

А.М. ПОГОРІЛИЙ,¹ Д.М. ПОЛІЩУК,¹ О.І. ТОВСТОЛИТКІН,¹ А.Ф. КРАВЕЦЬ,¹
В.О. ЗАМОРСЬКИЙ,¹ А.В. НОСЕНКО,² В.К. НОСЕНКО²

¹ Інститут магнетизму НАН України та МОН України

(Бульв. Акад. Вернадського, 36-б, Київ 03142; e-mail: kravets@imag.kiev.ua)

² Інститут металофізики ім. Г.В. Курдюмова НАН України

(Бульв. Акад. Вернадського, 36, Київ 03142)

РЕЗОНАНСНІ ВЛАСТИВОСТІ ТА МАГНІТНА АНІЗОТРОПІЯ НАНОКРИСТАЛІЧНОГО СПЛАВУ $Fe_{73}Cu_1Nb_3Si_{16}B_7$

УДК 537.622.4,
538.955, 537.635

Методом феромагнітного резонансу досліджено резонансні властивості нанокристалічних стрічок сплаву $Fe_{73}Cu_1Nb_3Si_{16}B_7$, відпалених електричним струмом під розтягувальним напруженням 180 МПа. Виявлено, що після відпалу в сплаві співіснують два типи феромагнітних областей з різною анізотропною поведінкою. Перша з них є аморфною і слабо магнітно анізотропна, тоді як друга область характеризується яскраво вираженою одноосною магнітною анізотропією і відповідає нанокристалічній фазі. Зроблено кількісні оцінки магнітних параметрів двох магнітних фаз сплаву.

Ключові слова: феромагнітний резонанс, аморфна стрічка, нанокристалічний сплав, магнітна анізотропія.

1. Вступ

Нині магнітно-м'які нанокристалічні сплави системи Fe–Nb–Cu–Si–B [1] широко використовуються в магнітопроводах різноманітних індуктивних компонентів (трансформаторів та дроселів). Відомо, що утворення в цих сплавах при термообробці нанокристалів α -Fe(Si) покращує їх магнітом'які властивості. Після дозованого відпалу об'ємна частка нанокристалічної фази в цих сплавах становить близько 80% при середньому розмірі нанокристалітів від 10 до 12 нм [1–5]. У сплавах цього типу можна змінювати форму петлі гістерезису, наводячи одноосну магнітну анізотропію як відпалом в зовнішньому магнітному полі [6–8], так і відпалом під розтягувальними напруженнями [9–12]. Магнітопроводи з вираженою магнітною анізотропією мають ряд переваг, основними з яких є високочастотна стабільність магнітної проникності [13, 17] і низькі втрати в найбільш широко використовуваній частотній області від 10 до 100 кГц [13–17]. Ці переваги привертають значний інтерес до умов і можливостей формування поперечної магнітної

анізотропії в нанокристалічних сплавах для отримання максимально високих магнітних характеристик. При цьому розширені магнітно-резонансні дослідження є необхідними для розуміння поведінки нанокристалічної та залишкової аморфної фази в нанокристалічних сплавах, сформованих після їх відпалу.

Швидкий нагрів аморфної стрічки зі сплаву $Fe_{73}Cu_1Nb_3Si_{16}B_7$ в процесі її ізотермічного відпалу електричним струмом призводить до наведення в ній магнітної анізотропії, поперечної до напрямку проходження струму [18]. Причина цього явища є слабо дослідженою. Однією із можливих причин цього може бути формування в процесі відпалу даного аморфного сплаву різних магнітних фаз з наведеною магнітною анізотропією в аморфній матриці.

Для виявлення таких фаз в даній роботі був застосований метод феромагнітного резонансу (ФМР), як такий, що дозволяє з високою ефективністю виявити наявність різних магнітних фаз в багатокомпонентних сплавах та отримати інформацію про магнітні параметри цих фаз. При цьому були досліджені резонансні властивості та зроблені кількісні оцінки константи магнітної анізотропії (K_u) нанокристалічного сплаву $Fe_{73}Cu_1Nb_3Si_{16}B_7$ після ізотермічного відпалу електричним струмом.

© А.М. ПОГОРІЛИЙ, Д.М. ПОЛІЩУК,
О.І. ТОВСТОЛИТКІН, А.Ф. КРАВЕЦЬ,
В.О. ЗАМОРСЬКИЙ, А.В. НОСЕНКО,
В.К. НОСЕНКО, 2019

2. Зразки та методика дослідження

Аморфний сплав $\text{Fe}_{73}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{16}\text{B}_7$ MELTA® ММ-11N (далі ММ-11N) у вигляді стрічки товщиною 20 мкм і шириною 10 мм був отриманий методом лиття плоского потоку розплаву. Сплав після плавлення в кварцовій трубці (температура розплаву 1400 °C) в захисній атмосфері вуглекислого газу планарно виливався під тиском 20 кПа через вузьку прямокутну щілину розміром $0,4 \times 10 \text{ мм}^2$ на відстані 0,2 мм на колесо із хромової бронзи 620 мм в діаметрі, яке оберталось із лінійною швидкістю 25 м/с. При цьому при надшвидкісному охолодженні розплаву утворювалась стрічка аморфного сплаву $\text{Fe}_{73}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{16}\text{B}_7$.

Для наведення магнітної поперечної анізотропії аморфна стрічка ММ-11N швидко кристалізувалась на повітрі за допомогою швидкісного нагрівання електричним струмом густиною 42 А/мм^2 протягом 3,7 с при одночасному розтягуванні з напруженням до 180 МПа вздовж осі стрічки.

Дослідження спектрів феромагнітного резонансу стрічок ММ-11N здійснювали при кімнатній температурі на частоті 9,45 ГГц (X-діапазон) з використанням спектрометра електронного парамагнітного резонансу ELEXSYS-E500 (Bruker BioSpin GmbH, Germany). Використання автоматичного гоніометра дозволило отримати кутові залежності резонансних полів за двох конфігурацій вимірювань (рис. 1). Ефективна намагніченість, M_{eff} , феромагнітних областей сплаву ММ-11N була розрахована з ФМР вимірювань з використанням системи рівнянь Кіттеля [19]:

$$\begin{aligned} \frac{\omega}{\gamma} &= H_{\perp} - 4\pi M_{\text{eff}}, \\ \frac{\omega}{\gamma} &= \sqrt{H_{\parallel}(H_{\parallel} + 4\pi M_{\text{eff}})}, \end{aligned} \quad (1)$$

де H_{\perp} і H_{\parallel} – відповідно, резонансні поля для перпендикулярної і паралельної орієнтацій магнітного поля відносно площини стрічки ММ-11N (виміряні в експерименті), ω – частота прикладеного надвисокочастотного магнітного поля, γ – гіромагнітне відношення. Величини H_{\perp} , H_{\parallel} , ω і γ були знайдені з експерименту. З аналізу напівширин ліній ФМР магнітних фаз була отримана інформація про магнітну і структурну неоднорідність кожної із фаз. При цьому брався до уваги той факт, що з ростом магнітної неоднорідності в сплаві ММ-11N напівширина ліній ФМР зростає.

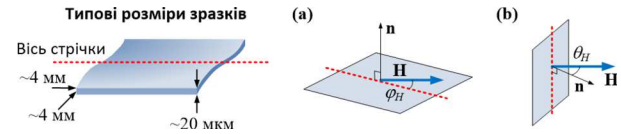


Рис. 1. Типові розміри зразків, досліджуваних на ФМР, та дві конфігурації вимірювань, коли поле \mathbf{H} прикладене в площині стрічки (а) та в площині нормалі \mathbf{n} до поверхні стрічки (б), перпендикулярно до осі вихідної стрічки ММ-11N (вісь стрічки паралельна напрямку прикладеного електричного струму при відпаді)

Слід зазначити, що формули Кіттеля строго застосовні лише для еліпсоїда, який однорідно намагнічений по об'єму і мікрохвильове поле в якому також однорідне. Для металевих магнетиків такі умови задовольняються, якщо глибина скін-шару перевищує товщину зразка [20]. Для зразків, виготовлених відповідно до процедури, описаної в даній роботі, але відпалених протягом часу в 3 рази довшого, питомий електричний опір дорівнює $1,16 \cdot 10^{-6} \text{ Ом} \cdot \text{м}$ [18]. Глибина скін-шару на частоті 9,45 ГГц становить у цьому випадку близько 18 мкм. Оскільки зазвичай менший час відпаду приводить до формування зразків із більшим питомим електричним опором [18], слід очікувати, що глибина скін-шару для зразків, що досліджуються в даній роботі, буде більшою за їх товщину (20 мкм), що робить коректним використання системи рівнянь Кіттеля (1) в даному випадку.

Отримані кутові залежності резонансних полів були охарактеризовані на основі ФМР формалізму Сміта–Бальєрса [21] з використанням виразу для вільної енергії феромагнітного сплаву:

$$F = \mathbf{M}\mathbf{H} - 0,5M H_{\text{ia}} \cos \varphi \sin \theta + 0,5M (4\pi M_{\text{eff}}) \cos^2 \theta, \quad (2)$$

де перший доданок – Зеєманівська енергія, другий – енергія одноосної анізотропії, третій – енергія анізотропії форми стрічки. При цьому значення ефективної намагніченості M_{eff} було отримане з використанням виразу (1).

3. Результати та їх обговорення

На рис. 2 наведено кутові залежності спектрів поглинання ФМР, отримані за орієнтації зовнішнього магнітного поля \mathbf{H} (а) в площині стрічки ММ-11N та (б) в площині нормалі до поверхні стрічки (див. рис. 1).

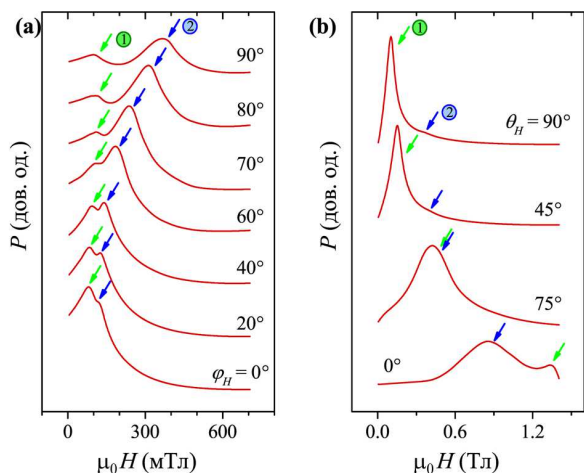


Рис. 2. Кутові залежності спектрів поглинання ФМР, отримані за орієнтації зовнішнього магнітного поля **H** (а) в площині стрічки ММ-11N та (b) в площині нормалі до поверхні стрічки (див. рис. 1)

На кутових залежностях спектрів ФМР, виміряних в площині стрічки ММ-11N (рис. 2, а), чітко спостерігаються дві лінії резонансного поглинання, які, очевидно, відповідають двом типам співіснуючих феромагнітних областей з різними магнітними властивостями: аморфній (ФМ1) та нанокристалічній (ФМ2). Різний характер кутових залежностей двох резонансних ліній вказує на те, що ці дві області мають кардинально різну магнітну анізотропію. Резонансне поле лінії 1 практично не залежить від орієнтації прикладеного магнітного поля, що свідчить про те, що область 1 є магнітно ізотропною. У той самий час, кутова залежність резонансного поля лінії 2 виявляє виражену 180° симетрію, що вказує на одноосну магнітну анізотропію для області 2. При цьому, легка вісь анізотропії співпадає із напрямком прикладеного електричного струму при відпалі (вісью стрічки). Таким чином, резонансна лінія 2 відповідає ФМ областям в нанокристалічній фазі (ФМ2), для яких й очікувалась виражена магнітна анізотропія. У свою чергу, лінія 1 відповідає магнітно-ізотропним аморфним областям (ФМ1).

На спектрах ФМР в “перпендикулярній” конфігурації (рис. 2, b) також спостерігаються дві резонансні лінії, позиції яких змінюються в залежності від орієнтації **H**. Виявлені кутові залежності зумовлені анізотропією форми, оскільки зразки ММ-11N були вирізані зі стрічки. Спектр $\theta_H = 90^\circ$ на

рис. 2, b відповідає спектру $\varphi_H = 90^\circ$ на рис. 2, а, що дозволяє встановити резонансні лінії в однозначну відповідність для двох конфігурацій вимірювання. Детальний аналіз зміщення ліній на спектрах в “перпендикулярній” конфігурації виявив обмін позиціями ліній 1 і 2, коли лінія 2 спостерігається при менших полях, ніж лінія 1 при куті $\theta_H = 0^\circ$. Оскільки резонансне поле пропорційне намагніченості зразка (див. вираз (1)), то така поведінка говорить про те, що області 2 мають меншу ефективну намагніченість, ніж області 1.

Різну відносну інтенсивність резонансних ліній, виявлену для двох конфігурацій вимірювання, слід пов’язати із різним коефіцієнтом поглинання двох ФМ областей у зразку ММ-11N в залежності від орієнтації магнітної компоненти НВЧ поля відносно площини стрічки – (i) перпендикулярної до площини для спектрів на рис. 2, а та (ii) в площині – на рис. 2, b. Тому інтенсивність резонансних ліній не можна використати для оцінки об’ємних часток відповідних областей. В свою чергу, рентгеноструктурні дані [18] свідчать про те, що нанокристалічна фаза, яка відповідає резонансній лінії 2, становить близько 75%.

На рис. 3 наведено кутові залежності резонансних полів ФМР двох виявлених резонансних ліній 1 і 2 для двох конфігурацій вимірювання. Залежності були отримані з використанням числового опису експериментальних спектрів Лоренціаном. Отримані кутові залежності резонансних полів були охарактеризовані на основі ФМР формалізму Сміта–Бальєрса (2). Розраховані кутові залежності резонансних полів показані на рис. 3 суцільними лініями. Розраховані залежності досить добре описують експериментальні результати.

Розрахунки показали, що кутові залежності резонансного поля лінії 2 в площині стрічки визна-

Магнітні параметри областей ФМ1 та ФМ2 стрічки сплаву ММ-11N

Параметр	Область ФМ1	Область ФМ2
M_{eff} , кА/м	1300	810
B_{eff} , Тл	1,63	1,02
K_u , кДж/м ³	–	21
K_u^* , кДж/м ³	1,8	1,8
g_{eff}	2,13	1,91

* Значення отримане з вимірювань петлі перемагнічування.

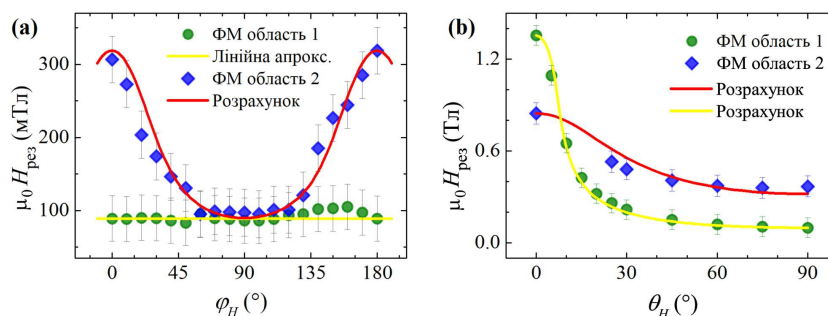


Рис. 3. Кутові залежності резонансних полів ФМР двох виявлених резонансних ліній 1 та 2, коли зовнішнє магнітне поле \mathbf{H} прикладене в площині стрічки ММ-11N (а) та в площині нормалі до поверхні стрічки (б) (див. рис. 1)

чаються магнітною анізотропією типу “легка вісь” (для порівняння, лінія 1 не виявляє чіткої анізотропії), а кутові залежності в “перпендикулярній” конфігурації – для обох ліній – анізотропією форми. Шляхом апроксимації розрахунків до експериментальних даних, були отримані значення ефективної намагніченості, $M_{\text{еф}}$, та ефективного поля одноосної анізотропії, $H_{\text{ца}}$, окремо для двох областей. Слід зазначити, що розрахунки на рис. 3, а і рис. 3, б виконані у комплексі і характеризуються однаковими параметрами для двох конфігурацій вимірювання.

На рис. 4 порівнюються отримані значення поля розмагнічування (магнітна індукція), $4\pi M_{\text{еф}}$, для двох ФМ областей та поля одноосної анізотропії, $H_{\text{ца}}$, отриманого для області ФМ2. Значно більше поле розмагнічування для області ФМ1 слід пов’язати із її значно більшою намагніченістю у порівнянні із областю ФМ2. В свою чергу, поле анізотропії $H_{\text{ца}}$, отримане для області ФМ2, можна перерахувати у константу одноосної анізотропії як $K_{\text{ц}} = 1/2\mu_0 M_{\text{еф}} H_{\text{ца}}$.

У таблиці порівнюються отримані значення ефективної намагніченості, $4\pi M_{\text{еф}}$, та магнітної індукції, $4\pi M_{\text{еф}}$, областей ФМ1 та ФМ2, а також значення константи анізотропії $K_{\text{ц}}$, отримані на основі вимірювань ФМР та вимірів динамічної петлі гістерезису. Значення $K_{\text{ц}} = 21$ кДж/м³, отримане з даних ФМР для областей ФМ2, не узгоджуються зі значенням $K_{\text{ц}} = 1,8$ кДж/м³, отриманим із динамічної петлі перемагнічування осердя, навитого зі стрічки, що досліджується. $K_{\text{ц}}$ в останньому випадку була розрахована по площі над кривою петлі перемагнічування (на частоті 1 кГц), шляхом чисельного інтегрування $H\Delta B$. Неузгодженість кіль-

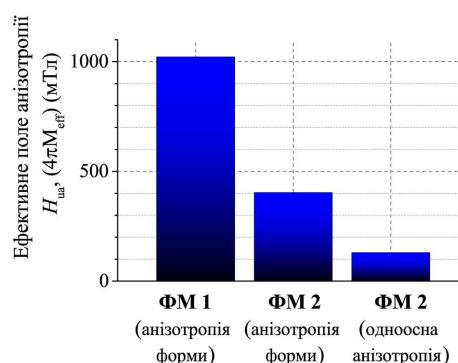


Рис. 4. Ефективні поля анізотропії феромагнітних фаз ФМ1 і ФМ2 стрічки сплаву ММ-11N

кісних оцінок, отриманих із резонансних і магнітометричних вимірювань, свідчить про складний магнітний стан сплаву і є предметом подальших досліджень.

4. Висновки

Методом феромагнітного резонансу досліджено резонансні властивості нанокристалічних стрічок сплаву $\text{Fe}_{73}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{16}\text{B}_7$, відпалених електричним струмом під розтягувальним напруженням 180 МПа. На кутових залежностях спектрів ФМР спостерігаються дві лінії резонансного поглинання, які відповідають двом типам феромагнітних областей з різною анізотропною поведінкою. Феромагнітні області першого типу є слабо анізотропними, тоді як області другого типу характеризуються яскраво вираженою одноосною магнітною анізотропією. На основі ФМР формалізму отримані магнітні параметри феромагнітних областей та зроблено висновок про те, що області першого ти-

пу відповідають аморфній, а області другого типу – нанокристалічній фазам, які одночасно співіснують у відпалених зразках аморфного сплаву.

Робота була виконана в рамках проєктів Національної академії наук України № 0119U100469 і № 0118U003265, та проєкту Відділення цільової підготовки Київського національного університету імені Тараса Шевченка при Національній академії наук України № 0119U101609.

1. Y. Yoshizawa, S. Oguma, K. Yamauchi. New Fe-based soft magnetic alloys composed of ultrafine grain structure. *J. Appl. Phys.* **64**, 6044 (1988).
2. K. Hono, K. Hiraga, Q. Wang, A. Inoue, T. Sakurai. The microstructure evolution of a $Fe_{73.5}Si_{13.5}B_9Nb_3Cu_1$ nanocrystalline soft magnetic material. *Acta Metall. Mater.* **40**, 2137 (1992).
3. V.V. Nemoshkalenko, L.E. Vlasenko, A.V. Romanova, A.P. Brovko, V.V. Maslov, V.K. Nosenko, Y.U. N. Petrov. Nanocrystal structure at the stage prior to crystallization of amorphous $Fe_{73.5}Si_{13.5}B_9Cu_1Nb_3$. *Metallofizika i Novejshie Tekhnologii (Ukraine)* **20**, 22 (1998).
4. V.V. Maslov, V.K. Nosenko, L.E. Tapanenko, A.P. Brovko. Nanocrystallization in FINEMETs. *Phys. Met. Metallogr.* **91**, 474 (2001).
5. R. Hono. Nanoscale microstructural analysis of metallic materials by atom probe field ion microscopy. *Mater. Sci.* **47**, 621 (2002).
6. G. Herzer. Anisotropies in soft magnetic nanocrystalline alloys. *J. Magn. Magn. Mater.* **294**, 99 (2005).
7. D. Azuma, R. Hasegawa, S. Saito, M. Takahashi. Effect of residual strain in Fe-based amorphous alloys on field induced magnetic anisotropy and domain structure. *J. Appl. Phys.* **113**, 17A339 (2013).
8. S. Flohrer, R. Schäfer, J. McCord, S. Roth, L. Schultz, F. Fiorillo *et al.* Dynamic magnetization process of nanocrystalline type wound cores with transverse field-induced anisotropy. *Acta Materialia.* **54**, 4693 (2006).
9. L. Kraus, K. Závěta, O. Heczko, P. Duhaj, G. Vlasák, J. Schneider. Magnetic anisotropy in as-quenched and stress-annealed amorphous and nanocrystalline $Fe_{73.5}Cu_1Nb_3Si_{13.5}B_9$ alloys. *J. Magn. Magn. Mater.* **112**, 275 (1992).
10. G. Herzer. Creep induced magnetic anisotropy in nanocrystalline Fe–Cu–Nb–Si–B alloys. *IEEE Trans. Magn.* **30**, 4800 (1994).
11. B. Hofmann, H. Kronmüller. Creep induced magnetic anisotropy in nanocrystalline $Fe_{73.5}Cu_1Nb_3Si_{13.5}B_9$. *Nanostruct. Mater.* **6**, 961 (1995).

12. G. Herzer, V. Budinsky, C. Polak. Magnetic properties of nanocrystalline FeCuNbSiB with huge creep induced anisotropy. *J. Phys.: Conf. Ser.* **266**, 012010 (2011).
13. T. Yanai, K. Takagi, K. Takahashi, M. Nakano, Y. Yoshizawa, H. Fukunaga. Fabrication of Fe-based ribbon with controlled permeability by Joule heating under tensile stress. *J. Magn. Magn. Mater.* **320**, e833 (2008).
14. T. Yanai, T. Ohya, K. Takahashi, M. Nakano, Y. Yoshizawa, H. Fukunaga. A new fabrication process of Fe-based ribbon with creep-induced anisotropy. *J. Magn. Magn. Mater.* **290–291**, 1502 (2005).
15. E. Csizmadia, L. K. Varga, Z. Palánki, F. Zámboreszky. Creep or tensile stress induced anisotropy in FINEMET-type ribbons? *J. Magn. Magn. Mater.* **374**, 587 (2015).
16. F. Alves. Flash stress annealings in nanocrystalline alloys for new inductive components. *J. Magn. Magn. Mater.* **226–230**, 1490 (2001).
17. H. Fukunaga, H. Tanaka, T. Yanai, M. Nakano, K. Takahashi, Y. Yoshizawa. High performance nanostructured cores for chock coils prepared by using creep-induced anisotropy. *J. Magn. Magn. Mater.* **242–245**, 279 (2002).
18. A. Nosenko, T. Mika, O. Rudenko, Y. Yarmoshchuk, V. Nosenko. Soft magnetic properties of nanocrystalline $Fe_{73}B_7Si_{16}Nb_3Cu_1$ alloy after rapid heating under tensile stress. *Nanoscale Res. Lett.* **10**, 136 (2015).
19. C. Kittel. On the theory of ferromagnetic resonance absorption. *Phys. Rev.* **73**, 155 (1948).
20. A.Ya. Blank, M.I. Kaganov. Ferromagnetic resonance and plasma effects in metals. *Sov. Phys. Uspekhi.* **10**, 536 (1968).
21. J. Smit, H.G. Beljers. Ferromagnetic resonance absorption in $BaFe_{12}O_{19}$, a highly anisotropic crystal. *Phillips Res. Rep.* **10**, 113 (1955).

Одержано 03.06.19

A.M. Pogorily, D.M. Polishchuk, A.I. Tovstolytkin,
A.F. Kravets, V.O. Zamorskyi, A.V. Nosenko, V.K. Nosenko

RESONANCE PROPERTIES AND MAGNETIC ANISOTROPY OF NANOCRYSTALLINE $Fe_{73}Cu_1Nb_3Si_{16}B_7$ ALLOY

S u m m a r y

Resonance properties of nanocrystalline ribbons of $Fe_{73}Cu_1Nb_3Si_{16}B_7$ alloy annealed with the use of an electric current under a tensile stress of 180 MPa have been studied within the ferromagnetic resonance method. Two kinds of ferromagnetic regions with different anisotropic behaviors that coexist in the alloy after the annealing are detected. One of them is amorphous and weakly magnetically anisotropic, whereas the other is characterized by a pronounced uniaxial magnetic anisotropy and corresponds to the nanocrystalline phase. Quantitative estimations of magnetic parameters in two magnetic phases of the alloy are made.