Fe 基纳米微晶粉末的磁性与巨磁阻抗效应

赵振杰 F. Bendjaballah 蒋可玉 阮建中 杨燮龙*

(华东师范大学物理系光谱学与波谱学教育部重点实验室, 上海 200062. * 联系人, E-mail: phy2@ecnu.edu.cn)

摘要 研究了不同温度退火的 $\text{Fe}_{73.5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$ 合金粉末的宏观及微观磁性, 并报道纳米微晶粉末的巨磁阻抗效应. 实验结果表明, 510°C 退火粉末具有最佳软磁性能, 而样品的纵向驱动阻抗效应 (longitudinal driven giant magnetoimpedance, 简称 LDGMI) 变化的大小不仅与其磁性能有关, 与电性能也密切相关, 600°C 退火样品得到的最大阻抗变化为 52.2%.

关键词 纳米晶 巨磁阻抗效应 Mössbauer 谱

1992 年, Mohri 等人^[1]首先在 Co 基非晶丝中发现巨磁阻抗效应, 只要在室温和弱磁场 ($80\sim 800\text{ A}\cdot\text{m}^{-1}$) 下就可以观察到材料的交流阻抗变化 $\Delta Z/Z > 90\%$, 其幅度比 Fe/Cr 和 Co/Ag 多层膜观察到的巨磁电阻 (giant magnetoresist, GMR) 效应高 1 个数量级, 为研制高灵敏传感器件开辟了新的途径. 然后, 人们很快在同样为高磁导率和低磁致伸缩系数的 Fe 基纳米微晶薄带、膜和丝中观察到磁阻抗效应^[2~5].

关于 Fe 基纳米微晶粉末的磁性能曾有报道^[6,7]. 一般来讲, 软磁粉末与薄带及膜相比, 软磁性能明显下降, 磁导率降低而矫顽力增大, 这是由于磁粉的填充密度较低, 晶粒之间通过界面的耦合作用受到限制引起的. 如果将粉末先在高压下压制成形后再退火, 会使磁性能得以改善. 尽管粉末的巨磁阻抗效应至今没有报道, 但由于它可以解决应用过程中由带、丝和膜样品形状所造成的局限性, 也便于器件的微型化和集成化, 所以研究粉芯的巨磁阻抗特性很有必要. 本文将研究铁基非晶粉末由不同温度退火处理的磁特性, 并研究其纵向驱动方式下的巨磁阻抗特性, 为下一步的应用研究打下基础.

1 实验

用单辊法喷制 $\text{Fe}_{73.5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$ 薄带, 而后经过破碎制得非晶粉末, 将非晶粉末分别在氮气保护下在 $480\sim 600^\circ\text{C}$ 范围内退火 40 min. 利用磁滞回线及 Mössbauer 谱确定最佳退火温度, 并观察不同退火态的磁阻抗谱.

样品的磁滞回线采用美国 EG&G 公司的 PAR4500 型振动样品磁强计测得. 室温 Mössbauer 谱

测量用的仪器由美国 Canberra 公司的 S40 型多道分析仪和国产的等加速仪组成. 放射源为 $5.55 \times 10^8\text{ Bq}$ 的 $^{57}\text{Co}(\text{Pd})$, 速度由室温 $\alpha\text{-Fe}$ 谱标定. 样品的纵向驱动磁阻抗曲线在 HP4294A 型阻抗分析仪上测得, 测量时将 Fe 基微粉样品放入线圈内组成一个阻抗元件, 当线圈通有交变电流时, 对样品产生了一个交流的纵向驱动场, 外加的直流磁场由电磁铁提供, 最大可达 $208\text{ kA}\cdot\text{m}^{-1}$. 所有数据均在室温下测得.

2 结果与讨论

图 1 是 Fe 基非晶粉末样品退火前后的磁滞回线, 可以发现退火后样品饱和磁化强度增大, 插图为样品的矫顽力随退火温度的变化曲线. 可以看出, 所有样品均为软磁材料, 且矫顽力的数值是先减小后增大, 510°C 退火样品矫顽力最小, 表明在此温度下退火得到的样品纳米晶粒和剩余非晶相有最合适的体积分数比, 使晶粒和非晶相之间有较强的磁耦合作用, 样品有最小的磁晶各相异性和磁致伸缩系数, 从而使样品有最佳软磁性能. 这与薄带略有不同, 薄带是 540°C 退火样品的软磁性能最好^[3].

图 2 是非晶样品及在不同温度下退火样品的 Mössbauer 谱, 非晶样品 (As-cast) 用一套展宽的谱线拟合, 其他退火样品用 5 套亚谱来拟合部分晶化样品的 Mössbauer 谱, 其中 4 套 6 线谱对应纳米晶 $\alpha\text{-FeSi}$ 的 DO_3 结构, 另一套展宽的谱线对应剩余非晶相. 尽管 480°C 退火样品开始出现纳米微晶, 但我们的结果不明显, 其 Mössbauer 谱仍为非晶谱线. 随退火温度提高, 剩余非晶相逐渐减少, 而纳米微晶所占百分数逐渐增加, 从 510°C 到 600°C , 纳米

图 1 $\text{Fe}_{73.5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$ 粉末样品的磁滞回线
插图为矫顽力 H_c 随退火温度 T_a 的变化曲线

晶从 34%增至 90%。一般来讲, 纳米晶所占体积分数为 30%~40%时, 样品具有最佳软磁性能, 这就证实了上面的结论, 510°C 退火的微粉样品具有最佳软磁性能。

图 3 是不同热处理样品在纵向驱动方式下的巨磁阻抗曲线, 测量频率 $f = 1\text{ MHz}$, 交流驱动电流为 $I = 1\text{ mA}$, 图中看出阻抗有 40%~52%的变化. 插图为最大阻抗变化随样品热处理温度的变化曲线. 样品阻抗随外场变化表现出共同的特征, 即均随外场单调下降, 在 $20\text{ kA} \cdot \text{m}^{-1}$ 前变化显著, 而后变化缓慢, 最后达到饱和. 在外场中磁化过程包括畴壁移动和磁矩转动. 低场时, 材料磁化以畴壁移动为主, 而且从实验结果来看在 $20\text{ kA} \cdot \text{m}^{-1}$ 处基本完成, 磁场再增大时, 磁矩转动也起作用. 但由于材料的磁晶各向异性场很大, 磁化过程变得缓慢, 反应到磁阻抗曲线上, 就是先变化显著后变化缓慢。

480°C 退火样品阻抗变化较小, 是因为此时纳米晶刚刚开始生长, 会增大样品内部的应力分布, 因而 GMI 变小. 510°C 退火样品的软磁性能最好, 但 GMI 随热处理温度升高仍继续增大, 直至 600°C 退火样品出现最大值 52.2%. Knobel 曾在纳米微晶丝巨磁阻抗效应的研究中观察到同样的现象^[4]. 用电磁学中的趋肤效应可以解释 GMI 效应, 而趋肤深度与材料的磁导率和电导率均密切相关, 故而可以认为, 软磁

图 2 不同热处理 $\text{Fe}_{73.5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$ 粉末样品的 Mössbauer 谱
 I 为相对吸收

图3 不同热处理 Fe_{73.5}Cu₁Nb₃Si_{13.5}B₉ 粉末样品的阻抗随外磁场的变化
插图为最大阻抗变化与热处理温度的关系(1 MHz, 1 mA)

微粉的巨磁阻抗不仅与磁性能有关，与其电性能也有关。

比起薄带、细丝和薄膜来，粉末的巨磁阻抗效应如下特征：

- (i) 巨磁阻抗随样品热处理温度变化不明显；
- (ii) 观测粉末样品的巨磁阻抗效应，需要施加更大的外磁场。这是由于粉末样品各向异性场很大，要让样品的磁矩排列有序，需要较大的外场，这也可从前面的磁滞回线上看到。尽管热处理后，样品中生成纳米晶，由于晶粒和非晶相之间的磁耦合作用会使磁各向异性减小^[5]，但从实验结果来看，这种减小对粉末样品的作用仍较小。

(iii) 阻抗变化对外场的灵敏度与薄带、细丝和薄膜相比，明显降低，但与巨磁阻效应(GMR)相比，灵敏度还是要高得多，仍有应用价值。

综上所述，我们研究了 Fe 基纳米微晶粉末的微观及宏观磁性，并在粉末样品中观察到巨磁阻抗效应，预期这种效应在今后的实际应用中将发挥作用。

致谢 本工作为国家“九五”攀登计划资助和上海市重点科技项目(批准号：99JC14017)。

参 考 文 献

- 1 Mohri K, Kohzawa T, Kawashima K, et al. Magneto-induced effect in amorphous wires. IEEE Trans Magn, 1992, 28: 3150~3152
- 2 Sommer R L, Chien C L. Longituinal and transverse magneto-impedance in amorphous Fe_{73.5}Cu₁Nb₃Si_{13.5}B₉ films. Appl Phys Lett, 1995, 67: 3346~3348
- 3 Yang X L, Yang J X, Chen G, et al. Magneto-impedance effect in field- and stress-annealed Fe-based nanocrystalline alloys. J Magn Magn Mater, 1997, 175: 285~289
- 4 Knobel M, Sanchez M L, Gomez-Polo C, et al. Giant magneto-impedance effect in nanostructured magnetic wires. J Appl Phys, 1996, 79: 1646~1654
- 5 杨燮龙, 杨介信, 陈国, 等. Fe 基软磁纳米微晶磁致电阻抗效应的研究. 科学通报, 1997, 42(3): 257~259
- 6 Giri A K, Tello P G, Gonzalez J, et al. Mechanically ground Fe_{73.5}Cu₁Nb₃Si_{13.5}B₉: A soft magnetic material in powdered form. J Appl Phys, 1996, 79: 5479~5481
- 7 Mazaleyrat F, Varga L K. Ferromagnetic nanocomposites. J Magn Magn Mater, 2000, 215-216: 253~259

(2001-01-03 收稿, 2001-07-03 收修改稿)

<https://engine.scichina.com/doi/10.1360/csb2001-46-17-1420>