

Особенности ферромагнитного резонанса нанокристаллических сплавов $\text{Fe}_{73.5}\text{CuNb}_3\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$

© С.В. Комогорцев^{1,2}, Р.С. Исхаков^{1,2}, П.А. Кузнецов³, А.И. Беляева³, Г.Н. Бондаренко⁴, Л.А. Чеканова¹

¹ Институт физики им. Л.В. Киренского СО РАН, Красноярск, Россия

² Сибирский государственный технологический университет, Красноярск, Россия

³ Центральный научно-исследовательский институт конструкционных материалов „Прометей“, Санкт-Петербург, Россия

⁴ Институт химии и химической технологии СО РАН, Красноярск, Россия

E-mail: komogor@iph.krasn.ru

Изучены особенности структуры и параметров ферромагнитного резонанса нанокристаллических сплавов $\text{Fe}_{73.5}\text{CuNb}_3\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$, полученных при различных условиях отжига из исходного аморфного состояния. Установлена зависимость ширины линии ферромагнитного резонанса от размера зерна $\Delta H \sim D^6$. Этот результат обсуждается в рамках модели случайной магнитной анизотропии.

Работа частично поддержана грантом целевой программы „Развитие научного потенциала высшей школы“ РНП.2.1.1/2584, а также грантом РФФИ № 09-02-98002-р_сибирь_a.

1. Введение

Исследователям магнитных наноструктурированных сплавов хорошо знакома диаграмма Херцера — зависимость коэрцитивности H_c от среднего размера зерна, полученная на серии сплавов $\text{Fe}_{73.5}\text{CuNb}_3\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$, отожженных из закаленного состояния [1]. Коэрцитивная сила и начальная проницаемость в пределах этой серии изменялись по величине на несколько порядков, а наилучшие магнитомягкие свойства продемонстрировал образец с наименьшим размером зерна D (около 10 nm). Коэрцитивная сила резко возрастала с увеличением размера зерна $H_c \sim D^6$ вплоть до $D = 50$ nm. Величина начальной магнитной проницаемости от размера зерна вела себя как $1/\mu \sim D^6$ для D от 10 до 50 nm. Сочетание малого размера зерна и хороших магнитомягких свойств, казалось, находится в противоречии с классическим правилом магнитного материаловедения: магнитомягкие свойства поликристаллического ферромагнетика ухудшаются при уменьшении размера зерна. Модель случайной магнитной анизотропии, в рамках которой была объяснена повышенная магнитомягкость аморфных и нанокристаллических магнитных сплавов [2], явилась новым фундаментом для понимания магнетизма этих материалов. Согласно данной модели, магнитную структуру аморфных и нанокристаллических магнитных сплавов можно представить ансамблем стохастических магнитных доменов, самопроизвольно образованных большим количеством частиц. Макроскопические магнитные характеристики наномангнетиков оказались обусловленными размером этих доменов, а также величиной эффективной анизотропии в них. Хаос в направлении локальной магнитной анизотропии K и возможность описания магнитной структуры набором слабосвязанных магнитных блоков размером $2R_L$ приводят к оценке средней

анизотропии стохастического магнитного домена

$$\langle K \rangle = K/\sqrt{N} = K(R_c/R_L)^{\frac{3}{2}} = K(R_c/\delta)^6. \quad (1)$$

Здесь N — количество зерен в пределах области размером $2R_L$, δ — параметр, определяемый обменной константой A и энергией локальной анизотропии K : $\delta = (A/K)^{1/2}$, R_c — корреляционный радиус локальной магнитной анизотропии (величина, которая в нанокристаллических сплавах напрямую связана с размером зерна $D = kR_c$). Измерения ферромагнитного резонанса (ФМР), которым посвящена эта работа, проводятся в высоких (в сравнении с коэрцитивной силой) полях и на высоких частотах. Однако общие рассуждения о зависимости такого параметра, как ширина линии ФМР от размера зерна, представляются аналогичными изложенным выше рассуждениям по зависимости $H_c(D)$.

В настоящей работе мы представляем экспериментальные результаты по измерению ФМР в сплаве $\text{Fe}_{73.5}\text{CuNb}_3\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$, а также размера зерна в зависимости от температуры и времени отжига.

2. Эксперимент

Ленты аморфного сплава $\text{Fe}_{73.5}\text{CuNb}_3\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$ толщиной 20 μm получены закалкой из расплава на ОАО „НИИМЭТ“ (Калуга) и известны под коммерческим наименованием АМАГ-200. Части ленты были отдельно изотермически отожжены в течение различного времени от 10 min до 8 h при температурах от 430 до 590°C. На полученных при разных условиях отжига образцах измерялись спектры ФМР, а также спектры рентгеновской дифракции. Изучение ФМР осуществлялось на стандартном спектрометре ЭПА-2М с частотой $f = 9.2$ GHz в параллельной ориентации плоскости

ленты по отношению к внешнему магнитному полю при комнатной температуре. Измерения спектров рентгеновской дифракции были проведены на дифрактометре ДРОН-3 с использованием $\text{CuK}\alpha$ -излучения. Тонкая структура образцов исследовалась на просвечивающем электронном микроскопе JEM-200СХ при ускоряющем напряжении 120 кВ.

3. Результаты и обсуждение

На рис. 1 показаны рентгенограммы сплава $\text{Fe}_{73.5}\text{CuNb}_3\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$, отожженного в течение 1 h при разных температурах, а на рис. 2 — рентгенограммы сплава $\text{Fe}_{73.5}\text{CuNb}_3\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$, отожженного при 590°C в течение различного времени. Проставленные на рент-

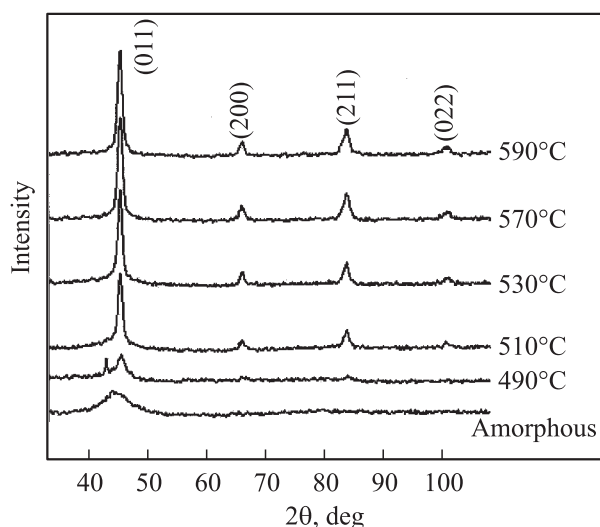


Рис. 1. Рентгенограммы сплава $\text{Fe}_{73.5}\text{CuNb}_3\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$, отожженного в течение 1 h при различных температурах.

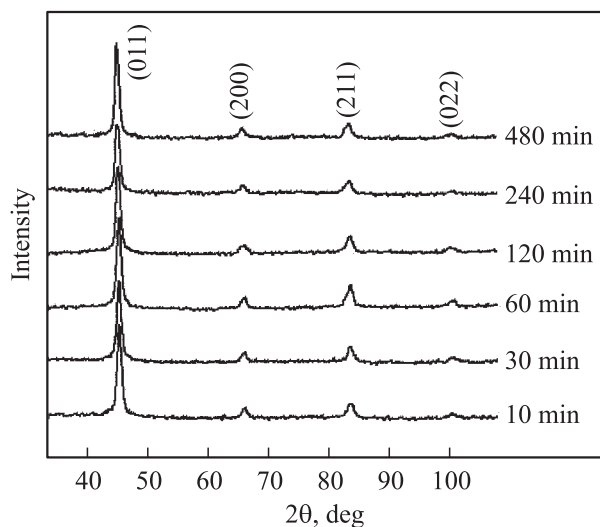


Рис. 2. Рентгенограммы сплава $\text{Fe}_{73.5}\text{CuNb}_3\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$, отожженного при 590°C в течение различного времени.

генограммах (рис. 1, 2) индексы пиков соответствуют рефлексам твердого раствора $\text{Fe}(\text{Si})$ с ОЦК-структурой. Небольшой рефлекс левее основного пика при 490°C на рис. 1 соответствует орторомбической фазе $\text{Fe}_3(\text{Si}, \text{B})$. Эта фаза при дальнейшем отжиге распадается.

Изображения структуры образцов сплава, исследованных методом просвечивающей электронной микроскопии в светлом поле, представлены на рис. 3. На фотографиях показаны также электронограммы, полученные от наблюдаемых участков образцов. Изображения тонкой структуры относятся только к середине по толщине ленты, что подтвердил анализ глубины протравливания образцов, проведенный с помощью растрового электронного микроскопа.

В исходном состоянии (рис. 3, а) материал не содержит кристаллической фазы. С ростом температуры отжига происходит как увеличение средних размеров выделившихся в аморфной матрице кристаллических частиц (с 4 до 8 nm), так и увеличение их объемной доли (рис. 3, b-d). По формуле, связывающей радиус дифракционного кольца на электронограмме с параметром кристаллической решетки [3], были экспериментально определены межплоскостные расстояния, соответствующие дифракционным кольцам. Выделившиеся в исследуемом сплаве кристаллиты представляют фазу твердого раствора $\alpha\text{-Fe}$ с химическим составом, близким к соединению Fe_3Si [4]. Также для оценки размера зерна по рентгенограммам рис. 1, 2 определяли позицию (2θ) и ширину самого интенсивного пика на половине высоты (FWHM). Рефлекс этот аппроксимировался псевдофункцией Фойгхта. Размер зерна D оценивался по формуле Шеррера

$$D = 0.94\lambda / \text{FWHM} \cos \theta. \quad (2)$$

Кристаллизация исследуемого сплава идет в два этапа. Сначала из аморфного состояния сплав рекристаллизуется в довольно стабильный до 600°C нанокристаллический сплав с размером зерна около 10 nm (рис. 4). Из литературы [5] следует, что в процессе отжига при температурах выше 600°C происходит рекристаллизация до поликристаллического сплава с размером зерна около 50 nm. Таким образом, использованный в нашей работе диапазон условий термообработки соответствует первому этапу кристаллизации.

Из рис. 5 видно, что размер зерна при отжиге 590°C продолжительностью до 8 h меняется очень незначительно. Однако в ряду образцов сплава $\text{Fe}_{73.5}\text{CuNb}_3\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$, отожженного при 590°C в течение различного времени, есть изменение параметра 2θ . Это связано с изменением межплоскостного расстояния в $\alpha\text{-Fe}$. Используя зависимость межплоскостного расстояния для пика (011) от содержания кремния в $\alpha\text{-Fe}_{1-x}\text{Si}_x$ [6], мы оценили содержание Si в α -фазе. Из этой оценки следует, что при отжиге 590°C кремний выходит из зерен α -фазы.

Типичные формы кривых ФМР (дифференциальный сигнал) приведены на рис. 6, а и b на примере ФМР исходного и отожженного при 590°C в течение 8 h образцов.

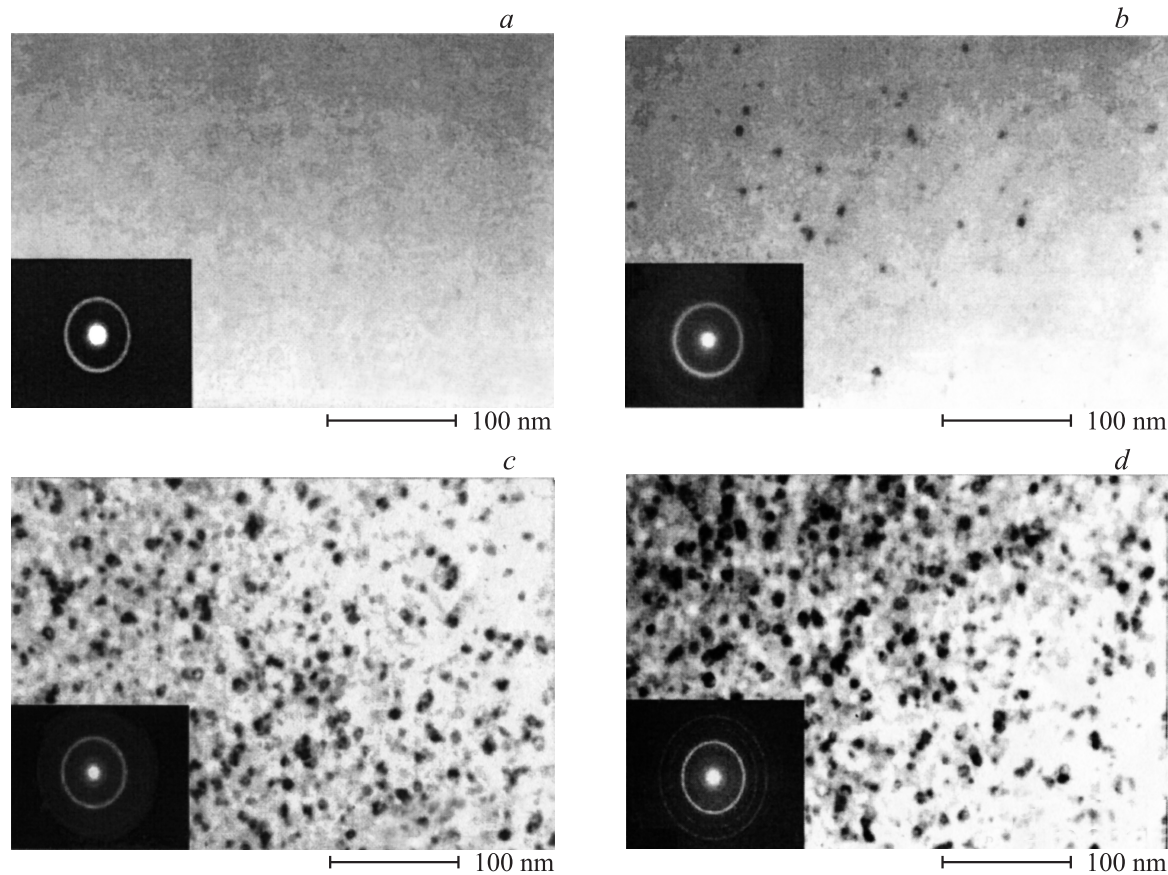


Рис. 3. Тонкая структура образцов сплава АМАГ-200. *a* — исходное состояние, *b–d* — отжиг в течение 1 h при температурах 470 (*b*), 510 (*c*) и 550 (*d*).

Из спектров определяли основные характеристики ФМР: ширину линии ФМР δH (расстояние между пиками) и резонансное поле H_r .

По параметру H_r заметных изменений при отжиге до температур 570°C не наблюдается. При отжиге 570°C и выше величина H_r уменьшается с увеличением про-

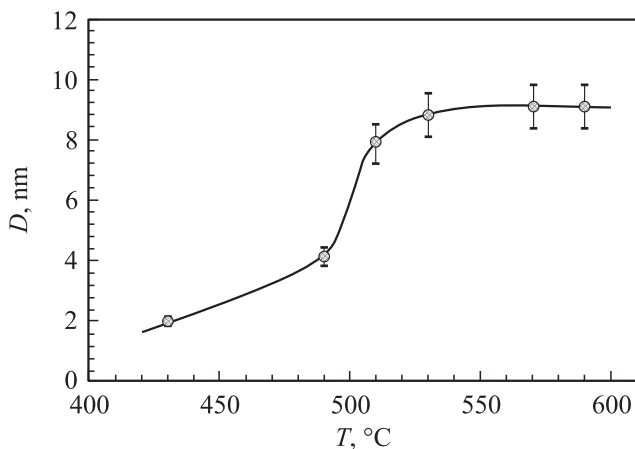


Рис. 4. Размер зерна D сплава $Fe_{73.5}CuNb_3Si_{13.5}B_9$, отожженного в течение 1 h при различных температурах.

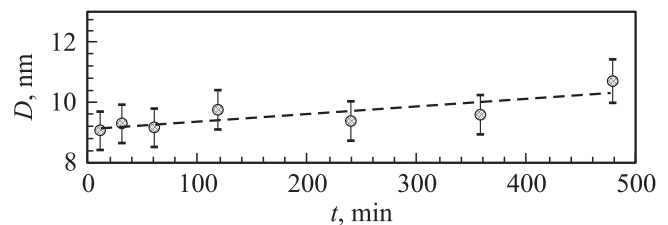


Рис. 5. Размер зерна D сплава $Fe_{73.5}CuNb_3Si_{13.5}B_9$, отожженного при 590°C в течение различного времени.

должительности отжига. Это уменьшение соответствует росту эффективной намагниченности M , вычисленной по формуле Киттеля [6] из H_r . Наблюдаемый рост намагниченности при высокотемпературных отжигах связан с изменением ближнего порядка атомов Fe, т.е. с диффузионным перераспределением атомов в этом сплаве, и качественно согласуется с результатом, полученным при оценке содержания Si в α -фазе.

Изменение величины ΔH при отжиге отражает, на наш взгляд, этапы рекристаллизации исходного аморфного сплава. Величина ΔH на начальных этапах отжига убывает ($430\text{--}510^\circ\text{C}$), после начинает расти. Этот начальный этап (уменьшение ΔH), скорее всего, свя-

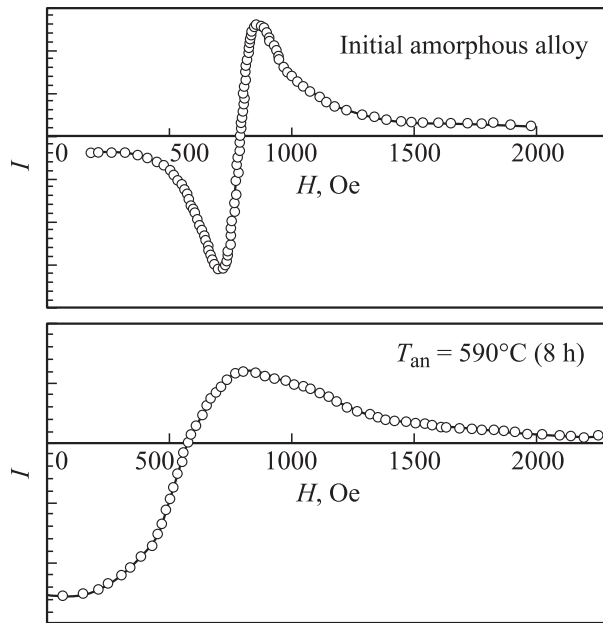


Рис. 6. Формы кривых ФМР для исходного и отожженного при 590°C в течение 8 h образцов. По оси ординат в приведенных единицах отложена дифференциальная мощность I поглощения СВЧ в исследуемых образцах.

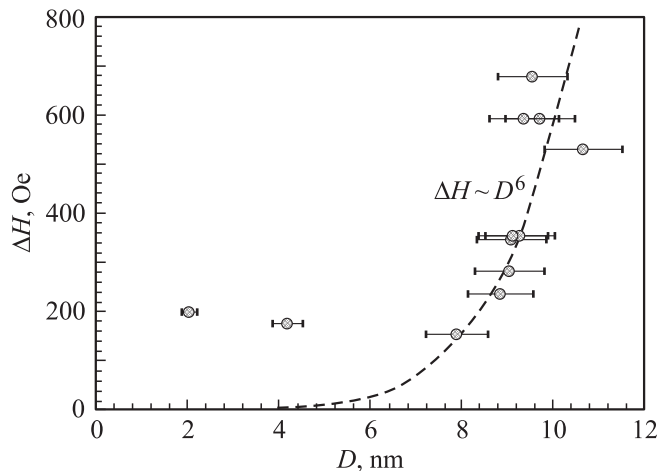


Рис. 7. Зависимость ширины линии ΔH от размера зерна D в нанокристаллическом сплаве $\text{Fe}_{73.5}\text{CuNb}_3\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$.

зан с самым началом кристаллизации — зарождением кристаллита в аморфной матрице и снятием избыточных внутренних напряжений. Дальнейший рост ΔH связан с ростом размера зерна α -фазы железа согласно модели случайной магнитной анизотропии.

Идея о том, что ширина линии ферромагнитного резонанса должна зависеть от параметров наноструктуры и интерпретироваться в рамках модели случайной магнитной анизотропии, уже озвучивалась исследователями (см., например, [7]). Согласно этой идее, зависимость ΔH от D должна повторять зависимость $H_c \sim D^6$. На рис. 7 приведена зависимость ΔH от D , полученная по резуль-

татам проведенных измерений. Насколько нам известно, это первый случай экспериментальной демонстрации количественной корреляции ΔH и D . Полученный здесь результат $\Delta H \sim D^6$ показывает, что ширина линии ФМР в исследуемом сплаве определяется характеристиками случайной магнитной анизотропии, а также дает возможность количественного сравнения экспериментальных данных с аналитическими и численными расчетами свойств данного нанокристаллического сплава в рамках модели случайной магнитной анизотропии.

Список литературы

- [1] G. Herzer. IEEE Trans. Magn. **26**, 5, 1397 (1990).
- [2] Р.С. Исхаков, С.В. Комогорцев. Изв. РАН. Сер. физ. **71**, 11, 1661 (2007).
- [3] Г. Томас, М.Дж. Гориндж. Просвечивающая электронная микроскопия материалов. Наука, М. (1983). 320 с.
- [4] JCPDS X-ray diffraction data card file and key (1997).
- [5] Handbook of magnetic materials Ed. K.H.J. Buschow. Elsevier, Amsterdam (1997). V. 10. P. 415.
- [6] Р. Бозорт. Ферромагнетизм. ИЛ, М. (1956). 784 с.
- [7] М. Rubinstein, V.G. Harris, P. Lubitz. J. Magn. Magn. Mater. **234**, 306 (2001).