

磁场退火对 Co 基熔体抽拉丝 巨磁阻抗效应的影响

张树玲 孙剑飞[†] 邢大伟

(哈尔滨工业大学材料科学与工程学院, 哈尔滨 150001)

(2009 年 3 月 6 日收到; 2009 年 7 月 8 日收到修改稿)

对 Co 基熔体抽拉非晶丝进行了普通炉内退火和不同磁场强度 (500 Oe, 1600 Oe, 4000 Oe) 下的横向和纵向磁场退火, 利用 HP4192 阻抗分析仪和 Lakeshore7407VSM 分析了退火态样品的巨磁阻抗 (GMI) 效应和软磁性能. 研究表明, 纵向磁场降低了环向各向异性, 纵向磁场退火样品 GMI 效应降低且 GMI 曲线为单峰, 最大阻抗变化率 $\Delta Z/Z$ 为 131%, 磁场响应灵敏度为 7% / Oe; 而横向磁场提高了环向畴体积, 增加了环向各向异性场, 导致退火样品 GMI 曲线随频率升高由单峰转变为双峰, 且 GMI 效应增强, 10 MHz 时, 最大阻抗变化率 $\Delta Z/Z$ 达到 190%, 对应磁场响应灵敏度达到 26% / Oe. 并应用趋肤效应模型初步分析了退火处理影响非晶丝 GMI 效应的机理.

关键词: 非晶丝, 巨磁阻抗效应, 退火

PACC: 7530C, 7220M, 6200

1. 引 言

巨磁阻抗 (giant magneto-impedance, GMI) 效应是指软磁材料的交流阻抗随外加直流磁场变化而变化的现象^[1,2]. 因其灵敏度高、无磁滞、响应快、温度稳定性好等特点, 适于磁场传感器和磁存储等领域应用^[3]. 其中 GMI 传感器体积小、灵敏度高^[4]、线路相对简单, 具有很高的应用价值和广泛的市场前景. 与非晶薄带和薄膜相比, 非晶丝以其特殊的圆形截面, 高的环向磁导率, 且不存在交叉场效应^[2,5,6], 具有更高的 GMI 效应和软磁性能, 非晶丝 GMI 效应正成为该领域最具活力的研究方向.

根据经典电磁理论, 当频率为 f 的交流电流通过导体时, 由于存在趋肤效应, 电流集中在导体表面, 趋肤深度 δ 与交流频率存在如下的关系: $\delta = (\pi\sigma\mu_0 f)^{-1/2}$, 其中 σ 是材料的电导率, μ_0 是材料的环向磁导率; 由 Maxwell 方程, 对直径为 a 的圆截面导体交流阻抗表达为^[7,8]

$$Z = \frac{R_{dc}}{2} ka \frac{J_0(ka)}{J_1(ka)}. \quad (1)$$

阻抗变化率定义为

$$\Delta Z/Z = [Z(H_{ex}) - Z(H_{max})] / Z(H_{max}) \times 100\%,$$

其中, $Z(H_{ex})$ 为在外加直流磁场为 H_{ex} 时的阻抗, $Z(H_{max})$ 为当外加磁场为最大磁场时的阻抗值. 而 $k = (1+i)a/\delta$, R_{dc} 为样品的直流电阻, J_0 和 J_1 则为 Bessel 函数. 因此, 随频率 f 变化, 阻抗 Z 敏感变化. 高频下直流磁场影响阻抗是首先影响材料磁导率 μ_0 , 进而影响趋肤深度和阻抗而实现的^[9-11]. 显然, 影响磁导率的因素将对 GMI 效应产生重要的影响. 所以通过研究各种影响磁导率的因素如材料成分、磁畴结构、各向异性、制备工艺等^[12], 可有效改善 GMI 效应. Co 基非晶丝具有近零或负的磁致伸缩系数, 在快速凝固所导致的内应力作用下, 形成“芯-壳”型磁畴结构, 壳层环向畴, 芯部纵向畴^[13,14]. 环向畴的存在有利于提高环向磁导率和 GMI 效应^[15]. 对快淬态非晶丝进行一定工艺的退火是优化磁畴结构和组织的有效手段, 也将对提高材料的 GMI 效应起到积极的作用.

本文对 Co 基熔体抽拉丝进行了退火调制处理, 分析比较了普通退火、纵向和横向磁场退火非晶丝的 GMI 效应和软磁性能, 以期获得高磁场响应灵敏度 GMI 效应.

[†] 通讯联系人. E-mail: jfsun_hit@263.net

2. 实验方法

将纯度 99.9% 以上的 Co, Fe, Si, B, Nb 按名义成分 Co₇₅Fe_{4.0}Si₈B₁₂Nb₁ 的比例, 在精度万分之一的电子天平上称量, 在磁控钨极炉上熔炼均匀, 制备成直径 9 mm 的圆柱棒, 将母合金放入高真空熔体抽拉设备中, 抽真空到 10^{-3} Pa 后充入高纯氩, 制备成直径 30 μm 的非晶丝。

通过分析 450°C (晶化温度 $T_c = 515^\circ\text{C}$) 不同保温时间普通退火实验表明, 退火保温 20 min 后, GMI 效应提高, 但样品仍然保持非晶态。因此确定 450°C 时保温 20 min (10^{-3} Pa) 进行磁场退火。退火设备采用管式真空退火炉, 外加磁场由电磁铁提供。抽真空后施加磁场到设定强度后保持稳定, 开始升高温度。磁场强度分别为 0, 500, 1600, 4000 Oe (1 Oe = 79.5775 A/m), 磁场方向垂直于丝的长轴方向为横向磁场退火, 磁场方向平行于丝的轴向, 为纵向磁场退火, 保温 20 min 后, 降温, 当温度降到室温时, 退去磁场。

在美国 Lake Shore 7407 振动样品磁强计上测试退火样品室温磁滞回线, 样品轴向平行于磁场方向。在 HP4192 阻抗分析仪上进行阻抗测试, 测试频率 f 为 0.5—10 MHz, 阻抗测量时, 交变电流幅值稳定为 20 mA, 直流磁场 H_{ex} 由一对直径 30 cm 的 Helmholtz 线圈提供, 最大磁场 75 Oe; 直流磁场平行于丝的长轴方向。为减少地磁场的影响, Helmholtz 线圈放置的方向是使其产生的磁场与地磁场垂直; 所有的阻抗测量均在室温下进行。

3. 实验结果与讨论

图 1 为普通退火和 0.4 T 纵向及横向磁场退火样品磁滞回线。普通退火和磁场退火样品的软磁性能差别较大, 横向磁场退火样品的矫顽力最大, 为 9 A/m, 磁化率则最低。而纵向磁场退火样品软磁性能最佳, 具有高磁化率和低矫顽力。显然退火磁场方向影响了样品的软磁性能, 其对矫顽力和磁化率的影响与磁畴变化有关, 初步分析认为 450°C 退火保温 20 min, 内应力释放, 应力能减小, 同时磁场对磁矩的磁化力导致退火后形成新的易磁化方向, 增加了磁各向异性场。另外, 磁场作用下会局域感生各向异性场。为了降低能量, 应力能、各向异性性能和退磁

场能将相互作用形成新的磁畴结构。横向磁场作用下, 芯部纵向畴部分转向磁场方向, 提高了环向磁畴体积, 导致大的环向各向异性场和矫顽力; 而纵向磁场则提高纵向畴体积, 导致相同磁场强度下纵向磁化时具有大的饱和磁化强度和磁导率, 而横向磁场退火样品可能需要更大的饱和磁场达到磁化饱和。

图 2 为普通退火和 0.4 T 磁场退火样品的 GMI 曲线。普通退火和纵向磁场退火丝的 GMI 曲线为单峰, 且相同频率下两种退火样品的阻抗变化率差别不大, 但与横向磁场退火样品相比, 其 GMI 效应较弱, 最大阻抗变化率 $\Delta Z/Z$ 分别为 136% 和 131.5%, 对应的最大磁场响应灵敏度分别为 8.3%/Oe 和 7%/Oe; 而横向磁场退火样品, 低频下 GMI 曲线为单峰, 交流频率高于 3 MHz 时, GMI 曲线转变为双峰, 横向磁场退火样品同时具有强的 GMI 效应, 最大 $\Delta Z/Z$ 比率达到 190%, 对应的磁场响应灵敏度也达到 26% Oe, 这种低频高磁场响应灵敏度的 GMI 效应具有重要的应用价值, 可大大提高磁传感器的灵敏度和应用范围, 并简化电路, 降低高频噪声和能量损耗^[12]。

测试频率范围内, 退火样品阻抗变化率随交流频率升高而增加。根据屈服效应理论^[7,8], 若环向导磁率 μ_ψ 为一恒量, 则磁阻抗 Z 与 $f^{1/2}$ 呈线性变化^[16], 随交流频率的升高磁阻抗 Z 升高。然而我们实验结果分析发现, 磁阻抗 Z 并没有随 $f^{1/2}$ 线性变化, 也就是说环向导磁率并非为一恒量, 而随频率敏感变化, 分析发现阻抗变化率 $\Delta Z/Z$ 与交流频率平方根 $f^{1/2}$ 之间满足线性关系, 即 $\Delta Z/Z = a + bf^{1/2}$, 图 3 为不同退火态样品阻抗变化率随频率平方根 $f^{1/2}$ 变化的线性拟合曲线, GMI 效应越强, 阻抗变化率 $\Delta Z/Z$ 随 $f^{1/2}$ 的变化系数越大, 横向磁场退火样品变

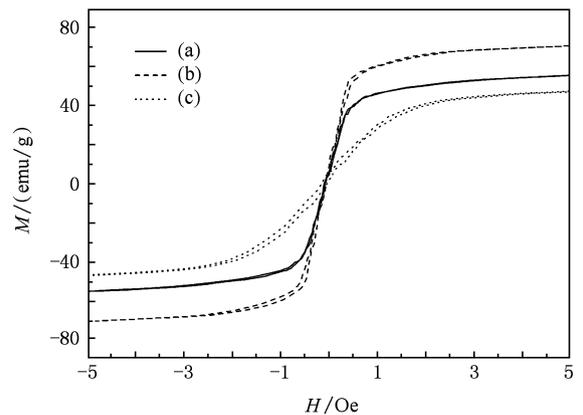


图 1 退火丝的纵向磁滞回线 (a) 普通退火; (b) 4000 Oe 纵向磁场退火; (c) 4000 Oe 横向磁场退火

化系数最大 $b = 71.5$. 理论上随频率 f 升高, 趋肤效应增强, 环向磁导率 μ_ψ 主要由壳层畴磁化转动控制^[16], 并随频率敏感变化. 横向磁场退火样品由于具有更高的环向畴体积, 相同频率下环向磁导率更大, GMI 效应更强. 这一结果说明横向磁场退火通过提高环向畴体积提高了环向磁导率和 GMI 效应.

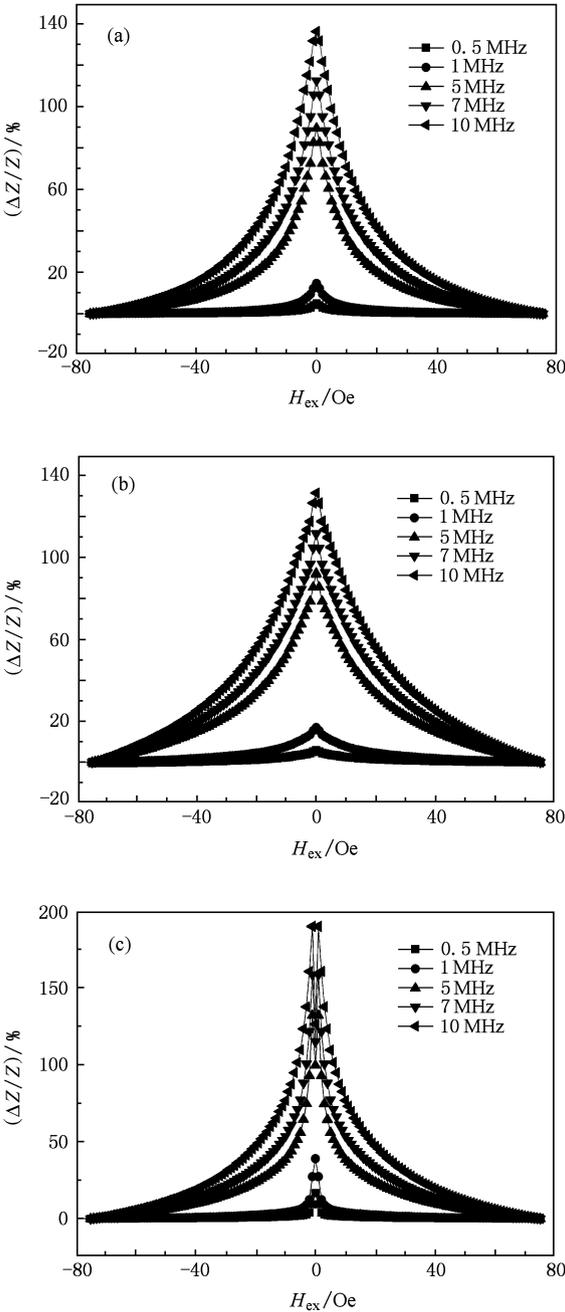


图 2 退火非晶丝 GMI 曲线 (a) 普通退火; (b) 4000 Oe 纵向磁场退火; (c) 4000 Oe 横向磁场退火

图 4 为 500 Oe 和 1600 Oe 横向磁场退火样品不同频率时的 GMI 曲线. 500 Oe 磁场退火样品的

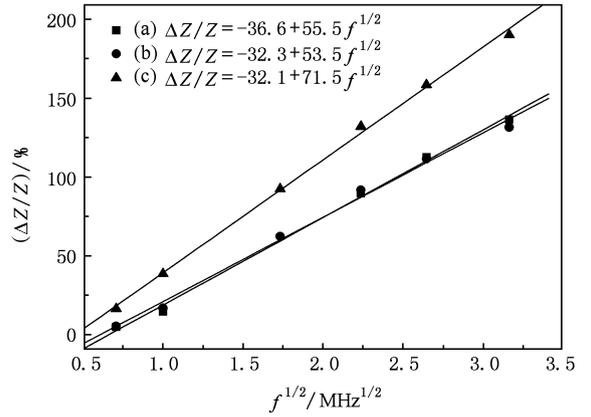


图 3 磁场退火非晶丝阻抗变化率 $\Delta Z/Z$ 随频率 f 变化曲线 (a) 普通退火; (b) 41600 Oe 纵向磁场退火; (c) 4000 Oe 横向磁场退火

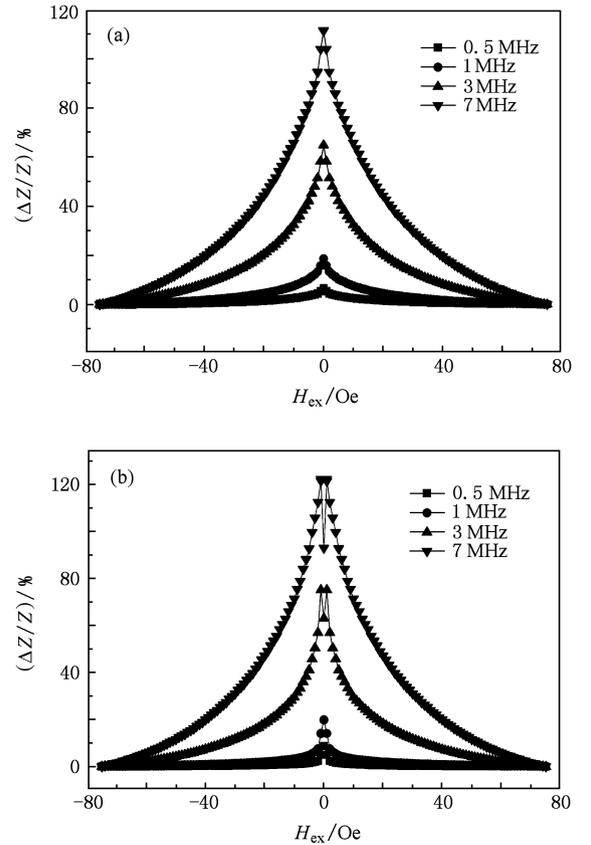


图 4 不同磁场强度横向磁场退火丝的 GMI 曲线 (a) 500 Oe; (b) 1600 Oe

GMI 曲线为单峰, 且阻抗变化率较小; 1600 Oe 磁场退火样品 3 MHz 时的 GMI 曲线由单峰转变为双峰, 阻抗变化率也较大, 说明横向退火磁场强度越大环向磁各向异性场也越大. 这进一步说明横向磁场退火通过影响环向畴而改善了 GMI 效应, 并且退火磁

场强度越大,对样品环向磁导率影响越大,GMI 效应越强.当横向磁场由 0 逐渐增加到 4000 Oe,阻抗变化率逐渐增加,0.5 MHz 时最大阻抗变化率 $\Delta Z/Z$ 由 5% 线性增加到 16.6%.

GMI 曲线随频率升高出现单双峰转变应该与趋肤效应和各向异性场有关^[16].在交流磁场和外加直流磁场作用下,环向磁导率 μ_ψ 主要是由磁畴转动过程决定^[16],低频时开关场 H_i 小,当直流磁场 H_{ex} 与开关场 H_i 相当时,近自由的磁化强度矢量会迅速地随外加交变场变化而变化,样品的环向磁导率在 0 Oe 时最大,随着直流磁场 H_{ex} 的增加,环向磁导率减小,阻抗减小,GMI 曲线出现单峰.有研究表明^[17,18],交变电流通过产生的交变磁场会引起磁化强度矢量 M 在它周围震荡,震动幅角计为 α_m ,为降低体系能量,静磁场 E_m 和各向异性能 E_k 相互作用下,产生如下的平均扭矩:

$$\begin{aligned} T_m &= \mu_0 M_s H_{ex} (1 - \cos\alpha_m), \\ T_k &= K_u (1 - \cos 2\alpha_m) / 2\alpha_m, \end{aligned} \quad (2)$$

由 $T_m + T_k = 0$ 得到开关场

$$H_i = \frac{K_u}{\mu_0 M_s} (1 + \cos\alpha_m), \quad (3)$$

其中, μ_0 为真空磁导率, K_u 为各向异性常数,而 $\alpha_m \propto I_0/\sqrt{f}$,显然,随着频率的升高,涡流阻尼增强 α_m 减小, H_i 升高;当直流磁场 H_{ex} 与开关场 H_i 相当时,环

向磁导率最大,GMI 曲线出现双峰^[4].1600 Oe 和 4000 Oe 横向磁场退火样品,具有较高的环向各向异性场和小的低场磁化强度,因此相同频率下开关场 H_i 更大,容易出现了双峰 GMI 曲线.500 Oe 横向磁场退火样品,由于退火磁场强度低,各向异性场较小,低场下磁化强度相对较高,开关场 H_i 小,即使在高频下 GMI 曲线也仅表现为单峰.而普通退火和纵向磁场退火样品具有大的磁化强度,开关场 H_i 较小,GMI 曲线也为单峰,同时环向磁导率较低,阻抗变化率 $\Delta Z/Z$ 较小.因此,横向磁场退火主要是通过提高非晶丝环向各向异性场,提高了环向磁导率和 GMI 效应,并导致高频双峰 GMI 曲线的出现.

4. 结 论

磁场退火处理通过影响环向畴而改变了非晶丝的 GMI 效应,纵向磁场退火降低了环向磁导率和 GMI 效应,GMI 曲线为单峰,最大 $\Delta Z/Z$ 达到 131%,磁场响应灵敏度 7%/Oe.横向磁场退火因可提高非晶丝的环向各向异性场,提高了环向磁导率和 GMI 效应,高频下 GMI 曲线逐渐转变为双峰,最大阻抗变化率 $\Delta Z/Z$ 达到 190%,对应磁场响应灵敏度达到 26%/Oe.

- [1] Mohri K, Kohzawa T 1992 *IEEE Trans Magn.* **28** 3150
- [2] Phan M H, Peng H X 2008 *Prog Mater Sci.* **53** 323
- [3] Wang W J, Xiao S Q, Jiang S, Yuan H M, Wu Z Y, Ji G, Yan S S, Liu Y H, Mei L M 2005 *Thin Solid Films.* **484** 299
- [4] Phan M H, Peng H X, Wisnom M R, Yu S C 2005 *J. Appl. Phys.* **98** 014316
- [5] Li Y F, Chen D X, Guo H Q, Vazquez M, Hernando A 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 1591 (in Chinese) [李印峰、陈笃行、郭慧群、Vazquez M, Hernando A 2000 物理学报 **49** 1591]
- [6] Li Y F, Yin S Z, Vazquez M 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 3391 (in Chinese) [李印峰、尹世忠、Vazquez M 2005 物理学报 **54** 3391]
- [7] Yelon A, Menard D, Britel M, Ciureanu P 1996 *Appl. Phys. Lett.* **69** 3084
- [8] Kamruzzaman M, Rahman I Z, Rahman M A 2001 *J. Mater. Proc. Tech.* **119** 312
- [9] Vazquez M 2001 *J. Magn. Magn. Mater.* **226-230** 693
- [10] Zhukov A, Zhukova V, Blanco J M, Gonzalez J 2005 *J. Magn. Magn. Mater.* **294** 182
- [11] Vinai F, Coisson M, Tiberto P 2006 *J. Magn. Magn. Mater.* **300** e82
- [12] Wang W J, Yuan H M, Xiao S Q, Jiang S, Yan S S 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 6108 (in Chinese) [王文静、袁慧敏、姜山、萧淑琴、颜世申 2006 物理学报 **55** 6108]
- [13] Vazquez M, Chen D X 1995 *IEEE Trans Magn.* **31** 1229
- [14] Chen D X, Pascual L, Castano F J, Vazquez M, Hernando A 2001 *IEEE Trans on Magn.* **37** 994
- [15] Chizhik A, Gonzalez J, Zhukov A, Blanco J M 2007 *Sens. Acta. A* **126** 235
- [16] Li Y F, Yin S Z, Zhao S Y, Feng S Q, Vazquez M 2000 *J. Hebei Normal University (Natural Science)* **24** 455 (in Chinese) [李印峰、尹世忠、赵双义、封素芹、Vazquez M 2000 河北师范大学学报(自然科学版) **24** 455]
- [17] Zhang J C, Liu L P, Zhao Z J, Yang X L, Wang Q 2007 *J. East Normal University (Natural Science)* **1** 107 (in Chinese) [张军车、刘龙平、赵振杰、杨燮龙、王清江 2007 华东师范大学学报(自然科学版) **1** 107]
- [18] Chen D X, Munoz J, Hernando A, Vazquez M 1998 *Phys. Rev. B* **57** 10699

Influence of field annealing on giant magneto-impedance effect of Co-based melt extraction amorphous wires

Zhang Shu-Ling Sun Jian-Fei[†] Xing Da-Wei

(School of Materials Science and Engineering, Harbin Institute of Technology, Harbin 150001, China)

(Received 6 March 2009; revised manuscript received 8 July 2009)

Abstract

In order to investigate the influence of anneal treatment on the Co-based melt extraction wires, the soft magnetic properties and giant magnet-impedance (GMI) effect of the annealed Co₇₅Fe_{4.0}Si₈B₁₂Nb₁ wire are investigated. Samples are prepared using melt extraction technology in vacuum and annealed at 450°C without magnetic field or with magnetic field either longitudinal or transverse to the axis of wire of strength from 500 Oe to 4000 Oe, respectively. The magnetic softness and GMI response are measured using HP4192 Impedance Analyzer and Lakeshore7407 VSM. Test results show that the circular anisotropy and GMI response are reduced after longitudinal field anneal treatment. GMI profiles are single-peaked and the maximum impedance ratio $\Delta Z/Z$ is 131% and field sensitivity is 7%/Oe. The circular permeability and GMI response are improved after transverse field anneal treatments because of the increased circular anisotropy. At higher frequencies, the GMI profiles change from single-peaked to two-peaked after being annealed in strong transverse field. The circular permeability is increased and GMI effect gets stronger with the increase of current frequency and anneal field. The largest impedance ratio of 190% with a field sensitivity of 26%/Oe is obtained for the Co-based transverse field annealed wires at 10 MHz. The correlations between the circular permeability, the GMI effect and the current frequency are discussed in the light of a skin effect model.

Keywords: amorphous wires, giant magnetoimpedance effect, anneal treatment

PACC: 7530C, 7220M, 6200

[†] Corresponding author. E-mail: jfsun_hit@263.net