

07,05

## Влияние механических напряжений и отжига на магнитную структуру и магнитоимпеданс аморфных CoFeSiBCr микропроводов

© М.Г. Нетьматов<sup>1,3</sup>, М.М. Салем<sup>1</sup>, У. Азим<sup>1</sup>, М. Ахмат<sup>1</sup>, А.Т. Морченко<sup>1</sup>,  
Н.А. Юданов<sup>1</sup>, Л.В. Панина<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup> Национальный исследовательский технологический университет „МИСиС“,  
Москва, Россия

<sup>2</sup> Институт проблем проектирования в микроэлектронике РАН,  
Москва, Россия

<sup>3</sup> Таджикский технический университет им. акад. М.С. Осими,  
Душанбе, Таджикистан

E-mail: nematovmaqsud@misis.ru, lpanina@plymouth.ac.uk,

(Поступила в Редакцию 1 августа 2017 г.)

Структурные и магнитные свойства аморфных ферромагнитных микропроводов могут претерпевать значительные изменения в результате воздействия внешних механических напряжений и температурной обработки. Изучение происходящих при этом трансформаций представляется важным как для разработки различных сенсоров механических напряжений, нагрузки, температуры, так и для индуцирования в проводах определенного типа магнитной анизотропии, играющей значительную роль в осуществлении в них различных эффектов. В настоящей работе исследовано влияние внешних напряжений и отжига на процессы намагничивания и магнитный импеданс в микропроводах состава  $\text{Co}_{71}\text{Fe}_5\text{B}_{11}\text{Si}_{10}\text{Cr}_3$ , которые в аморфном состоянии имеют невысокую положительную магнитострикцию (порядка  $10^{-8}$ ). Воздействие внешних напряжений приводит к резкому изменению характера кривой перемагничивания, что обусловлено изменением знака магнитострикции и типа магнитной анизотропии. Соответственно амплитуда высших гармоник и величина магнитного импеданса оказываются чувствительными к механическим напряжениям. В проводах с частичной кристаллизацией действие упругих напряжений не приводит к заметному изменению магнитных свойств, однако с помощью отжига можно добиться существенного увеличения осевой магнитной анизотропии проводов, находящихся в напряженном состоянии. Экспериментальные результаты проанализированы в рамках магнитострикционной модели наведенной магнитной анизотропии.

DOI: 10.21883/FTT.2018.02.45387.234

### 1. Введение

Ферромагнитные микропровода с аморфной или нанокристаллической структурой имеют ряд специфических магнитных свойств: наличие двух устойчивых состояний намагниченности (бистабильность), высокую подвижность доменов и гигантский магнитный импеданс (МИ) [1–6].

Явление магнитной бистабильности, сопровождающееся быстрым распространением одиночных доменов вдоль оси провода, наблюдается в микропроводах из сплавов с высоким содержанием железа. Для них характерна положительная магнитострикция, которая в сочетании с растягивающими напряжениями, образующимися в процессе быстрого затвердевания при вытягивании из расплава, приводит к осевой магнитной анизотропии. При перемагничивании таких проводов в продольном направлении наблюдается почти прямоугольная петля гистерезиса и генерируется узкий сигнал электрического напряжения, имеющий в спектре гармоники высших порядков. Так как на высоких частотах подавляется обычный шум и  $1/f$  шум, то появляется возможность детектировать такие гармоники с высокой точностью, что предложено использовать в различных сенсорных системах [7–9].

Другой тип аморфных микропроводов, приготовленных из сплавов на основе кобальта, имеет отрицательную магнитострикцию и циркулярную магнитную анизотропию. В результате при перемагничивании в осевом магнитном поле наблюдается наклонная кривая намагничивания с незначительным гистерезисом и высокой магнитной восприимчивостью. В этих материалах проявляется МИ эффект — очень большое изменение высокочастотного импеданса микропровода под влиянием продольного магнитного поля. Указанное свойство используется при разработке высокочувствительных магнитных датчиков для регистрации магнитных полей чрезвычайно низкой напряженности (см., например, обзор [10]).

При отсутствии магнитокристаллической анизотропии в аморфном состоянии основной вклад в формирование магнитной структуры вносят магнитострикционные взаимодействия. Это приводит к зависимости упомянутых выше эффектов от внешних механических напряжений, что используют для создания сенсоров различных механических величин [11,12]. Кроме того, магнитные и структурные свойства проводов можно регулировать с помощью специальных тепловых обработок, в результате которых происходит релаксация внутренних напряжений или индуцирование таковых в определенном направлении, а в некоторых случаях и частичная

кристаллизация изначально аморфного сплава [13–16]. Как правило, усилия исследователей направлены на достижение определенного максимального эффекта путем совершенствования магнитной структуры провода. Например, в работе [14] у микропроводов на основе  $\text{Co}$  с отрицательной магнитострикцией в результате отжига электрическим током достигается циркулярная магнитная анизотропия с малым разбросом осей анизотропии и небольшой константой анизотропии, что привело к рекордным изменениям МИ (около 600% на частоте 15 MHz).

В данной работе исследуется влияние внешних механических напряжений и отжига на магнитную структуру микропроводов на основе железо-кобальтовых сплавов, имеющих небольшую положительную магнитострикцию и осевую магнитную анизотропию. Под действием внешних напряжений константа магнитострикции изменяет знак, что сопровождается скачкообразным изменением типа анизотропии, кривой намагничивания и МИ. Это приводит к усилению зависимости амплитуд гармонического спектра и МИ от механических напряжений. Отжиг стабилизирует осевую магнитную структуру, однако в проводах с частичной кристаллизацией после отжига наблюдается сильная зависимость коэрцитивной силы от внешних напряжений и возникает асимметрия кривой намагничивания. Обнаруженные явления могут быть перспективными для разработки миниатюрных сенсоров механических напряжений.

## 2. Анализ статической намагниченности

Для анализа магнитной структуры в аморфных проводах с учетом различных напряжений может быть предложена следующая модель. Предполагается, что в проводе имеются осевые напряжения растяжения или сжатия  $\sigma_a = \sigma_i + \sigma_{ex}$ , где  $\sigma_i$  — внутренние напряжения, возникающие в процессе быстрого затвердевания аморфного сплава,  $\sigma_{ex}$  — внешние растягивающие напряжения. Также предполагается наличие внутренних скручивающих напряжений, которые соответствуют воздействию растяжения и сжатия  $\pm\sigma_t$ , направленных перпендикулярно друг другу и под углом в  $45^\circ$  по отношению к оси провода. Именно наличие скручивающих растяжений позволяет ввести понятие обобщенной геликоидальной магнитной анизотропии и описать с его помощью возможный переход от осевой к циркулярной анизотропии под действием внешних растяжений. Магнитная энергия  $U_m$  записывается в виде

$$U_m = -K \cos^2 \theta - \frac{3}{2} \lambda \sigma_a \cos^2 \theta - \frac{3}{2} \lambda \sigma_t \left[ \cos^2 \left( \theta - \frac{\pi}{4} \right) - \cos^2 \left( \theta + \frac{\pi}{4} \right) \right]. \quad (1)$$

Здесь  $K$  — константа одноосной анизотропии, которая не связана с магнитострикционными взаимодействиями,

$\theta$  — угол между намагниченностью и осью провода,  $\lambda$  — константа магнитострикции, которая для аморфных сплавов может существенно зависеть от растягивающих напряжений [17–19]

$$\lambda(\sigma_{ex}) = \lambda(0) - \beta \sigma_{ex}. \quad (2)$$

Параметр  $\beta$  находится в пределах  $(1-6) \cdot 10^{-10} \text{ МПа}^{-1}$ . Аналогичные эффекты зависимости магнитострикции от механических напряжений были обнаружены в нанокристаллических сплавах [20].

После несложных преобразований, выражение (1) можно записать в виде, характерном для одноосной анизотропии

$$U_m = -|\tilde{K}| \cos^2(\alpha - \theta), \quad (3)$$

где  $\alpha$  — угол наклона легкой оси анизотропии к оси провода,  $\tilde{K}$  — эквивалентная константа одноосной анизотропии

$$\tilde{K} = \frac{K + (3/2)\lambda\sigma_a}{\cos(2\tilde{\alpha})}, \quad \tilde{\alpha} = \frac{1}{2} \arctg \frac{3|\lambda\sigma_t|}{|K + (3/2)\lambda\sigma_a|}. \quad (4)$$

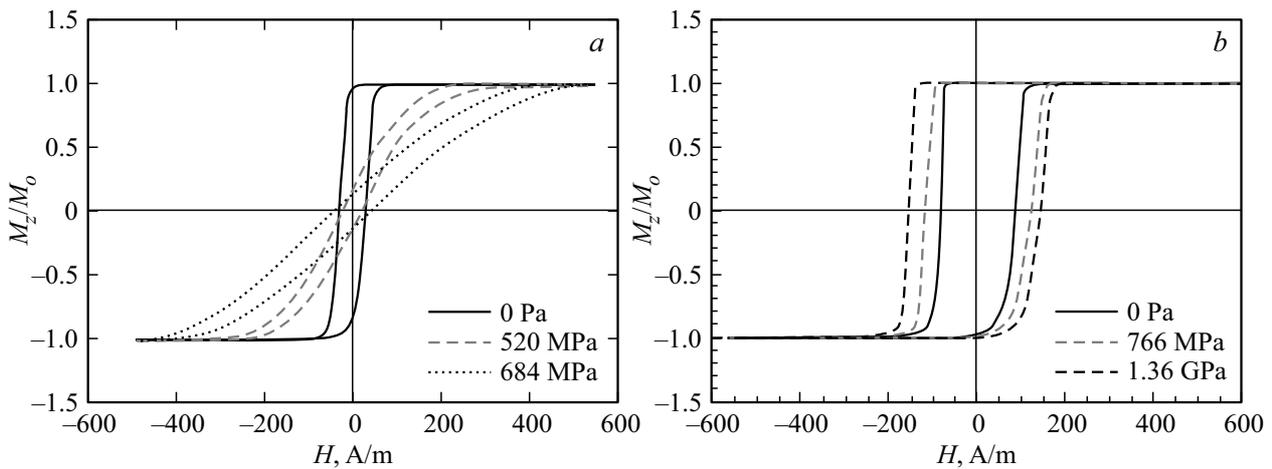
Угол  $\alpha$  в уравнении (3) определяется следующим образом

- a)  $K + (3/2)\lambda\sigma_a > 0, \alpha = \tilde{\alpha},$
- b)  $K + (3/2)\lambda\sigma_a = 0, \alpha = 45^\circ, \tilde{K} = 3\lambda\sigma_t,$
- c)  $K + (3/2)\lambda\sigma_a < 0, \alpha = 90^\circ - \tilde{\alpha}.$  (5)

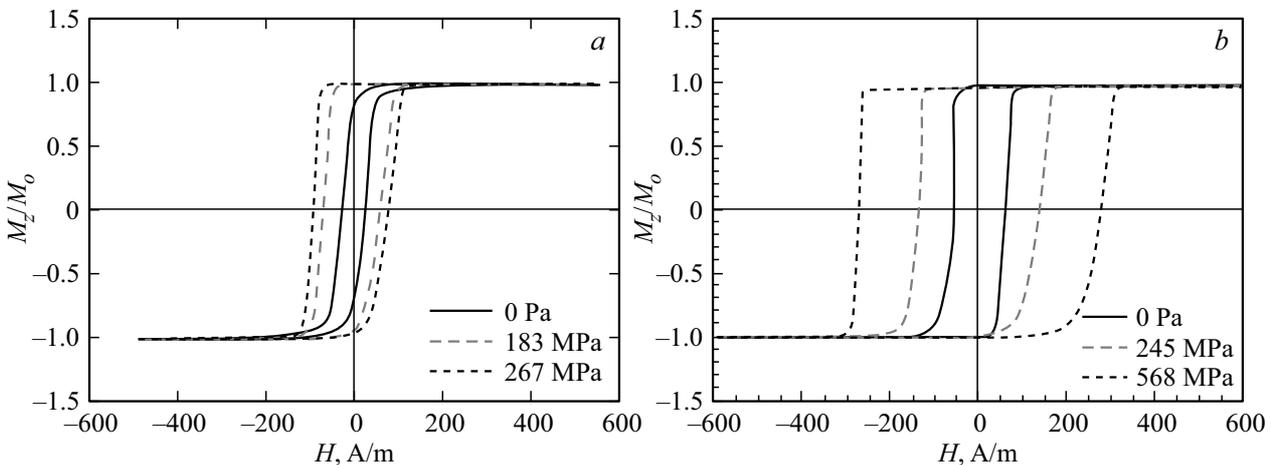
При положительных значениях констант магнитной анизотропии  $K$  и магнитострикции  $\lambda$  угол  $\alpha < 45^\circ$ , и легкая ось анизотропии близка к оси провода, если  $\sigma_i > \sigma_t$ . При изменении знака магнитострикции под действием  $\sigma_{ex}$  и выполнении условия  $K - (3/2)\lambda\sigma_a > 0$  легкая ось анизотропии приближается к циркулярному направлению. Одновременно с этим меняется характер кривых намагничивания: прямоугольная петля преобразуется в наклонную, область гистерезиса значительно уменьшается.

## 3. Материалы и методики измерений

Исследовались микропровода в стеклянной оболочке [21] состава  $\text{Co}_{71}\text{Fe}_5\text{B}_{11}\text{Si}_{10}\text{Cr}_3$  с различной геометрией: общим диаметром 29.5 и 41.5  $\mu\text{m}$  и толщиной металлического сердечника 23.9 и 36.3  $\mu\text{m}$ , обозначаемые в дальнейшем как образцы № 1 и 2 соответственно. Для сплава выбранного состава в аморфном состоянии характерна почти нулевая магнитострикция, порядка  $10^{-8}$ – $10^{-7}$  [22,23]. При исследовании влияния механических напряжений к проводам прикладывались нагрузки до 80 g (что соответствует механическому напряжению в более тонком образце 1 GPa). Для модификации магнитной структуры провода отжигались при температуре 573 K в течение 60 min.



**Рис. 1.** Влияние растягивающего напряжения на петлю гистерезиса аморфного микропровода  $\text{Co}_{71}\text{Fe}_5\text{B}_{11}\text{Si}_{10}\text{Cr}_3$  в стеклянной оболочке (образец № 1) при осевом намагничивании: *a*) в исходном состоянии; *b*) после отжига при 573 К в течение 60 min.



**Рис. 2.** Влияние растягивающего напряжения на петлю гистерезиса микропровода  $\text{Co}_{71}\text{Fe}_5\text{B}_{11}\text{Si}_{10}\text{Cr}_3$  в стеклянной оболочке (образец № 2) при осевом намагничивании: *a*) в исходном состоянии, *b*) после отжига при 573 К в течение 60 min (частичная кристаллизация).

Структурные параметры проводов исследовались методом дифференциальной сканирующей калориметрии (ДСК). Измерения проводились в атмосфере Ar при скорости нагрева 10 К/мин с помощью высокочувствительного калориметра Netzsch DSC 204 F1 Phoenix. Температуры Кюри ( $T_c = 637$  К) и кристаллизации ( $T_{cr} = 787$  К) проводов были определены по графику ДСК с помощью стандартных приложений.

Процессы намагничивания проводов исследовались индукционным методом с использованием двух миниатюрных дифференциальных катушек с внутренним диаметром 3 мм. Частота тока в намагничивающих катушках составляла 500 Hz, максимальная амплитуда намагничивающего поля — 1000 А/м. Для построения петли гистерезиса индуцированный электрический сигнал оцифровывался и интегрировался как функция магнитного поля. Высшие гармоники в индуцированном при перемагничивании сигнале напряжения детектировались

с помощью селективного усилителя (Signal Recovery 5210) и функциональных генераторов. Зависимость высокочастотного импеданса от магнитного поля исследовалась в диапазоне частот 1–100 МГц с помощью векторного анализатора цепей (Hewlett-Packard 8753E) путем измерения параметра S12 (коэффициента передачи) в цепи, содержащей микропровод в специально разработанной микроволновой полосковой ячейке.

#### 4. Результаты и обсуждение

Исследование кривых ДСК показывает, что оба типа проводов изначально обладали в основном аморфной структурой, а их кристаллизация проходит в два этапа. При этом на графиках для образца большего диаметра (№ 2) в области кристаллизации наблюдаются два широких пика, что свидетельствует о его частичной

(около 15%) кристаллизации в исходном состоянии. Это приводит к различным значениям константы магнитострикции:  $1.2 \cdot 10^{-8}$  и  $1.7 \cdot 10^{-6}$  в образцах № 1 и 2 соответственно. В исходном состоянии и в отсутствие внешних механических напряжений оба образца имеют почти прямоугольную петлю гистерезиса (рис. 1, *a* и 2, *a*) с небольшой коэрцитивностью (около 25 А/м), что обусловлено осевой анизотропией, характерной для  $\lambda > 0$ . Под воздействием внешних механических напряжений кривая намагничивания для образца № 1 резко меняется и становится наклонной, если  $\sigma_{ex} > 200$  МПа. Это можно объяснить изменением знака константы магнитострикции и переходом магнитной анизотропии от осевого типа к циркулярному, как следует из уравнений (4) и (5). С другой стороны, магнитные свойства образца № 2 под действием внешних механических напряжений не претерпевают существенных изменений, так как в нем характер магнитной анизотропии не изменяется.

Отжиг при температуре  $T_{an} = 573$  К, значительно меньшей, чем температура кристаллизации, приводит к стабилизации осевой анизотропии и усилению бистабильных свойств, как видно из рис. 1, *b* и 2, *b*. Можно предположить, что частичная релаксация внутренних

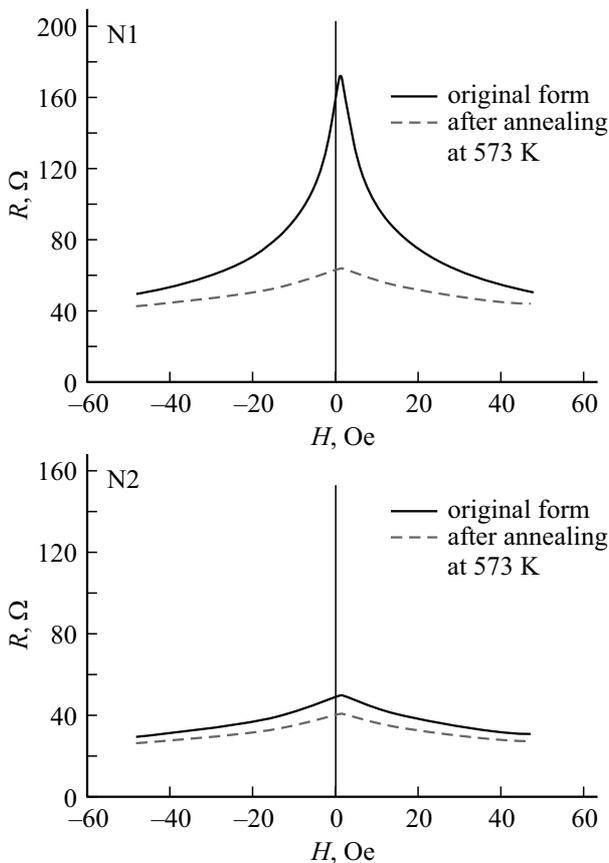
напряжений при отжиге приводит к увеличению константы магнитострикции. Об этом также свидетельствует поведение кривых гистерезиса под нагрузкой для образца № 1, которые характеризуются бистабильностью и отличаются только небольшим увеличением коэрцитивной силы, т.е. в таких проводах изменения типа анизотропии не происходит. Интересно отметить, что для образца № 2 после отжига наблюдается весьма чувствительное поведение коэрцитивности по отношению к  $\sigma_{ex}$ . Видно также, что при увеличении  $\sigma_{ex}$  кривые намагничивания становятся асимметричными. В этом случае сказывается влияние частичной кристаллизации, степень которой могла возрасти при отжиге, и различие поведения кристаллических и аморфных областей при их намагничивании [24].

Интересно сравнить поведение МИ в обоих типах образцов до и после отжига, так как это дает более полное представление о характере изменения анизотропии. Зависимости МИ от магнитного поля представлены на рис. 3. Для обоих типов проводов импеданс имеет максимум в нулевом поле, что характерно для систем с осью анизотропии, параллельной высокочастотному току и внешнему магнитному полю [6]. Значение импеданса в максимуме определяется магнитной восприимчивостью, которая на невысоких частотах (порядка десятков МГц) увеличивается с уменьшением константы анизотропии. Как видно из рис. 3, после отжига значение импеданса уменьшается приблизительно в 3 раза для образца № 1 и совсем незначительно изменяется для образца № 2. Таким образом, в первом случае происходит столь значительное усиление одноосной анизотропии, что внешние напряжения не могут оказать существенного влияния на поведение намагниченности.

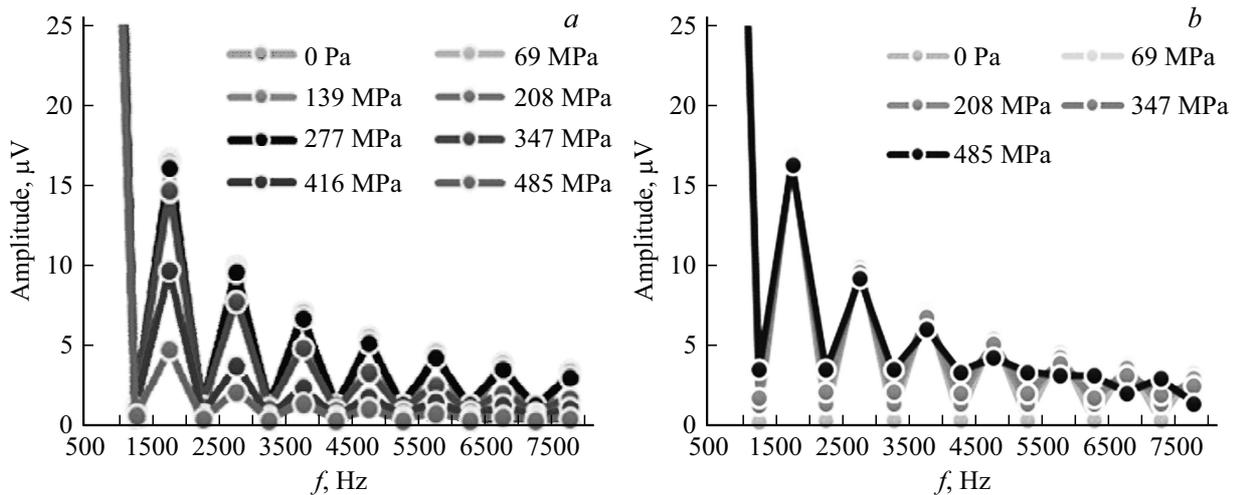
## 5. Ферромагнитные микропровода как сенсоры механических напряжений

При перемагничивании бистабильных микропроводов генерируется узкий сигнал напряжения, имеющий в спектре гармоники высоких порядков. Амплитуда гармоник может зависеть от внешних параметров, таких как деформация, механическое напряжение, температура. Следовательно, подобные провода, установленные на поверхности изделий либо размещенные внутри материалов, могут использоваться в качестве датчиков с дистанционным опросом. Можно было бы предположить, что при наличии зависимости коэрцитивности от внешних факторов подобное поведение должны проявлять также и амплитуды высших гармоник. Однако, как показывает опыт, гармонический спектр слабо зависит от величины коэрцитивности и определяется типом кривых квазистатического намагничивания.

Как видно из рис. 4, *a* наибольшие изменения в гармоническом спектре под действием механических напряжений наблюдаются для образца № 1 в исходном состоянии. Так, под действием нагрузки в 485 МПа амплитуда



**Рис. 3.** Зависимость действительной части импеданса микропроводов  $\text{Co}_{71}\text{Fe}_3\text{B}_{11}\text{Si}_{10}\text{Cr}_3$  (аморфного № 1 и частично кристаллизованного в результате отжига № 2) от магнитного поля в исходном состоянии и после отжига при 573 К в течение 60 min. Частота тока возбуждения 50 МГц.



**Рис. 4.** Зависимость амплитуды высших гармоник от приложенного растягивающего напряжения для аморфного микропровода (образец № 1): *a*) в исходном состоянии, *b*) после отжига при 573 К в течение 60 min.

3-й гармоники изменяется в 3 раза, а амплитуда 5-й гармоники — в 4 раза. Такое поведение обусловлено изменением типа кривых намагничивания при изменении знака магнитострикции. После отжига кривые намагничивания слабо изменяются при воздействии нагрузки, а соответственно слабо меняется и гармонический спектр. Это подтверждает вывод о том, что изменение гармонического спектра проводов в аморфном состоянии обусловлено именно изменением магнитострикции под действием механических напряжений.

Интересно отметить, что после отжига в спектре появляются четные гармоники, что обусловлено асимметрией кривых намагничивания (рис. 4, *b*). Их амплитуды пропорциональны внешним механическим напряжениям. Наиболее значительно этот эффект выражен в частично кристаллизованном микропроводе (образец № 2 после отжига), процессы перемагничивания которого обнаруживают сильную асимметрию при увеличении  $\sigma_{ex}$ .

Изменение знака магнитострикции под действием нагрузки усиливает зависимость микроволнового импеданса от  $\sigma_{ex}$ , что также может быть использовано в сенсорных приложениях. Провод конечной длины ведет себя как симметричная антенна, параметр релаксации которой зависит от внешних факторов из-за модуляции импеданса. При переходе частоты возбуждения в микроволновую область основной вклад в МИ вносит изменение статической намагниченности под действием внешних факторов. Как видно из рис. 1, *a*, зависимость магнитострикции от внешней нагрузки приводит к соответствующей зависимости ориентации намагниченности, что и обеспечивает чувствительность МИ к изменению  $\sigma_{ex}$ .

## 6. Заключение

В работе было изучено влияние внешних механических напряжений и отжига на процессы намагничивания

и магнитоимпеданс в аморфных и частично кристаллизованных микропроводах состава  $\text{Co}_{71}\text{Fe}_5\text{B}_{11}\text{Si}_{10}\text{Cr}_3$ , имеющих положительную магнитострикцию. Показано, что при увеличении нагрузки магнитострикция проводов в аморфном состоянии изменяет знак, что приводит к резкому изменению типа магнитной анизотропии и поведения кривых намагничивания. Это обуславливает высокую чувствительность гармонического спектра индуцированного сигнала напряжения и магнитоимпеданса к внешней нагрузке. Влияние отжига при температурах, меньших температуры кристаллизации, усиливает осевую анизотропию, и при любых допустимых внешних механических напряжениях кривые намагничивания имеют бистабильный характер. Однако при увеличении нагрузки кривые намагничивания становятся асимметричными, а в гармоническом спектре появляются четные гармоники, амплитуды которых пропорциональны приложенным напряжениям. Обнаруженные эффекты могут быть перспективными для разработки миниатюрных встраиваемых сенсоров механических напряжений.

## Список литературы

- [1] M. Vazquez, H. Chiriac, A. Zhukov, L. Panina, T. Uchiyama. Phys. Status Solidi A **208**, 493 (2011).
- [2] A. Zhukov, V. Zhukova. Magnetic properties and applications of ferromagnetic microwires with amorphous and nanocrystalline structure. Nova Science Publishers, N.Y. (2009).
- [3] R. Varga, K.L. Garcia, M. Vazques. Phys. Rev. Lett. **94**, 017201 (2005).
- [4] M. Ipatov, N.A. Usov, A. Zhukov, J. González. Physica B **403**, 379 (2008).
- [5] L. Panina, K. Mohri. Appl. Phys. Lett. **65**, 1189 (1994).
- [6] D.P. Makhnovskiy, L.V. Panina, D.J. Mapps. Phys. Rev. B **63**, 144424 (2001).
- [7] K.G. Ong, M. Paulose, C.A. Grimes. Sensors **3**, 11 (2003).

- [8] D. Markhnovskiy, N. Fry, A. Zhukov. *Sensor Actuators A* **166**, 133 (2011).
- [9] S.A. Baranov. *Surf. Eng. Appl. Electrochem.* **49**, 189 (2013).
- [10] K. Mohri, Y. Honkura, L.V. Panina, T. Uchiyama. *J. Nanosci. Nanotechnology* **12**, 7491 (2012).
- [11] K. Mohri, T. Uchiyama, L.P. Shen, C.M. Cai, L.V. Panina. *Sensors Actuators* **91**, 1–2, 85 (2001).
- [12] N. Bayri, S. Atalay. *J. Alloy Comp.* **381**, 1–2, 245 (2004).
- [13] C. Appino, C. Beatrice, P. Tiberto, F. Vinai. *J. Magn. Magn. Mater.* **215–216**, 6, 349 (2000).
- [14] L. Kraus, Z. Frait, K.R. Pirota, H. Chiriac. *J. Magn. Magn. Mater.* **254–255**, 1, 399 (2003).
- [15] J. Liu, F. Qin, D. Chen, H. Shen, H. Wang, D. Xing, M.-H. Phan. *J. Sun. J. Appl. Phys.* **115**, 17, 17A326 (2014).
- [16] V. Zhukova, A. Talaat, M. Ipatov, A. Zhukov. *IEEE Transactions Magn.* **50**, 1 (2014).
- [17] H. Szymczak. *J. Magn. Magn. Mater.* **67**, 2, 227 (1987).
- [18] J.M. Barandiarán, A. Hernando, V. Madurga, O.V. Nielsen, M. Vazquez, H. Vazquez-Lopez. *Phys. Rev. B* **35**, 5066 (1987).
- [19] A. Zhukov, M. Churyukanova, S. Kaloshkin, V. Sudarchikova, S. Gudoshnikov, M. Ipatov, A. Talaat, J.H. Blanco, V. Zhukova. *J. Electronic Mater.* **45**, 1, 226 (2016).
- [20] G. Herzer, S. Flohrer, C. Polak. *IEEE Trans. Magn.* **46**, 2, 341 (2010).
- [21] H. Chiriac, T.A. Ovari. *Prog. Mater. Sci.* **40**, 333 (1996).
- [22] M.M. Salem, M.G. Nematov, A. Uddin, L.V. Panina, M.N. Churyukanova, A.T. Morchenko. *J. Phys. Conf. Ser.* (2017). In press.
- [23] М.М. Салем, М.Г. Неъматов, А. Уддин, Л.В. Панина, А.Т. Морченко, В.А. Скиданов. *МЭС-2016. VII Всерос. научно-техн. конф. Сб. тр.* **4**, 207 (2016).
- [24] N.A. Buznikov, C.G. Kim, C.O. Kim, S.S. Yoon. *Phys. Met. Metallography* **99**, 1, S69 (2005).