

## ЭЛЕКТРИЧЕСКИЕ И МАГНИТНЫЕ СВОЙСТВА

УДК 537.622.4

# РАСПРЕДЕЛЕНИЕ НАМАГНИЧЕННОСТИ В МОНОКРИСТАЛЛАХ ЖЕЛЕЗОКРЕМНИСТЫХ МАГНИТОМЯГКИХ СПЛАВОВ ДО И ПОСЛЕ ТЕРМИЧЕСКИХ ОБРАБОТОК

© 2024 г. Н. В. Ершов<sup>a,\*</sup>, Н. М. Клейнерман<sup>a</sup>, В. А. Лукшина<sup>a</sup>, А. В. Тимофеева<sup>a</sup>

<sup>a</sup>Институт физики металлов УрО РАН, ул. С. Ковалевской, 18, Екатеринбург, 620990 Россия

\*e-mail: nershov@imp.uran.ru

Поступила в редакцию 27.06.2024 г.

После доработки 31.08.2024 г.

Принята к публикации 03.09.2024 г.

Методом мессбауэровской спектроскопии определено распределение намагниченности в монокристаллических образцах кремнистого железа. Образцы, изготовленные в виде тонких дисков, подвергались термическим обработкам под действием магнитного поля или механического напряжения. При содержании 5 и 8 ат.% Si, образцы имели кубическую ( $\{100\}<001>$ ), а при 6 ат.% Si — гессовскую ( $\{011\}<100>$ ) ориентацию кристаллографических осей. Используя параметры подспектров, полученных в результате разложения мессбауэровских спектров сплавов, определены относительные доли магнитных моментов атомов железа, ориентированных параллельно осям легкого намагничивания  $<100>$ . Показано, что отжиг и охлаждение в ферромагнитном состоянии под внешним воздействием (поле или напряжение), приложенными вдоль плоскости образца, перераспределяет магнитные моменты в пользу легких осей, лежащих в его плоскости. Наибольший эффект достигается во время отжига в постоянном магнитном поле. В то же время имеется довольно большая доля намагниченности, ориентированная вне плоскости образца, что, возможно, объясняется действием размагничивающего фактора.

**Ключевые слова:** железокремнистые сплавы, монокристаллы, эффект Мессбауэра, распределение намагниченности, оси легкого намагничивания

**DOI:** 10.31857/S0015323024120107, **EDN:** II0EFC

### ВВЕДЕНИЕ

Железокремнистые сплавы с небольшим содержанием кремния являются базовыми ферромагнитными материалами для производства магнитопроводов различных машин и аппаратов, которые имеют продолжительную историю открытия, развития технологии промышленного производства, совершенствования эксплуатационных свойств [1]. Легирование железа кремнием способствует увеличению электросопротивления, повышению магнитной проницаемости и уменьшению коэрцитивной силы. С помощью процедуры, сочетающей холодную прокатку и отжиг, из железокремнистых сплавов могут быть изготовлены листы с довольно большими кристаллами. Плоскости (110) кристаллов параллельны плоскости листа, а лежащие в плоскости листа оси [001] кристаллов ориентированы вдоль направления прокатки [2]. Магнитные свойства такой стали отличаются низкой коэрцитивной силой и высокой максимальной

проницаемостью [3]. Последующее повышение качества электротехнических сталей связано с дальнейшим совершенствованием кристаллической ориентации [4], изолирующими покрытиями, термомагнитной или термомеханической обработкой.

Кристаллы железа и магнитомягких сплавов на его основе, обладающие объемно-центрированной кубической решеткой, характеризуются острой зависимостью магнитных свойств (например, намагниченности) от направления относительно кристаллографических осей — кристаллической магнитной анизотропией [5]. В кристаллах имеются оси легкого намагничивания (ОЛН), которые совпадают с кристаллическими осями тетрагонального типа  $<100>$ , вдоль которых работа намагничивания образца до насыщения, производимая внешним магнитным полем, минимальна. Направления вдоль пространственной диагонали куба  $<111>$  являются осями наиболее трудного намагничивания.

Если внешнее поле на образец не действует, то намагнченность в отдельных областях — доменах (размером порядка  $10^{-2}$  см<sup>3</sup>) направлена вдоль одной из ОЛН (спонтанная намагнченность). Домены разделены доменными стенками, толщина которых оценивается в пределах 10–100 нм. В сплавах наряду с магнитной кристаллической анизотропией имеет место наведенная магнитная анизотропия, от которой в большой степени зависят магнитные свойства и доменная структура [6–9]. Наведенная магнитная анизотропия (НМА) возникает вследствие отжига в магнитном поле (термомагнитная обработка — ТМО) или в поле механических напряжений (термомеханическая обработка — ТМехО). Направление наведенной магнитной анизотропии совпадает с одной из ОЛН — <100>, которая при отжиге и охлаждении составляла наименьший угол с направлением приложенного магнитного поля или растягивающей механической нагрузки. Наведенная магнитная анизотропия формируется в результате направленного ближнего упорядочения примесных атомов диффузионным путем при повышенных температурах в ферромагнитном состоянии, накладывается на кристаллическую и существенно меняет характер зависимости магнитных свойств от направления в кристалле. Вдоль направления наведенной магнитной анизотропии происходит рост остаточной магнитной индукции, понижение коэрцитивной силы, петля магнитного гистерезиса становится более прямоугольной [6].

Современные представления о природе наведенной магнитной анизотропии, основанные на гипотезе Нееля, Танигучи и Ямamoto [10, 11] и прямых структурных наблюдениях одноосных анизотропных дефектов в монокристаллах сплава железо-кремний, изложены в статье [12]. Там же приведено распределение намагнченности вдоль осей легкого намагничивания <100> в монокристаллических образцах сплавов, содержащих 5, 6 и 8 ат.% кремния, предварительно подвергнутых закалке в воде после выдержки в парамагнитном состоянии и отжигу в ферромагнитном состоянии. Распределение намагнченности определяли оригинальным способом, используя параметры отдельных подспектров — компонент (секстетов), полученные в результате дискретной аппроксимации мессбауэровских спектров [13, 14].

Мессбауэровские спектры монокристаллических образцов сплавов железа, подвергнутых разным термическим обработкам [13–15], аппроксимировали минимальным набором секстетов. Для каждого секстета с помощью программы SPEC-TR, входящей в специализированный пакет программ MSTOOLS [16], варьировали параметры,

моделирующие сдвиги, сверхтонкое поле, интенсивности и ширины линий поглощения, в том числе отношение интенсивностей двух крайних линий поглощения (второй к первой —  $A_2/A_1$  или пятой к шестой —  $A_5/A_6$ ). Интенсивности секстетов были распределены по соответствующим значениям сверхтонкого поля (СТП) на ядре поглощающего атома <sup>57</sup>Fe. Анализ этих распределений показал, что во всех монокристаллах, независимо от условий термической обработки, в первой координационной сфере атома железа имеются два атома кремния, расположенные на концах ребра ОЦК-ячейки. Атомы кремния в таких парах являются вторыми соседями, оси пар Si—Si ориентированы вдоль осей <100>, которые являются осями легкого намагничивания. Было показано, что не все атомы кремния составляют пары, и их доля в Si—Si-парах зависит от концентрации кремния. При 5 ат.% Si она составляет около 60%, при 6 ат.% — 70% и при 8 ат.% — 90%. При термических обработках количество пар атомов кремния не изменяется, поэтому предполагается, что Si—Si-пары образуются в парамагнитном состоянии, а во время отжига в ферромагнитном состоянии перераспределяются между ОЛН в пользу одной из них, составляющей наименьший угол с направлением приложения магнитного поля или механического растяжения.

В настоящей работе используется определенный в результате подгонки мессбауэровских спектров параметр  $A_2/A_1$  (или  $A_5/A_6$ ), величина которого зависит от ориентации намагнченности относительно оси пучка  $\gamma$ -квантов. Как показано в [12], с помощью элементарных вычислений можно установить относительные объемные доли намагнченности, которая ориентирована вдоль каждой из трех осей <100> в монокристаллах сплавов до и после термических обработок в магнитном поле или в поле механического напряжения. Выяснить, какие условия термических обработок и насколько влияют на распределение намагнченности параллельно осям легкого намагничивания, как лежащим в плоскости тонкого образца, так и выходящим из нее. Установить влияние условий термических обработок на распределение намагнченности параллельно осям легкого намагничивания, как лежащим в плоскости тонкого образца, так и выходящим из нее. Предложить объяснение полученных результатов в соответствии с современными представлениями о формировании атомной структуры и магнитных свойств железокремнистых сплавов.

## ОБРАЗЦЫ И МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

В настоящем исследовании объектами служили монокристаллические образцы сплавов

$\alpha$ -FeSi ( $C_{\text{Si}} = 0.05, 0.06$  и  $0.08$ ), которые ранее использовали для проведения рентгеноструктурного анализа [17–21] и мессбауэровских исследований ближнего порядка в расположении атомов кремния в решетке  $\alpha$ -Fe [13–15]. Монокристаллические образцы с кубической ориентацией (КО) осей  $<100>$  и плоскости (100) в виде тонких дисков (толщина 0.3 мм, диаметр 8–9 мм) вырезали из монолитных кристаллов (5 и 8 ат.% Si), выращенных по методу Бриджмена. Образцы с «госсовской» ориентацией (ГО) осей  $<100>$  и плоскости (110) (толщина 0.35 мм, диаметр 10 мм) вырезали из зерен рекристаллизации листовой промышленной стали (6 ат.% Si). Для рафинирования и снятия напряжений все образцы проходили отжиг в вакууме  $5 \times 10^{-6}$  мм рт. ст. при температуре  $1050^{\circ}\text{C}$  в течение 4 ч, после которого содержание углерода не превышало 0.005 вес.% [22]. Ориентация образцов с КО и ГО относительно осей  $<100>$  показана на рис. 1.

Образцы были подвергнуты термическим обработкам, перечисленным в таблице 1.

Три образца с разным содержанием кремния закаливали в воду после 10-минутной выдержки в парамагнитном состоянии при температуре  $850^{\circ}\text{C}$  ( $T_{\text{an}} > T_c$ ) со скоростью охлаждения около  $400^{\circ}\text{C}/\text{с}$ . Два образца: с ГО и 6 ат.% Si и с КО и 8 ат.% Si отжигали в течение часа в ферромагнитном состоянии при температуре  $450^{\circ}\text{C}$  ( $T_{\text{an}} < T_c$ ), после чего медленно охлаждали в печи. Несколько образцов было подвергнуто термомагнитной обработке — ТМО, заключавшейся в отжиге при  $450^{\circ}\text{C}$  на воздухе в течение нескольких минут и охлаждении до комнатной температуры в присутствии постоянного (dc) или переменного (ac) магнитного поля, направленного параллельно плоскости образца вдоль ОЛН ( $\parallel [001]$ ) или перпендикулярно ей  $[001]$  ( $\perp [001]$ ). Напряженность постоянного магнитного поля — 15 кЭ, переменного — около 6 кЭ при частоте 50 Гц. Образцы с КО кристаллографических осей подвергали ТМО в постоянном вращающемся (rot) вокруг оси [010]

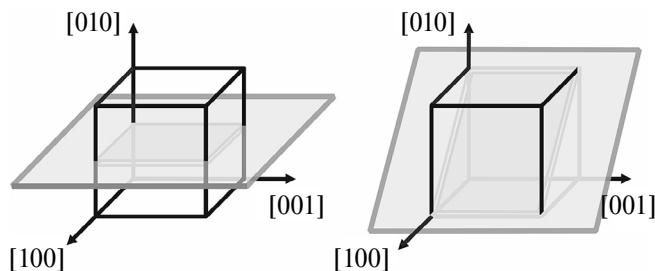


Рис. 1. Ориентация плоскости тонкого монокристаллического образца (показана серой плоскостью) относительно кристаллографических осей  $<100>$  и кубической элементарной ячейки (куб из широких черных линий) в случае КО образцов — слева и в случае ГО — справа.

магнитном поле со скоростью 8 оборотов в минуту. Образцы с ГО кристаллографических осей — термомеханической обработке — TMexO: отжиг и охлаждение под действием растягивающей нагрузки (напряжение  $\sim 20$  МПа), приложенной вдоль ( $\parallel [001]$ ) и перпендикулярно ( $\perp [001]$ ) оси [001].

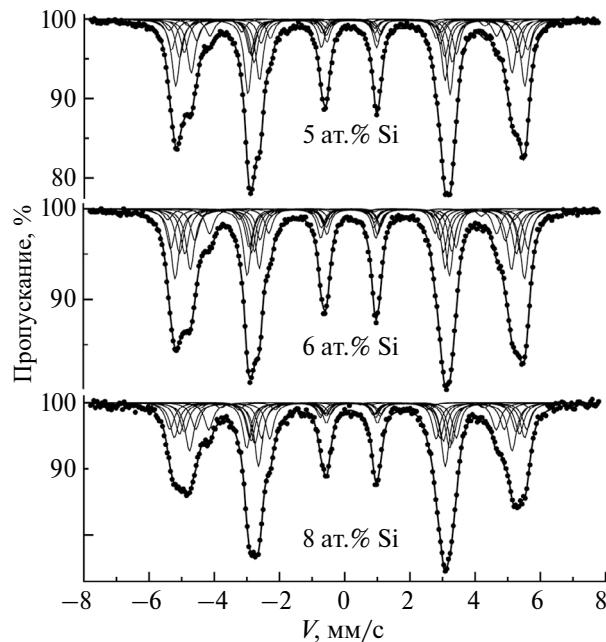
После термических обработок толщину образцов уменьшали механической и химической полировкой до оптимальной для мессбауэровских исследований. Мессбауэровские спектры были измерены на спектрометре ЯГРС-4М в режиме постоянных скоростей. Источником служил  $^{57}\text{Co}$  в матрице Cr. Количество каналов на спектр составляло 512. Спектры всех образцов были приведены ранее в работах [13–15]. Здесь на рис. 2 показаны спектры трех монокристаллических образцов, предварительно подвергнутых термической обработке в постоянном магнитном поле.

Для измерения мессбауэровских спектров во внешнем постоянном магнитном поле был подготовлен один образец сплава с ГО кристаллографических осей и содержанием кремния 6 ат.%. Он был медленно охлажден после четырехчасового рафинирующего отжига при  $1050^{\circ}\text{C}$  и не был подвергнут другим термическим обработкам. Магнитное поле прикладывали в плоскости образца параллельно ОЛН [001] и под углом  $45^{\circ}$  и  $90^{\circ}$  к ней. Напряженность поля составляла 5 кЭ.

Информацию о сверхтонких взаимодействиях на ядрах  $^{57}\text{Fe}$  извлекали подгонкой экспе-

Таблица 1. Содержание кремния, текстура и термические обработки исследованных монокристаллических образцов сплавов железо–кремний

Содержание Si, ат.%	Ориентация	Термическая обработка
6	ГО	закалка в воде
6	ГО	отжиг при $450^{\circ}\text{C}$
6	ГО	ac TMO $\parallel [001]$
6	ГО	ac TMO $\perp [001]$
6	ГО	dc TMO $\parallel [001]$
6	ГО	dc TMO $\perp [001]$
6	ГО	TMexO $\parallel [001]$
6	ГО	TMexO $\perp [001]$
5	КО	закалка в воде
5	КО	dc TMO $\parallel [001]$
5	КО	rot TMO
5	КО	ac TMO $\parallel [001]$
8	КО	закалка в воде
8	КО	отжиг при $450^{\circ}\text{C}$
8	КО	dc TMO $\parallel [001]$
8	КО	rot TMO



**Рис. 2.** Мессбауэровские спектры (сплошные кружки) и результат (сплошная линия) их подгонки подспектрами (тонкие линии) образцов сплава железо–кремний с 5, 6 и 8 ат.% Si, подвергнутых ТМО в постоянном магнитном поле и, в следствие этого, имеющих одноосную наведенную магнитную анизотропию [14].

риментальных спектров суперпозицией подспектров (компонент спектра) с помощью программы SPECTR, входящей в программный пакет MSTOOLS [16]. При подгонке секстетов варьировали: изомерный и квадрупольный сдвиги, сверхтонкое магнитное поле, ширины линий поглощения, относительные площади подспектров и отношения площадей линий ( $A_2/A_1$  или  $A_5/A_6$ ). Предполагали равенство вероятностей эффекта Мессбауэра для ядер  $^{57}\text{Fe}$  в различных неэквивалентных позициях (локальных окружениях) и однородность ближнего порядка в расположении атомов во всем объеме образца.

Результаты математической обработки спектров были представлены в виде столбцов на гистограммах распределения относительных площадей отдельных подспектров по СТП [13–15]. Интерпретация таких распределений была выполнена на основе результатов как экспериментальных [23, 24], так и теоретических исследований [25–27] зависимости СТП от количества атомов кремния в ближайших координационных сферах атома железа и результатами анализа спектров разупорядоченных  $\alpha$ -FeSi-сплавов, приведенных в работах [13, 14].

## РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТА

Для полноты изложения на рис. 2 приведены мессбауэровские спектры образцов сплава, со-

держащих 5, 6 и 8 ат.% Si, подвергнутых термо-магнитной обработке — отжиг и охлаждение в постоянном магнитном поле, приложенном вдоль оси  $<100>$ , лежащей в плоскости образца (таблица 1 — dc ТМО  $\parallel [001]$ ). Не прибегая к математической обработке экспериментальных спектров, видно, что в каждом из них второй и пятый пики гораздо интенсивнее крайних (первого и шестого). Следовательно, отношения площадей  $A_2/A_1$  или  $A_5/A_6$  явно превосходит единицу, что указывает на то, что угол между направлением потока гамма-квантов и направлением магнитного поля в монокристаллических образцах превосходит  $45^\circ$ , когда  $A_2/A_1 = A_5/A_6 \approx 0.44$ , и приближается к  $90^\circ$  —  $A_2/A_1 = A_5/A_6 \approx 1.33$  [28].

Распределение интенсивностей подспектров по значениям сверхтонкого поля на ядре атома железа, которое детально проанализировано в работах [13, 14], показало, что в спектрах сплавов имеется довольно большая доля локальной координации 6:2, которая соответствует двум атомам кремния в первой координационной сфере атома железа. Такую пару Si–Si составляют атомы кремния, расположенные по ребру ОЦК-ячейки, вдоль ОЛН  $<100>$  и являющиеся вторыми ближайшими соседями, что соответствует ближнему порядку  $B2$ -типа. При термической обработке в ферромагнитном состоянии происходит перестройка ориентации осей пар Si–Si под действием магнитного поля или поля механического напряжения. Анизотропия пространственного распределения областей с локальным упорядочением  $B2$ -типа в монокристаллах железокремнистых сплавов с 5 и 6 ат.% кремния была обнаружена методом рентгеновской дифракции [19]. Показано, что протяженность  $B2$ -областей вдоль оси НМА больше, а в поперечном направлении меньше, потому что большинство  $B2$ -кластеров преимущественно ориентируется вдоль этой оси. Таким образом, получено прямое доказательство направленного упорядочения пар атомов кремния в сплавах железо–кремний, объясняющее возникновение и стабильность одноосной магнитной анизотропии [29].

В любом монокристаллическом образце сплава железа с кремнием, имеющим ОЦК-решетку, имеется три ОЛН  $<100>$ , вдоль которых стремится ориентироваться вектор намагниченности. Более того, намагниченность ориентируется вдоль одной из таких осей в пределах одного домена. Между доменами имеются доменные стени, в пределах которых происходит разворот намагниченности и реализуются другие ориентации локальной намагниченности. Но их влиянием на намагниченность в образце в данном рассмотрении можно пренебречь из-за их относительной тонкости, которая составляет 10–100 нм при дли-

не ребра домена около  $10^6$  нм, и, следовательно, из-за их малой доли в общем объеме образца.

Для осей легкого намагничивания кристаллов, распределение намагниченности в которых рассматривается здесь (рис. 1), характерны следующие значения угла  $\theta$  — угла между направлением потока гамма-квантов и осями  $<100>$  и соответствующих отношений площадей линий в секстетах  $A_2/A_1$  или  $A_5/A_6$  [28]. Если магнитные моменты атомов железа ориентированы параллельно кристаллографическим осям (рис. 1), а гамма-кванты падают нормально к плоскости образца, то для этих условий характерны следующие значения угла  $\theta$  между направлением потока гамма-квантов и осями  $<100>$  и соответствующие отношения площадей линий в секстетах  $A_2/A_1$  или  $A_5/A_6$  [28]. В случае кристалла с КО ось [010] параллельна потоку гамма-квантов, угол  $\theta = 0^\circ$  и отношение  $A_2/A_1 = A_5/A_6 = 0$ . Перпендикулярные потоку оси [100] и [001] в случае КО кристалла и ось [001] в случае кристалла с ГО составляют с ним угол  $\theta = 90^\circ$  и отношение  $A_2/A_1 = A_5/A_6 = 1.33(3)$ . Если при ГО кристалла намагниченность параллельна одной из осей [100] и [010], угол  $\theta = 45^\circ$ , а отношение  $A_2/A_1 = A_5/A_6 = 0.44(4)$ . Перечислены только те углы  $\theta$ , которые соответствуют возможным ориентациям осей  $<100>$  изучаемых кристаллов относительно пучка гамма-квантов.

Пусть  $v_1$ ,  $v_2$  и  $v_3$  — относительные доли объемов образца, которые намагниченны параллельно осям [100], [010] и [001], приведенным для кристаллов образцов с КО и ГО осей на рис. 1 соответственно. Эти доли подчинены условию — сумма трех долей составляет весь объем образца:

$$v_1 + v_2 + v_3 = 1.$$

Если из экспериментального спектра определить отношение интегральных интенсивностей  $\alpha = A_2/A_1 = A_5/A_6$ , то для вычисления относительной объемной доли областей образца, которые намагниченны вдоль оси [001], лежащей в плоскости образца с ГО, можно использовать соотношение [12]:

$$v_3 = \frac{\alpha - \alpha_1}{\alpha_3 - \alpha_1}.$$

Объемные доли намагниченности вдоль других осей ([100] и [010]):

$$v_1 = v_2 = \frac{1}{2} \left[ 1 - \frac{(\alpha - \alpha_1)}{(\alpha_3 - \alpha_1)} \right] \text{ или } v_1 = v_2 = \frac{1 - v_3}{2},$$

где

$$\alpha_1 = \alpha_2 = \frac{A_2}{A_1} = \frac{4}{9} = 0.44(4),$$

$$\alpha_3 = \frac{A_2}{A_1} = \frac{4}{3} = 1.33(3).$$

В случае ГО кристаллографических осей оси [100] и [010] являются полностью равноправными (рис. 1), поэтому объемные доли намагниченности  $v_1$  и  $v_2$ , независимо от условий термических обработок, перечисленных в табл. 1, одинаковые.

Для образцов с КО осей имеют место аналогичные соотношения [12]. Относительная объемная доля областей образца  $v_1 + v_3$ , которые намагниченны вдоль осей [100] и [001], определяется по формуле:

$$v_1 + v_3 = \frac{\alpha}{\alpha_1},$$

а доля намагниченности, ориентированной вдоль перпендикулярной к ним оси [010]:

$$v_2 = 1 - \frac{\alpha}{\alpha_1},$$

где  $\alpha = A_2/A_1 = A_5/A_6$  и  $\alpha_1 \approx 1.33$ . Сумма  $v_1 + v_3$  является долей намагниченности, лежащей в плоскости образца. Каждая из долей  $v_1$  и  $v_3$  не может быть определена отдельно, и они могут быть неравными. Например, если при отжиге внешнее магнитное поле или растягивающее напряжение было приложено вдоль оси [100], то эта ось становится осью НМА. И тогда  $v_1 > v_3$ , потому что доменная структура и, соответственно, намагниченность преимущественно выстраиваются вдоль оси [100].

Параметры секстетов (подспектров)  $A_2/A_1 = A_5/A_6$  мессбауэровских спектров образцов, подвергнутых разным термическим обработкам и содержащих 6, 5 и 8 ат.% кремния, и результаты вычислений долей  $v_1$ ,  $v_2$  и  $v_3$  приведены в табл. 2–4. В табл. 2 — доли намагниченности в образцах с ГО осей, в табл. 3 — в образцах с КО осей и в табл. 4 — результаты опытов с образцом с ГО осей во внешнем магнитном поле. Для сравнения здесь приводятся результаты, полученные для закаленных в воде после выдержки при  $850^\circ\text{C}$  и отожженных в ферромагнитном состоянии образцов, опубликованные ранее в статье [12].

В закаленных образцах как с ГО, так и с КО кристаллографических (легких) осей распределение намагниченности по легким осям примерно равновероятное. Отжиг в ферромагнитном состоянии приводит к перераспределению намагниченности в направлениях  $<100>$ , лежащих в плоскости образца. Эти наблюдения в статье [12] объясняются или разупорядочением (после закалки), или локальным направленным упорядочением пар атомов кремния ( $B2$ -кластеров). В парамагнитном состоянии магнитные моменты

**Таблица 2.** Распределение намагниченности по направлениям (в процентах). Образцы с ГО осей.  $v_3$  — доля намагниченности, параллельной ОЛН [001], лежащей в плоскости образца,  $v_1$  и  $v_2$  — доли намагниченности, параллельной ОЛН [100] и [010] соответственно, направленным под углом 45° к плоскости образца

$C_{\text{Si}}$ , ат.%	Обработка	$\frac{A_2}{A_1} = \frac{A_5}{A_6}$	$v_1$	$v_2$	$v_3$
6	закалка	0.76(4)	32.5(1.6)	32.5(1.6)	35.0(1.7)
6	отжиг	0.99(4)	19.1(0.9)	19.1(0.9)	61.9(2.8)
6	ac TMO    [001]	1.04(4)	16.4(0.6)	16.4(0.6)	67.2(2.5)
6	ac TMO ⊥ [001]	0.87(3)	26.2(1.0)	26.2(1.0)	47.6(1.8)
6	dc TMO    [001]	1.01(3)	18.3(0.6)	18.3(0.6)	63.5(2.1)
6	dc TMO ⊥ [001]	0.86(2)	26.8(0.7)	26.8(0.7)	46.4(1.3)
6	TMexO    [001]	1.01(3)	18.3(0.6)	18.3(0.6)	63.4(2.2)
6	TMexO ⊥ [001]	0.89(2)	25.2(0.6)	25.2(0.6)	49.7(1.2)

**Таблица 3.** Распределение намагниченности по направлениям (в процентах). Образцы с КО осей.  $v_1$  и  $v_3$  — доли намагниченности, параллельной ОЛН [100] и [001] соответственно, лежащих в плоскости образца,  $v_2$  — доля намагниченности, параллельной ОЛН [010], направленной под углом 90° к плоскости образца

$C_{\text{Si}}$ , ат.%	Обработка	$\frac{A_2}{A_1} = \frac{A_5}{A_6}$	$v_1$	$v_3$	$v_2$
5	закалка	0.81(3)	30.4(1.0)	30.4(1.0)	39.3(1.3)
5	dc TMO    [001]	1.03(3)	23.0(0.8)	54.0(1.3)	23.0(0.8)
5	rot TMO	0.93(4)	34.9(1.4)	34.9(1.4)	30.2(1.2)
5	ac TMO    [001]	0.98(3)	26.7(0.9)	46.7(1.2)	26.7(0.9)
8	закалка	0.87(2)	32.6(0.9)	32.6(0.9)	34.9(0.9)
8	отжиг	1.05(6)	39.2(2.2)	39.2(2.2)	21.5(1.2)
8	dc TMO    [001]	1.19(8)	10.5(0.7)	79(3)	10.5(0.7)
8	rot TMO	1.01(3)	37.7(1.3)	37.7(1.3)	24.5(0.8)

**Таблица 4.** Перераспределение намагниченности по направлениям в монокристалле с ГО осей (в процентах) под действием внешнего магнитного поля. Один образец без поля и в магнитном поле под углом 0, 45 и 90° к оси [001].  $v_1$ ,  $v_2$  и  $v_3$  — доли намагниченности такие же, как в табл. 2

$C_{\text{Si}}$ , ат.%	Условия	$\frac{A_2}{A_1} = \frac{A_5}{A_6}$	$v_1$	$v_2$	$v_3$
6	без поля	0.88(4)	25.7(1.1)	25.7(1.1)	48.6(2.1)
6	0°	1.06(3)	15.5(0.5)	15.5(0.5)	69.1(2.2)
6	45°	1.04(3)	16.7(0.5)	16.7(0.5)	66.6(2.2)
6	90°	1.02(5)	17.6(0.8)	17.6(0.8)	64.9(2.9)

на атомах железа ориентируются равновероятно по всем направлениям, поэтому образуется равновероятное распределение пар Si–Si вдоль осей <100>, которое при быстром охлаждении замораживается из-за резкого снижения диффузионной активности атомов в сплаве. И, напротив, во время отжига в ферромагнитном состоянии в каждом домене под действием спонтанной намагниченности происходит диффузионное перераспределение  $B2$ -кластеров так, чтобы оси пар Si–Si были ориентированы вдоль направле-

ния локального магнитного поля. После охлаждения сложившийся направленный близкий порядок сохраняется и становится причиной стабилизации доменной структуры с преимущественной ориентацией намагниченности в плоскости образца и небольшим количеством за-мыкающих доменов. При ГО осей имеет место доменная структура в виде полосовых доменов со 180-градусными границами, а при КО — в виде взаимно замыкающих доменов с 90-градусными границами.

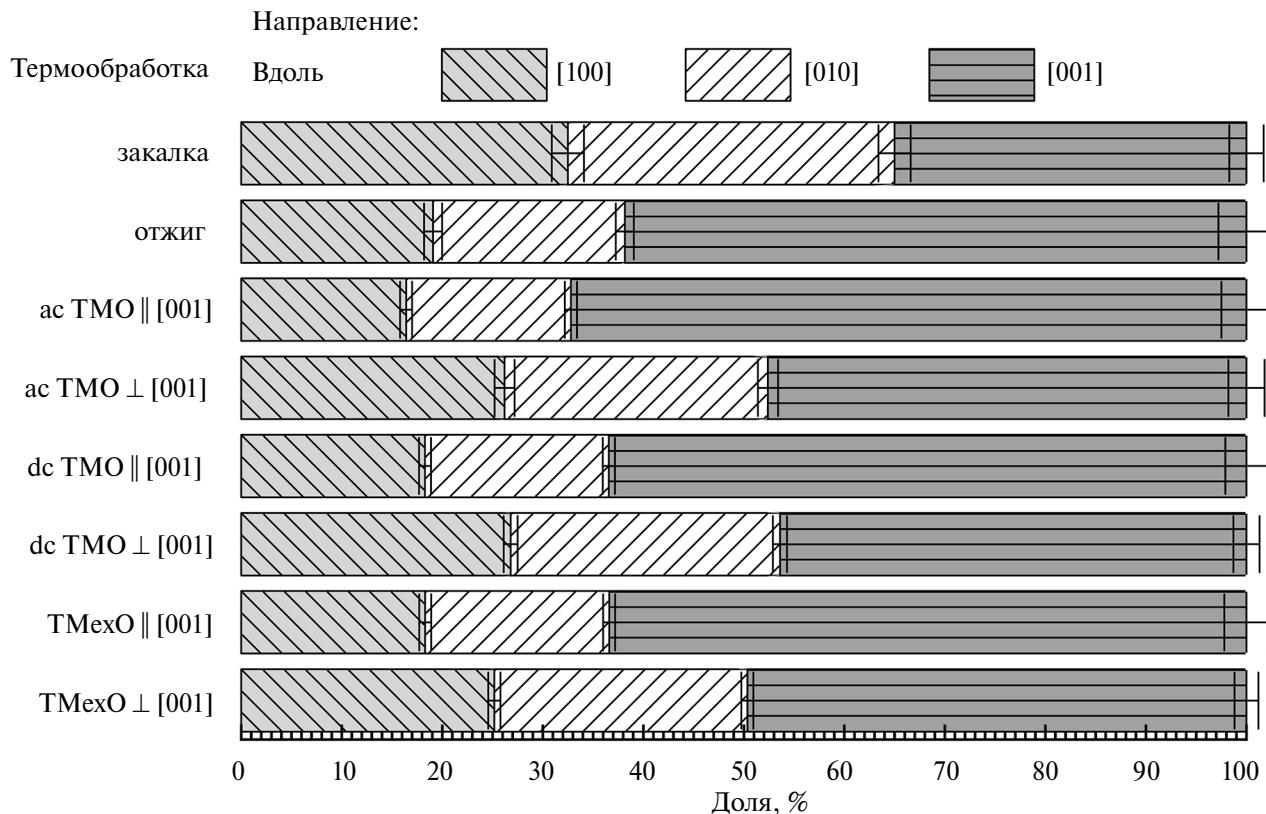


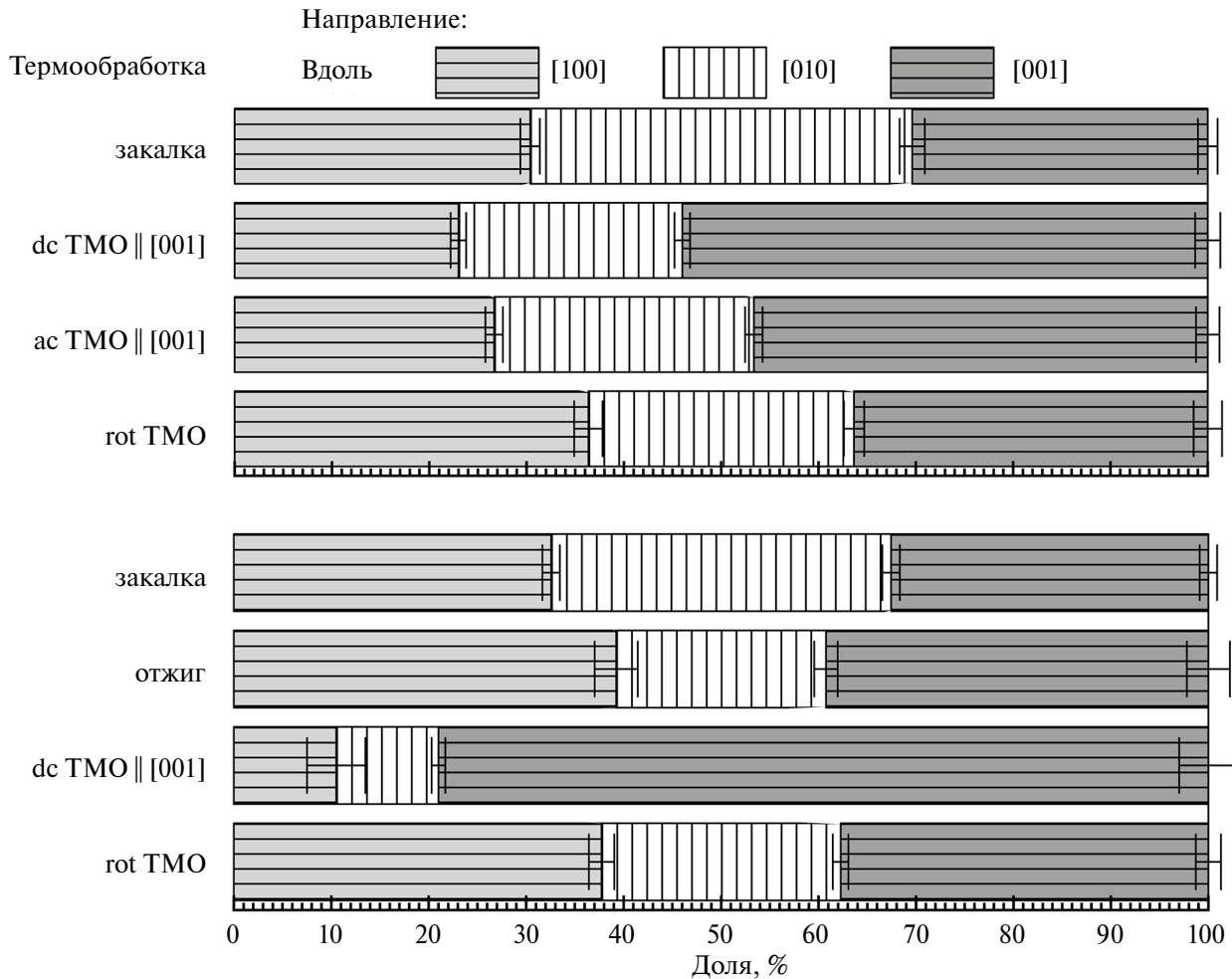
Рис. 3. Диаграммы распределений относительных объемных долей намагниченности по направлениям в монокристаллах с ГО осей (6 ат.% Si) после термических обработок при условиях, приведенных в табл. 1.

Приведенные в табл. 2 распределения относительных объемных долей намагниченности по направлениям  $\langle 100 \rangle$  в кристалле изображены в виде диаграмм на рис. 3. В образцах с ГО осей после термической обработки под действием магнитного поля или растягивающей нагрузки, которые были приложены параллельно ОЛН [001], наблюдаются наибольшие значения доли  $v_3$ , от 63 до 67% при погрешности 2–3%. Доля намагниченности по двум другим осям [100] и [010] составляет от 33 до 37% или 16–19% по каждой из них.

В образцах с ГО были проведены термические обработки, при которых магнитное поле (TMO  $\perp$  [001]) или механическое напряжение (TMexO  $\perp$  [001]) прилагали вдоль оси [110] и перпендикулярно оси [001]. Оси [110] и [001] лежат в плоскости дискового образца (рис. 1). Результаты приведены в табл. 2 и на диаграмме рис. 3. При подгонке спектров были получены близкие значения отношений  $A_2/A_1 = A_5/A_6$ , равные 0.87(3), 0.86(2) и 0.89(2), — одинаковые с учетом экспериментальной погрешности. Поэтому относительные объемные доли намагниченности, лежащей в плоскости образца и ориентированной вдоль ОЛН [001], определены как 46–50%

(в среднем 48%). На долю двух других осей, которые перпендикулярны к первой и составляют с плоскостью образца угол  $45^\circ$ , приходится по 25–27%. Ни одна термическая обработка в ферромагнитном состоянии не дает равновероятного или близкого к нему распределения намагниченности по осям  $\langle 100 \rangle$ . Довольно большая доля магнитных моментов атомов железа ориентирована в плоскости образца. И в то же время не достигается близкая к 100 процентам доля намагниченности, направленной вдоль ОЛН [001], лежащей в плоскости образца.

В образцах с КО кристаллографических осей (табл. 3 и рис. 4) в результате ТМО в постоянном магнитном поле (dc TMO || [001]) 77% намагниченности лежит в плоскости при 5 ат.% Si и 90% — при 8 ат.% Si. Остальная доля намагниченности — 23 и 10% соответственно ориентирована перпендикулярно этой плоскости. К сожалению, доли намагниченности  $v_1$  и  $v_3$ , направленные вдоль равноправных осей [100] и [001], лежащих в плоскости образца (рис. 1) и нормальных к направлению распространения гамма-квантов, раздельно не определяются. Но здесь сделано предположение, что две легкие оси, которые во время ТМО (dc TMO или ac TMO || [001], табл. 1)

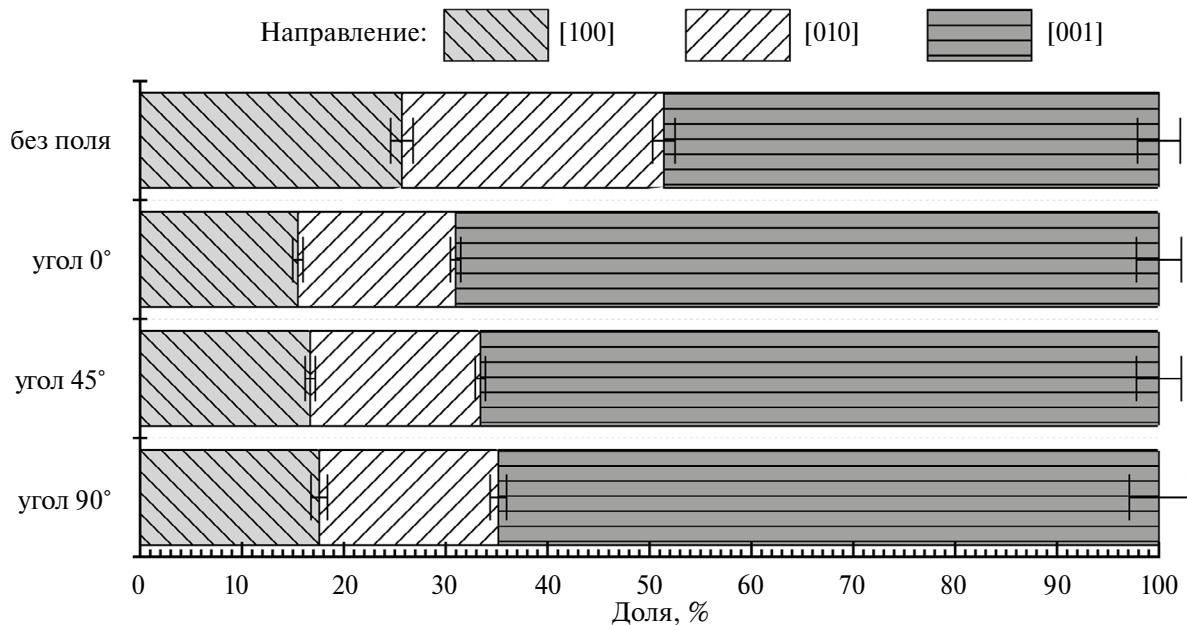


**Рис. 4.** Диаграммы распределения относительных объемных долей намагниченности по направлениям в монокристаллах с КО кристаллографических осей (в верхней части — 5 и в нижней — 8 ат.-% Si) после термических обработок при условиях, приведенных в табл. 1.

ориентированы перпендикулярно направлению приложения поля, например, [100] и [010], содержат одинаковые объемные доли намагниченности ( $v_1 = v_2$ ). Тогда доля намагниченности, направленной вдоль оси [001], параллельно которой при ТМО было приложено магнитное поле, равна  $(100 - v_1 - v_2)\%$  или около 54% (при 5 ат.-% Si) и около 80% (при 8 ат.-% Si). Соответственно, доли намагниченности  $v_1 + v_2$ , направленной перпендикулярно оси [001], равны 46 и 20%. Все эти эффекты объясняются преобладающей ориентацией пар атомов кремния (*B2*-кластеров) где ОЛН, вдоль которой при отжиге было приложено магнитное поле. Ранее было установлено [15], что по мере увеличения содержания кремния в монокристаллах сплава увеличивается количество пар Si–Si, поскольку около 60% атомов кремния состоят в парах при 5 ат.-% Si, около 70% — при 6 ат.-% Si и около 90% — при 8 ат.-% Si.

ТМО в постоянном вращающемся магнитном поле (rot TMO, табл. 1) подвергали два образца с

КО кристаллографических осей, содержащих 5 и 8 ат.-% Si. Результаты расчета объемных долей по-разному ориентированной намагниченности приведены в таблице 3 и на диаграмме рис. 4. Образцы содержат высокую долю намагниченности, ориентированной в плоскости, которая все же меньше, чем после dc TMO || [001]. Так как в этом случае, оси [100] и [001] при ТМО примерно равное время находились под действием продольного к каждой из них магнитного поля, то, наверняка, доли  $v_1$  и  $v_3$  равны (табл. 3). Тогда объемная доля намагниченности, ориентированной параллельно осям [100] и [001] и лежащей в плоскости образца, при 5 ат.-% кремния — 70(2)% (по 35% на каждую ОЛН), а перпендикулярно к ней — 30(1)%, и при 8 ат.-% кремния в плоскости — 76(2)% (по 38%), а перпендикулярно к ней — 24(1)%. Напомним, что после термической обработки в постоянном поле (dc TMO || [001]) доля намагниченности, лежащей в плоскости образца, 77 и 90% соответственно.



**Рис. 5.** Диаграммы распределений относительных объемных долей намагниченности по направлениям в монокристаллах с ГО кристаллографических осей. Опыты с одним и тем же образцом без и с внешним магнитным полем, приложенным под углом  $0^\circ$ ,  $45^\circ$  и  $90^\circ$  к ОЛН [001] — рис. 1.

Постоянное магнитное поле при измерении мессбауэровских спектров было приложено к образцу с ГО кристаллографических осей. Объемные доли намагниченности, ориентированной перпендикулярно направлению распространения гамма-квантов, приведены в табл. 4 и в виде столбчатой диаграммы на рис. 5. В исходном образце и без внешнего поля около 49(2)% намагниченности лежало в его плоскости и, скорее всего, было ориентировано вдоль оси [001] и по 26(1)% вдоль осей [100] и [010] (см. рис. 1). Включение постоянного магнитного поля напряженностью 5 кЭ вызывает увеличение доли намагниченности в плоскости  $v_3$  на 20%, до 69(2)% и уменьшение долей  $v_1$  и  $v_2$  до 16(1)% соответственно.

Наблюдается значительное увеличение объемной доли намагниченности  $v_3$ , ориентированной в плоскости образца вдоль ОЛН [001]. Тем не менее она не достигает 100%. Возможно, причиной этого является размагничивающий фактор [30–32]. Дело в том, что на поверхности ферромагнитного образца, помещенного в однородное магнитное поле, создается дополнительное магнитное поле, направленное внутри образца противоположно внешнему полю и намагниченности. На внешнее поле накладывается собственное, размагничивающее поле, а коэффициент размагничивания зависит от формы намагничиваемого образца. Коэффициент размагничивания точно рассчитывается только для образцов, имеющих форму эллипсоида. Образ-

цы другой формы в однородном внешнем магнитном поле намагничиваются неоднородно. В случае образца в виде тонкого диска сумма долей, намагниченных не вдоль внешнего поля,  $v_1 + v_2$ , составляет около 30%.

После поворота поля на  $45^\circ$  и на  $90^\circ$  объемная доля намагниченности в плоскости образца уменьшается последовательно до 67(2)% и до 65(3)%. Но с учетом погрешности эти изменения незначительные, что показывает высокую магнитную мягкость железокремнистого сплава. В магнитном поле напряженностью 5 кЭ намагниченность легко разворачивается в плоскости образца в направлениях, составляющих угол и  $45^\circ$ , и  $90^\circ$  с ОЛН [001]. Под влиянием размагничивающего поля остается 30–35% объема образца.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Известно, что в сплавах кремнистого железа при содержании кремния от 5 до 10 ат.% имеются  $B2$ -клusterы, состоящие из двух элементарных ячеек  $B2$ -фазы (упорядочение типа  $CsCl$ ). Они имеют анизотропную форму — вытянуты вдоль одной из ОЛН  $\langle 100 \rangle$  и центрированы парами атомов  $Si-Si$ , являющимися вторыми соседями. Ближний порядок  $B2$ -типа формируется при высоких температурах в парамагнитном состоянии ( $T_{an} > T_c$ ), но из-за разупорядочения магнитных моментов атомов железа в сплаве  $Si-Si$ -пары равновероятно распределены вдоль осей  $\langle 100 \rangle$ . В результате быстрого охлаждения закалкой в

воду хаотичное распределение  $B2$ -кластеров сохраняется, намагниченность в объеме образца равновероятно распределяется вдоль осей  $<100>$ , доменная структура дестабилизируется.

При медленном охлаждении сплава в поле спонтанной намагниченности или при отжиге в магнитном поле, или в поле механического напряжения диффузионным путем формируются преимущественная ориентация  $B2$ -кластеров вдоль одной из осей  $<100>$ . Именно направленный ближний порядок является ответственным за определенную ориентацию магнитных моментов атомов железа и стабилизацию доменной структуры в железокремнистых сплавах. Во время ферромагнитного отжига ( $T_{an} < T_c$ ) пары Si–Si преимущественно выстраиваются вдоль силовых линий локального поля. После охлаждения наблюдается стабилизация доменной структуры, намагниченность преимущественно лежит в плоскости образца: около 60% в случае ГО осей и около 80% в случае КО.

В случае образцов с ГО осей примерно одинаковое распределение намагниченности получается в результате ферромагнитного отжига без внешнего поля, в продольном постоянном и переменном поле и под продольно приложенной нагрузкой. Доля в плоскости образца от 62 до 67%, и по 18–20% вдоль двух других осей. Если внешнее воздействие при отжиге было направлено перпендикулярно ОЛН [001], то доля лежащей в плоскости образца намагниченности уменьшается до 46–50%, а доля намагниченности, ориентированной параллельно осям [100] и [010] возрастает до 25–27% на каждую.

В образцах с КО осей после ТМО во вращающемся магнитном поле доля намагниченности, которая лежит в плоскости образца (вдоль осей [100] и [001]), при содержании кремния 5 ат.% составляет 70%, а при содержании 8 ат.% – 75%. Это наблюдение соответствует отмеченному ранее увеличению доли атомов кремния, составляющих пары от 60% при 5 ат.% Si до 90% при 8 ат.% Si. Поскольку чем больше пар Si–Si, тем больше объем областей, в которых при отжиге формируется их направленное упорядочение, лежащее в плоскости образца, вдоль осей [100] и [001]. В тоже время доля нормально, вдоль оси [010] ориентированной намагниченности при 5 ат.% Si больше (~ 30%), а при 8 ат.% меньше (~ 25%).

Измерения мессбауэровских спектров во внешнем магнитном поле, приложенном в плоскости образца с ГО кристаллографических осей, показало, что эффектом от включения внешнего поля является увеличение доли намагниченности, ориентированной в плоскости образца, на 20%. При вращении внешнего поля на 45° и 90° эта доля практически не меняется, око-

ло 30–35% объема образца находится под влиянием размагничивающего поля, величина которого зависит от формы образца.

Используя чувствительность сверхтонкой структуры мессбауэровских спектров к ориентации намагниченности относительно направления испускания гамма-квантов, определены относительные объемные доли магнитных моментов атомов железа, ориентированных вдоль осей  $<100>$ . Для объяснения наблюдавшихся эффектов использованы современные представления о формировании структуры и свойств железокремнистых сплавов. Показано, что изменения ориентации намагниченности при термических обработках связаны с разупорядочением или, наоборот, направленным упорядочением анизотропных кластеров  $B2$ -фазы, центрированных парами атомов кремния — парами Нееля.

Работа выполнена в рамках государственного задания Минобрнауки России (тема «Магнит», г. р. № 122021000034-9), с использованием оборудования ЦКП «Испытательный центр нанотехнологий и перспективных материалов» ИФМ УрО РАН.

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Enz U. Magnetism and Magnetic Materials: Historical Developments and Present Role in Industry and Technology / Handbook of Magnetic Materials. V. 3. Ed. E.P Wohlfarth. North-Holland Publishing Company, 1982. P. 1–36.
2. Goss N.P. New Development in Electrical Strip Steels Characterized by Fine Grain Structure Approaching the Properties of a Single Crystal // Trans. American Soc. Metals. 1935. V. 23. P. 511–531.
3. Tebble R.S., Craik D.J. Magnetic Materials. London: John Wiley, 1969. 520 p.
4. Taguchi S., Yamamoto T., Sakakura A. New grain-oriented silicon steel with high permeability "ORIENTCORE HI-B" // IEEE Trans. Magn. 1974. V. 10. No. 2. P. 123–127.
5. Бозорт Р. Ферромагнетизм. М.: Иностранная литература, 1956. 784 с.
6. Лесник А.Г. Наведенная магнитная анизотропия. Киев: Наукова думка, 1976. 163 с.
7. Грехем Ч. Термомагнитная обработка / Магнитные свойства металлов и сплавов: семинар по магнитным свойствам металлов и сплавов, Кливленд, 25–26 октября 1958 г. / ред. С. В. Вонсовский; пер. с англ. Л. А. Шубина. М.: Иностранная литература, 1961. 440 с.
8. Губернаторов В.В., Сычева Т.С., Драгошанский Ю.Н. Формирование свойств ферромагнитных сплавов при термомагнитной и термо-

- механической обработках // Физика металлов и металловедение. 2004. Т. 98. № 1. С. 31–37.
9. Williams H.J. Magnetic Properties of Single Crystals of Silicon Iron // Phys. Rev. 1937. V. 52. No. 7. P. 747–750.
  10. Neél L. Anisotropie magnétique superficielle et surstructures d'orientation // J. de Phys. Radium. 1954. V. 15. No. 4. P. 225–239.
  11. Taniguchi S., Yamamoto M. A note on a theory of the uniaxial ferromagnetic anisotropy induced by cold work or by magnetic annealing in cubic solid solutions // Sci. Reports of the Research Institutes, Tohoku University. Ser. A, Physics, Chemistry and Metallurgy. 1954. V. 6. P. 330–332.
  12. Ершов Н.В., Клейнерман Н.М., Лукишина В.А., Тимофеева А.В. Распределение намагниченности в монокристаллах железокремнистых сплавов // ФММ. 2024. Т. 125. № 7.
  13. Ершов Н.В., Клейнерман Н.М., Лукишина В.А., Пильгин В.П., Сериков В.В. Особенности локальной атомной структуры сплава Fe–Si в  $\alpha$ -области фазовой диаграммы // Физика твердого тела. 2009. Т. 51. № 6. С. 1165–1171.
  14. Сериков В.В., Клейнерман Н.М., Лукишина В.А., Ершов Н.В. Ближний порядок в сплавах  $Fe_{1-x}Si_x$  ( $x=0.05–0.08$ ) с наведенной магнитной анизотропией // ФТТ. 2010. Т. 52. № 2. С. 316–322.
  15. Ершов Н.В., Лукишина В.А., Клейнерман Н.М., Сериков В.В. Магнитная доменная и локальная атомная структура сплава  $Fe_{0.94}Si_{0.06}$  до и после термо-магнитной обработки в переменном магнитном поле // ФТТ. 2012. Т. 54. № 3. С. 480–489.
  16. Русаков В.С. Мессбауэровская спектроскопия локально неоднородных систем. Алматы: ОПНИ ИЯФ НЯЦ РК, 2000. 438 с.
  17. Черненков Ю.П., Федоров В.И., Лукишина В.А., Соколов Б.К., Ершов Н.В. Ближний порядок в монокристаллах  $\alpha$ -Fe–Si // ФММ. 2001. Т. 92. № 2. С. 95–100.
  18. Chernenkov Yu.P., Fedorov V.I., Lukshina V.A., Sokolov B.K., Ershov N.V. Short-range order in  $\alpha$ -Fe–Si single crystals // J. Magn. Magn. Mater. 2003. V. 254–255. P. 346–348.
  19. Chernenkov Yu.P., Ershov N.V., Lukshina V.A., Fedorov V.I., Sokolov B.K. An X-ray diffraction study of the short-range ordering in the soft-magnetic Fe–Si alloys with induced magnetic anisotropy // Physica B. 2007. V. 396. № 1–2. P. 220–230.
  20. Ершов Н.В., Черненков Ю.П., Лукишина В.А., Федоров В.И. Рентгенодифракционные исследования особенностей атомной структуры сплава Fe–Si в  $\alpha$ -области фазовой диаграммы // ФТТ. 2009. Т. 51. № 3. С. 417–422.
  21. Ершов Н.В., Черненков Ю.П., Лукишина В.А., Федоров В.И. Структура сплавов  $\alpha$ -FeSi с 8 и 10 ат.% кремния // ФТТ. 2012. Т. 54. № 9. С. 1813–1819.
  22. Старцева Е.В., Шулика В.В. Связь эффективности термо-магнитной обработки и формы кривой температурной зависимости начальной проницаемости железокремнистых сплавов // ФММ. 1974. Т. 37. № 1. С. 98–106.
  23. Stearns M.B. Internal Magnetic Fields, Isomer Shifts, and Relative Abundances of the Various Fe Sites in FeSi Alloys // Phys. Rev. 1963. V. 129. No. 3. P. 1136–1144.
  24. Stearns M.B. Spin-Density Oscillations in Ferromagnetic Alloys. I. "Localized" Solute Atoms: Al, Si, Mn, V, and Cr in Fe // Phys. Rev. 1966. V. 147. No. 2. P. 439–453.
  25. Arzhnikov A.K., Dobysheva L.V. Local magnetic moments and hyperfine magnetic fields in disordered metal–metalloid alloys // Phys. Rev. B. 2000. V. 62. No. 9. P. 5324–5326.
  26. Arzhnikov A.K., Dobysheva L.V. Formation of magnetic characteristics and hyperfine fields in metal–metalloid alloys // Comput. Mater. Sci. 2002. V. 24. No. 1–2. P. 203–207.
  27. Ершов Н.В., Аржников А.К., Добышева Л.В., Черненков Ю.П., Федоров В.И., Лукишина В.А. Исказения кристаллической решетки вокруг примесных атомов в сплавах  $\alpha$ -Fe<sub>1-x</sub>Si<sub>x</sub> // ФТТ. 2007. Т. 49. № 1. С. 64–71.
  28. Верхейм Г. Эффект Мессбауэра. Принципы и применения. М.: Мир, 1966. 250 с.
  29. Горбатов О.И., Кузнецов А.Р., Горностырев Ю.Н., Рубан А.В., Ершов Н.В., Лукишина В.А., Черненков Ю.П., Федоров В.И. Роль магнетизма в формировании ближнего порядка в сплавах железокремний // ЖЭТФ. 2011. Т. 139. № 5. С. 969–982.
  30. Osborn J.A. Demagnetizing factors of the general ellipsoid // Phys. Rev. 1945. V. 67. No. 11–12. P. 351–357.
  31. Chen D.-X., Pardo E., Sanchez A. Demagnetizing factors for rectangular prisms // IEEE Trans. Magn. 2005. V. 41. No. 6. P. 2077–2088.
  32. Zverev V.I., Gimaev R.R., Tishin A.M., Mudryk Ya., Gschneidner Jr K.A., Pecharsky V.K. The role of demagnetization factor in determining the ‘true’ value of the Curie temperature // J. Magn. Magn. Mater. 2011. V. 323. P. 2453–2457.

## DISTRIBUTION OF MAGNETIZATION IN SINGLE-CRYSTALS OF IRON-SILICON SOFT MAGNETIC ALLOYS BEFORE AND AFTER HEAT TREATMENTS

N. V. Ershov<sup>1,\*</sup>, N. M. Kleinerman<sup>1</sup>, V. A. Lukshina<sup>1</sup>, and A. V. Timofeeva<sup>1</sup>

<sup>1</sup>*Mikheev Institute of Metal Physics, Ural Branch, Russian Academy of Sciences, Ekaterinburg, 620108 Russia*

\*e-mail: nershov@imp.uran.ru

The distribution of magnetization in single-crystal samples of silicon iron made in the form of thin disks after heat treatments under the influence of a magnetic field or mechanical stress was determined by Mössbauer spectroscopy. At contents of 5 and 8 at% Si, the samples had a cubic ( $\{100\}$ ), and at 6 at% Si, a Gossian ( $\{011\}$ ) orientation of the crystallographic axes. Using the parameters obtained as a result of deconvolution of Mössbauer spectra, the relative fractions of the magnetic moments of iron atoms oriented along the easy magnetization axes are determined. It has been shown that annealing and cooling in a ferromagnetic state under an external influence of the field or stress applied along the plane of the sample redistributes the magnetic moments in favor of the easy magnetization axes lying in the sample plane. The greatest effect is achieved during annealing in a direct-current magnetic field. At the same time, there is a rather large fraction of magnetization oriented outside the plane of the sample, which may be explained by the action of a demagnetizing factor.

**Keywords:** iron-silicon alloys, single crystals, Mössbauer effect, magnetization distribution, easy magnetization axes