

05;06

# Особенности структуры и магнитные свойства аморфных сплавов на основе железа и кобальта в зависимости от условий нанокристаллизации

© Н.И. Носкова, В.В. Шулика, А.Г. Лаврентьев, А.П. Потапов, Г.С. Корзунин

Институт физики металлов УрО РАН,  
620219 Екатеринбург, Россия  
e-mail: phisica@imp.uran.ru

(Поступило в Редакцию 12 января 2005 г.)

Изучено влияние структурного состояния аморфных сплавов  $\text{Fe}_5\text{Co}_{70}\text{Si}_{15}\text{B}_{10}$ ,  $\text{Fe}_{60}\text{Co}_{20}\text{Si}_5\text{B}_{15}$ ,  $\text{Co}_{81.5}\text{Mo}_{9.5}\text{Zr}_9$  на их магнитные характеристики при разных условиях нанокристаллизации. Обнаружено влияние постоянного магнитного поля при термомагнитной обработке на процессы структурообразования на начальных стадиях расстекловывания аморфных сплавов. Установлена связь особенностей тонкой структуры исследованных расстекловывающихся аморфных сплавов с величиной поля смещения петли гистерезиса. Развита физическая модель представления о механизме возникновения смещенных петель гистерезиса в аморфных сплавах.

## Введение

Магнитные свойства магнитомягких материалов зависят от их структурного состояния, особенностей доменной структуры, степени стабилизации доменных границ. Изменяя структуру ферромагнитных материалов, можно управлять их магнитными свойствами. При исследовании структурного состояния аморфных и нанокристаллических сплавов широко используется метод электронной микроскопии. Дополнительную информацию о структуре сплавов можно получить, используя информативные параметры эффекта Баркгаузена [1,2].

В данной работе изучено влияние структурного состояния аморфных сплавов на основе Fe и Co на магнитные свойства и параметры эффекта Баркгаузена при разных условиях термических и термомагнитных обработок (ТМО). С этой целью исследовано влияние температуры отжига, скорости охлаждения, частоты магнитного поля при термообработке на магнитные характеристики. Установлена связь особенностей структуры аморфных сплавов (выделение дисперсных фаз) с величиной поля смещения петли гистерезиса  $\Delta H$ , где  $\Delta H$  — поле между центром петли гистерезиса и началом координат.

Определен химический состав дисперсных фаз. Развита физическая модель представления о механизме возникновения смещенных петель гистерезиса в аморфных сплавах.

## Экспериментальные результаты и их обсуждение

Аморфные ленты получены закалкой расплава на вращающийся медный диск (толщина ленты 20–25  $\mu\text{m}$ , ширина 5 mm). Образцы имели форму полос и тороидов. Исследование проводили на образцах из аморфных сплавов с различной магнитострикцией  $\text{Fe}_{60}\text{Co}_{20}\text{Si}_5\text{B}_{15}$  ( $\lambda_S \sim 30 \cdot 10^{-6}$ ),  $\text{Fe}_5\text{Co}_{70}\text{Si}_{15}\text{B}_{10}$  ( $\lambda_S \sim 0.5 \cdot 10^{-6}$ ) и  $\text{Co}_{81.5}\text{Mo}_{9.5}\text{Zr}_9$  с  $\lambda_S$ , близкой к нулю.

Для снятия закалочных напряжений образцы отжигали в вакууме при температурах от 300 до 450 °C. Затем проводили термомагнитные обработки в продольном магнитном поле различной частоты (постоянном, переменном  $f = 50 \text{ Hz}$  и высокочастотном  $f = 80 \text{ kHz}$ ). Некоторые образцы подвергали комплексной термомагнитной обработке, которая заключалась в отжиге образцов в определенном температурном интервале с одновременным наложением магнитных полей: постоянного и высокочастотного. Часть образцов закаливали в воде в переменном магнитном поле от температуры Кюри (скорость охлаждения была 5000 °/min).

Структуру аморфных лент исследовали методом просвечивающей электронной микроскопии на микроскопе JEM-200KX. Для просмотра в электронном микроскопе из лент сплава были приготовлены методом электролитической полировки фольги, в которых самые тонкие области достигали толщины 200–300 nm.

В качестве информативного параметра эффекта Баркгаузена была выбрана электродвижущая сила потока скачков Баркгаузена  $\varepsilon$ , усредненная за период перемагничивания. Визуально поток скачков Баркгаузена (СБ) наблюдали на экране осциллографа,  $\varepsilon$  измеряли на полосовых образцах накладным датчиком [3,4]. На тороидальных образцах измеряли статические петли гистерезиса, начальную магнитную проницаемость  $\mu_0$  и магнитные потери  $P_{0.2/20000}$ . Магнитные потери измеряли при частоте 20 kHz и индукции 0.2 Т. Их вычисляли по площади динамических петель гистерезиса, записанных стробоскопическим методом. Начальную магнитную

Таблица 1. Значения  $T_c$  и  $T_{cr}$  для аморфных сплавов

Сплав	$T_c, ^\circ\text{C}$	$T_{cr}, ^\circ\text{C}$
$\text{Fe}_5\text{Co}_{70}\text{Si}_{15}\text{B}_{10}$	380	480
$\text{Fe}_{60}\text{Co}_{20}\text{Si}_5\text{B}_{15}$	550	490
$\text{Co}_{81.5}\text{Mo}_{9.5}\text{Zr}_9$	462	540

Таблица 2. Магнитные свойства аморфных сплавов после различных обработок

Сплав	Обработки	$\mu_0$	$H_c$ , A/m	$P_{0.2/20000}$ , W/kg	$B_r/B_m$
$Fe_5Co_{70}Si_{15}B_{10}$	Отжиг	4500	1.3	30	0.3
	ТМО в постоянном поле	5200	0.6	37	0.97
	Быстрое охлаждение в переменном поле	45000	0.4	5	0.96
$Fe_{60}Co_{20}Si_5B_{15}$	Отжиг	1050	2.5	55	0.3
	ТМО в постоянном поле	1200	2.5	60	0.97
	Комплексная ТМО	7500	1.0	7	0.97
$Co_{81.5}Mo_{9.5}Zr_9$	Отжиг	1200	1.5	35	0.4
	ТМО в постоянном поле	3500	0.8	40	0.97
	Быстрое охлаждение в переменном поле	50000	0.3	5	0.96

проницаемость определяли при частоте 80 Hz в поле напряженностью 0.05 A/m. Дополнительно на полосовых образцах измеряли статические петли гистерезиса.

Основные характеристики сплавов — температура Кюри  $T_c$  и температура кристаллизации  $T_{cr}$  приведены в табл. 1. В табл. 2 приведены магнитные свойства сплавов  $Fe_{60}Co_{20}Si_5B_{15}$ ,  $Fe_5Co_{70}Si_{15}B_{10}$  и  $Co_{81.5}Mo_{9.5}Zr_9$  после термических и термомагнитных обработок при разных условиях:  $\mu_0$  — начальная магнитная проницаемость,  $H_c$  — коэрцитивная сила,  $P_{0.2/20000}$  — магнитные потери,  $B_r/B_m$  — коэффициент прямоугольности петли гистерезиса.

На рис. 1 представлены петли гистерезиса сплава  $Fe_5Co_{70}Si_{15}B_{10}$  в разных структурных состояниях: после отжига без магнитного поля, после ТМО в постоянном магнитном поле и ТМО в поле высокой частоты ( $f = 80$  kHz). После быстрой закалки на вращающийся диск образец имеет округлую симметричную петлю гистерезиса. После отжига без поля петля гистерезиса имеет перетянутую форму (рис. 1, *a*). После ТМО в постоянном магнитном поле становится прямоугольной, но появляется смещение петли по оси полей (рис. 1, *b*). ТМО в магнитном поле, изменяющемся с частотой 80 kHz, приводит к симметричной округлой петле гистерезиса с наименьшей коэрцитивной силой (рис. 1, *c*). ТМО в поле высокой частоты аналогична ТМО во вращающемся магнитном поле. Заметим, что закалка образца сплава  $Fe_5Co_{70}Si_{15}B_{10}$  в воде от температуры Кюри дает такой же результат, что и ТМО в высокочастотном поле.

На рис. 2 показана зависимость поля смещения  $\Delta H$  от температуры ТМО в постоянном поле для образцов сплава  $Fe_5Co_{70}Si_{15}B_{10}$ . Время отжига 1 h для всех образцов.

Видно, что ТМО до температур 250°C практически не смещает петлю гистерезиса. Обработки в интервале температур 250–350°C приводят к небольшому смещению петли (порядка  $1-2H_c$ ). При более высоких температурах ТМО смещение петли гистерезиса резко увеличивается и достигает значений  $10-15H_c$ .

Аналогичные результаты получены для сплавов  $Fe_{60}Co_{20}Si_5B_{15}$  и  $Co_{81.5}Mo_{9.5}Zr_9$ . Из приведенных экспериментальных данных следует, что форма петли гистерезиса, магнитные потери и проницаемость образцов зависят от условий обработки.

В образцах аморфных сплавов на основе Fe и Co после отжига без поля наблюдаются петли гистерезиса „перминварного“ типа. Перетянутые петли гистерезиса обусловлены стабилизацией доменной структуры, стремлением границ доменов вернуться в свои первоначальные положения, когда перемещающее поле снижается до нуля. О существовании в образце после отжига без поля стабилизированной доменной структуры говорят повышенные магнитные потери и низкие значения начальной магнитной проницаемости.

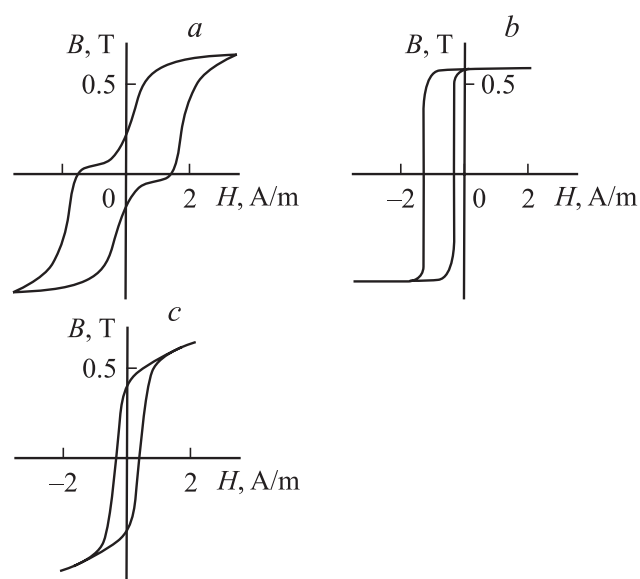
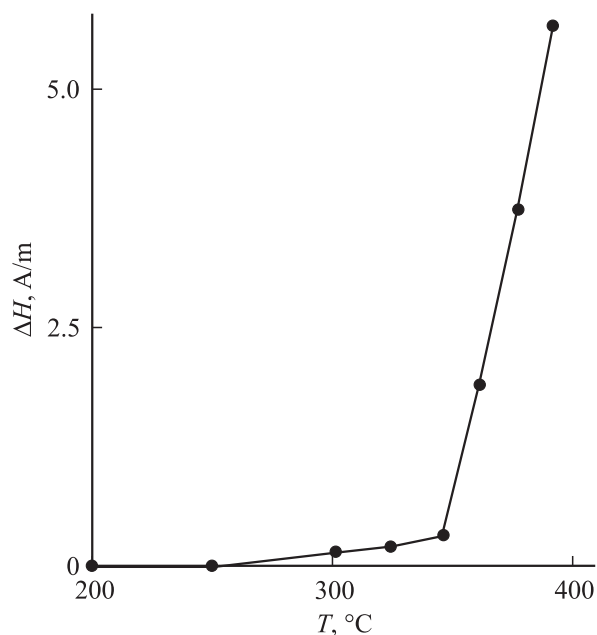


Рис. 1. Петли гистерезиса аморфного сплава  $Fe_5Co_{70}Si_{15}B_{10}$  после различных обработок: *a* — отжиг без магнитного поля; ТМО в постоянном магнитном поле; *c* — ТМО в поле высокой частоты.



**Рис. 2.** Зависимость поля смещения петли гистерезиса от температуры ТМО в постоянном поле для образцов сплава  $\text{Fe}_5\text{Co}_{70}\text{Si}_{15}\text{B}_{10}$ .

При термомагнитной обработке в поле, изменяющемся с частотой 80 kHz, перемагничивание аморфных лент осуществляется процессом вращения намагниченности. При отжиге образца в таком поле из-за отсутствия выделенного направления индуцированная анизотропия не возникает. Дестабилизация доменной структуры, происходящая при ТМО в высокочастотном поле, приводит к округлым симметричным петлям гистерезиса с низкой коэрцитивной силой, низким магнитным потерям и высоким значениям проницаемости.

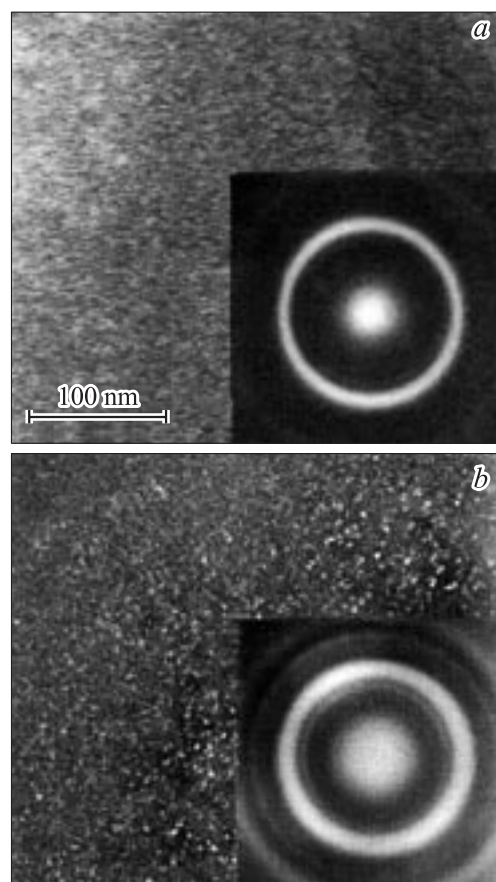
Наблюдаемые после термомагнитной обработки в постоянном магнитном поле прямоугольные смещенные по оси полей петли гистерезиса связаны, по-видимому, с наличием в аморфной матрице микрокристаллических высококоэрцитивных выделений, направление намагниченности в которых определяется направлением магнитного поля при ТМО. Проведенные нами структурные исследования подтверждают это предположение.

Структурные исследования аморфного сплава  $\text{Fe}_5\text{Co}_{70}\text{Si}_{15}\text{B}_{10}$  показали, что после ТМО в постоянном магнитном поле при температуре  $280^\circ\text{C}$  ( $\Delta H$  не превышает  $1-2H_c$ ) в матрице аморфного образца возникают дисперсные кластеры  $\alpha\text{-Co}$ . На темнопольном снимке структуры сплава после такой обработки высвечиваются кластеры в виде резких и нерезких точек; на картине микродифракции внутреннее кольцо размыто (рис. 3, *a*). После ТМО в постоянном магнитном поле при температуре  $380^\circ\text{C}$   $\Delta H$  составляет  $10-15H_c$ . В структуре сплава возникают дисперсные выделения (размером  $< 5\text{ nm}$ ) фаз  $\text{Co}_2\text{Si}$  и  $\text{Fe}_3\text{Si}$  (рис. 3, *b*), которые не наблюдались после

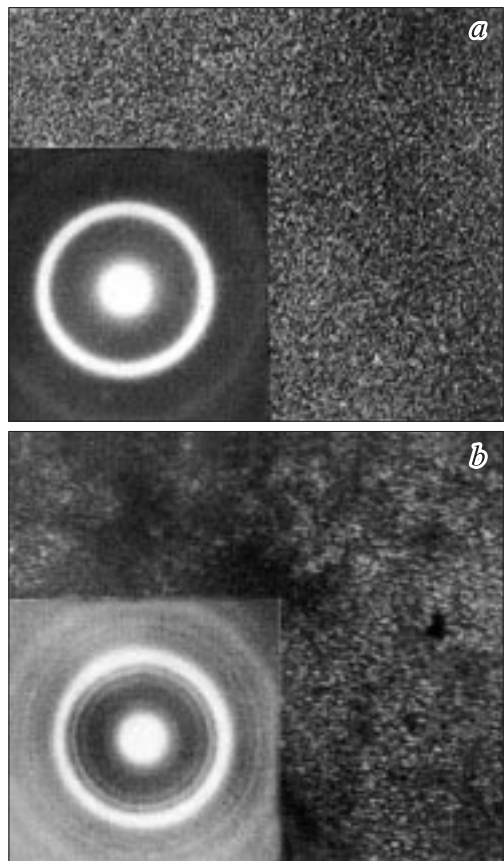
отжига при низкой температуре ( $280^\circ\text{C}$ ). Подчеркнем особенность этих фаз — выстраивание дисперсных выделений в цепочки.

На основе выполненных структурных исследований можно заключить, что в аморфном сплаве  $\text{Fe}_5\text{Co}_{70}\text{Si}_{15}\text{B}_{10}$  в интервале температур ТМО  $250-350^\circ\text{C}$  небольшое смещение петли гистерезиса связано главным образом с кластерами  $\alpha\text{-Co}$ , ведущими к стабилизации доменной структуры. Смещение петли гистерезиса образцов, отожженных при более высоких температурах, возникает, вероятно, из-за выделения дисперсных фаз с более высокой коэрцитивной силой, направление намагниченности в которых определяется направлением магнитного поля при ТМО.

Структурные исследования сплава  $\text{Fe}_{60}\text{Co}_{20}\text{Si}_5\text{B}_{15}$  после ТМО в постоянном магнитном поле при температуре  $400^\circ\text{C}$  показали, что в структуре этого сплава имеются также дисперсные выделения (размером  $< 5\text{ nm}$ ) фаз  $\text{Co}_2\text{Si}$  и  $\text{Fe}_3\text{Si}$ . Направление намагниченности в них определяется направлением магнитного поля при термомагнитной обработке. Отметим, что в результате этой обработки в сплаве наблюдаются значительные смещения петли гистерезиса ( $\Delta H \sim 10-15H_c$ ).



**Рис. 3.** Электронно-микроскопические снимки структуры аморфного сплава  $\text{Fe}_5\text{Co}_{70}\text{Si}_{15}\text{B}_{10}$  и картина микродифракции после различных ТМО: *a* — ТМО в постоянном поле при  $280^\circ\text{C}$ , *b* — ТМО в постоянном поле при  $380^\circ\text{C}$ .



**Рис. 4.** Электронно-микроскопические снимки структуры аморфного сплава  $\text{Co}_{81.5}\text{Mo}_{9.5}\text{Zr}_9$  и картина микродифракции после различных обработок: *a* — термообработка  $300^\circ\text{C}$ , 2 h; *b* — ТМО в постоянном поле  $450^\circ\text{C}$ , 1 h.

На рис. 4 представлены электронно-микроскопические снимки структуры аморфного сплава  $\text{Co}_{81.5}\text{Mo}_{9.5}\text{Zr}_9$  после термообработки при  $300^\circ\text{C}$  в течение 2 h (рис. 4, *a*) и ТМО в постоянном магнитном поле при температуре  $450^\circ\text{C}$  в течение 1 h (рис. 4, *b*).

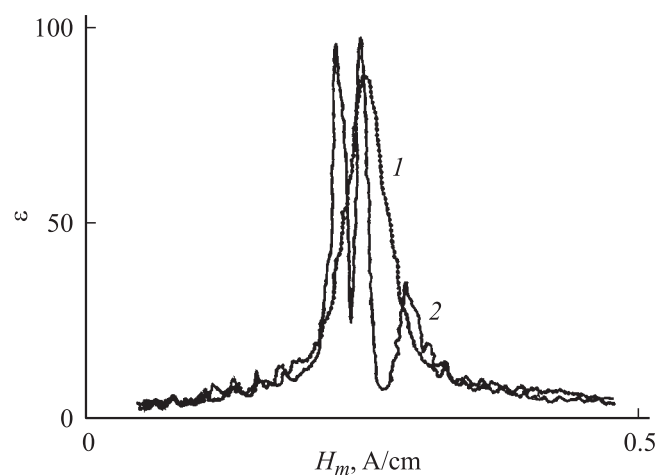
Электронно-микроскопические исследования показали, что отжиг при  $300^\circ\text{C}$  в течение 2 h оставляет матрицу в аморфном состоянии. Однако в картине микродифракции сплава обнаруживается помимо первого и второго диффузных гало одиночные и кольцевые дифракции, последние состоят из мелких рефлексов. В картине структуры сплава, полученной в режиме темного поля, обнаруживаются кристаллические фазы, расшифровка которых по величине межплоскостных расстояний показала, что их можно отнести к выделениям  $\alpha\text{-Co}$  и  $\beta\text{-Co}$  фаз размером менее 2 nm.

После отжига в постоянном магнитном поле при температуре  $450^\circ\text{C}$  в структуре сплава присутствуют дисперсные фазы  $\alpha\text{-Co}$ ,  $\beta\text{-Co}$ ,  $\text{Co}_2(\text{Mo,Zr})$ , но структура сплава после такой обработки в большинстве своем остается аморфной. Следует особо отметить влияние постоянного магнитного поля на процессы структуро-

образования на начальных стадиях расстекловывания аморфного сплава при термообработке. По-видимому, постоянное поле вызывает рост кластеров  $\alpha\text{-Co}$  и способствует образованию из них „колоний“ в виде линейных (внутри ленты) или трехмерных образований, которые идут от поверхности ленты.

На рис. 5 представлены осциллограммы огибающих амплитуд потока скачков Баркгаузена для образцов аморфного безметаллоидного сплава  $\text{Co}_{81.5}\text{Mo}_{9.5}\text{Zr}_9$  после термообработки при  $300^\circ\text{C}$  в течение 2 h (кривая 1) и ТМО в постоянном магнитном поле при температуре  $450^\circ\text{C}$  в течение 1 h (кривая 2). Сопоставление осциллограмм огибающих амплитуд потока СБ, приведенных на рис. 5, и электронно-микроскопических снимков структуры сплава  $\text{Co}_{81.5}\text{Mo}_{9.5}\text{Zr}_9$ , представленных на рис. 4, указывает на существование корреляции между структурой сплава и выбранным информативным параметром эффекта Баркгаузена, а именно: распределение СБ по полю по гауссовскому закону соответствует аморфной структуре (рис. 5, кривая 1), возникновение дисперсных выделений в сплаве приводит к появлению на осциллограмме нескольких областей критических полей старта, соответствующих выделениям в аморфной матрице (рис. 5, кривая 2).

После ТМО в постоянном поле на осциллограмме огибающей амплитуд потока СБ виден сдвиг по оси полей, что обусловлено смещением петли гистерезиса. На осциллограмме наблюдается несколько областей критических полей старта. Дисперсные фазы  $\alpha\text{-Co}$ ,  $\beta\text{-Co}$ ,  $\text{Co}_2(\text{Mo,Zr})$  в структуре этого сплава, направление намагниченности в которых определяется направлением постоянного магнитного поля при ТМО, приводят к увеличению амплитуды потока СБ с одновременным сужением областей критических полей старта.



**Рис. 5.** Осциллограммы огибающих амплитуд потока скачков Баркгаузена для сплава  $\text{Co}_{81.5}\text{Mo}_{9.5}\text{Zr}_9$  после различных обработок: 1 — термообработка  $300^\circ\text{C}$ , 2 h; 2 — ТМО в постоянном поле  $450^\circ\text{C}$ , 1 h.

## Заключение

Обнаружено влияние постоянного магнитного поля при термомагнитной обработке на процессы структурообразования на начальных стадиях расстекловывания аморфных сплавов. Установлена связь особенностей тонкой структуры исследованных расстекловывающихся аморфных сплавов с величиной поля смещения петли гистерезиса. Показано, что параметры эффекта Баркгаузена коррелируют с особенностями тонкой структуры расстекловывающихся аморфных сплавов.

Показано, что перемагничивание образцов, прошедших термомагнитную обработку в постоянном магнитном поле, осуществляется комплексом скачков Баркгаузена с близкими полями старта, что приводит к росту магнитных потерь.

Рекомендованы методы, предотвращающие смещение петли гистерезиса и значительно улучшающие магнитные свойства аморфных магнитомягких материалов: комплексная термомагнитная обработка, заключающаяся в одновременном действии высокочастотного и постоянного магнитных полей; быстрое охлаждение от температуры выше точки Кюри со скоростью  $5000^{\circ}\text{C}/\text{min}$  в переменном магнитном поле. Изменение магнитных свойств после этих обработок обусловлены возникновением одноосной магнитной анизотропии и дестабилизацией доменных границ.

Работа выполнена по интеграционному проекту совместно с Сибирским отделением РАН.

## Список литературы

- [1] Горкунов Э.С., Драгошанский Ю.Н., Миховски М. // Дефектоскопия. 2000. № 6. С. 3–38.
- [2] Горкунов Э.С., Шулика В.В., Лаврентьев А.Г., Потанов А.П., Корзунин Г.С. // ДАН. 2002. Т. 386. № 4. С. 468–470.
- [3] Корзунин Г.С., Лаврентьев А.Г. // Дефектоскопия. 1999. № 6. С. 24–38.
- [4] Глазер А.А., Шулика В.В., Потанов А.П. // ДАН СССР, 1992. Т. 324. № 6. С. 1191–1193.