

УДК 669.15/781/782/784 : 537.611.3

**ОБЪЕМНЫЕ НЕОДНОРОДНОСТИ,  
СКАЧКИ БАРКГАУЗЕНА И ДОМЕННАЯ СТРУКТУРА  
АМОРФНОГО СПЛАВА Fe—В—Si—C**

*П. Г. Черемской, Л. Г. Муровцев, Л. З. Лубяный, Л. И. Лукашенко,  
О. Л. Утевская, Н. Е. Оверко, В. М. Киреев, В. М. Козин*

Проведено комплексное исследование влияния характера распределения объемных неоднородностей и их типа на доменную структуру, процессы перемагничивания и скачки Баркгаузена (СБ) в лентах аморфного сплава Fe—В—Si—C. Установлена природа и определены характеристики макро- и микронеоднородностей, чувствительных к изменению условий получения лент.

В работе [1] исследованы особенности рентгеновского малоуглового рассеяния (РМР), а также доменной структуры (ДС) двух- и трехкомпонентных аморфных сплавов на основе Fe—В. Показано, что природа выявляемых по РМР неоднородностей электронной плотности и ДС зависят не только от элементного состава, но и от тепловой обработки сплавов, которой они могут подвергаться в условиях эксплуатации.

Данная работа посвящена изучению характерных структурных неоднородностей, образующихся в четырехкомпонентном сплаве Fe—В—Si—C, при некоторой вариации условий получения, влияющих на магнитные характеристики — СБ и ДС лент. В связи с неоднородностью лент, получаемых путем закалки из расплава на поверхности вращающегося диска, поставлена также специальная задача сопоставления характеристик структурной неоднородности и магнитных параметров на локальных, топологически различающихся участках ленты.

Исследованы ленты толщиной  $h=22-27$  мкм и шириной 10 мм, полученные путем закалки на поверхности вращающегося диска. При одном и том же составе шихты в процессе получения скорость вращения  $n$  диска и температуру  $T$  расплава варьировали в некоторых пределах относительно выбранных минимальных значений  $n_0$  и  $T_0$  (см. таблицу). Применены методы РМР, рентгеновской абсорбции, прецизионного гидростатического взвешивания, оптической микроскопии, магнитных шумов, порошковых фигур Акулова—Биттера.

Характеристики образцов

№ обр.	$n/n_0$	$T/T_0$	$Q, 10^5 \text{ нм}^{-3}$	$C_M \cdot 10^2, \%$	Плотность, г/см <sup>3</sup>	
					гидростат.	рентгеновск.
1	1	1	0,72	2,40	7,65	7,25
2	1	1,06	$\frac{0,66^*}{1,19}$	$\frac{2,10^*}{3,70}$	7,65	$\frac{7,45^*}{6,75}$
3	1,3	1	1,12	3,65	7,60	7,05
4	1,3	1,06	10,90	30,30	7,43	6,15
5	1,13	1,06	1,15	3,70	7,52	7,10

\* Числитель соответствует гладким участкам ленты, знаменатель — шероховатым. Для всех остальных образцов указаны средние значения соответствующих величин.

Малоугловые рентгеновские исследования производили по методике, описанной в [2], применяя излучение  $\lambda_{\text{Mo-K}\alpha} = 0,071$  нм. Дифференциальное гидростатическое взвешивание образцов осуществляли в воздухе на специальной установке [2] и  $\text{CCl}_4$ . Погрешность определения плотности не превышала  $10^{-2}\%$ .

## 1. РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТА И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

1.1. Неоднородности структуры. Особенностью исследуемого сплава, как и других аналогично получаемых металлических стекол, является наличие в их структуре объемных неоднородностей, соответствующих двум масштабным уровням измерения. Макронеоднородности микронных и больших размеров, в том числе разнотолщинные области, обуславливают

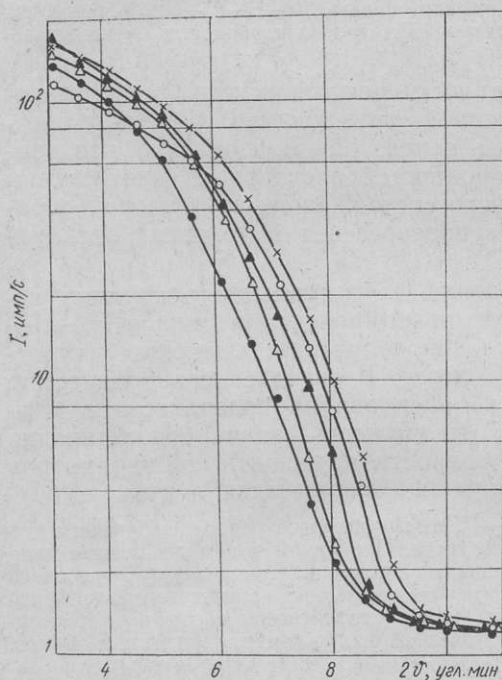


Рис. 1. Индикатрисы РМР аморфным сплавом Fe—B—Si—C:

● — образец 1; △ — обр. 2; ▲ — обр. 3; × — обр. 4;  
○ — обр. 5.

характерный для лент рельеф. Микронеоднородности нанометрового диапазона представляют собой области пониженной или повышенной плотности, вызывающие РМР вследствие дисперсии  $D$  распределения колебаний электронной плотности  $\rho$  в образце:  $D = \langle (\rho - \langle \rho \rangle)^2 \rangle / \rho$ , где  $\langle \rho \rangle$  — средняя электронная плотность сплава.

На поверхности большинства исследованных лент выявляется «муар» в виде «волн» с некоторым периодом, который образован чередующимися шероховатыми и более гладкими участками, ориентированными перпендикулярно длине ленты. Волнообразный рельеф ленты, вероятно, имеет вибрационную природу и модулирован частотными биениями вращающегося диска. Шероховатые участки состоят из выявляемых визуально или при небольшом увеличении вытянутых по длине ленты макронеоднородностей в виде «строчек», которые особенно четко выражены со стороны, прилегающей к диску. С противоположной (блестящей) стороны максимальная глубина  $t$  неровностей колебалась от 0,05 до 0,3  $h$  для различных  $n$  и  $T$ . Однозначной связи между  $t$ ,  $n$  и  $T$  установить не удалось, однако выявлена тенденция увеличения  $t$  при одновременном повышении  $T$  и  $n$ .

Рентгеновские малоугловые съемки показали, что в данном сплаве преобладают микронеоднородности электронной плотности, радиус инерции которых превышает 10 нм. На долю более мелких неоднородностей, выявляемых по РМР, приходится менее 1% суммарного их количества при отсутствии полимодальности в распределении этого объема по размерам, характерной для сплава Fe—B [1].

Усредненный для различных участков лент уровень интегральной интенсивности РМР изменяется в диапазоне  $2 \cdot 10^{-5} - 3 \cdot 10^{-4}$  от интенсивности первичного пучка, достигая максимального значения при одновременном повышении  $n$  и  $T$ , а минимального — при соответствующем их понижении (рис. 1). В связи с частичным наложением «хвостов»

РМР и первого дифракционного «галла», затрудняющим корректный анализ асимптотики РМР, мы вынуждены были ограничиться применением методики Гинье и расчетом инварианта  $Q = \frac{1}{2\pi^2} \int_0^\infty s^2 \tilde{I}(s) ds$  ( $s = 4\pi \sin \theta / \lambda$ ,  $2\theta$  — угол рассеяния), величина которого при нормированной интенсивности рассеяния  $\tilde{I}(s)$  характеризует дисперсию  $D$  среднего распределения колебаний электронной плотности в облучаемом объеме [2, 3].

Выраженная неоднородность РМР в различных участках лент потребовала применения прицельных малоугловых съемок со сканированием вдоль ленты с шагом не более 0,1 мм при ширине облучаемого участка менее 0,05 мм. В результате таких съемок при различной азимутальной и полярной ориентации образцов относительно первичного пучка оказалось, что максимальный уровень интенсивности и наиболее выраженная анизотропия РМР соответствуют шероховатым областям ленты по сравнению с более гладкими участками.

Характер анизотропии РМР в шероховатых участках ленты аналогичен ранее наблюдаемому в сплавах на основе Fe—В (см. [1]). Он обусловлен тем, что образующие «муар» и расположенные поперек ленты полосы повышенной шероховатости, наряду с ориентированными вдоль ленты «строчечными» макронеоднородностями, содержат ориентированные вдоль фронта затвердевания расплава чечевицепоподобные микронеоднородности, концентрация которых существенно выше, чем в гладких участках. В свободных от макронеоднородностей областях микронеоднородности более равноосны в плоскости ленты, но сильнее сплюснуты по нормали к ней. Чтобы выяснить их природу, необходимо исходить из преимущественного вклада в интенсивность РМР микронеоднородностей, вызывающих максимальный при заданном элементном составе локальный перепад электронной плотности в матрице. Такими неоднородностями для исследуемого сплава являются области пониженной плотности (ОПП), образующиеся вследствие локализации свободного объема, а также развития поверхностных и внутренних шероховатостей, размер которых превышает длину волны излучения. Экспериментальным подтверждением этого является взаимная корреляция между уровнем интенсивности РМР (величиной  $Q$ ), значениями гидростатической плотности и плотности, рассчитанной по ослаблению монохроматического рентгеновского излучения (см. таблицу).

Наименьшей рассеивающей способностью обладают наиболее плотные и наиболее сильно поглощающие излучение образцы. Минимальные же значения плотности и степени ослабления излучения характерны для образцов с максимальной рассеивающей способностью. Кроме того, обогащенные микронеоднородностями шероховатые области одной и той же ленты поглощают рентгеновские лучи гораздо слабее, чем области более гладкие. Для всех образцов значение плотности, рассчитанное по ослаблению излучения, ниже значений гидростатической плотности, что связано с шероховатостью рельефа и наличием нарушенных сплошности, недоступных для рабочей жидкости при гидростатическом взвешивании образцов.

В зависимости от степени однородности упаковки атомов, обусловленной характером их топологического упорядочения при различных температурах и скоростях охлаждения, свободный объем может проявляться не только локализованно, вызывая РМР, но и делокализованно, распределяясь между атомами квазинепрерывно, разуплотняя сплав, но не влияя на РМР. Поэтому прецизионные измерения плотности сплава одного и того же состава позволяют оценить влияние условий получения на интегральную величину свободного объема, вклю-

чающую геометрический  $V_T$ , флуктуационный  $V_\Phi$  и свободный объем  $V_T$  теплового расширения.

Обусловленная смещениями из равновесного положения атомов величина  $V_\Phi$  экспоненциально зависит от  $T$  и определяется средней амплитудой тепловых колебаний атомов. Величина  $V_T$ , связанная с  $V_\Phi$ , определяется разностью между объемом тела при заданной температуре и объемом, получаемым путем экстраполяции кривой  $V-T$  на температуру, равную абсолютному нулю. Фиксированию избытка  $V_\Phi$  и  $V_T$  при стекловании сплава способствует повышение  $T$ . Разность  $V_T$  между реальным объемом тела и собственным суммарным объемом атомов характеризует общую субмикро-, микро- и макропористость различного происхождения, снижающую не только плотность сплава, но и вызывающую РМР.

Из таблицы видно, что доли свободного объема, выявляемые методом РМР ( $C_M$ ) и оцениваемые по дефекту плотности, количественно различны, но характер их зависимости от  $T$  и  $n$  практически одинаков. Эффект по измерению плотности более ощутим вследствие наличия в образцах крупных (более 100 нм) ОПП, РМР на которых труднодоступно для регистрации. Одновременное повышение  $T$  и  $n$  приводит к значительному росту свободного объема за счет порообразования, обусловленного усадкой совместно с процессами газопоглощения и газовыделения.

Неоднородность усадки вследствие неодинаковой по сечению ленты скорости затвердевания, приводящей к неоднородности распределения внутренних напряжений и появлению усадочных пор, усиливается захватом струей расплава газовых пузырьков в момент поступления на поверхность диска и их замуравыванием при стекловании. Выявляемые «строчечные» макронеоднородности рельефа связаны с увлечением движущейся лентой газовых пузырьков, захваченных в зоне сопряжения поверхности расплава и диска. В результате объемного расширения расплава при его затвердевании увеличение перепада температур наружных и внутренних слоев при повышении  $T$  будет способствовать укрупнению усадочных пор, что согласуется с результатами проведенного исследования.

Пористость лент во многом зависит также от поведения газов, растворенных в жидкой фазе, а также сорбированных сплавом в процессе стеклования, от кавитационных эффектов, вызываемых вибрацией расплава в начальный момент формирования ленты. Чем медленнее остывает лента, тем выше диффузионная подвижность газообразных примесей и тем больше вероятность их кластеризации. Поскольку процессы зарождения и роста газовых пор в сплаве стимулируются повышением температуры, они должны протекать более интенсивно при одновременном повышении  $n$  и  $T$ , что наблюдается экспериментально.

Заметим, что наличие ОПП в виде субмикро-, микро- и макропор не означает отсутствия свойственных аморфным сплавам локальных концентрационных флуктуаций, образование которых происходит наряду с локализацией свободного объема, как впрочем и протекание процессов образования — распада неоднородных твердых растворов, старения и порообразования в кристаллических материалах.

1.2. Скачки Баркгаузена. Исследования проводили на магнитошумовом структуроскопе, позволяющем измерять плотность распределения СБ по полю  $\frac{dN}{dH}/(H)$ , спектральную плотность  $g(f)$ , зависимость спектральной плотности шумов от амплитуды поля  $H_m$ . Спектральные характеристики измеряли на частоте перемагничивания  $f_0 = 13,3$  Гц. Остальные измерения проводили в магнитных полях, изменяющихся с периодом 6,6 с. Чувствительность установки  $\Delta M \leq \leq 8 \cdot 10^{-11}$  А·м<sup>2</sup>,  $M$  — намагниченность.

Для всех исследованных образцов характерен большой интервал полей старта  $H_{ст} = \pm (10-20)$  А/см, что свидетельствует о наличии в лентах широкого спектра магнитоактивных дефектов, приводящих к скачкообразному движению магнитных стенок при перемагничивании. На зависимостях  $dN/dH$  в области малых полей наблюдаются минимумы, которые могут быть объяснены возникновением коррелированных СБ, то есть крупных скачков, образованных группированием большого числа мелких СБ. Возможная причина возникновения таких скачков в исследованных материалах изложена ранее [4]. Наиболее сильная тенденция к образованию корреляционных СБ проявляется в образцах, полученных при максимальных  $T$  и  $n$ . Несмотря на сравнительно небольшое число таких аномально длительных (0,5—1 мс) СБ, они вносят в необратимую часть перемагничивания вклад того же порядка, что и обычные СБ. Уровень магнитного шума в таких сплавах наибольший.

Подобная же картина наблюдается и при рассмотрении магнитных спектров сплавов. Самое низкое значение частоты спада  $f_{сп}$  найдено на образцах, полученных при наибольших  $T$  и  $n$ , что говорит о сильном укрупнении СБ.

Приведенные характеристики получены при использовании искательной катушки с длиной намотки, гораздо большей возможных объемных и поверхностных неоднородностей. Для повышения пространственного разрешения был использован датчик с концентратором магнитного поля в виде магнитной головки (МГ) с шириной немагнитного зазора 100 мкм. В качестве материала сердечника выбран феррит 2000 НМ, уровень собственных магнитных шумов которого ниже чувствительности применявшейся при исследовании установки.

Измерения проводили при плавном перемещении образцов относительно зазора МГ с шагом 0,2 мм. Одновременно регистрировали петли гистерезиса, применяя локальный магнитооптический метод при диаметре светового пятна порядка 0,2 мм.

На всех исследованных образцах наблюдались большие колебания значений уровня магнитного шума  $U_{ш}$  и числа  $N$  СБ по длине ленты (в 5—10 и 1,5—2 раза соответственно).

На рис. 2 приведены значения  $U_{ш}$  и  $N$  для образца 2 (см. таблицу), на котором четко выявляется «муар» с периодом порядка 2—3 мм, образующийся шероховатыми и гладкими участками. Для повышения достоверности результатов измерений вычисляли среднеквадратичные значения  $N$  по 10 выборкам. Видно, что период  $U_{ш}(x)$  и  $N(x)$  совпадает с периодом «муара». Максимумы  $U_{ш}$  соответствуют шероховатым, а минимумы — более гладким участкам ленты.

Для сравнения в верхнем левом углу рис. 2 приведены магнитооптические петли гистерезиса. Петля 3 снята с гладкого участка ленты, петля 1 — с шероховатого. Петля 2 соответствует промежуточному участку. Вид петли 3 характерен для ферромагнетиков с перпендикулярной анизотропией, обладающих полосовой ДС (ПДС). Петля 1 ха-

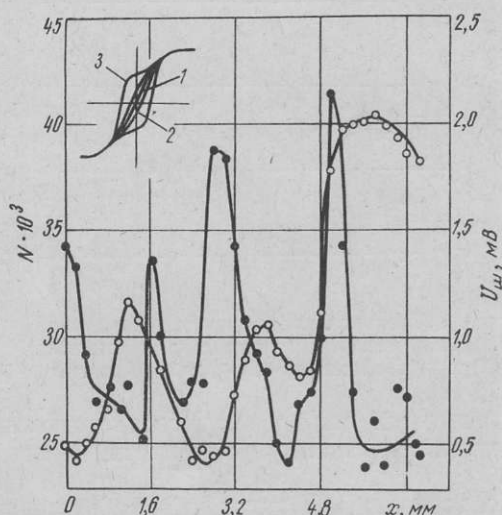


Рис. 2. Зависимости  $U_{ш}$  (—●—) и  $N$  (—○—) от координаты  $x$  вдоль длины ленты с «муаром».

рактерна для материалов с планарной намагниченностью доменов (ПНД), разделенных  $180^\circ$  — границами.

Таким образом, есть основания полагать, что в гладких областях магнитные шумы обусловлены преимущественно магнитной фазой с ПДС. Известно [5], что перемагничивание в этом случае осуществляется некогерентным вращением магнитного момента в полосовых доменах. В процессе перемагничивания образуются макрообласти с одинаковой по величине компонентой планарной намагниченности. Размеры этих областей соизмеримы с шириной полос (порядка 1—5 мкм), а объем по оценке составляет  $10^{-6}$ — $10^{-7}$  мм<sup>3</sup>, что находится вблизи предела чувствительности баркгаузеновских измерений. Поэтому измеряемый уровень  $U_m$  оказывается низким, а число СБ достаточно большим.

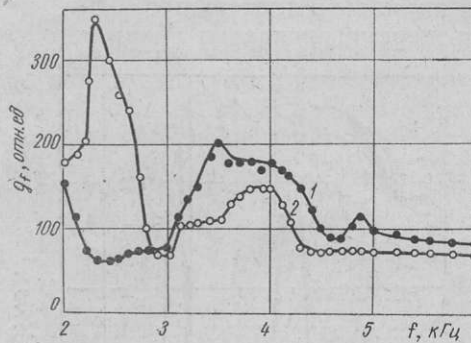


Рис. 3. Спектральное распределение интенсивности магнитных шумов для гладких (1) и шероховатых (2) участков ленты.

В противоположность этому, скачки в шероховатой зоне обусловлены главным образом процессами смещения  $180^\circ$  — границ. Такие скачки крупнее, а количество их сравнительно невелико.

Отмеченная тенденция хорошо подтверждается и характером спектрального распределения интенсивности магнитных шумов в гладких и шероховатых областях того же образца (рис. 3). Спектральные распределения, присущие первой и второй областям,

отражены кривыми 1 и 2 соответственно. На кривой 2 имеется явно выраженный максимум в области малых частот  $f$  и менее выраженный в области более высоких  $f$ . На кривой 1 явно выражен второй максимум. Сопоставление этих кривых со значениями  $U_m$ ,  $N$  и данными магнитооптики позволяют сделать предположение о том, что второй максимум ответствен за флуктуационные процессы в областях с ПДС, а первый — в областях с ПНД. Причем, как ПДС, так и ПНД существуют в обеих областях, но в разных соотношениях.

1.3. Доменная структура. Исследованный сплав обладает высокой положительной магнитострикцией (константа  $\lambda_s \approx 3 \cdot 10^{-5}$ ). Главным фактором, определяющим ДС таких сплавов, являются внутренние напряжения [6]. Отсюда следует необходимость тщательной постановки эксперимента, при которой исключается деформация лент.

В исходном состоянии исследованные ленты слегка деформированы в виде желоба, вогнутого со стороны блестящей поверхности. При исследовании ДС на блестящую или матовую поверхности наносили каплю магнитной суспензии и наблюдали порошковые фигуры в двух вариантах: без покровного стекла и с покровным стеклом, наложенным поверх суспензии. В первом случае на значительной части поверхности выявляется ПДС, что свидетельствует о плоскостных сжимающих напряжениях. После наложения стекла площадь, занятая ПДС, уменьшается, и одновременно фиксируются четкие фигуры ПДС на противоположной, матовой, поверхности ленты. Таким образом, стекло, деформируя ленту, вносит «приборные» искажения. Степень этих искажений тем больше, чем совершеннее лента, то есть чем мельче макро- и микронеоднородности. Грубый рельеф ленты препятствует ее деформации при наложении покровного стекла и уменьшает приборную ошибку.

В результате исследования порошковых фигур на блестящей поверхности обнаружены следующие закономерности. Ленты, облада-

ющие четким «муаром» (образец 2), характеризуются периодически изменяющейся ДС. На шероховатых участках ленты растянута в своей плоскости, что вызывает появление ПНД. Деформация при наложении стекла несколько усиливает исходную плоскостную анизотропию, ось легкого намагничивания (ОЛН) которой перпендикулярна длине ленты. На гладких участках лента сжата, здесь реализуется ПДС. Наложение стекла уменьшает площадь, занятую ПДС, не приводя, однако, к качественному изменению ДС.

Вторая особенность исследованных лент связана с локализацией ПДС и ПНД относительно макронеоднородностей микронных и более размеров. В большинстве лент (независимо от наличия волнообразного рельефа) в области макронеоднородностей располагались ПНД, тогда



Рис. 4. Порошковые фигуры на блестящей поверхности лент с локализацией ПДС на гладких (а) и шероховатых (б) участках.

как ПДС соответствовала более гладким участкам (рис. 4а). Однако возможен и противоположный вариант, когда на больших и малых неоднородностях локализуется ПДС (рис. 4б), а вокруг — ПНД. Этот случай отвечает наиболее высоким значениям  $T$  и  $n$ , которые обуславливают сильное огрубление рельефа (вплоть до образования сквозных отверстий) и повышение примерно на порядок концентрации ОПП (образец 4).

Описанная особенность ДС свидетельствует о двух вариантах распределения напряжений по поверхности ленты. В большинстве исследованных лент области макронеоднородностей растянуты, гладкие же участки ленты испытывают сжимающие напряжения. При наиболее высоких  $T$  и  $n$  области макронеоднородностей, наоборот, сжаты в плоскости ленты, а гладкие участки растянуты.

Проведено сравнительное исследование порошковых фигур на противоположных поверхностях лент, у которых уровень неоднородных напряжений особенно большой. Это ленты с четко выраженным волнообразным рельефом и образцы, содержащие крупные макронеоднородности (образцы 2 и 4). Установлено, что в обоих случаях области локализации доменов одного типа, например, ПДС, совпадают

с обеих сторон ленты. Это означает, что знак локальных напряжений не изменяется на значительной толщине ленты.

Причина распределения локальных напряжений вблизи неоднородностей для двух типов лент не вполне ясна. Можно высказать следующее предположение. В лентах, полученных закалкой расплава на поверхности диска, имеются два источника упругих напряжений: термические напряжения, обусловленные градиентом температуры в направлении нормали к ленте  $dT/dz$  или радиальными градиентами  $dT/dR$  вблизи макронеоднородностей; а также напряжения, создаваемые полями микронеоднородностей, выявляемых РМР. Последний случай подробно рассмотрен в [7]. В наиболее гладких образцах, обладающих минимальной концентрацией ОПП, превалируют напряжения за счет градиента  $dT/dz$ . В лентах, полученных при максимальных значениях  $T$  и  $n$ , определяющими, по-видимому, являются напряжения за счет  $dT/dR$ . Наиболее сложный — промежуточный вариант, соответствующий напряжениям растяжения в области макронеоднородностей. Возможно, знак напряжений в таких лентах (типичный представитель — образец 2) определяется полями напряжений ОПП, неоднородно распределенных как в плоскости ленты, так и в направлении нормали к ней.

## 2. ВЫВОДЫ

1. Реализована методика прицельных сканирующих азимутальных и полярных съемок рентгеновского малоуглового рассеяния и ослабления монохроматического излучения наряду с регистрацией скачков Баркгаузена и ДС в локальных участках лент аморфного сплава Fe—B—Si—C.

2. Установлено, что преобладающим типом структурных неоднородностей сплава являются связанные между собой макро- и микронеоднородности пониженной плотности ОПП, обусловленные процессами неоднородной усадки, газопоглощения и газовыделения. Объемная концентрация ОПП и их размеры растут наряду с огрублением рельефа лент при одновременном повышении температуры расплава и скорости вращения диска.

3. Обнаружено варьирующее по поверхности ленты изменение параметров скачков Баркгаузена и ДС, коррелирующее с фиксируемым изменением характеристик ОПП. Полученные результаты объяснены полями напряжений ОПП, неоднородно распределенными по поверхности ленты.

Харьковский политехнический институт  
имени В. И. Ленина

Поступила в редакцию  
1 марта 1988 г.

## ЛИТЕРАТУРА

1. Палатник Л. С., Черемской П. Г., Лукашенко Л. И. и др. Неоднородности электронной плотности и доменная структура аморфных сплавов на основе железа. — ФММ, 1985, 60, вып. 4, с. 695—702.
2. Черемской П. Г. Методы исследования пористости твердых тел. — М.: Энергоатомиздат, 1985. — 110 с.
3. Свергун Д. И., Фейгин Л. А. Рентгеновское и нейтронное малоугловое рассеяние. — М.: Наука, 1986. — 279 с.
4. Палатник Л. С., Лубяный Л. З., Лукашенко Л. И., Оверко Н. Е. Скачки Баркгаузена и доменная структура аморфного сплава Fe—B—Si—C. — В кн.: Тезисы научно-технической конференции «Физика и техника материалов для магнитопроводов». Свердловск, 1987, с. 21.
5. Палатник Л. С., Лукашенко Л. И., Золотницкий Ю. В., Лубяный Л. З. Механизм перемagnичивания пленок с полосовыми доменами. — ФММ, 1977, 44, вып. 1, с. 56—64.
6. Дорофеева Е. А., Прокошин А. Ф. Магнитная анизотропия аморфных металлических сплавов на основе железа. — ФММ, 1984, 57, вып. 3, с. 500—505.
7. Kronmüller H., Fernengel W. The Role of Internal Stresses in Amorphous Ferromagnetic Alloys. — Phys. stat. sol. (a), 1981, 64, N 2, p. 593—602.