

05

## Возврат и рекристаллизация в лентах из сплавов на основе никеля с разным направлением легкого намагничивания в условиях отжига в сильном магнитном поле

© И.В. Гервасьева,<sup>1</sup> В.А. Милютин,<sup>1</sup> Е. Вауignon,<sup>2</sup> В.А. Казанцев,<sup>1</sup> Ю.В. Хлебникова,<sup>1</sup> Д.П. Родионов<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Институт физики металлов им. М.Н. Михеева УрО РАН, 620990 Екатеринбург, Россия

<sup>2</sup> Univ. Grenoble Alpes, CNRS-LNCMI, Grenoble, France

e-mail: gervasy@imp.uran.ru

(Поступило в Редакцию 29 декабря 2015 г.)

Сплавы  $\text{Ni}_{48.8}\text{Fe}_{51.2}$  и  $\text{Ni}_{70}\text{Co}_{30}$ , подвергнутые холодной прокатке на 98.8–99.0%, отжигались в сильном постоянном магнитном поле до 29 Т, а также без поля при разных температурах. Исследовалось влияние поля на структуру и кристаллографическую текстуру. Обнаружено, что приложение внешнего магнитного поля задерживает процессы возврата и ранних стадий рекристаллизации. На стадии роста зерен при дальнейшем их развитии происходит усиление количества ориентировок с направлением легкого намагничивания и увеличение размера соответствующих зерен при условии, что направление легкого намагничивания совпадает с основной ориентировкой текстуры, характерной для данного материала. Если направление легкого намагничивания не совпадает с получаемой текстурой, то рост зерен в поле задерживается, и острота текстуры уменьшается.

### Введение

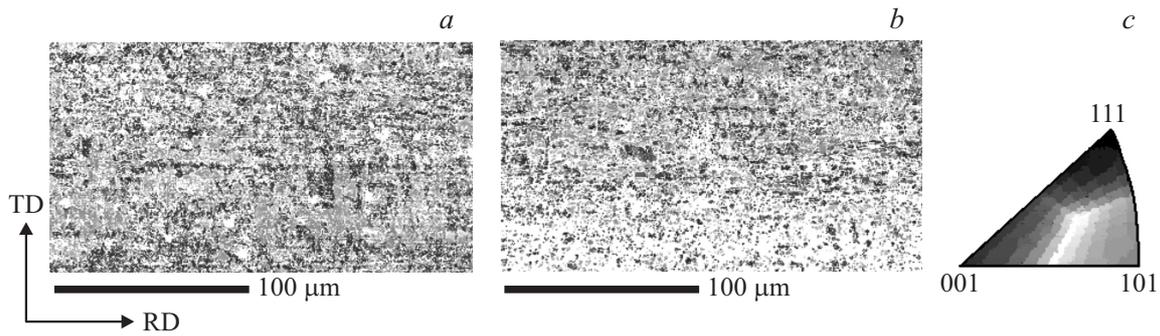
Появившиеся в последние годы работы по влиянию сильного постоянного магнитного поля на процессы диффузионно контролируемых превращений при термической обработке материалов обобщены, в частности, в обзорах [1,2]. Исследования касаются изменений структуры и текстуры при диффузионных фазовых превращениях, а также кинетики рекристаллизации и образования преимущественных ориентировок в однофазных материалах. Возросший интерес к этой области исследований обусловлен появлением мощных установок по созданию сильных постоянных магнитных полей до 30 Т и более с возможностью поддержания высоких температур внутри таких электромагнитов. Приложение сильного магнитного поля при отжиге материалов может быть перспективным методом воздействия на структуру, кристаллографическую текстуру, фазовый состав и соответственно на получение необходимых функциональных свойств. Однако до сих пор нет единой точки зрения по поводу причин влияния сильного поля на структуру и текстуру материалов, а, значит, ограничены и способы его целенаправленного применения. В качестве причины часто называется энергетический стимул выстраивания направления легкого намагничивания в процессе структурных превращений в направлении приложенного внешнего поля. В некоторых работах говорят о роли магнитоэлектрических в формировании структуры и текстуры. В нашей работе [3] показано, что отжиг прокатанного сплава  $\text{Ni}_{48.8}\text{Fe}_{51.2}$  при температурах до начала рекристаллизации в сильном постоянном магнитном поле 20 Т замедляет процессы возврата и одновременно способствует формированию структурных областей с

направлением легкого намагничивания  $\langle 001 \rangle$ . Нагрев производился посадкой в печь.

В дальнейших исследованиях была поставлена задача сравнить действие сильного магнитного поля на процессы, происходящие при отжиге в ферромагнитных материалах с разным направлением легкого намагничивания. Была проведена обработка в поле 20 и 29 Т с медленным нагревом до температуры отжига двух сплавов на основе никеля. В первом ( $\text{Ni}_{48.8}\text{Fe}_{51.2}$ ) — направлением легкого намагничивания является кристаллографическое направление  $\langle 001 \rangle$ , во втором ( $\text{Ni}_{70}\text{Co}_{30}$ ) —  $\langle 111 \rangle$ . Константа магнитной анизотропии при добавлении кобальта к никелю меняется немонотонно — от отрицательного значения для чистого никеля к положительным величинам в области 5–20% Со и затем снова опускается в отрицательную область [4]. Указанные сплавы были выбраны еще и потому, что и в том, и в другом в результате рекристаллизации после обычного отжига без поля образуется достаточно острая кубическая текстура  $\{100\}\langle 001 \rangle$  [5,6]. Основные результаты по сплаву  $\text{Ni}_{70}\text{Co}_{30}$  приведены в работе [7]. В настоящей работе приводятся новые данные для сплава  $\text{Ni}_{48.8}\text{Fe}_{51.2}$ , которые сравниваются с данными, полученными в работе [7].

### Материал и методика эксперимента

Сплавы никеля с Fe и Со были выплавлены в алунодовых тиглях в атмосфере аргона в индукционной печи. Был использован электролитический никель чистотой 99.99%. Легирующие элементы имели чистоту не менее 99.94%. После горячейковки слитков 1000–800°С были получены прутки сечением 10 × 10 мм. После шлифовки и отжига в вакууме при температуре 850°С



**Рис. 1.** Ориентационные карты EBSD сплава  $\text{Ni}_{48.8}\text{Fe}_{51.2}$  после отжига при  $500^\circ\text{C}$  с медленным нагревом и выдержкой 20 min без поля (a), в поле 29 Т (b) и положение ориентировок на стереографическом треугольнике (c).

в течение 1.5 h из прутков были получены заготовки прямоугольного сечения. Холодную деформацию заготовок с высокими степенями обжатия осуществляли на двувалковом прокатном стане до толщины  $80\text{--}100\ \mu\text{m}$  при числе проходов  $40\text{--}50$ . Степень холодной деформации составляла  $98.8\text{--}99.0\%$ . Средний размер зерна в заготовках перед прокаткой не превышал  $40\ \mu\text{m}$ .

Образцы размером  $5 \times 25\ \text{mm}$  были вырезаны вдоль направления прокатки ленты и помещены в вакуум в кварцевые ампулы с внешним диаметром  $9.5\ \text{mm}$ . Подготовленные таким образом образцы отжигали в Лаборатории сильных магнитных полей в Гренобле (Франция) в постоянном магнитном поле напряженностью 0, 20 и 29 Т. Сплавы  $\text{Ni}_{48.8}\text{Fe}_{51.2}$  и  $\text{Ni}_{70}\text{Co}_{30}$  отжигались с медленным нагревом со скоростью примерно  $10^\circ/\text{min}$ , начиная с  $300^\circ\text{C}$  до температур  $500^\circ\text{C}$  с выдержкой 20 min и  $550^\circ\text{C}$  с выдержкой 30 min соответственно. Точка Кюри первого сплава составляла  $500^\circ\text{C}$ , второго —  $680^\circ\text{C}$ , т.е. отжиг проводился в ферромагнитном состоянии. Температура начала первичной рекристаллизации в условиях немагнитного отжига составляла для сплава  $\text{Ni}_{48.8}\text{Fe}_{51.2}$  —  $563^\circ\text{C}$ , для сплава  $\text{Ni}_{70}\text{Co}_{30}$  —  $400^\circ\text{C}$ .

Образцы сплава  $\text{Ni}_{48.8}\text{Fe}_{51.2}$  после отжига при  $500^\circ\text{C}$  нагревались в кварцевом дилатометре Ulvac Sinku-riku в интервале температур от  $400$  до  $675^\circ\text{C}$  со скоростью нагрева  $2^\circ/\text{min}$  для определения температурного интервала протекания рекристаллизации по изменению коэффициента термического расширения сплава.

Одновременный анализ структуры и ориентировок в рекристаллизованных образцах проводили методом дифракции обратно отраженных электронов (EBSD), заключающемся в расшифровке картин Кикучи с помощью специальной приставки фирмы EDAX в сканирующем электронном микроскопе „FEI Quanta 200“. Шаг при сканировании составлял  $2\ \mu\text{m}$ , увеличение 400. Перед исследованием образцы электролитически полировались. Объемную долю разных кристаллографических плоскостей на поверхности ленты рассчитывали в пределах рассеяния  $\pm 10^\circ$ . Средний размер зерна после первичной рекристаллизации определяли методом секущей вдоль направления ленты по картинам качества изображения EBSD.

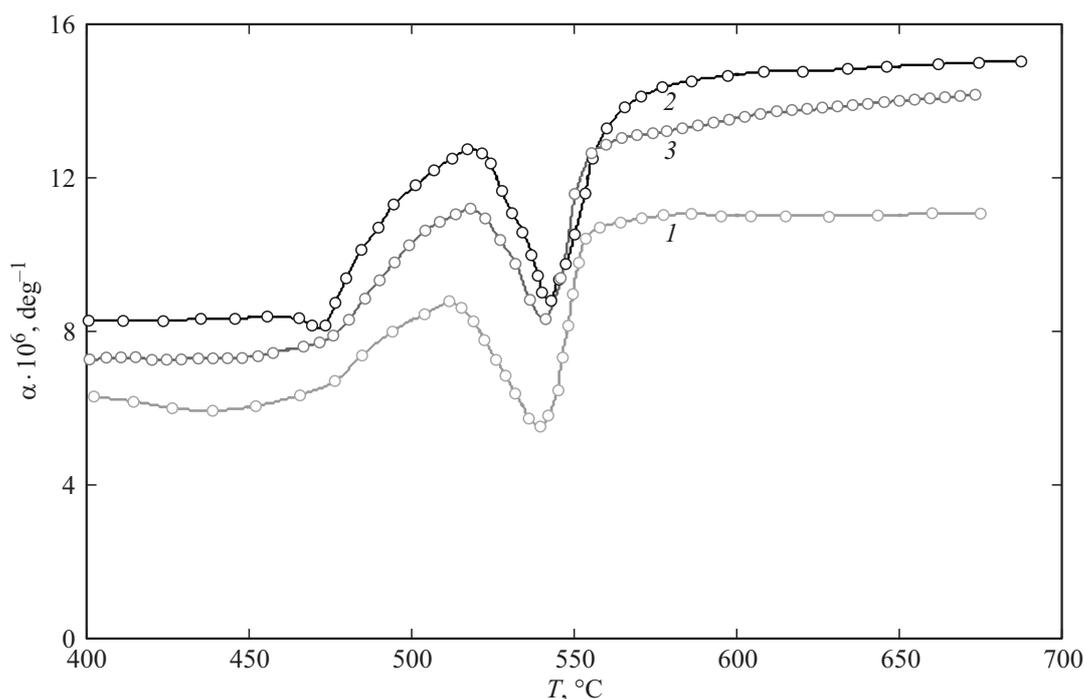
Исследование структуры сплава  $\text{Ni}_{48.8}\text{Fe}_{51.2}$  после до-рекристаллизационного отжига при  $500^\circ\text{C}$  осуществляли методом EBSD на сканирующем микроскопе высокого разрешения Carl Zeiss Auriga в Центре коллективного пользования Уральского федерального университета. Шаг при съемке составлял  $0.5\ \mu\text{m}$ .

Средний размер зерна в рекристаллизованных образцах определялся методом секущих по изображениям структуры, полученных на сканирующем микроскопе.

## Результаты и их обсуждение

Образцы сплава  $\text{Ni}_{48.8}\text{Fe}_{51.2}$  после отжига при  $500^\circ\text{C}$  претерпевали только возврат. В работе [3] было показано, что приложение магнитного поля 20 Т при отжиге таких образцов с быстрым нагревом на температуру  $490^\circ\text{C}$  задерживает процессы возврата. О замедлении процессов разупрочнения можно было судить по ухудшению качества картин Кикучи при исследовании методом EBSD, а также по более высоким значениям микротвердости после магнитного отжига. В настоящей работе образцы, подвергнутые до-рекристаллизационному отжигу с медленным нагревом при  $500^\circ\text{C}$ , исследовали методом EBSD на сканирующем микроскопе высокого разрешения Carl Zeiss Auriga. На рис. 1 приведены ориентационные карты, полученные с образцов, отожженных без поля (рис. 1, a), и в поле 29 Т (рис. 1, b). Неокрашенные области на ориентационных картах означают, что расшифровка картин Кикучи в этих местах невозможна, что, в свою очередь, свидетельствует о существенных искажениях кристаллографической решетки. Из рис. 1 видно, что качество расшифровки картин Кикучи намного ниже в образце после магнитного отжига, т.е. процессы разупрочнения затормаживаются под действием сильного магнитного поля.

Можно предположить, что такое торможение должно приводить к сдвигу интервала протекания первичной рекристаллизации в область более высоких температур. К сожалению, проведение эксперимента по отжигу в магнитном поле не предполагало одновременного использования дилатометра для определения аномалий, свидетельствующих о температурном интервале протекания рекристаллизации в образцах. Поэтому в работе



**Рис. 2.** Изменение коэффициента температурного линейного расширения при нагреве со скоростью 2 deg/min сплава  $\text{Ni}_{48.8}\text{Fe}_{51.2}$ , предварительно отожженного при  $500^\circ\text{C}$  без поля (1), в поле 20 Т (2) и 29 Т (3).

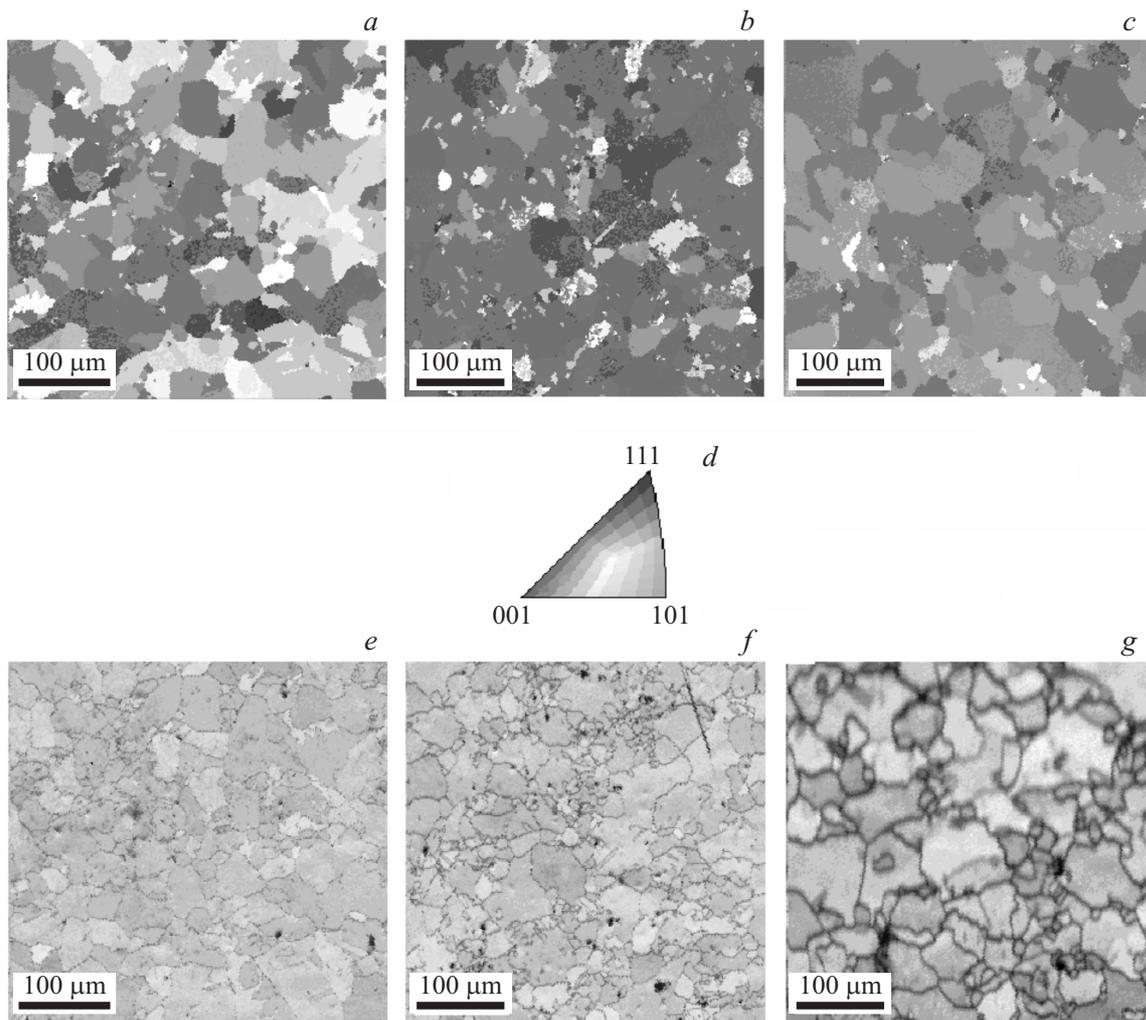
была сделана попытка исследовать эту аномалию на образцах уже предварительно отожженных в магнитном поле при  $500^\circ\text{C}$ . На рис. 2 приведены дилатометрические кривые исследованных образцов. Нагрев начинался с  $400^\circ\text{C}$  и заканчивался при  $675^\circ\text{C}$ , при этом, естественно, все образцы до начала рекристаллизации дополнительно разупрочнялись. Положение пика дилатометрической аномалии менялось от  $539^\circ\text{C}$  для образца, предварительно отожженного без поля, до  $543^\circ\text{C}$  для образца после магнитного отжига. Разумеется, разница в 4 градуса слишком мала, чтобы сделать однозначный вывод, однако тенденция смещения температуры рекристаллизации в область более высоких температур наблюдается.

Образцы, подвергнутые отжигу в процессе дилатометрического исследования до конечной температуры  $675^\circ\text{C}$ , были исследованы методом EBSD в сканирующем микроскопе. На рис. 3 приведены фрагменты ориентационных карт и картин качества расшифровки линий Кикучи для образцов с предварительным дорекристалли-

зационным отжигом при  $500^\circ\text{C}$  без поля (рис. 3, *a, e*), в поле 20 Т (рис. 3, *b, f*) и в поле 29 Т (рис. 3, *c, g*). Картины качества расшифровки картин Кикучи в данном случае приведены для того, чтобы более четко показать зеренную структуру образцов. Обращает на себя внимание то, что размер зерна после обработки, включающей в себя отжиг в поле 29 Т, существенно больше, чем после обработки без поля. Другим ярко проявившимся отличием в структуре образцов, претерпевших термическую обработку в магнитном поле, и образцов, испытывавших такую же обработку, но без поля, оказалось изменение в кристаллографической текстуре. По цветным ориентационным картам (рис. 3, *a–c*) видно, что количество „красных“ ориентировок, изображающих ориентировки, близкие к кубической  $\{100\}$ , существенно увеличивается с повышением величины поля, т.е. распределение соответствующих ориентировок относительно внешних направлений образца становится более острым. Это также можно видеть по распределению полюсов  $\{100\}$  на

Изменение среднего размера зерна  $D$  и объемной доли компонентов  $\{100\}$  и  $\{112\}$  с рассеянием  $\pm 10^\circ$  в исследованных сплавах после указанных обработок

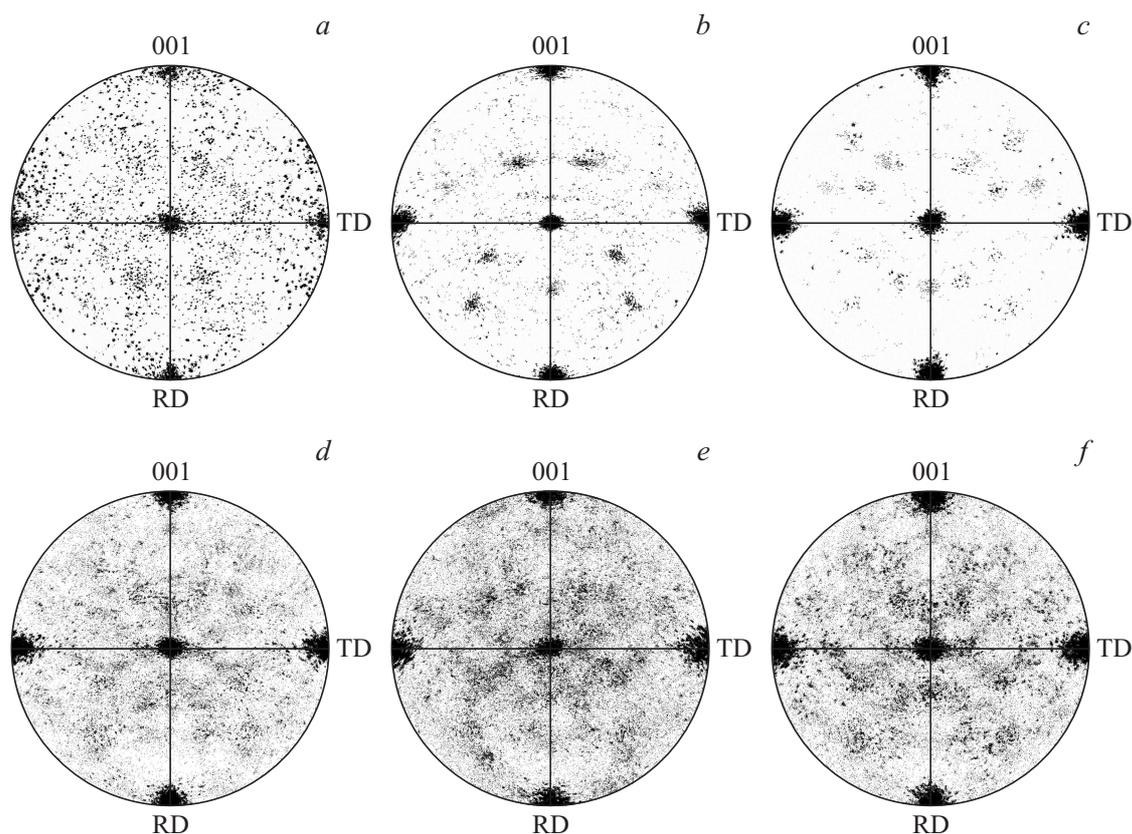
$H, \text{T}$	$\text{Ni}_{48.8}\text{Fe}_{51.2}$ после магнитного отжига при $500^\circ\text{C}$ и отжига без поля до $670^\circ\text{C}$			$\text{Ni}_{70}\text{Co}_{30}$ после магнитного отжига при $550^\circ\text{C}$		
	$D, \mu\text{m}$	$\{100\}, \%$	$\{112\}, \%$	$D, \mu\text{m}$	$\{100\}, \%$	$\{112\}, \%$
0	31.5	49.1	3.1	78	81.8	1.0
20	32.2	91.6	0.3	70	72.2	1.9
29	49.4	97.5	0.2	49	73.7	1.8



**Рис. 3.** Ориентационные карты (*a–c*), картины качества расшифровки линий Кикучи (*e–g*) и стереографический треугольник с расшифровкой ориентаций (*d*) сплава  $\text{Ni}_{48.8}\text{Fe}_{51.2}$  после медленного нагрева до  $675^\circ\text{C}$  с предварительным дорекристаллизационным отжигом при  $500^\circ\text{C}$  без поля (*a, e*), в поле 20 Т (*b, f*) и 29 Т (*c, g*).

полюсных фигурах, построенных по результатам EBSD анализа (рис. 4, *a–c*). На этом же рисунке приведены такие же полюсные фигуры для образцов сплава  $\text{Ni}_{70}\text{Co}_{30}$ , отожженных при температуре  $550^\circ\text{C}$ , 30 min. Можно видеть, что в этом сплаве острота кубической текстуры при увеличении поля не увеличивается, а уменьшается. В таблице приведены количественные характеристики структуры и ориентировок, формирующихся в сплавах  $\text{Ni}_{48.8}\text{Fe}_{51.2}$  и  $\text{Ni}_{70}\text{Co}_{30}$  при отжиге в магнитном поле 20 и 29 Т, а также без поля при указанных термических обработках. В сплаве  $\text{Ni}_{48.8}\text{Fe}_{51.2}$  с направлением легкого намагничивания  $\langle 001 \rangle$  приложение магнитного поля при дорекристаллизационном отжиге способствует резкому возрастанию объемной доли кубической ориентировки с 49.1% после отжига без поля до 91.6 и 97.5% после отжига в поле 20 и 29 Т соответственно. Количество плоскостной ориентировки  $\{112\}$ , которая входит в одну из основных компонент исходной текстуры деформации  $\{112\}\langle 111 \rangle$  при этом уменьшается с 3.1 до 0.3 и 0.2%.

В сплаве  $\text{Ni}_{70}\text{Co}_{30}$  с направлением легкого намагничивания  $\langle 111 \rangle$  приложение магнитного поля, наоборот, уменьшает количество кубической компоненты, ее объемная доля меняется с 81.8% после отжига без поля до 72.2 и 73.7% после отжига в поле 20 и 29 Т соответственно. Количество плоскостной ориентировки  $\{112\}$  при этом слегка увеличивается с 1.0 до 1.9 и 1.8%. Поскольку эта плоскость принадлежит исходной ориентировке текстуры деформации  $\{112\}\langle 111 \rangle$ , которая содержит направление легкого намагничивания  $\langle 111 \rangle$  для этого сплава, такое увеличение может свидетельствовать о стимулировании роста ориентировок с направлением легкого намагничивания в магнитном поле. Тем не менее видно, что энергия магнитной анизотропии не может играть определяющую роль в формировании текстуры рекристаллизации, главными движущими силами остаются энергия, запасенная при холодной деформации, и энергия границ зерен. Средний размер зерна после первичной рекристаллизации в исследованных сплавах



**Рис. 4.** Полосные фигуры, полученные методом EBSD, для сплавов  $\text{Ni}_{48.8}\text{Fe}_{51.2}$  (*a–c*) и  $\text{Ni}_{70}\text{Co}_{30}$  (*d–f*), отожженных без поля (*a, d*), в поле 20 (*b, e*) и 29 (*c, f*) Т. Температура отжига сплавов  $\text{Ni}_{48.8}\text{Fe}_{51.2}$  и  $\text{Ni}_{70}\text{Co}_{30}$  — 675 и 550°С соответственно. Подробности обработки — в тексте.

с увеличением магнитного поля демонстрирует разнонаправленную тенденцию. В сплаве  $\text{Ni}_{48.8}\text{Fe}_{51.2}$  размер зерна увеличивается с  $31.5\ \mu\text{m}$  после предварительного отжига без поля до  $32.2$  и  $49.4\ \mu\text{m}$  после предварительного отжига в поле 20 и 29 Т, а в сплаве  $\text{Ni}_{70}\text{Co}_{30}$  — уменьшается с  $78\ \mu\text{m}$  после отжига без поля до  $70$  и  $49\ \mu\text{m}$  после отжига в поле 20 и 29 Т. Очевидно, это связано с торможением роста кубических зерен во втором сплаве и с увеличением скорости роста кубических зерен с направлением легкого намагничивания — в первом.

О протекании процессов возврата можно было непосредственно судить по сплаву  $\text{Ni}_{48.8}\text{Fe}_{51.2}$ , который отжигался в магнитном поле при температуре 500°С, которая в обычных условиях без поля близка к температуре магнитного разупорядочения. Как уже отмечалось в работе [3] со ссылкой на работы [8,9], наличие магнитного момента дислокаций создает дополнительную энергию взаимодействия с внешним полем, препятствующую их движению, поэтому в сильных полях движение дислокаций затрудняется тем, что нужно прикладывать энергию для преодоления ориентирующего влияния поля. Этим в работе [10] объясняется эффект уменьшения максимального удлинения стали при растяжении в магнитном поле 5 Т. Кроме того, авторы монографии [11], а ранее авторы [12,13], указывают на наличие диффузионной магнитной аномалии, наблюдаемой в темпера-

турной области перехода из парамагнитного состояния в ферромагнитное, которая заключается в том, что в ферромагнитных металлах с понижением температуры вблизи точки Кюри диффузионная подвижность уменьшается быстрее, чем это следует из уравнения Аррениуса, т.е. наблюдается аномальное уменьшение коэффициента диффузии. В настоящей работе отжиг без поля железоникелевого сплава происходил на границе ферромагнитного и парамагнитного состояний, когда магнитный порядок в существенной степени нарушен. Использование сильного магнитного поля 20 и 29 Т не дает разрушаться магнитному порядку, можно сказать, что отжиг происходит еще в ферромагнитном состоянии. Поэтому можно ожидать, что диффузионные процессы при магнитном отжиге протекают медленнее, чем при отжиге без поля, что, в свою очередь, задерживает процессы разупрочнения при возврате.

Другим явлением, происходящим при отжиге в магнитном поле, является ориентирующее влияние поля на формирование ячеек с направлением легкого намагничивания, совпадающем с направлением поля. В сплаве  $\text{Ni}_{48.8}\text{Fe}_{51.2}$  при нагреве деформированного металла в поле энергетически выгоднее расти ячейкам с направлением легкого намагничивания  $\langle 001 \rangle$ . При дальнейшей первичной рекристаллизации в обычных условиях это сказывается на формировании текстуры  $\{100\}\langle 001 \rangle$  в

рекристаллизованных зернах, увеличивая ее остроту. В процессе отжига с медленным нагревом в магнитном поле сплава  $\text{Ni}_{70}\text{Co}_{30}$  энергетически выгодно образовываться структурным элементом с направлением легкого намагничивания  $\langle 111 \rangle$ . Однако вклад магнитной энергии слишком мал по сравнению с энергией, запасенной при холодной деформации и энергией границ зерен, поэтому приложение магнитного поля в этом сплаве не может предотвратить образование кубической текстуры, однако существенно снижает остроту кубической ориентировки (см. таблицу). Об ориентирующем влиянии поля на создание областей с направлением легкого намагничивания  $\langle 111 \rangle$  можно судить по слабому увеличению объемной доли компоненты текстуры деформации  $\{112\}\langle 111 \rangle$ , остающейся в текстуре первичной рекристаллизации после магнитных отжигов (см. таблицу).

## Заключение

Установлено, что приложение сильного постоянного магнитного поля при отжиге замедляет процессы возврата. Это объясняется замедлением процессов диффузии под действием внешнего магнитного поля, а также затруднением движения дислокаций из-за воздействия внешнего поля на их магнитные моменты.

Энергия магнитной анизотропии вносит вклад в формирование кристаллографической текстуры после отжига в магнитном поле. В сплаве с направлением легкого намагничивания  $\langle 001 \rangle$  отжиг в магнитном поле увеличивает остроту кубической текстуры и повышает средний размер зерна. В сплаве с направлением легкого намагничивания  $\langle 111 \rangle$  после отжига в поле острота кубической текстуры падает, а средний размер зерна уменьшается.

Эксперименты по определению ориентации зерен на поверхности текстурованных лент методом EBSD проведены в отделе электронной микроскопии, съемка дилатометрических кривых — в отделе магнитных измерений ЦКП Испытательный центр нанотехнологий и перспективных материалов Института физики металлов УрО РАН.

Работа выполнена в рамках государственного задания ФАНО России (тема „Магнит“, № 01201463328). Авторы выражают благодарность за поддержку организации LNCMI-CNRS, члену Европейской лаборатории магнитных полей (EMFL).

## Список литературы

- [1] Rivoirard S. // JOM. 2013. Vol. 65. P. 901–909.
- [2] Zhang Y., Esling C., Zhao X., Zuo L. // Mater. Sci. Forum. 2010. Vol. 638–642. P. 202–207.
- [3] Gervasyeva I.V., Beaunon E., Milyutin V.A., Volkova E.G., Rodionov D.P., Khlebnikova Yu.V., Shishkin D.A. // Phisica B. 2015. Vol. 468–469. P. 66–71.

- [4] Тикадзуми С. Физика ферромагнетизма. Магнитные характеристики и практические применения. М.: Мир, 1987. С. 51.
- [5] Ray R.K. // Acta Met. Mater. 1995. Vol. 43. N 10. P. 3861–3872.
- [6] Гervasьева И.В., Соколов Б.К., Родионов Д.П., Хлебникова Ю.В., Подкин Я.В. // ФММ. 2003. Т. 96. № 2. С. 95–101.
- [7] Гervasьева И.В., Милютин В.А., Бинон Э., Хлебникова Ю.В., Родионов Д.П. // ФММ. 2016. Т. 117. № 5. С. 513–518.
- [8] Vicens F. // Czech. J. Phys. 1955. Vol. 5. N 4. P. 480–501.
- [9] Seeger A., Kronmuller H., Rieger H., Traubler R. // J. Appl. Phys. 1964. Vol. 35. P. 740–748.
- [10] Ефимова Т.В., Полотнюк В.В. // Укр. физ. журн. 1981. Т. 26. № 7. С. 1149–1153.
- [11] Мазанко В.Ф., Покоев А.В., Миронов В.М. и др. Диффузионные процессы в металлах под действием магнитных полей и импульсных деформаций. Т. 1. М.: Машиностроение-1; Самара: Самарский университет, 2006. 346 с.
- [12] Kucera J., Kozak L., Mehrer H. // Phys. Stat. Sol. A. 1984. Vol. 81. P. 497–505.
- [13] Salje G., Feller-Kniepmeier M. // J. Appl. Phys. 1977. Vol. 48. N 5. P. 1833–1839.