

номатериала в виде хорошо очерченных шестигранных пор с прочной межпоровой перегородкой.

### БИБЛИОГРАФИЧЕСКИЙ СПИСОК

1. Фельц А. Аморфные и стеклообразные неорганические твердые тела. – М.: Мир, 1986. – 558 с.
2. Казьмина О.В., Верещагин В.И., Семухин Б.С., Абияка А.Н. // Стекло и керамика. 2009. № 10. С. 5 – 8.
3. Пат. № 2326841 РФ. Способ получения гранулята для производства пеностекла и пеностеклокристаллических материалов / В.И. Верещагин, А.Н. Абияка, О.В. Казьмина. Заявл. 20.03.06; опубл. 20.06.08.
4. Казьмина О.В., Верещагин В.И., Абияка А.Н. и др. // Стекло и керамика. 2009. № 5. С. 26 – 29.
5. Казьмина О.В., Верещагин В.И., Абияка А.Н. // Строительные материалы. 2009. № 7. С. 54 – 56.
6. Сковорода А.А., Спицын А.В., Янченков С.В., Зубавичус Я.В. // Вопросы атомной науки и техники. Серия термоядерный синтез. 2008. Вып. 3. С. 15 – 34.
7. Warriger M., Shneider R., Salonen E., Nordlund K. // J. of nucl. Materials. 2005. Vol. 337 – 339. P. 580.
8. Шелби Д. Структура, свойства и технологии стекла. – М.: Мир, 2006. – 288 с.
9. Чукин Г.Д. Химия поверхности и строение дисперсного кремнезёма. – М.: Типография Паладин, ООО «Принта», 2008. – 172 с.
10. Голубев Е.А. Надмолекулярные структуры природных рентгеноаморфных веществ. – Екатеринбург: Изд-во УрО РАН, 2006. – 155 с.
11. Голубев Е. А. // ДАН. 2009. Т. 425. № 4. С. 519 – 521.

© 2013 г. О.В. Казьмина, Б.С. Семухин,  
Ю.Ф. Иванов, В.П. Казьмин  
Поступила 18 декабря 2012 г.

УДК 537.9.856

*А.В. Семиров, В.О. Кудрявцев, А.А. Мусеев, Д.А. Букреев,  
Н.П. Ковалева, Н.В. Васюхно*

Восточно-Сибирская государственная академия образования (г. Иркутск)

## ВЫСОКОЧАСТОТНЫЕ ЭЛЕКТРИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА АМОРФНОГО МАГНИТОМЯГКОГО ПРОВОДА НА ОСНОВЕ КОБАЛЬТА, ПРОШЕДШЕГО ОТЖИГ ПОСТОЯННЫМ ЭЛЕКТРИЧЕСКИМ ТОКОМ\*

**Аннотация.** Выявлены особенности изменения действительной и мнимой компонент импеданса при структурной перестройке аморфного магнитомягкого провода состава  $\text{Co}_{66}\text{Fe}_4\text{Nb}_{2,5}\text{Si}_{12,5}\text{B}_{15}$  вследствие отжига постоянным электрическим током. Установлено различие в поведении частотных зависимостей компонент импеданса при увеличении плотности тока отжига. Обнаружен диапазон частот с доминирующей чувствительностью мнимой компоненты импеданса к структурным изменениям в проводе по сравнению с действительной. Полученные результаты объясняются на основе представлений о перестройке атомной и доменной структуры провода, вызванной отжигом постоянным электрическим током, с учетом различия в поведении компонент динамической магнитной проницаемости при изменении частоты переменного тока.

**Ключевые слова:** магнитомягкий провод, структурные изменения, отжиг постоянным электрическим током, электрические свойства.

## HIGH-FREQUENCY ELECTRICAL PROPERTIES OF AN AMORPHOUS SOFT MAGNETIC WIRE ON THE BASIS OF COBALT, HELD NANOCRYSTALLIZATION ANNEALING

**Abstract.** The features of the changes of the real and imaginary components of the impedance in the restructuring of the amorphous soft magnetic  $\text{Co}_{66}\text{Fe}_4\text{Nb}_{2,5}\text{Si}_{12,5}\text{B}_{15}$  wires due to direct current annealing have been revealed. The difference in the behavior of the frequency dependences of the impedance component with increasing current density annealing has been determined. The frequency range with a dominant sensitivity of the imaginary component of impedance to the structural changes in the wire compared to the real one has been detected. The results are explained on the basis of the ideas on restructuring the atomic and domain structure of the wire caused the annealing by a direct current, subject to the differences in the behavior of the components of the dynamic magnetic permeability with changing the frequency of the alternating current.

**Keywords:** soft magnetic wire, structural changes, annealing by a direct current, electrical properties.

Нанокристаллизация аморфных магнитомягких сплавов значительно изменяет их механические, электрические и магнитные свойства, что, в частности, позволяет достичь рекордно высокой магнитной проницаемости. Одним из видов обработки аморфных сплавов,

обеспечивающих их нанокристаллизацию, является отжиг электрическим током, имеющий ряд особенностей по сравнению с традиционными термическим и термомагнитным отжигом [1]. Детектирование термоиндуцированных структурных изменений аморфных ферромагнитных сплавов, особенно на начальных стадиях структурной релаксации, традиционными дифракционными методами не всегда эффективно. Для решения

\* Работа выполнена при финансовой поддержке Минобрнауки РФ (гос. рег. № 01201252353) и РФФИ (проект № 12-02-31170-мол\_а).

этой задачи в последнее время все большее внимание обращается на косвенные методы структурных исследований, одним из которых является метод магнитоимпедансной спектроскопии [2 – 4]. Перспективность использования метода магнитоимпедансной спектроскопии для изучения свойств магнитомягких сплавов обусловлена чрезвычайно высокой чувствительностью магнитной проницаемости к изменению их структуры, а также к тепловым, деформационным и магнитопольным воздействиям [1, 5, 6].

Для изучения влияния отжига электрическим током на структуру, электрические и магнитные свойства использован полученный методом быстрой закалки из расплава исходно аморфный магнитомягкий провод состава  $\text{Co}_{66}\text{Fe}_4\text{Nb}_{2,5}\text{Si}_{12,5}\text{B}_{15}$  диам. 175 мкм, с индукцией насыщения  $B_s = 0,4$  Тл, с малой положительной константой магнитоstriction  $\lambda_s \sim 10^{-7}$ . Исследуемые образцы имели длину 30 мм. Температура начала процесса кристаллизации сплава составляла 500 – 550 °С. Отжиг образцов проводили постоянным электрическим током на воздухе в течение 5 мин. Плотность тока отжига ( $j$ ) варьировали от нуля до  $37,4 \cdot 10^6$  А/м<sup>2</sup>.

Магнитоимпедансные свойства исследовали на автоматизированном комплексе магнитоимпедансной спектроскопии [2] при комнатной температуре в диапазоне частот ( $f$ ) переменного тока от 100 кГц до 60 МГц при действующем значении силы тока 1 мА. Упругие растягивающие напряжения ( $\sigma$ ) изменялись от нуля до 300 МПа и были ориентированы вдоль оси провода. Квазистатические магнитные характеристики, коэрцитивную силу ( $H_c$ ) и остаточную индукцию ( $B_r$ ) определяли индукционным методом.

Для контроля структуры отожженного провода помимо метода магнитоимпедансной спектроскопии использовали методику рентгеноструктурного анализа Дебая-Шеррера. Средняя длина волны характеристического рентгеновского излучения железа (K-серия) составляла  $\lambda_{\text{ср}} = 1,937$  Å. Согласно рентгеноструктурным исследованиям исходные образцы и образцы, отожженные при плотности тока  $j = (4,2 \div 33,3) \cdot 10^6$  А/м<sup>2</sup>, имеют одинаковую дифракционную картину, которая представляет собой размытое гало без рефлексов. На дифракционной картине провода, отожженного при плотности тока  $35,4 \cdot 10^6$  А/м<sup>2</sup>, имеется один широкий рефлекс, на котором различимы слабые линии, свидетельствующие о начале формирования кристаллической структуры. Так как на этой стадии отжига размеры кристаллитов еще относительно малы (около 500 Å), то однозначно идентифицировать фазы по выявленным линиям не удастся. Образцы, отожженные при плотности тока  $37,4 \cdot 10^6$  А/м<sup>2</sup> и выше, дают четкую дифракционную картину, расчет которой позволяет определить наличие  $\alpha$ -железа,  $\beta$ -кобальта (вероятно,  $\text{Co}_3\text{B}$ ,  $\text{CoNbB}$ ).

Данные рентгеноструктурных исследований о влиянии плотности тока отжига аморфного провода на процесс его нанокристаллизации коррелируют с соот-

ветствующей зависимостью удельного электросопротивления  $\rho(j)$ , согласно которой при  $j \leq 25 \cdot 10^6$  А/м<sup>2</sup> значение  $\rho$  остается практически неизменным. Отжиг при плотности тока  $(25,0 - 33,3) \cdot 10^6$  А/м<sup>2</sup> приводит к значительному росту значения  $\rho$ , что свидетельствует о начале структурной перестройки сплава. С дальнейшим увеличением  $j$  вследствие нанокристаллизации сплава электросопротивление провода резко уменьшается.

Ранее показано, что отжиг аморфного магнитомягкого провода состава  $\text{Co}_{66}\text{Fe}_4\text{Nb}_{2,5}\text{Si}_{12,5}\text{B}_{15}$  постоянным электрическим током плотностью  $(4,2 - 37,4) \cdot 10^6$  А/м<sup>2</sup> приводит к изменению модуля его импеданса [5]. Причем в этом интервале значений  $j$  можно выделить три диапазона, в каждом из которых при воздействии на провод упругих растягивающих напряжений  $\sigma$ , больших 100 МПа, значения модуля импеданса становятся близки. В качестве основного фактора, определяющего наличие трех характерных диапазонов плотностей тока отжига, рассматривали преимущественное протекание в этих диапазонах различных процессов структурной перестройки сплавов, вызывающих соответствующие изменения импедансных свойств. Влияние отжига электрическим током на компоненты импеданса и их изменение под воздействием механических напряжений ранее не исследовали.

Стоит отдельно отметить, что в ходе исследований влияния процессов структурной перестройки сплава на компоненты импеданса был обнаружен ряд особенностей частотных зависимостей действительной  $R$  и мнимой  $X$  компонент импеданса провода при  $j = 0$  и  $\sigma = 0$  (рис. 1, а, б). В частности, наличие на зависимости  $X(f)$  частотного диапазона 2 – 8 МГц, в котором значение  $X$  остается практически неизменным, в то время как зависимость  $R(f)$  является монотонно возрастающей. Наличие на зависимости  $X(f)$  излома и участка с  $dX/df \approx 0$  свидетельствует об изменении циркулярной магнитной проницаемости  $\mu_\phi$  в радиальном направлении провода, поскольку вклад в величину  $X$  внешней индуктивности линейного ферромагнитного проводника незначителен ( $X \sim \sqrt{\mu_\phi f}$ ). Исходя из значений частот, соответствующих участку с  $dX/df \approx 0$ , и частотной зависимости

глубины скин-слоя  $\delta = c \sqrt{\frac{\rho}{4\pi^2 \mu_\phi f}}$ , можно заключить,

что вблизи поверхности провода есть зона перехода от глубинной области провода со значением  $\mu_{1\phi}$  к приповерхностной с  $\mu_{2\phi} < \mu_{1\phi}$ . Данное изменение  $\mu_\phi$  возможно как при уменьшении величины  $\mu_\phi$  в радиальном направлении без изменения исходной ориентации намагниченности в проводе, так и при переходе от аксиального типа магнитной анизотропии к геликоидальному (циркулярному) [1, 5]. Сложная магнитная доменная структура в магнитомягком проводе, полученном быстрой закалкой из расплава, подтверждается экспериментальными и теоретическими исследованиями [1, 5]. О наличии внутренней области с аксиальным типом

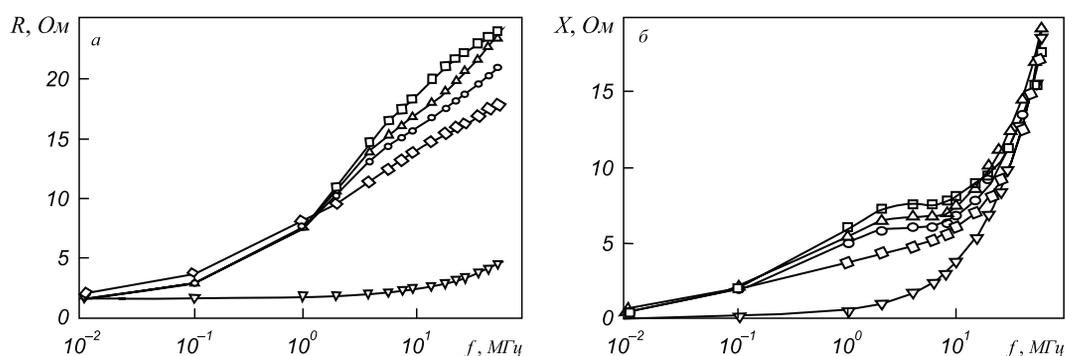


Рис. 1. Частотные зависимости действительной  $R$  и мнимой  $X$  компонент импеданса провода состава  $\text{Co}_{66}\text{Fe}_4\text{Nb}_{2,5}\text{Si}_{12,5}\text{B}_{15}$ , подвергнутого отжигу постоянным электрическим током различной плотности: 1 – 0; 2 –  $6,2 \cdot 10^6 \text{ A/m}^2$ ; 3 –  $12,4 \cdot 10^6 \text{ A/m}^2$ ; 4 –  $31,2 \cdot 10^6 \text{ A/m}^2$ ; 5 –  $35,4 \cdot 10^6 \text{ A/m}^2$

магнитной анизотропии и приповерхностного слоя с циркулярной компонентой намагниченности свидетельствует появление с ростом частоты переменного тока максимума на зависимостях модуля импеданса от напряженности внешнего аксиально ориентированного магнитного поля. Это подтверждается и исчезновением излома на зависимости  $X(f)$  при воздействии на провод растягивающих напряжений  $\sigma$ , так как их рост при  $\lambda_s > 0$  вызывает поворот намагниченности в приповерхностном слое к аксиальному направлению.

Отжиг электрическим током плотностью  $j \approx (4,2 \div 12,5) \cdot 10^6 \text{ A/m}^2$  активирует процессы структурной релаксации, которые сопровождаются снятием закалочных напряжений и перераспределением дефектов по объему провода, их концентрации в приповерхностном слое [6]. Этот процесс слабо детектируется рентгеноструктурными и магнитометрическими методами, однако оказывает заметное влияние на импеданс и его компоненты, значения которых уменьшаются во всем исследованном частотном диапазоне. Отжиг в этом интервале  $j$ , приводя к снижению величины  $X$ , слабо влияет на наличие участка с  $dX/df \approx 0$  (рис. 1, б). При более высоких значениях  $j$  данный участок зависимости  $X(f)$  уменьшается и исчезает, величина  $X$  во всем исследованном частотном диапазоне монотонно возрастает. Вероятной причиной этого является рост толщины приповерхностного слоя провода с циркулярной компонентой анизотропии, наводимой магнитным полем постоянного электрического тока в процессе отжига. Причем, если с ростом  $j$  основные изменения  $X$  происходят в диапазоне частот 0,1 – 10 МГц за счет уменьшения вклада в величину  $\mu_\phi$  внутреннего аксиально намагниченного объема провода, то при частотах выше 2 МГц при увеличении  $\sigma$  излом на зависимости  $X(f)$  исчезает в результате роста импеданса за счет увеличения аксиально намагниченного объема провода.

Для исходного аморфного и отожженных при  $j \leq 31 \cdot 10^6 \text{ A/m}^2$  образцов зависимости  $X(f)$  при частотах 8 – 60 МГц линейны. Для действительной компоненты импеданса  $R$  исходного аморфного провода и подвергнутых отжигу при  $j \leq 31 \cdot 10^6 \text{ A/m}^2$  характерно монотон-

ное уменьшение значения  $dR/df$  с ростом  $f$  во всем частотном диапазоне. Отжиг провода при  $j \geq 35,4 \cdot 10^6 \text{ A/m}^2$  приводит к резкому снижению значений  $X$  и  $R$ , зависимости  $X(f)$  и  $R(f)$  становятся близки к линейным уже во всем исследованном диапазоне частот.

Еще одной отличительной особенностью зависимости  $R(f)$  от  $X(f)$  для проводов, прошедших отжиг при разных значениях  $j$ , является рост различия значений  $R$  при  $f > 2 \text{ МГц}$  в то время, как влияние отжига на величину  $X$  наблюдается в достаточно узком (0,1 – 10 МГц) диапазоне частот. Вероятной причиной этого является различие частотных зависимостей действительной  $\mu'_\phi$  и мнимой  $\mu''_\phi$  компонент циркулярной магнитной проницаемости  $\mu_\phi = \mu'_\phi + \mu''_\phi$  [7]:

$$\mu'_\phi = 1 + \frac{4\pi\chi_0}{1 + \omega^2\tau^2}; \mu''_\phi = \frac{4\pi\chi_0\omega\tau}{1 + \omega^2\tau^2},$$

где  $\chi_0$  – квазистатическая восприимчивость;  $\tau$  – феноменологический параметр затухания;  $\omega = 2\pi f$ .

Так, расчет значений  $\mu'_\phi(f)$  и  $\mu''_\phi(f)$  по приведенным зависимостям для рассматриваемого класса материалов показывает превалирование величины  $\mu'_\phi$  над  $\mu''_\phi$  во всем исследуемом частотном диапазоне. Однако величина  $\mu'_\phi$ , имеющая на низких частотах максимальное значение, при достижении частоты примерно 10 МГц должна начать уменьшаться, а изначально близкая к нулю величина  $\mu''_\phi$  – возрастать. Учитывая, что мнимая компонента импеданса  $X$  в основном определяется действительной компонентой циркулярной магнитной проницаемости  $\mu'_\phi$ , а действительная компонента  $R$  определяется  $\mu''_\phi$ , с ростом частоты примерно от 10 МГц должно наблюдаться снижение чувствительности  $X$  к изменениям  $\mu_\phi$ , вызванным структурной перестройкой сплава. Чувствительность же действительной компоненты импеданса  $R$ , ввиду частотного роста  $\mu''_\phi$ , должна несколько увеличиться. Еще одним фактором, определяющим усиление влияния плотности тока отжига на  $R$  при  $f > 2 \text{ МГц}$ , может выступать рост радиального градиента удельного электросопротивления. При этом на низких частотах, когда глубина скин-слоя ( $\delta$ ) близка к

радиусу провода ( $r$ ) и весь его объем будет давать вклад в электросопротивление, значительных изменений величины  $R$  происходить не должно. С ростом частоты глубина  $\delta$  становится меньше  $r$  и влияние на  $R$  приповерхностного слоя, имеющего в результате диффузии дефектов большее удельное электросопротивление, должно усилиться.

Вывод о большей чувствительности компоненты  $X$  к структурным и частотным изменениям  $\mu_\phi$  по сравнению с  $R$  в диапазоне частот 0,1 – 10 МГц подтверждается, в частности, при анализе зависимостей компонент импеданса от величины упругих растягивающих напряжений  $\sigma$  для исходного аморфного провода и подвергнутого отжигу электрическим током плотностью

$j \approx (25,0 \div 33,3) \cdot 10^6 \text{ A/m}^2$  (рис. 2). Этот диапазон  $j$  соответствует началу формирования в сплаве нанокристаллической структуры, а воздействие при этом магнитного поля электрического тока способствует наведению циркулярной магнитной анизотропии. Минимальная частота, при которой начинает проявляться влияние циркулярной компоненты намагниченности на зависимость  $X(\sigma)$  провода, отожженного при  $j = 31 \cdot 10^6 \text{ A/m}^2$ , составляет примерно 0,5 МГц. При частоте 1 МГц зависимость  $X(\sigma)$  уже имеет четко выраженный максимум при 50 МПа (рис. 2, б). Как отмечалось выше, этот экстремальный характер зависимости  $X(\sigma)$  для провода с  $\lambda_S > 0$  обусловлен ростом величины  $\mu_\phi$  при повороте намагниченности, изначально имеющей циркулярную

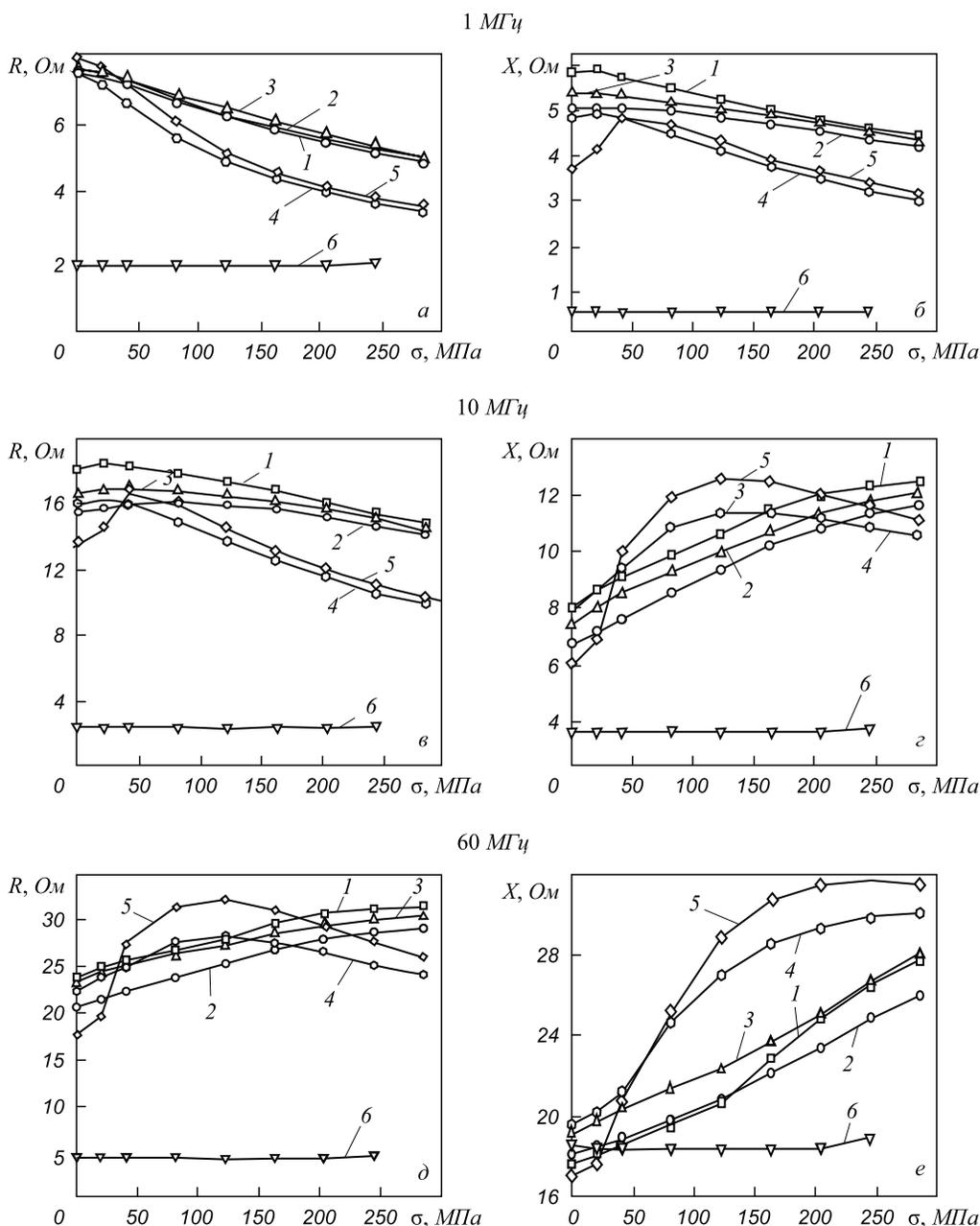


Рис. 2. Зависимости действительной  $R$  и мнимой  $X$  компонент импеданса от величины упругих растягивающих напряжений  $\sigma$  в проводе состава  $\text{Co}_{66}\text{Fe}_4\text{Nb}_{2.5}\text{Si}_{12.5}\text{B}_{15}$ , прошедшего отжиг постоянным электрическим током различной плотности: 1 – 0; 2 –  $6,2 \cdot 10^6 \text{ A/m}^2$ ; 3 –  $12,4 \cdot 10^6 \text{ A/m}^2$ ; 4 –  $24,95 \cdot 10^6 \text{ A/m}^2$ ; 5 –  $31,2 \cdot 10^6 \text{ A/m}^2$ ; 6 –  $35,4 \cdot 10^6 \text{ A/m}^2$

компоненту, к аксиальному направлению при воздействии растягивающих напряжений. Дальнейшее уменьшение  $\mu_{\phi}$  вызвано ростом эффективной аксиальной анизотропии в результате увеличения энергии магнитоупругого взаимодействия. Зависимость  $R(f)$  начинает проявлять подобный характер только на частотах выше примерно 4 МГц, т.е. имеющих почти на порядок более высокие значения (рис. 2, в).

С ростом частоты на зависимостях  $X(\sigma)$  и  $R(\sigma)$  усиливается влияние дисперсии магнитной анизотропии приповерхностного слоя провода, имеющего большую структурную, морфологическую и, следовательно, магнитную неоднородность. Это проявляется в уширении максимумов зависимостей  $X(\sigma)$  и  $R(\sigma)$  (рис. 2, з, д). Видно, что такие изменения для  $X(\sigma)$  частотно опережают изменения  $R(\sigma)$ . Аналогичные, но менее выраженные частотные изменения имеют и компоненты импеданса  $X$  и  $R$  для провода, отожженного при меньшей величине  $j = 25 \cdot 10^6$  А/м<sup>2</sup> и, соответственно, имеющего меньшую циркулярную компоненту намагниченности (рис. 2, з, д).

Дисперсия анизотропии приповерхностного слоя оказывает влияние и на зависимости  $R(\sigma)$  и  $X(\sigma)$  проводов, термически обработанных при  $j \leq 12,5 \cdot 10^6$  А/м<sup>2</sup>. Так, при низких частотах, где определяющее влияние на импеданс оказывает центральная часть провода с аксиальной магнитной анизотропией, с ростом  $\sigma$  величина  $X$  монотонно уменьшается. В диапазоне частот 2 – 4 МГц на зависимости  $X(\sigma)$  появляется слабо выраженный максимум, смещающийся с увеличением  $f$  в область больших значений  $\sigma$ . На частотах  $f > 4$  МГц в исследованном интервале  $\sigma$  зависимость  $X(\sigma)$  монотонно возрастает. Подобные изменения происходят и с зависимостями  $R(\sigma)$ , однако переход от убывающего с ро-

стом  $\sigma$  характера зависимостей  $R(\sigma)$  к возрастающему наблюдается на более высоких (10 – 40 МГц) частотах.

**Выводы.** В ходе проведенных исследований определены основные особенности изменения действительной и мнимой компонент импеданса при структурной перестройке аморфного магнитомягкого провода, подвергнутого отжигу постоянным электрическим током. Обнаружен частотный диапазон, в котором изменения циркулярной магнитной проницаемости, обусловленные структурной перестройкой сплава при его отжиге, оказывают доминирующее влияние на мнимую компоненту импеданса. Установлено, что частотные изменения зависимости мнимой компоненты импеданса от упругих растягивающих напряжений в случае исходного аморфного провода и проводов, прошедших отжиг постоянным электрическим током, опережают соответствующие изменения действительной компоненты.

#### БИБЛИОГРАФИЧЕСКИЙ СПИСОК

1. Phan M.H., Peng H.X. // Progress in Materials Science. 2008. Vol. 53. P. 323 – 420.
2. Семиров А.В., Моисеев А.А., Букреев Д.А. и др. // Научное приборостроение. 2010. Т. 20. № 2. С. 42 – 45.
3. Семиров А.В., Букреев Д.А., Моисеев А.А. и др. // ЖТФ. 2009. Т. 79. Вып. 11. С. 25 – 29.
4. Семиров А.В., Букреев Д.А., Моисеев А.А. и др. // Изв. вуз. Физика. 2011. № 5. С. 95 – 100.
5. Usov N.A., Antonov A.S., Lagarkov A.N., Granovsky A.V. // JMMM. 1999. Vol. 203. P. 108, 109.
6. Семиров А.В., Гаврилюк А.А., Кудрявцев В.О. и др. // Дефектоскопия. 2007. № 10. С. 3 – 7.
7. Beach R.S., Berkowitz A.E. // J. Appl. Phys. 1994. Vol. 76. P. 6209 – 6213.

© 2013 г. А.В. Семиров, В.О. Кудрявцев, А.А. Моисеев, Д.А. Букреев, Н.П. Ковалева, Н.В. Васюхно  
Поступила 26 декабря 2012 г.