

ЭЛЕКТРИЧЕСКИЕ И МАГНИТНЫЕ  
СВОЙСТВА

УДК 538.911:539.261

ВЛИЯНИЕ ТЕРМОМАГНИТНОЙ ОБРАБОТКИ  
НА МАГНИТНЫЕ СВОЙСТВА МАГНИТОМЯГКИХ СПЛАВОВ  
ЖЕЛЕЗО–ГЕРМАНИЙ

© 2023 г. В. А. Лукшина<sup>а</sup>, А. В. Тимофеева<sup>а</sup>, Д. А. Шишкин<sup>а, б</sup>,  
Ю. Н. Горностырев<sup>а</sup>, Н. В. Ершов<sup>а, \*</sup>

<sup>а</sup>Институт физики металлов УрО РАН, ул. С. Ковалевской, Екатеринбург, 620108 Россия

<sup>б</sup>Уральский федеральный университет, ул. Мира, 19, Екатеринбург, 620002 Россия

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

Поступила в редакцию 23.06.2023 г.

После доработки 24.08.2023 г.

Принята к публикации 25.08.2023 г.

Исследована концентрационная зависимость магнитных свойств сплавов железо–германий до и после термомагнитной обработки, которая представляет собой отжиг образцов в ферромагнитном состоянии в постоянном или переменном магнитном поле (magnetic field annealing – MFA). Показано, что до отжига в магнитном поле при увеличении содержания германия в пределах 3–30 ат. % коэрцитивная сила увеличивается, а остаточная индукция уменьшается. В результате термомагнитной обработки в образцах сплавов индуцируется магнитная анизотропия: петли магнитного гистерезиса становятся более узкими, увеличивается остаточная индукция и снижается коэрцитивная сила. Термомагнитная обработка эффективна для сплавов Fe–Ge при содержании германия от 6 до 18 ат. %, при этом наибольшая ее эффективность наблюдается при 12 ат. % Ge. Обсуждаются особенности структурного состояния сплавов железо–германий и их роль в формировании магнитных свойств в процессе отжига в магнитном поле.

*Ключевые слова:* магнитомягкий сплав Fe–Ge, термомагнитная обработка, магнитные свойства, наведенная магнитная анизотропия

DOI: 10.31857/S0015323023601101, EDN: CLFXCQ

ВВЕДЕНИЕ

Прецизионные магнитомягкие сплавы Fe–X, где X = Si, Al, Ga и Ge, характеризуются высокой магнитной проницаемостью и низкой коэрцитивной силой, привлекают значительный интерес в связи с их широким использованием в радиоэлектронной промышленности. Сплавы Fe–Si и Fe–Al используются в качестве материалов магнитопроводов в сердечниках трансформаторов, электромагнитов, роторов и статоров электрических машин [1–3]. Сплавы Fe–Ga и Fe–Ge являются перспективными магнитострикционными материалами, применяемыми в качестве преобразователей электромагнитной энергии в механическую [4, 5].

Магнитомягкие свойства и магнитоупругое поведение сплавов Fe–X зависит от их структурного состояния. В соответствии с фазовой диаграммой сплавы железо–германий [6] так же, как и сплавы железа с галлием [7], кремнием [6] или алюминием [8] со стороны малых концентраций элемента X, относятся к твердым растворам замещения с ОЦК-решеткой (фаза  $\alpha$ -FeX со структу-

рой A2). При повышении концентрации атомов X образуются выделения фазы  $\alpha_1$  (Fe<sub>3</sub>X со структурой D0<sub>3</sub>) или метастабильной фазы  $\alpha_2$  (FeX со структурой B2) и формируется двухфазное  $\alpha + \alpha_1/\alpha_2$  состояние. При концентрации элемента X, приближающейся к 25 ат. %, в сплавах Fe–Ga и Fe–Ge образуются фазы со сверхструктурой L1<sub>2</sub> или D0<sub>19</sub> [6, 7].

На рис. 1 приведена богатая железом часть фазовой диаграммы сплавов системы Fe–Ge [6]. В ферромагнитном состоянии ниже температуры Кюри  $T_C$  и при концентрации германия  $C_{Ge}$  до 10 ат. % наблюдается фаза  $\alpha$ , от 10 до 13.5 ат. % Ge – фаза  $\alpha_2$  и от 13.5 до 16 ат. % Ge реализуется область сосуществования фаз  $\alpha_1$  и  $\alpha_2$ . При содержании Ge от 16 до 21.5 ат. % и  $T < 800^\circ\text{C}$  имеется только фаза  $\alpha_1$ . В диапазоне от 24 до 26.5 ат. % Ge и при температуре выше  $700^\circ\text{C}$  формируется фаза  $\epsilon$  с гексагональной структурой D0<sub>19</sub>, а в интервале  $400\text{--}700^\circ\text{C}$  – фаза  $\epsilon'$  со структурой L1<sub>2</sub>.

В работе [10] было показано, что изменения фазового состава сплавов Fe–Ge по мере увели-

чения концентрации легирующего элемента явно проявляются в концентрационной зависимости их магнитных свойств. Так, в области фаз  $\alpha$  и  $\alpha_2$  магнитострикция положительна, и ее значение увеличивается с ростом  $C_{Ge}$ . Наибольшее значение константы тетрагональной магнитострикции  $(3/2)\lambda_{100}$  равно  $94 \times 10^{-6}$  при 10 ат. % Ge [4]. При дальнейшем росте  $C_{Ge}$  магнитострикция линейно уменьшается с переходом в область отрицательных значений около ~14 ат. % Ge и достигает  $-129 \times 10^{-6}$  при ~18 ат. % Ge [4]. Переход от положительных значений константы магнитострикции к отрицательным происходит в двухфазной области фазовой диаграммы (рис. 1), где формируются выделения фазы  $\alpha_1$ .

Термомагнитная обработка (ТМО или MFA – magnetic field annealing), представляющая собой отжиг и охлаждение образца сплава в постоянном или переменном магнитном поле, применяется для улучшения магнитных свойств магнитомягких сплавов с середины XX столетия [10]. При перемагничивании подвергнутых ТМО образцов вдоль направления приложения магнитного поля петля магнитного гистерезиса становится более прямоугольной, коэрцитивная сила и гистерезисные потери уменьшаются, остаточная магнитная индукция и магнитная проницаемость увеличиваются. При этом магнитные свойства сплава оказываются неодинаковы вдоль разных направлений и формируется состояние с наведенной магнитной анизотропией (НМА) [11]. Наведенная магнитная анизотропия накладывается на магнитокристаллическую анизотропию и оказывает существенное влияние на зависимость магнитных свойств от направления [12].

Важной особенностью магнитомягких сплавов Fe–Si, Fe–Al и Fe–Ga является концентрационная зависимость эффективности ТМО. В работе [13] показано, что НМА в монокристаллах сплавов Fe–Al максимальна при концентрации 20–24 ат. % и спадает до нуля при ~30 ат. % алюминия. В сплавах Fe–Si максимальная эффективность отжига в магнитном поле приходится на концентрации от 10 до 12 ат. % и спадает до нуля при 15 ат. % кремния [14]. В работе [15] показано, что эффект ТМО вдоль направления  $\langle 100 \rangle$  начинает заметно проявляться при 3 ат. % Si, достигает своего максимума при 7–8 ат. % и становится близким к нулю при 14 ат. % Si.

Влияние ТМО на магнитные свойства сплавов Fe–Ga впервые было исследовано в работе [16]. Показано, что концентрационная зависимость эффективности ТМО, как и в сплавах Fe–Si, Fe–Al, имеет куполообразную форму. Наиболее резкое увеличение остаточной индукции имеет место при концентрации галлия  $C_{Ga} > 12$  ат. % с максимумом  $B_r$  при 15 ат. % Ga, а наиболее резкое уменьшение коэрцитивной силы при  $C_{Ga} > 9$  ат. %

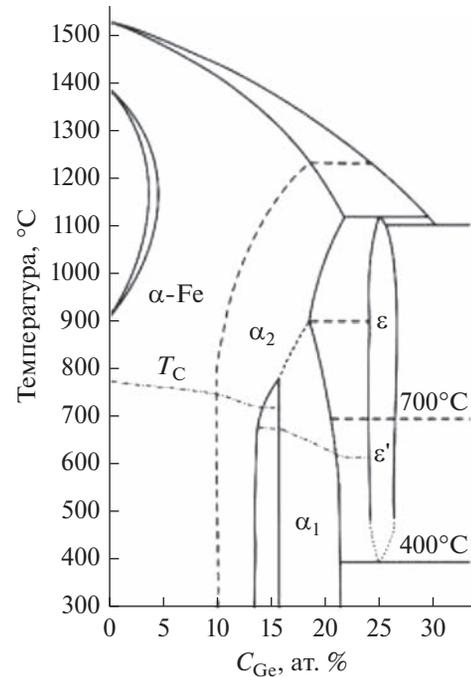
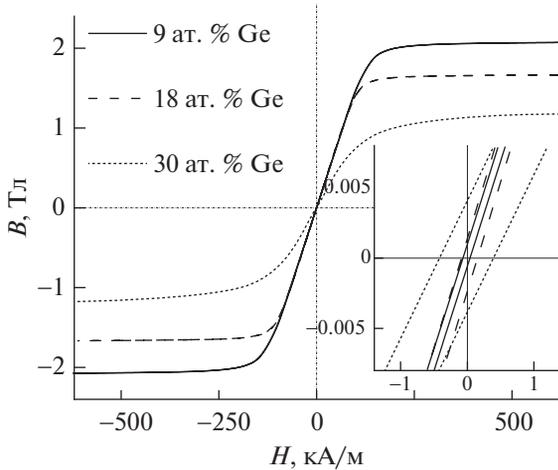


Рис. 1. Часть фазовой диаграммы системы Fe–Ge [6], соответствующая малым (до 30 ат. %) концентрациям Ge.

с минимумом  $H_c$  при 15–18 ат. % галлия. Согласно предложенным в [16] представлениям эффективность ТМО связана с наличием в сплаве кластеров B2-типа (или пар Ga–Ga), ориентированных преимущественно вдоль одной из осей  $\langle 100 \rangle$ , которая становится осью наиболее легчайшего перемагничивания. При увеличении концентрации Ga развивается дальний порядок со сверхструктурой  $D0_3$ , который постепенно поглощает и подавляет кластеры B2 и, как следствие, снижает эффективность ТМО.

Обсуждаемый в [16] механизм формирования НМА при ТМО основан на гипотезе Нееля о направленном упорядочении примесных атомов [17, 18]. При отжиге в постоянном магнитном поле за счет диффузии атомов формируется преимущественная ориентация кластеров B2 (или пар X–X-атомов) вдоль поля. После охлаждения преимущественная ориентация пар атомов сохраняется из-за снижения диффузионной подвижности и становится причиной одноосной магнитной анизотропии. Методом рентгеноструктурного анализа было показано [19–22], что в монокристаллах сплавов Fe–Si, содержащих от 5 до 10 ат. % кремния, имеются кластеры B2, упорядочение которых в процессе ТМО приводит к формированию НМА. Аналогичные кластеры B2 недавно были обнаружены также в сплавах железа с алюминием (7 и 9 ат. %) [23, 24] и галлием (4, 9 и 18 ат. %) [25, 26].



**Рис. 2.** Петли магнитного гистерезиса дисковых образцов сплавов  $\text{Fe}_{100-x}\text{Ge}_x$  ( $x = 9, 18$  и  $30$ ) в исходном состоянии. На вставке показана область петель гистерезиса при малой напряженности магнитного поля от  $-1.5$  до  $1.5$  кА/м.

Наведенная в результате ТМО анизотропия магнитных свойств оказывает существенное влияние не только на доменную структуру и на параметры процессов намагничивания и перемагничивания (петли магнитного гистерезиса), но и на магнитоупругое поведение сплавов железа. Поэтому использование ТМО открывает возможность для целенаправленного управления магнитоупругими свойствами сплавов Fe–X.

В настоящей работе исследуются магнитные свойства богатых железом сплавов Fe–Ge, такие как остаточная намагниченность, максимальная индукция, коэрцитивная сила, их зависимость от концентрации германия и влияние на них ТМО в постоянном и переменном магнитных полях. Цель исследований – выяснить концентрационную зависимость эффекта ТМО на магнитные свойства Fe–Ge сплавов, установить концентрации, при которых эффективность ТМО максимальная.

## ОБРАЗЦЫ И МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Поликристаллические сплавы железа с германием были отлиты в виде стержней диаметром около 8 мм, размер кристаллических зерен варьируется от 1 до 4 мм. Содержание германия изменяли от 3 до 30 ат. % с шагом 2–3 ат. %. Все слитки прошли гомогенизирующий отжиг в откачанных ампулах при температуре  $950^\circ\text{C}$  в течение 30 ч. Из стержней на электроискровом станке вырезали образцы в виде колец с внешним и внутренним диаметрами примерно 8 и 5 мм, соответственно, и дисков диаметром 3 мм толщиной 0.3–0.5 мм. Все образцы для рафинирования и снятия внутренних

механических напряжений проходили термическую обработку (ТО) – отжиг в вакууме  $10^{-5}$  мм рт. ст. при температуре  $1050^\circ\text{C}$  в течение 4 ч. Медленное охлаждение образцов после ТО сопровождали локальной ТМО в насыщающем магнитном поле каждого домена по-разному ориентированных кристаллических зерен. Это состояние образцов принимали за исходное.

Измерения предельных петель магнитного гистерезиса дисковых образцов сплавов в исходном состоянии выполняли на вибрационном магнитометре 7407 VSM (LakeShore Cryotronics Inc., США) в магнитных полях до 8 кЭ в Центре коллективного пользования “Испытательный центр нанотехнологий и перспективных материалов” ИФМ УрО РАН. Относительные погрешности измерений намагниченности и коэрцитивной силы не превышали 1 и 3% соответственно.

Частные петли гистерезиса до и после ТМО измеряли на установке, основанной на фотогальванометрическом компенсационном микроверметре Ф190. На кольцевой образец наносили намагничивающую и измерительную обмотки, 10 и 20 витков, соответственно. Снимали частные петли гистерезиса при максимальном поле  $H_{\text{max}} = 2$  кА/м, из которых получали коэрцитивную силу  $H_c$ , остаточную намагниченность  $B_r$ , и магнитную индукцию  $B_{\text{max}}$  в поле  $H_{\text{max}}$ . Частные петли гистерезиса обычно имеют несколько меньшие значения максимальной индукции, остаточной индукции и коэрцитивной силы, чем предельные. Тем не менее их измерение и анализ является обычной практикой при изучении поведения магнитных свойств и правильно отражает содержание происходящих структурных изменений. Петли снимали в двух магнитных состояниях образцов: (1) сразу после ТО и после ТО с последующей ТМО – отжига на воздухе при  $450^\circ\text{C}$  в течение 5 мин и охлаждении в магнитном поле 2.4 кА/м (30 Э), (2) постоянного или (3) знакопеременного. Намагничивающее поле при ТМО было циркулирующим в кольце за счет того, что на кольцо, являющееся сердечником, наносили обмотку, в которую подавали постоянный или переменный ток. Относительная погрешность измерений для поля была 3%, для магнитной индукции 7%.

## РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТА

Предельные петли магнитного гистерезиса для образцов в форме диска трех сплавов железо–германий приведены на рис. 2. Для образцов других составов петли магнитного гистерезиса выглядят аналогично и не приводятся.

В сплавах с содержанием германия до 18 ат. % магнитная индукция достигает своего насыщения при приложении внешнего магнитного поля напряженностью около  $\pm 300$  кА/м, при более вы-

соких концентрациях германия для достижения насыщения требуется немного большее магнитное поле около  $\pm 500$  кА/м, поэтому в качестве индукции насыщения  $B_s$  будем принимать магнитную индукцию образцов в поле напряженности не менее  $\pm 640$  кА/м. Концентрационные зависимости индукции насыщения  $B_s$  и коэрцитивной силы  $H_c$  дисковых образцов показаны на рис. 3. При увеличении содержания германия максимальная индукция насыщения снижается от 213 эме/г (2.17 Тл) при  $C_{Ge} = 3$  ат. % до 105 эме/г (1.18 Тл) при  $C_{Ge} = 30$  ат. % со значительным увеличением скорости снижения при концентрации  $C_{Ge} \sim 14$  ат. %.

Данные для системы сплавов Fe–Ge хорошо согласуются с результатами работы [28]. Изменение наклона кривой концентрационной зависимости индукции насыщения связывают с изменением фазового состава образцов и их упорядочением [29]. Согласно фазовой диаграмме Fe–Ge (рис. 1), в диапазоне концентраций германия 10–14 ат. % существует область смешанных структурно-фазовых состояний. При увеличении концентрации германия в этом диапазоне  $C_{Ge}$  появляются небольшого размера кластеры с упорядочением типа  $D0_3$  (фаза  $Fe_3Ge$ ), имеющие существенно меньшую индукцию насыщения из-за большой доли германия. И далее за счет поглощения неупорядоченного твердого раствора (фаза  $A2$ ) размеры областей фазы  $D0_3$  возрастают, что приводит к увеличению их объемной доли и ускоряет процесс снижения  $B_s$  в зависимости от концентрации Ge.

Выше концентрации  $C_{Ge} = 15$  ат. % наблюдается резкое увеличение коэрцитивной силы от 73–79 А/м при  $C_{Ge} = 3–15$  ат. % до 521 А/м при 27 ат. % и затем снижается до 413 А/м при 30 ат. %. Характер концентрационной зависимости  $H_c$  очевидно также связан с осложнениями фазового состава образцов сплава железо–германий, которое в соответствии с фазовой диаграммой (рис. 1) имеет место между 20 и 30 ат. % Ge. Аналогичную зависимость коэрцитивной силы от состава наблюдали в сплавах железо–галлий, в которых  $H_c$  значительно увеличивалась от 85–90 А/м при  $C_{Ga} = 3–12$  ат. % до 140 А/м при 22 ат. % и затем снижалась до 118 А/м при 25 ат. %. [16]. Однако в случае со сплавами Fe–Ge изменения коэрцитивной силы происходят со сдвигом в область больших концентраций германия.

Для кольцевых образцов, подвергнутых ТМО в постоянном магнитном поле, ожидается, что в направлении действовавшего при ТМО поля индуцируется (наводится) магнитная анизотропия. Поэтому при намагничивании и перемагничивании вдоль этого направления петли магнитного гистерезиса становятся более узкими и вертикальными, что отражается соответственно в сни-

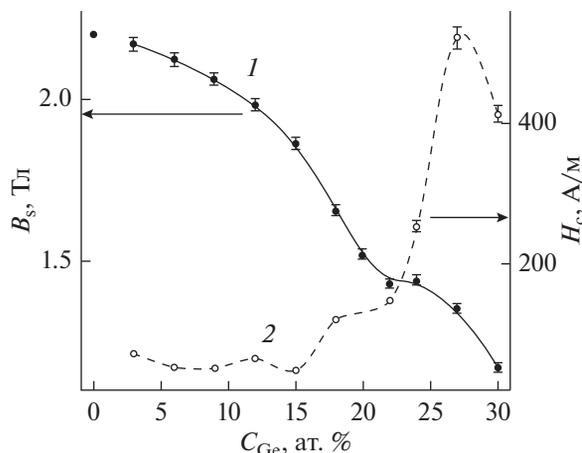
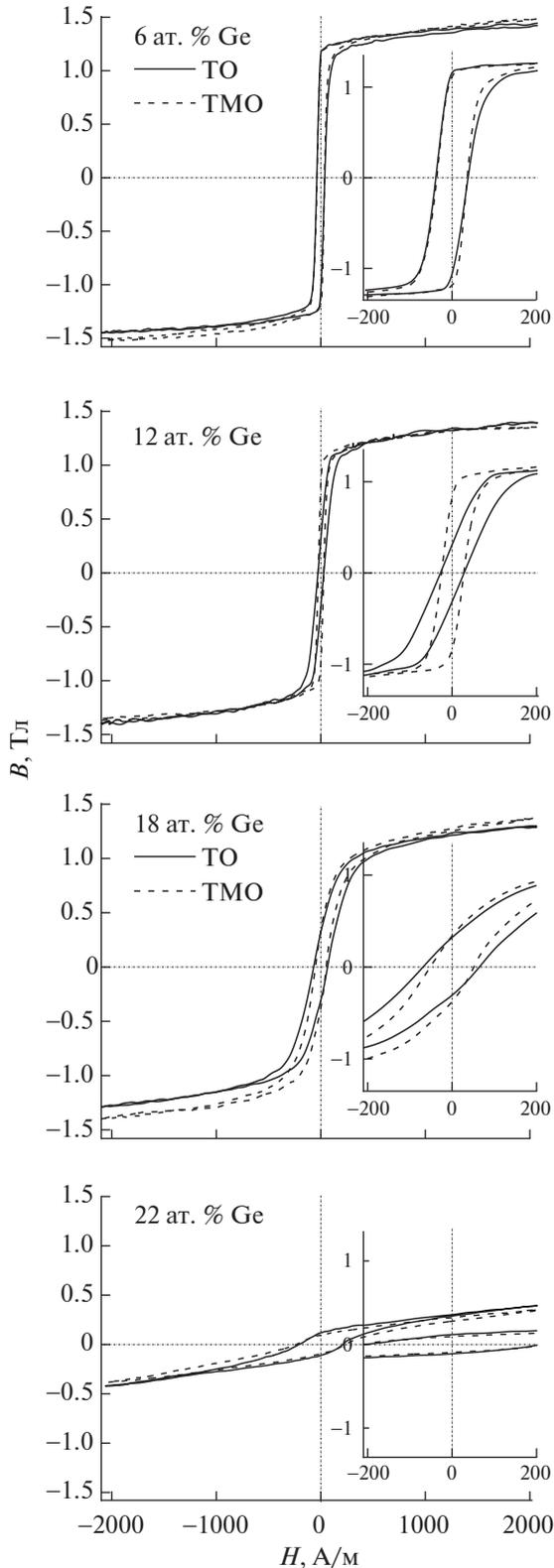


Рис. 3. Индукция насыщения (1) и коэрцитивная сила (2) дисковых образцов Fe–Ge в зависимости от содержания германия. Индукция насыщения чистого  $\alpha$ -железа взята из [27].

жении коэрцитивной силы и увеличении остаточной индукции. Если в процессе ТМО прилагали знакопеременное магнитное поле, то после обработки доменная структура становится дестабилизированной, что облегчает дальнейшее намагничивание и перемагничивание и приводит опять же к снижению коэрцитивной силы и увеличению остаточной индукции.

На рис. 4 представлены петли гистерезиса образцов сплавов, содержащих 6, 12, 18 и 22 ат. % германия, после обработок ТО (1) и ТМО в постоянном магнитном поле (2). На вставках для наглядности показано изменение индукции в средней части петель гистерезиса, в интервале напряженности намагничивающего поля от  $-200$  до  $+200$  А/м, в котором определяются параметры  $H_c$  и  $B_r$ . Максимальная индукция  $B_{max}$  измерена в максимальном поле  $\pm 2.4$  кА/м. Значения параметров  $B_{max}$ ,  $B_r$  и  $H_c$  при различных концентрациях Ge приведены в табл. 1. После ТО (1) или в исходном состоянии при увеличении концентрации Ge от 3 до 15 ат. % происходит сужение петли гистерезиса, и, соответственно, коэрцитивная сила уменьшается с 46 до 33 А/м. При дальнейшем увеличении содержания Ge петля расширяется и коэрцитивная сила увеличивается до 235 А/м при 22 ат. % Ge. В то же время наблюдается постепенное уменьшение максимальной индукции  $B_{max}$ , которое ускоряется после 18 ат. % Ge. Во всем диапазоне концентрации германия от 3 до 22 ат. % максимальная индукция  $B_{max}$  снижается от 1.43 до 0.30 Тл, остаточная намагниченность — от 0.82 до 0.03 Тл.

Сравнивая форму и параметры петель магнитного гистерезиса после ТО и ТМО (рис. 4 и табл. 1), можно видеть, что после ТМО циркулирующее



**Рис. 4.** Петли гистерезиса кольцевых образцов сплава Fe–Ge, содержащих 6, 12, 18 и 22 ат. % Ge, после обработки (1) – ТО и (2) – ТМО в постоянном магнитном поле.

перемагничивание в кольцевых образцах облегчается, петли становятся более узкими и более прямоугольными. Коэрцитивная сила  $H_c$  уменьшается в диапазоне концентраций германия от 6 до 18 ат. %, а остаточная индукция  $B_r$  увеличивается при 12–18 ат. % Ge. Следовательно, в результате ТМО в образцах сплавов при этих концентрациях наводится магнитная анизотропия, ось которой направлена вдоль кольца. При этом максимальная эффективность ТМО в постоянном магнитном поле наблюдается при 12 ат. % Ge.

Сравнивая представленные данные для Fe–Ge с полученными ранее для сплава Fe–Ga [16], можно выделить похожие тенденции. В обоих случаях при увеличении содержания легирующего элемента наблюдается снижение индукции насыщения и остаточной намагниченности. Концентрационная зависимость коэрцитивной силы для обоих сплавов имеет минимум. Так, для Fe–Ga минимум  $H_c$  в исходном состоянии наблюдается при 6–12 ат. % Ga [15], а для Fe–Ge – при 9–15 ат. % Ge (табл. 1).

Наибольшее уменьшение коэрцитивной силы  $H_c$  после ТМО наблюдается для сплавов с концентрации легирующего элемента 12–18 ат. % как в случае Fe–Ge, так и Fe–Ga. Однако уменьшение величины  $H_c$  после ТМО существенно отличается: для Fe–Ge это 22–26% (см. табл. 1), для Fe–Ga – 140–640% [16].

Об эффективности ТМО также можно судить по поведению остаточной намагниченности. Для Fe–Ge наибольшее изменение  $B_r$  после ТМО наблюдали при 12 ат. % Ge – увеличение на 115% (табл. 1). Для Fe–Ga изменение  $B_r$  гораздо больше, и после ТМО для 9, 12, 15 ат. % Ga составило 120, 270, 1220% [16], соответственно.

На кольцевых образцах сплавов Fe–Ge также исследовали изменение магнитных свойств после ТМО в знакопеременном поле. На рис. 5 представлены петли гистерезиса, полученные на образцах всех составов после ТО (1) и обработки в переменном магнитном поле (3). Наибольшее изменение магнитных свойств после ТМО в переменном магнитном поле имеет место в образце сплава, содержащем 12 ат. % Ge. Параметры, характеризующие петли гистерезиса после обработки сплавов Fe–Ge в знакопеременном поле при различных концентрациях Ge, приведены в табл. 2. Видно, что наибольшие изменения магнитных свойств наблюдается в этом случае для сплава при концентрации 12 ат. % Ge.

Как и в случае ТМО в постоянном магнитном поле, наибольшее снижение  $H_c$  наблюдается при 9–12 ат. % Ge и составляет 19–46%. Наибольшее увеличение остаточной намагниченности, 46%, приходится на 12 ат. % Ge. По данным табл. 1 и 2 построены концентрационные зависимости эф-

**Таблица 1.** Основные магнитные характеристики:  $B_{\max}$ ,  $B_r$  и  $H_c$  и эффективность ТМО в постоянном магнитном поле для кольцевых образцов сплава Fe–Ge в зависимости от содержания германия

Ge, ат. %	$B_{\max}$ , Тл			$B_r$ , Тл			$H_c$ , А/м		
	(1)	(2)	$\Delta B_{\max}$ , %	(1)	(2)	$\Delta B_r$ , %	(1)	(2)	$\Delta H_c$ , %
3	1.43	1.40	–2	0.82	0.86	5	46	46	0.0
6	1.45	1.48	2	1.17	1.19	2	40	35	–12
9	1.43	1.41	–2	0.89	0.88	–1	33	29	–12
12	1.37	1.36	–1	0.35	0.76	115	34	25	–26
15	1.31	1.37	4	0.71	0.79	12	35	29	–17
18	1.30	1.46	13	0.31	0.37	17	67	52	–22
20	0.56	0.58	3	0.13	0.14	4	115	117	2
22	0.30	0.38	24	0.06	0.08	30	235	223	–5

**Таблица 2.** Основные магнитные характеристики:  $B_{\max}$ ,  $B_r$  и  $H_c$  и эффективность ТМО в переменном магнитном поле для кольцевых образцов сплава Fe–Ge в зависимости от содержания германия

Ge, ат. %	$B_{\max}$ , Тл			$B_r$ , Тл			$H_c$ , А/м		
	(1)	(3)	$\Delta B_{\max}$ , %	(1)	(3)	$\Delta B_r$ , %	(1)	(3)	$\Delta H_c$ , %
3	1.40	1.26	–10	0.77	0.76	–1	36	35	–3
6	1.34	1.34	0	0.87	0.89	2	33	29	–12
9	1.51	1.54	2	0.95	1.04	10	29	23	–21
12	1.29	1.21	6	0.30	0.43	46	33	18	–46
15	1.24	1.20	4	0.66	0.72	18	19	29	–16
18	1.16	1.17	0	0.28	0.30	7	67	54	–19
20	0.60	0.56	–6	0.11	0.13	14	111	120	8
22	0.41	0.35	–16	0.08	0.05	–35	199	181	–9

эффективности ТМО в постоянном и переменном магнитных полях, приведенные на рис. 6 и 7. Относительное изменение  $H_c$  и  $B_r$  имеет куполообразный вид, и наибольшая эффективность ТМО как в постоянном, так и в переменном полях приходится на состав Fe–12 ат. % Ge.

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

С целью выяснения влияния ТМО на магнитные и магнитоупругие свойства сплава Fe–Ge исследована концентрационная зависимость процессов намагничивания и перемагничивания в широком интервале концентрации германия.

Измерены предельные (3–30 ат. % Ge) и частные (3–22 ат. % Ge) петли магнитного гистерезиса (зависимости индукции от напряженности приложенного внешнего поля) сплавов, предварительно подвергнутых трем обработкам: ТО, ТМО в постоянном и переменном магнитном поле.

Определены параметры петель магнитного гистерезиса: коэрцитивная сила  $H_c$ , максимальная  $B_{\max}$  и остаточная  $B_r$  индукция. Следующая после-

довательность термических обработок и измерений была реализована. После ТО (1) измеряли магнитные характеристики образцов сплавов, затем на этих же образцах проводили ТМО в постоянном (2) или переменном (3) магнитном поле, после чего снова измеряли магнитные характеристики.

Установлено, что  $B_{\max}$  сплава монотонно уменьшается по мере уменьшения содержания железа, при этом уменьшение  $B_{\max}$  значительно ускоряется после 18 ат. % Ge. Одновременно  $H_c$  медленно уменьшается в диапазоне концентраций от 3 до 15 ат. % Ge и резко растет после 15 ат. % Ge, при концентрации, которая соответствует границе области фазы  $D0_3$  на фазовой диаграмме.

ТМО как в постоянном, так и в переменном магнитном поле оказывает влияние на магнитные свойства образцов сплавов, содержащих 9–18 ат. % Ge. В кольцах индуцируется (наводится) магнитная анизотропия с циркулирующим в кольце направлением анизотропии. При перемагничивании вдоль кольца частные петли магнитного гистерезиса становятся более узкими и более вертикаль-

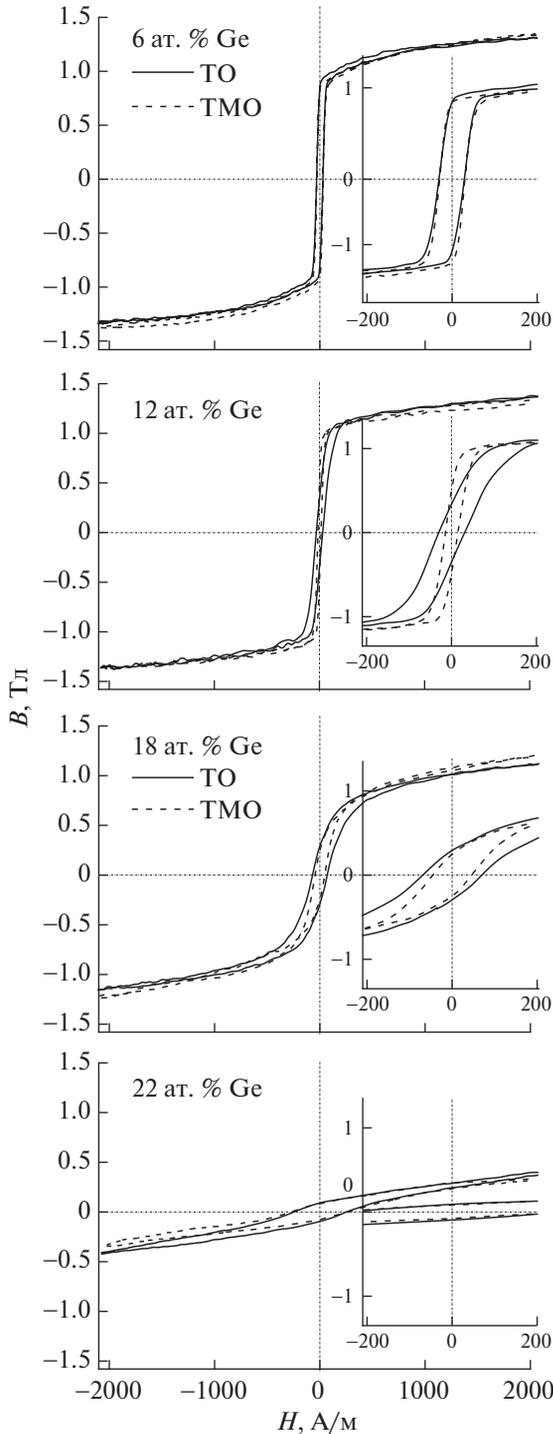


Рис. 5. Петли гистерезиса кольцевых образцов сплава Fe–Ge, содержащих 6, 12, 18 и 22 ат. % Ge, после обработки (1) – ТО и (3) – ТМО в переменном магнитном поле.

ными, что соответствует снижению коэрцитивной силы и увеличению остаточной индукции. Наибольшее снижение  $H_c$  (19–46%) наблюдается при 9–18 ат. % Ge, а наибольшее увеличение остаточной намагнитченности (46%), приходится

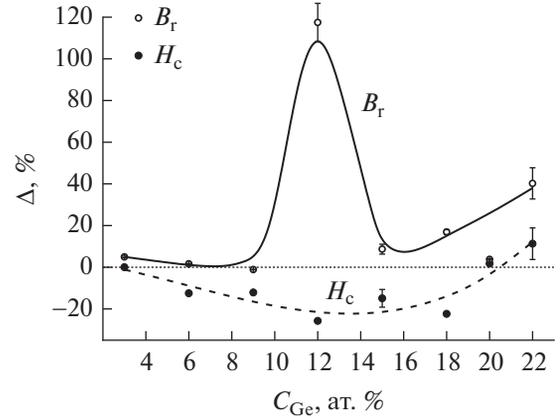


Рис. 6. Концентрационная зависимость эффективности ТМО в постоянном магнитном поле.

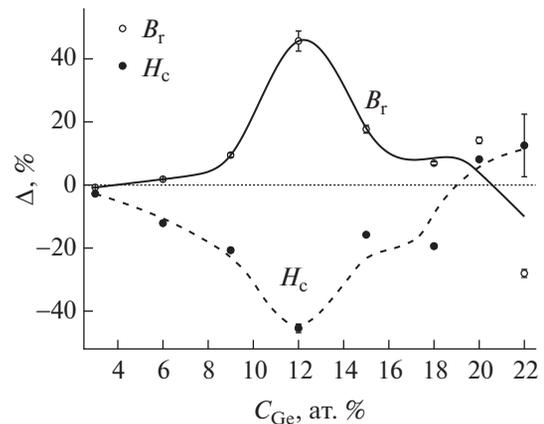


Рис. 7. Концентрационная зависимость эффективности ТМО в переменном магнитном поле.

на 12 ат. % Ge. Относительное изменение  $H_c$  и  $B_r$  имеет куполообразный вид, наибольшая эффективность ТМО как в постоянном, так и с переменном полях приходится на состав Fe–12 ат. % Ge.

Эффективность ТМО, которую оцениваем по наибольшим изменениям  $B_r$  и  $H_c$  в результате ТМО, имеет резкий подъем, который начинается в области неупорядоченного твердого раствора (в  $\alpha$ -фазе) при 9 ат. % Ge, а положение максимума при концентрации германия 12 ат. % соответствует границе  $\alpha + \alpha_1$  двухфазной области.

Резкий спад эффективности ТМО приходится на 15–18 ат. % Ge, что соответствует области фазы  $\alpha_1$  и косвенно указывает на негативную роль  $D0_3$  упорядочения в формировании наведенной магнитной анизотропии в сплавах железа с германием. Точно такое же влияние  $D0_3$  порядка на НМА ранее наблюдали в сплавах железа с кремнием, с алюминием и галлием. Максимальная эффективность ТМО наблюдается в сплавах Fe–Si при 8 ат. % Si

[15], в сплавах Fe–Ga при 15–18 ат. % Ga [16] и при 20–24 ат. % Al в сплавах Fe–Al [13]. Таким образом, сплавы Fe–Ge занимают промежуточное положение между сплавами железа с кремнием и галлием.

Согласно сформулированным в [19] представлениям, эффект ТМО обусловлен присутствием в сплаве и направленной ориентацией под действием магнитного поля анизотропных кластеров  $B2$ -типа (или пар X–X атомов металлоида). Формирование таких кластеров было установлено методом рентгеноструктурного анализа в монокристаллах сплавов Fe–Si [20–22], Fe–Al [23], Fe–Ga [25, 26]. Эффективность ТМО нарастает с увеличением концентрации атомов металлоида и начинает снижаться по мере появления кластеров фазы  $D0_3$ . Сплав Fe–Ge занимает промежуточное положение между Fe–Si и Fe–Ga, в которых максимальная эффективность ТМО достигается при 8 ат. % (Fe–Si [15]), и при 15 ат. % (Fe–Ga [16]), то есть вблизи границы двухфазной области. С увеличением концентрации атомов металлоида эффективность ТМО уменьшается до нуля, потому что в сплаве формируется  $D0_3$  дальний порядок, который замещает кластеры  $B2$  и их становится недостаточно для обеспечения эффекта ТМО как в формировании анизотропного распределения атомов в сплаве, так и в наведении осевой анизотропии магнитных свойств. В сплавах с установленным дальним порядком ТМО не может быть эффективной.

Наведение магнитной анизотропии при ТМО обусловлено диффузионными изменениями в атомной структуре магнитомягких сплавов железа, для активации которых необходимы повышенные, но не превосходящие точку Кюри температуры, магнитное поле и присутствие в достаточном количестве анизотропных кластеров  $B2$ . По-видимому, критическое соотношение объемов кластеров  $B2$  и областей фазы  $D0_3$  в каждом из сплавов железа с кремнием, алюминием, германием и галлием происходит при характерной для конкретного атома замещения концентрации.

Для более детального выяснения природы механизмов формирования большой магнитоstriction в сплавах железа с германием, требуются дополнительные исследования магнитной доменной и атомной структуры, а также локальной атомной структуры и фазового состава сплавов в зависимости от концентрации и условий термической обработки, в том числе и от влияния ТМО.

Исследования проведены за счет гранта Российского научного фонда (проект № 22-12-00179 <https://rscf.ru/project/22-12-00179/>, ИФМ УрО РАН).

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Дружинин В.В. Магнитные свойства электротехнической стали. М.: Энергия, 1974. 240 с.
2. Зайкова В.А., Старцева И.Е., Филиппов Б.Н. Доменная структура и магнитные свойства электротехнических сталей. М.: Наука, 1992. 272 с.
3. Freitas A.S., de Albuquerque D.F., Fittipaldi I.P., Moreno N.O. Magnetic properties of Fe–Al for quenched diluted spin-1 Ising model // JMMM. 2014. V. 362. P. 226.
4. Wu D., Xing Q., McCallum R.W., Lograsso T.A. Magnetostriction of iron-germanium single crystals // J. Appl. Phys. 2008. V. 103. P. 07B307.
5. Clark A.E., Hathaway K.B., Wun-Fogle M., Restorff J.B., Lograsso T.A., Keppens V.M., Petculescu G., Taylor R.A. Extraordinary Magnetoelasticity and Lattice Softening in bcc Fe–Ga Alloys // J. Appl. Phys. 2003. V. 93. P. 8621–8623.
6. Massalaski T.B. Binary Alloy Phase Diagrams / 2nd ed. ASM International, Materials Park, OH. 1990. 3589 p.
7. Ikeda O., Kainuma R., Ohnuma I., Fukamichi K., Ishida K. Phase equilibria and stability of ordered b.c.c. phases in the Fe-rich portion of the Fe–Ga system // J. Alloys Compd. 2002. V. 347. P. 198–205.
8. Okamoto H. Desk Handbook: Phase Diagrams for Binary Alloys / 2nd ed. ASM International, Materials Park, OH. 1993. 855 p.
9. Turtelli R.S., Nunes C.B., Teixeira L.C., Grösinger R., Suzuki P.A., Barbatti C. Magnetostriction of polycrystalline Fe–Ge alloys // J. Alloy. Compd. 2009. V. 471. P. 52–55.
10. Cao J.X., Zhang Y.N., Ouyang W.J., Wu R.Q. Large magnetostriction of  $Fe_{1-x}Ge_x$  and its electronic origin: Density functional study // Phys. Rev. B. 2009. V. 80. № 10. P. 104414.
11. Лесник А.Г. Наведенная магнитная анизотропия. Киев: Наукова думка, 1976. 163 с.
12. Кекало И.Б., Самарин Б.А. Физическое металловедение прецизионных сплавов. Сплавы с особыми магнитными свойствами / Учебник для вузов. М.: Металлургия, 1989. 496 с.
13. Sugihara M. On the effect of heat treatment in a magnetic field on magnetic properties of iron–aluminium alloys // J. Phys. Soc. Jpn. 1969. V. 15. P. 1456–1460.
14. Steinert J. Induced Uniaxial Magnetic Anisotropy of Fe–Al Alloys at Low Concentrations // Phys. Stat. Sol. 1967. V. 21. K13–K15.
15. Forsch K. Diffusionsanisotropie in Eisen–Silizium–Legierungen // Phys. Stat. Sol. 1970. V. 42. P. 329–344.
16. Лукишина В.А., Шишкин Д.А., Кузнецов А.Р., Еришов Н.В., Горностырев Ю.Н. Влияние отжига в постоянном магнитном поле на магнитные свойства сплавов железо–галлий // ФТТ. 2020. Т. 62. № 10. С. 1578–1586.
17. Néel L. Anisotropie magnétique superficielle et surstructures d'orientation // J. Phys.-Paris 1954. V. 15. P. 225–239.
18. 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. rep. Res. Tohoku A. 1954. V. 6. P. 330–332.

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. P. 220–230.
20. *Горбатов О.И., Кузнецов А.Р., Горностырев Ю.Н., Рубан А.В., Ершов Н.В., Лукшина В.А., Черненко Ю.П., Федоров В.И.* Роль магнетизма в формировании ближнего порядка в сплавах железо–кремний // *ЖЭТФ*. 2011. Т. 139. № 5. С. 969–982.
21. *Черненко Ю.П., Федоров В.И., Лукшина В.А., Соколов Б.К., Ершов Н.В.* Ближний порядок в монокристаллах  $\alpha$ -Fe–Si // *ФММ*. 2001. Т. 92. № 2. С. 95–100.
22. *Ершов Н.В., Черненко Ю.П., Лукшина В.А., Федоров В.И.* Структура сплавов  $\alpha$ -FeSi с 8 и 10 ат. % кремния // *ФТТ*. 2012. Т. 54. № 9. С. 1813–1819.
23. *Ершов Н.В., Черненко Ю.П., Лукшина В.А., Смирнов О.П.* Ближний порядок в магнитомягком сплаве  $\alpha$ -FeAl // *ФТТ*. 2018. Т. 60. № 9. С. 1619–1631.
24. *Черненко Ю.П., Ершов Н.В., Лукшина В.А.* Обнаружение новой фазы типа B1 в монокристаллах магнитомягких сплавов Fe–Al и Fe–Ga // *ФТТ*. 2019. Т. 61. № 11. С. 2000–2008.
25. *Черненко Ю.П., Ершов Н.В., Лукшина В.А.* Влияние отжига в ферромагнитном состоянии на структуру сплава железа с 18 ат. % галлия // *ФТТ*. 2019. Т. 61. № 1. С. 12–21.
26. *Черненко Ю.П., Ершов Н.В., Горностырев Ю.Н., Лукшина В.А., Смирнов О.П., Шишкин Д.А.* Рентгеноструктурный анализ ближнего порядка в твердых растворах железо–галлий // *ФММ*. 2022. Т. 123. № 10. С. 1054–1062.
27. *Бозорт Р.* Ферромагнетизм. М.: ИЛ, 1956. 784 с.
28. *Kanematsu K., Ohoyama T.* Magnetic and X-Ray Studies of Iron-Germanium System II. Phase Diagram and Magnetism of Each Phase // *J. Phys. Soc. Jpn.* V. 20. P. 236–242.
29. *Khmelevska T., Khmelevskiy S., Ruban A.V., Mohn P.* Magnetism and origin of non-monotonous concentration dependence of the bulk modulus in Fe-rich alloys with Si, Ge and Sn: a first-principles study // *J. Phys.: Condens. Matter*. 2006. V. 18. P. 6677–6689.

## Effect of Field Annealing on Magnetic Properties of Magnetic Soft Iron–Germanium Alloys

V. A. Lukshina<sup>1</sup>, A. V. Timofeeva<sup>1</sup>, D. A. Shishkin<sup>1, 2</sup>, Yu. N. Gornostyrev<sup>1</sup>, and N. V. Ershov<sup>1, \*</sup>

<sup>1</sup>Miheev Institute of Metal Physic, Ural Branch, Russian Academy of Sciences, Ekaterinburg, 620108 Russia

<sup>2</sup>Ural Federal University Named after the First President of Russia B.N. Yeltsin, Ekaterinburg, 620002 Russia

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

**Abstract**—The concentration dependence of the magnetic properties of iron–germanium alloys before and after thermomagnetic treatment, which represents an annealing of alloy samples in the ferromagnetic state in a permanent or alternating magnetic field (magnetic field annealing – MFA), has been investigated. It is shown that before MFA, with an increase in the germanium content in the range of 3–30 at % Ge, the coercive force increases and the residual induction decreases. As a result of thermomagnetic treatment, in the alloy samples magnetic anisotropy is induced: the magnetic hysteresis loops become narrower, the residual induction increases, and the coercive force decreases. Thermomagnetic treatment is effective for Fe–Ge alloys with a germanium content from 6 to 18 at %, and its highest efficiency is observed at 12 at % Ge. Features of the structural state of iron–germanium alloys and their role in the formation of magnetic properties during annealing in a magnetic field are discussed.

**Keywords:** soft magnetic Fe–Ge alloy, magnetic field annealing, magnetic properties, induced magnetic anisotropy