

УДК 538.245

## МАГНИТНАЯ ВЯЗКОСТЬ В ВЫСОКОКОЭРЦИТИВНЫХ ЛИТЫХ ОБРАЗЦАХ $(\text{Gd,Zr})(\text{Co,Cu,Fe})_z$

Ю. В. Кузнецова, Е. С. Величко, М. Б. Ляхова, Е. М. Семёнова

Тверской государственной университет  
кафедра магнетизма

Методами вибрационного магнитометра и оптической микроскопии проведены исследования магнитной вязкости в литых высококоэрцитивных образцах типа  $\text{Gd}_{0,85}\text{Zr}_{0,15}(\text{Co}_{0,70}\text{Cu}_{0,09}\text{Fe}_{0,21})_z$  ( $z = 5, 2 \dots 6, 8$ ). Построены временные зависимости намагниченности образцов в различных размагничивающих полях. Изучена перестройка доменной структуры при длительном воздействии размагничивающего поля постоянной величины. Проведена оценка времен релаксации в различных полях. Изучено влияние ориентации внешнего поля относительно ОЛН образца на процессы магнитной вязкости. Максимальная по величине магнитная вязкость и минимальное время релаксации наблюдалось в размагничивающих полях, близких к  $H_C$  образцов. Обнаружено, что процесс магнитной релаксации в основном происходит в структурной составляющей образцов, которая обогащена медью и имеет стехиометрическое соотношение  $z \sim 5$ . Показано, что в величину магнитной вязкости вносят заметный вклад не только процессы смещения доменных границ, но и необратимого вращения вектора спонтанной намагниченности в наименее анизотропных областях «ячеистой» структуры образцов.

**Ключевые слова:** магнитная вязкость, высококоэрцитивные материалы, процессы смещения доменных границ, необратимое вращение намагниченности

**Введение.** Исследованиям структуры и магнитных свойств сплавов и порошковых постоянных магнитов типа  $(\text{R,Zr})(\text{Co,Cu,Fe})_z$  посвящено большое количество работ. Однако целый ряд вопросов, касающихся формирования структуры и особенностей процессов перемагничивания, остаются до конца не выясненными. К числу таких мало исследованных вопросов относится явление магнитной вязкости, которое было обнаружено в сплавах  $(\text{Sm,Zr})(\text{Co,Cu,Fe})_z$  несколькими авторами [1–3]. Данные о магнитной вязкости в многокомпонентных ферромагнитных сплавах с гадолинием в литературе отсутствуют.

Целью данной работы было изучение магнитной вязкости в ферромагнитных высококоэрцитивных сплавах  $(\text{Gd,Zr})(\text{Co,Cu,Fe})_z$ .

**Методика эксперимента.** Исходные сплавы получали методом высокочастотной индукционной плавки в атмосфере аргона. Для формирования в слитках крупных зерен применялось медленное

охлаждение расплава со средней скоростью  $(1...2)^\circ\text{C}/\text{с}$  от температуры плавления.

Исследования проведены на образцах, которые представляли собой одно зерно сплава. Отобраным зернам придавалась сферическая форма диаметром 2...3 мм. Известно, что сплавы  $(\text{R}, \text{Zr})(\text{Co}, \text{Cu}, \text{Fe})_z$  содержат несколько наноразмерных фаз, гексагональные решетки которых связаны когерентно, поэтому образцы, не содержащие межзеренных границ можно считать псевдомонокристаллическими.

Для реализации высококоэрцитивного состояния сплавы подвергались термической обработке, которая включала в себя трехчасовую гомогенизацию при  $1180^\circ\text{C}$  с последующей закалкой до комнатной температуры и изотермический отжиг при  $800^\circ\text{C}$  в течение 20 часов с последующим медленным охлаждением до  $400^\circ\text{C}$  со средней скоростью  $2^\circ\text{C}/\text{мин}$ .

Магнитные измерения выполнены методом вибрационного магнитометра. Микро- и доменная структура исследовалась на металлографическом микроскопе Neophot 30. Металлографические шлифы готовились по стандартным методикам с применением алмазных паст с крупностью частиц абразива от 10 до 0,1 мкм. Доменная структура образцов выявлялась методом полярного эффекта Керра, микроструктура – методом химического травления.

**Магнитные характеристики высококоэрцитивных литых образцов  $\text{Gd}_{0,85}\text{Zr}_{0,15}(\text{Co}_{0,70}\text{Cu}_{0,09}\text{Fe}_{0,21})_z$ .** В качестве объектов исследования были выбраны ферромагнитные сплавы  $\text{Gd}_{0,85}\text{Zr}_{0,15}(\text{Co}_{0,70}\text{Cu}_{0,09}\text{Fe}_{0,21})_z$  ( $z = 5,2; 5,6; 6,0; 6,4$  и  $6,8$ ). Выбор такого интервала значений стехиометрического соотношения  $z$  связан с тем, что при таком изменении  $z$  и величина коэрцитивной силы, и относительное объемное содержание двух основных структурных составляющих  $A$  и  $B$  изменяются в широких пределах (табл. 1) [4].

На рис. 1 приведены результаты магнитных измерений, выполненные методом вибрационного магнитометра. Перед измерениями петель гистерезиса образцы приводились в состояние магнитного насыщения в поле 30 кЭ. Перед измерениями кривых намагничивания образцы размагничивались обратным полем. Необходимо отметить, что поскольку в образцах наблюдалась магнитная вязкость, то для исключения этого эффекта при измерениях петель гистерезиса внешнее магнитное поле изменялось с достаточно большой скоростью  $\sim 1$  кЭ/с.

Магнитные характеристики, определенные из данных магнитных измерений, и объемное содержание структурных составляющих [4] исследованных образцов приведены в табл. 1. При изменении значения стехиометрического соотношения  $z$  объемное содержание основных структурных составляющих образцов  $A$  и  $B$  изменяется на

противоположное: при  $z = 5,2$  основной объем занимает составляющая  $A$ , при  $z = 6,8$  – составляющая  $B$ .

Значения удельной намагниченности насыщения  $\sigma_s$  и остаточной намагниченности  $\sigma_r$  монотонно возрастают с увеличением  $z$ , что связано с увеличением в сплавах содержания железа и кобальта. Коэрцитивная сила изменяется немонотонно с ростом  $z$ , максимальное значение  $H_C = 12$  кЭ реализовано в образце с  $z = 6,4$ .

Т а б л и ц а 1. Характеристики образцов  $(Gd_{0,85}Zr_{0,15})(Co_{0,70}Cu_{0,09}Fe_{0,21})_z$

$z$	Объем структурных составляющих, % [4]			$\sigma_s$ , Гс·см <sup>3</sup> /Г	$\sigma_r$ , Гс·см <sup>3</sup> /Г	$H_C$ , кЭ
	$A$	$B$	$C$			
5,2	78	0	22	40	38	1
5,6	73	12	15	45	43	2,5
6,0	66	25	9	50	49	10
6,4	35	62	3	55	54	12
6,8	23	75	2	60	58	6

**Магнитная вязкость в высококоэрцитивных литых образцах  $Gd_{0,85}Zr_{0,15}(Co_{0,70}Cu_{0,09}Fe_{0,21})_z$ .** Измерения временных зависимостей намагниченности образцов  $Gd_{0,85}Zr_{0,15}(Co_{0,70}Cu_{0,09}Fe_{0,21})_z$  проводились следующим образом. Перед каждым измерением образцы намагничивались до насыщения в магнитном поле 30 кЭ. Затем поле убиралось до нуля, и шток магнитометра с закрепленным образцом вынимался из рабочего зазора электромагнита. Далее в электромагните устанавливалось обратное по знаку поле определенной величины. После этого шток вместе с образцом вдвигался в магнитное поле. За время  $t = 0$  принимался момент помещения образца в магнитное поле. Максимальная длительность измерений составляла 200 с. Поскольку точно определить начальное значение намагниченности при  $t = 0$  часто было затруднительно, это значение принималось равным величине намагниченности в соответствующем по величине и знаку магнитном поле, полученной при измерении петель гистерезиса с достаточно большой скоростью изменения поля (рис. 1).

На рис. 2 в качестве примера приведены временные зависимости намагниченности образцов  $Gd_{0,85}Zr_{0,15}(Co_{0,70}Cu_{0,09}Fe_{0,21})_z$  с  $z = 5,6$  и  $6,0$  в различных размагничивающих полях. Для удобства дальнейшего сравнительного анализа зависимости  $I/I_S(t)$  построены в относительных единицах. Измерение зависимости  $I/I_S(t)$  для образца с  $z = 5,2$  были затруднены малым значением  $H_C = 1$  кЭ. Для образца с  $z = 6,8$  магнитное последствие практически не наблюдалось.

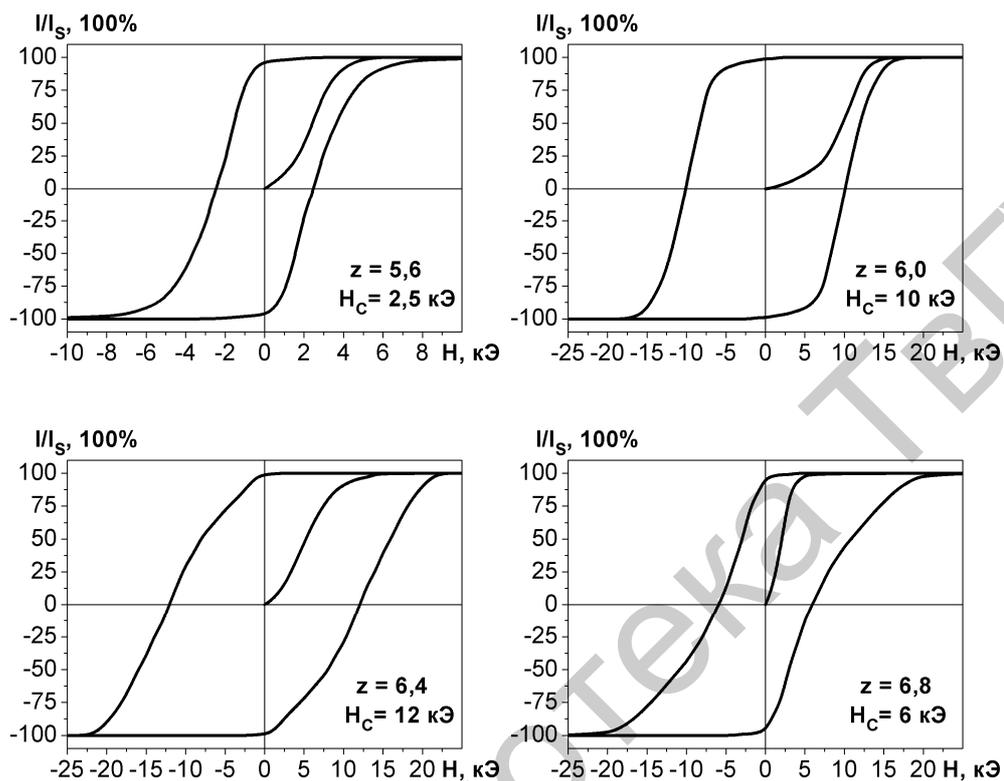


Рис. 1. Кривые намагничивания и петли гистерезиса образцов  $Gd_{0,85}Zr_{0,15}(Co_{0,70}Cu_{0,09}Fe_{0,21})_z$

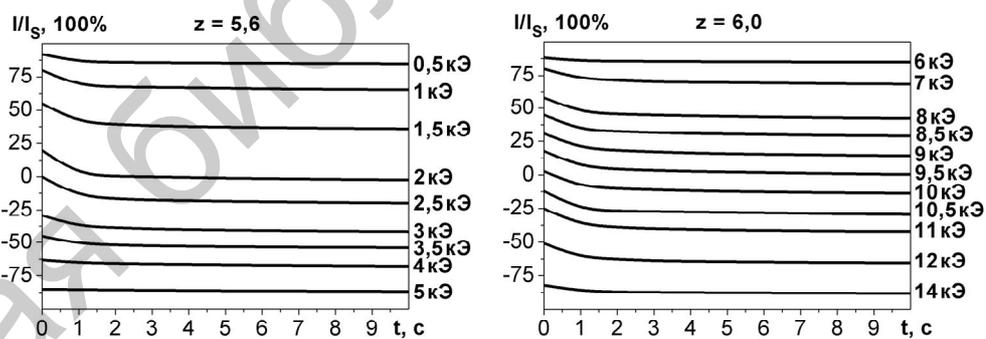


Рис. 2. Временные зависимости намагниченности образцов  $Gd_{0,85}Zr_{0,15}(Co_{0,70}Cu_{0,09}Fe_{0,21})_z$  в различных размагничивающих полях

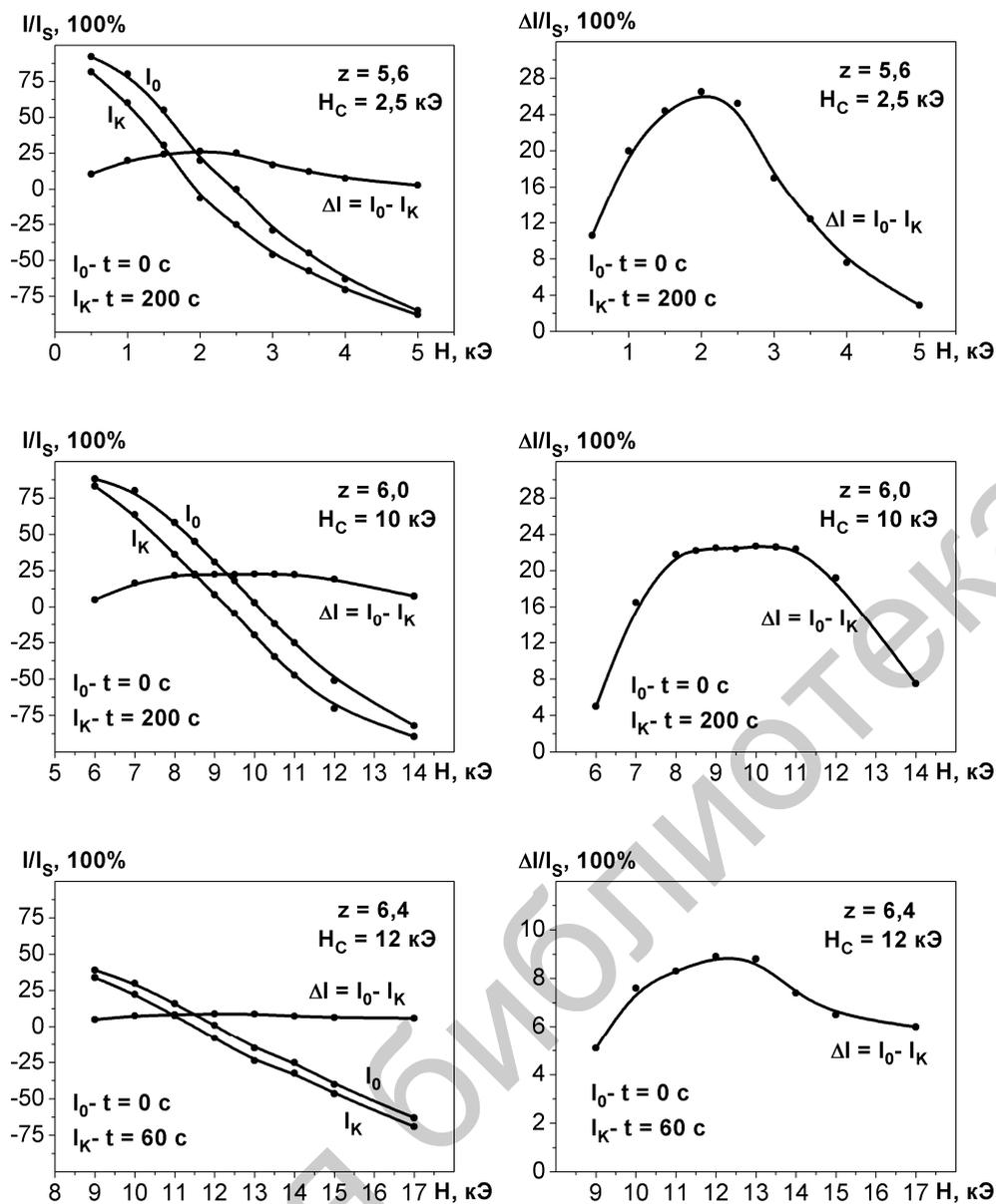


Рис. 3. Полевые зависимости намагниченностей образцов  $Gd_{0.85}Zr_{0.15}(Co_{0.70}Cu_{0.09}Fe_{0.21})_z$  в начальный момент воздействия поля  $I_0$ , в момент приближения к равновесию  $I_K$  и разницы  $\Delta I = I_0 - I_K$

Из рис. 2 видно, что заметное падение намагниченности образцов во всех полях происходит в начальные секунды воздействия поля, а далее зависимости  $I/I_S(t)$  имеют линейный ход. Для всех образцов при воздействии поля любой величины в течение  $t = 200$  с практически достигаются равновесные значения намагниченности.

На рис. 3 приведены полевые зависимости намагниченности образцов  $Gd_{0,85}Zr_{0,15}(Co_{0,70}Cu_{0,09}Fe_{0,21})_z$  в первую секунду воздействия поля  $I_0$ , в момент приближения к равновесию  $I_K$  ( $t = 200$  с для  $z = 5,6; 6,0$  и  $t = 60$  с для  $z = 6,4$ ), а также разницы этих значений  $\Delta I = I_0 - I_K$ . Видно, что зависимости  $\Delta I(H)$  для всех образцов имеют экстремальный характер, а максимум на кривых  $\Delta I(H)$  достигается в полях, близких к величине коэрцитивной силы.

Наибольшая вязкость обнаружена у образца с  $z = 5,6$  ( $\Delta I_{max}/I_S = 26,5\%$  в размагничивающем поле  $H = 2$  кЭ), немного меньшая у образца с  $z = 6,0$  ( $22,5\%$  в поле  $9$  кЭ) и самая малая у образца с  $z = 6,4$  ( $8,9\%$  в поле  $12$  кЭ). Исходя из этих результатов и данных об объеме структурных составляющих в исследованных сплавах (табл. 1 [6]), можно предположить, что основные процессы магнитного последствия происходят в структурной составляющей  $A$  образцов.

В пользу этого свидетельствуют и результаты исследования доменной структуры. На рис. 4 приведены фотографии микроструктуры и доменной структуры на одном участке базисной плоскости образца  $Gd_{0,85}Zr_{0,15}(Co_{0,70}Cu_{0,09}Fe_{0,21})_{6,0}$ . На всех снимках для наглядности контуром обведены границы двух структурных составляющих  $A$  и  $B$ . Видно, что в состоянии, размагниченном знакопеременным убывающим по величине полем (РПП), более мелкая доменная структура наблюдается в составляющей  $B$ . Сравнение доменной структуры после кратковременного и после длительного воздействия обратным полем  $9$  кЭ показывает, что основные процессы смещения доменных границ в процессе релаксации происходят именно в составляющей  $A$ . Составляющая  $A$  обогащена медью относительно среднего состава сплава и имеет стехиометрическое соотношение  $z \sim 5$  [5–6], поэтому она по свойствам близка к соединениям типа  $Gd(Co,Cu)_5$ , для которых характерна сильная магнитная вязкость.

Для сравнения скорости протекания процессов релаксации в образцах  $Gd_{0,85}Zr_{0,15}(Co_{0,70}Cu_{0,09}Fe_{0,21})_z$  временные зависимости намагниченности  $I/I_S(t)$  в различных полях были перестроены в относительных единицах  $(I - I_K)/\Delta I(t)$  (рис. 5). Из полученных зависимостей видно, что самое быстрое падение намагниченности для всех образцов наблюдается в размагничивающих полях, близких к их коэрцитивной силе: в поле  $2$  кЭ для образца с  $z = 5,6$ ; в поле  $10$  кЭ для  $z = 6,0$  и в поле  $11$  кЭ для  $z = 6,4$ .

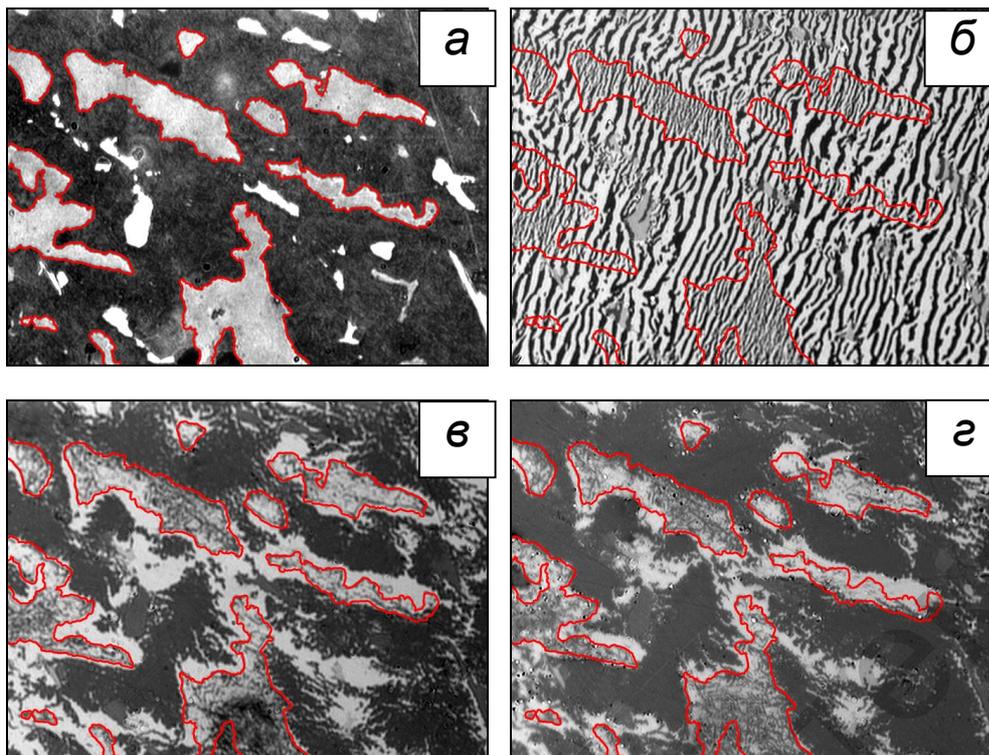
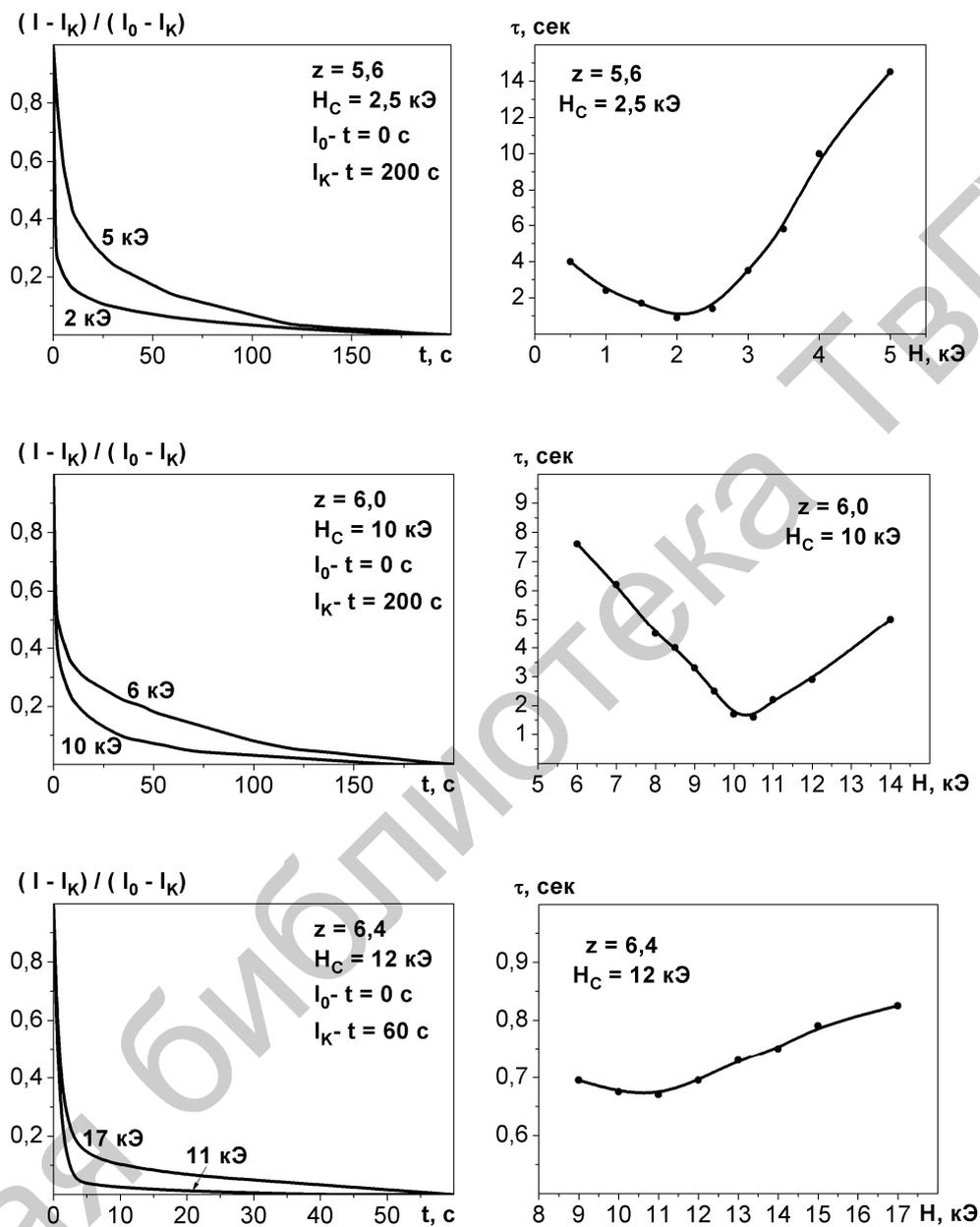


Рис. 4. Микроструктура (а) и доменная структура (б–г) на базисной плоскости образца  $Gd_{0,85}Zr_{0,15}(Co_{0,70}Cu_{0,09}Fe_{0,21})_{6,0}$  в состоянии РПП (б) и после воздействия размагничивающим полем 9 кЭ в течение  $t = 1$  с (в) и  $t = 5$  мин (г)

Для получения количественных данных о скорости протекания процессов магнитного последствия была проведена оценка времени релаксации  $\tau$ , за которое начальное отклонение намагниченности образца от ее равновесного значения уменьшается в  $e = 2,7$  раз.

Построенные для всех исследованных образцов полевые зависимости времен релаксации  $\tau(H)$  приведены на рис. 6. Результаты расчетов  $\tau(H)$  подтвердили качественные предположения, сделанные из анализа кривых  $(I - I_K)/\Delta I(t)$  (рис. 5). Для всех образцов минимальное время релаксации соответствует размагничивающим полям, по величине близким к их коэрцитивной силе: для образца с  $z = 5,6$  –  $\tau_{\min} = 0,9$  с в размагничивающем поле 2 кЭ; для образца с  $z = 6,0$   $\tau_{\min} = 1,6$  с в поле 10,5 кЭ и для образца с  $z = 6,4$  –  $\tau_{\min} = 0,67$  с в поле 11 кЭ.

Для образца  $Gd_{0,85}Zr_{0,15}(Co_{0,70}Cu_{0,09}Fe_{0,21})_{6,0}$  с  $H_C = 10$  кЭ была изучена магнитная вязкость при приложении внешнего магнитного поля под углом к оси легкого намагничивания (ОЛН). Исследования проводились следующим образом.



Р и с . 5. Временные зависимости изменения намагниченности  $(I - I_K) / (I_0 - I_K)$  и полевые зависимости времен релаксации  $\tau$  образцов  $Gd_{0,85}Zr_{0,15}(Co_{0,70}Cu_{0,09}Fe_{0,21})_z$

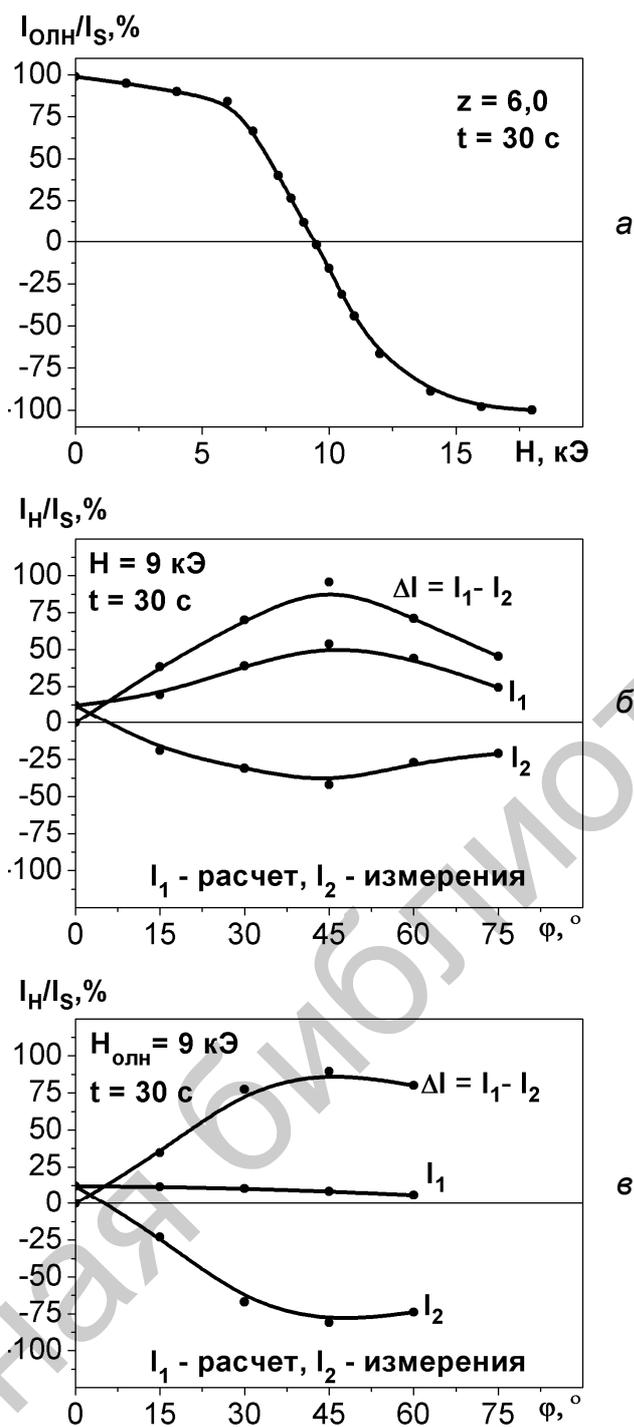


Рис. 6. Результаты исследования угловых зависимостей магнитной вязкости образца  $\text{Gd}_{0,85}\text{Zr}_{0,15}(\text{Co}_{0,70}\text{Cu}_{0,09}\text{Fe}_{0,21})_{6,0}$

Первоначально из временных зависимостей намагниченности  $I/I_S(t)$  (рис. 2) была построена полевая зависимость  $I_{\text{ОЛН}}/I_S(H)$ , где  $I_{\text{ОЛН}}$  – значение намагниченности через 30 с действия поля, направленного вдоль ОЛН образца (рис. 6, а).

В первом случае поле  $H = 9$  кЭ прикладывалось под углами  $\varphi = 0, 15^\circ, 30^\circ, 45^\circ, 60^\circ$  и  $75^\circ$  к ОЛН образца. Для каждого угла измерялось значение проекции намагниченности на направление поля через 30 с его воздействия (кривая  $I_2$  на рис. 6, б). Затем рассчитывалась проекция поля на направление ОЛН образца по формуле  $H_{\text{ОЛН}} = H \cos\varphi$ , по полевой зависимости  $I_{\text{ОЛН}}/I_S(H)$  (рис. 6, а) определялось значение намагниченности в поле  $H_{\text{ОЛН}}$  и рассчитывалась её проекция на направление поля по формуле  $I_H = I_{\text{ОЛН}} \cos\varphi$  (кривая  $I_1$  на рис. 6, б). Далее для всех  $\varphi$  рассчитывалась разница  $\Delta I = I_1 - I_2$  и строилась угловая зависимость  $\Delta I/I_S(\varphi)$ .

Во втором случае под углами  $\varphi = 0, 15^\circ, 30^\circ, 45^\circ, 60^\circ$  к ОЛН образца прикладывалось поле такой величины, чтобы его проекция на ОЛН образца при любом угле  $\varphi$  оставалась равной  $H_{\text{ОЛН}} = 9$  кЭ. Величина этого поля определялась по формуле  $H = H_{\text{ОЛН}} / \cos\varphi$ . Для каждого угла измерялась величина проекции намагниченности на направление поля через 30 с его воздействия (кривая  $I_2$  на рис. 6, в). По полевой зависимости  $I_{\text{ОЛН}}/I_S(H)$  (рис. 6, а) определялась величина намагниченности в поле  $H = 9$  кЭ и рассчитывалась величина этой проекции на направление поля по формуле  $I_H = I_{\text{ОЛН}} \cos\varphi$  (кривая  $I_1$  на рис. 6, в). Далее для всех  $\varphi$  рассчитывалась разница  $\Delta I = I_1 - I_2$  и строилась угловая зависимость  $\Delta I/I_S(\varphi)$ .

Из результатов проведенных сложных измерений и расчетов выявлены следующие закономерности (рис. 6). Разница хода измеренных  $I_2(\varphi)$  и рассчитанных  $I_1(\varphi)$  угловых зависимостей намагниченностей в обоих случаях очень велика – кривые  $I_1(\varphi)$  идут гораздо выше кривых  $I_2(\varphi)$ . Если по результатам расчета величина намагниченности  $I_1(\varphi)$  образца в поле 9 кЭ всегда положительна, то воздействие поля под углом  $\varphi$  к ОЛН всегда приводит к перемагничиванию образца и намагниченность  $I_2(\varphi)$  меняет знак. Максимум на кривых  $\Delta I/I_S(\varphi)$  в обоих случаях наблюдается при  $\varphi = 45^\circ$  и достигает  $\Delta I/I_S \approx 96\%$  в первом случае и  $\Delta I/I_S \approx 89\%$  во втором.

Выявленные закономерности свидетельствуют о том, что в величину магнитной вязкости и в процессы перемагничивания исследованных образцов, кроме смещения доменных границ вносит заметный вклад и необратимое вращение вектора  $I_S$ . Поскольку в наноструктуре сплавов наименее анизотропной является внутренняя фаза «ячеек» типа 2:17, обогащенная железом, то можно полагать, что именно в ней и происходит процесс вращения вектора  $I_S$ .

**Заключение.** Методами вибрационного магнитометра и оптической металлографии исследована магнитная вязкость в литых высококоэрцитивных образцах  $Gd_{0,85}Zr_{0,15}(Co_{0,70}Cu_{0,09}Fe_{0,21})_z$  с  $z = 5,6-6,4$ . Установлено, что максимальная по величине магнитная вязкость и минимальное время релаксации наблюдается в полях, по величине близких к коэрцитивной силе образцов. Показано, что процесс магнитной релаксации образцов происходит преимущественно в структурной составляющей  $A$ , которая обогащена медью относительно среднего состава сплава и имеет стехиометрическое соотношение  $z \sim 5$ . Обнаружено, что в величину магнитной вязкости образцов вносят заметный вклад процессы не только смещения доменных границ, но и необратимого вращения вектора спонтанной намагниченности в наименее анизотропных областях «ячеистой» структуры.

Работа выполнена при поддержке ФЦП «Научные и научно-педагогические кадры инновационной России на 2009–2013 годы» ГК П745 и гранта РФФИ № 09-02-01274.

### Список литературы

1. Никитина Ю.В., Гуслов М.Е., Дегтева О.Б. Магнитная вязкость в квазибинарных соединениях  $Sm(Co, Cu)_5$  и сплавах  $(R, Zr)(Co, Cu, Fe)_z$  // Физика магнитных материалов. Тверь. 1992. С. 56–71.
2. Wang J., Chen R., Rong C., Liu Z., Zhang H., Shen B., Yan A. The magnetization behavior and magnetic viscosity of  $Sm(Co, Fe, Cu, Zr)_z$  ribbons with different temperature dependence of coercivity // J. Appl. Phys. 2010. V. 107. P. 09A707-1.
3. Panagiotopoulos I., Gjoka M., Niarchos D. Temperature dependence of the activation volume in high-temperature  $Sm(Co, Fe, Cu, Zr)_z$  magnets // J. Appl. Phys. 2002. V. 92. P. 7693–7695.
4. Ляхова М.Б., Пушкарь Ю.Е., Шаморикова Е.Б., Бабушкин Ю.В. Магнитные свойства, фазовый состав и доменная структура высококоэрцитивных сплавов Gd-Zr-Co-Cu-Fe // Физика магнитных материалов. Калинин. 1985. С. 90–105.
5. Супонев Н.П., Шаморикова Е.Б., Дормидонтов А.Г., Титов Ю.В., Лукин А.А., Левандовский В.В. Структура и магнитные свойства сплавов Sm-Zr-Co-Cu-Fe в высококоэрцитивном состоянии. Структурные составляющие и процессы перемагничивания // Физика магнитных материалов. Калинин. 1988. С. 93–105.
6. Супонев Н.П., Титов Ю.В., Шаморикова Е.Б., Симонишвили Т.В., Левандовский В.В., Дормидонтов А.Г. Фазовый состав сплавов Sm-Zr-Co-Cu-Fe // Физика магнитных материалов. Калинин. 1987. С. 33–50.

## MAGNETIC VISCOSITY IN HIGH-COERCIVE CAST (Gd,Zr)(Co,Cu,Fe)<sub>z</sub> SAMPLES

**Yu. V. Kuznetsova, E. S. Velichko,  
M. B. Lyakhova, E. M. Semenova**

Tver State University  
*Chair of Magnetism*

Magnetic viscosity in high-coercive  $Gd_{0,85}Zr_{0,15}(Co_{0,70}Cu_{0,09}Fe_{0,21})_z$  ( $z = 5.2...6.8$ ) cast samples was studied with the aid of vibration sample magnetometry and optical microscopy. Time dependence of magnetization was measured in different demagnetizing fields. Domain structure realignment under the prolonged exposition of constant demagnetizing fields was observed. Relaxation time variations in different fields was estimated. Effect of the external field orientation with respect to the easy axis direction on the magnetic viscosity processes was studied. Maximal magnetic viscosity and minimal relaxation time were observed in demagnetizing fields close to the  $H_C$  values. It was found that the magnetic relaxation occurs mainly in the structural component of the samples enriched in copper and having the stoichiometric ratio  $\sim 5$ . It is shown that the magnetic viscosity is affected not only by the contribution of domain wall displacement processes but also by the irreversible spontaneous magnetization vector rotation in the least anisotropic regions of the cellular structure of the samples.

**Keywords:** *magnetic viscosity, high-coercive materials, domain wall displacement processes, irreversible magnetization rotation*

*Об авторах:*

КУЗНЕЦОВА Юлия Васильевна – ассистент кафедры магнетизма ТвГУ, 170100, г. Тверь, ул. Желябова, 33, *e-mail:* kuznetsova\_y\_v@mail.ru;

ВЕЛИЧКО Екатерина Сергеевна – магистрант кафедры магнетизма ТвГУ;

ЛЯХОВА Марина Борисовна – кандидат физ.-мат. наук, доцент кафедры магнетизма ТвГУ, *e-mail:* Marina.Lyakhova@tversu.ru;

СЕМЕНОВА Елена Михайловна – кандидат физ.-мат. наук, доцент кафедры магнетизма ТвГУ, *e-mail:* semenova\_e\_m@mail.ru.