional anisotropy model.

**Keywords** : Fe-based amorphous alloy, displaced hysteresis loop, unidirectional anisotropy model

**PACC** : 7530H, 7550K, 7560