

Исследование доменной структуры чистых ферромагнетиков методом Лоренцевой электронной микроскопии

Мулюков Х.Я., Корзникова Г.Ф.[†]

[†] korznikova@anrb.ru

Институт проблем сверхпластичности металлов РАН, ул. Халтурина 39, 450001 Уфа

Study of the domain structure of pure ferromagnets by the Lorentz electron microscopy method

Kh.Ya. Mulyukov, G.F. Korznikova

Institute for Metals Superplasticity Problems RAS, Khalturin St. 39, 450001 Ufa

Методом Лоренцевой электронной микроскопии исследована магнитная доменная структура чистых ферромагнитных металлов (Ni, Fe, Co) с субмикроструктурной структурой, полученной кручением под высоким давлением. Сравнительный анализ позволяет сделать вывод об определяющей роли магнитокристаллической анизотропии. Установлена слабая зависимость доменной структуры от размера зерен в низкоанизотропных ферромагнетиках.

Ключевые слова: доменная структура, чистые ферромагнетики; субмикроструктурная структура.

Lorentz electron microscopy was used to analyze the domain structure in few ferromagnets (pure Ni, Fe, Co) with ultrafine grained structure produced by high pressure torsion. The comparative analysis allowed to conclude on the governing role of magnetic anisotropy constants. For the low anisotropic ferromagnets it was established that the domain structure weakly depends on the grain size.

Keywords: domain structure, pure ferromagnets, submicrocrystalline structure.

1. Введение

Большой интерес к субмикроструктурным и нанокристаллическим ферромагнетикам связан с необычными свойствами этих материалов. Так, при уменьшении кристаллитов до субмикронных размеров, как правило, наблюдается существенное повышение коэрцитивной силы, как в порошковых, так и в поликристаллических ферромагнитных материалах [1-3]. Этот рост может быть обусловлен не только увеличением объемной доли дефектов решетки, но и сменой основного механизма перемагничивания в материале при приближении размера кристаллитов к критическому размеру однодоменности [1, 4]. Для установления связи магнитных свойств с особенностями тонкой структуры в субмикроструктурных (СМК) ферромагнетиках с различной величиной константы магнитокристаллической анизотропии необходимо детальное изучение доменной структуры (ДС), ее параметров и поведения при наложении магнитного поля. К сожалению, в литературе отсутствуют систематические работы, посвященные эксперимен-

тальному изучению доменной структуры поликристаллических СМК ферромагнетиков с различной величиной константы магнитокристаллической анизотропии. Большое количество теоретических работ, посвященных анализу механизмов перемагничивания и влияния различных параметров микроструктуры на особенности распределения намагниченности и доменной структуры [4, 5] часто противоречивы и не восполняют этот пробел.

В данной работе представлены результаты экспериментального изучения доменной структуры методом Лоренцевой микроскопии чистых металлов Ni, Fe, Co в субмикроструктурном и крупнозернистом структурном состояниях.

2. Материалы и методы исследований

В качестве объектов исследования были выбраны чистые металлы Fe(99,93%), Ni(99,99%) и Co(99,93%).

Значения констант магнитокристаллической анизотропии (K_1 , K_2), намагниченности насыщения (I_s) при

комнатной температуре, критического размера однодоменности (d_c), рассчитанный для изолированных частиц ферромагнетиков по формуле

$$d_c = \frac{2\pi}{I_s} \sqrt{2A/N},$$

где A - параметр обмена, N - размагничивающий фактор, а также ширины 180-градусной доменной стенки (δ), рассчитанной для бесконечного кристалла ($\delta \approx \sqrt{A/K_1}$) этих материалов по данным [6] приведены в таблице 1. Как видно из таблицы, ширина доменной стенки оказывается больше (Ni, Fe) или сопоставима (Co) с рассчитанным размером однодоменности. Эти ферромагнетики относят к категории низкоанизотропных, поскольку $K_1 \ll 2\pi I_s^2$ [6]. В случае массивных

поликристаллических образцов однодоменность в низкоанизотропных ферромагнетиках маловероятна, хотя в малых частицах однодоменность наблюдается экспериментально [1].

Исследование доменной структуры было проведено на высоковольтном электронном микроскопе JEM-1000 при ускоряющем напряжении 1000 кВ методом Лоренцевой просвечивающей электронной микроскопии. Этот метод является единственным прямым методом исследования магнитной структуры в объеме материала с одновременным наблюдением кристаллической структуры и электронной дифракции на одних и тех же участках образцов [7].

3. Результаты экспериментов

Таблица 1

Магнитные параметры	Ni	Fe	Co
K_1 (Дж/м ³)	$-5,7 \times 10^3$	$4,72 \times 10^4$	$4,53 \times 10^5$
K_2 (Дж/м ³)	$-2,3 \times 10^3$	$-0,075 \times 10^4$	$1,44 \times 10^5$
I_s (Гс)	484	1714	1422
d_c (нм)	50	20	30
δ , (нм)	200	140	16

Доменная структура Ni. Средний размер кристаллитов (D) СМК Ni, определенный по электронно-микроскопическим снимкам составил около 150 нм. Наблюдения ДС СМК Ni позволили выявить крупные домены, охватывающие множество зерен (рис. 1а). Доменные стенки на снимке имеют вид светлых и темных линий. На клиновидных участках фольги, там, где толщина уменьшается резко, доменные стенки перпендикулярны краям и непосредственно у краев распадаются и переходят в рябь намагниченности. В целом, конфигурация ДС не коррелирует с зеренной структурой и определяется анизотропией формы, что может быть обусловлено малой толщиной наблюдаемого образца. Дополнительно-

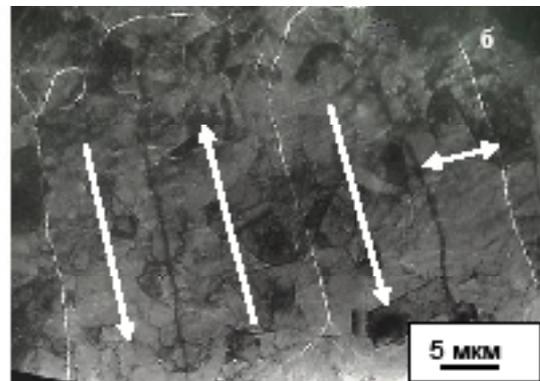
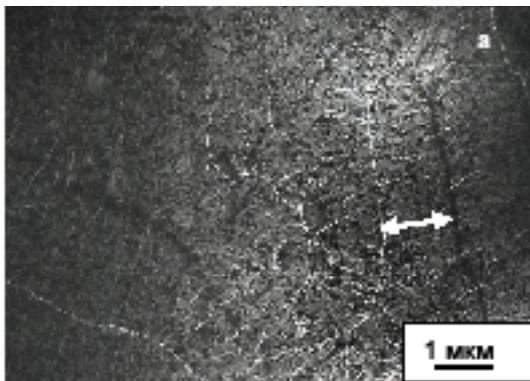


Рис. 1. Доменная структура Ni с СМК (а) и крупнозернистой (б) структурой. Жирными стрелками указаны направления намагниченности, тонкими стрелками – границы доменов.

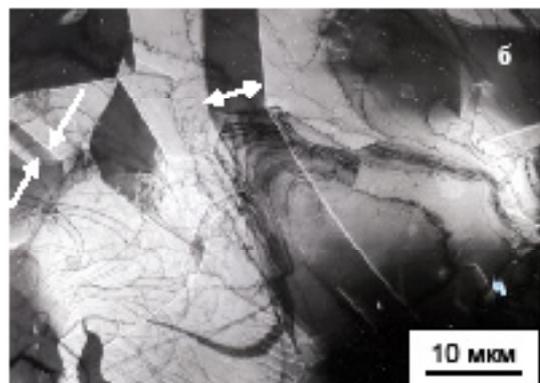
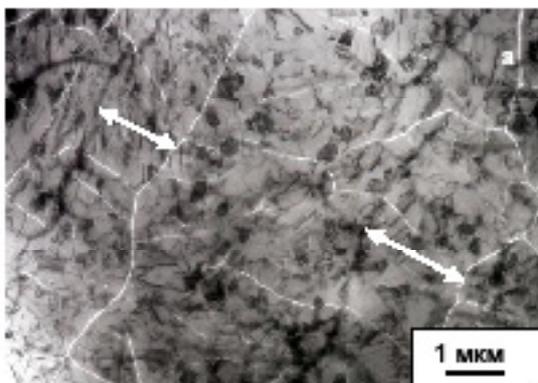


Рис. 2. Доменная структура Fe с СМК (а) и крупнозернистой (б) структурой.

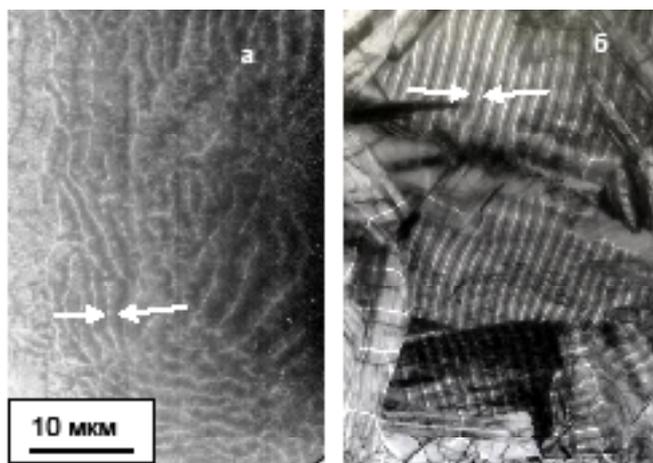


Рис. 3. Доменная структура Со с СМК (а) и крупнозернистой (б) структурой.

ный вклад в анизотропию вносит магнитострикция, поскольку в этом структурном состоянии высок уровень внутренних напряжений. Малая толщина образца (~250 нм), соизмеримая с шириной доменной стенки вызывает, кроме того, появление блочных доменных стенок с поперечными линиями (линиями Блоха). При наложении магнитного поля в направлении нормали к плоскости образца происходило смещение доменных стенок, а также перераспределение намагниченности внутри стенок - изменялось количество поперечных линий и уменьшался контраст на изображениях доменных стенок. В поле 34 кА/м образец намагничивался до насыщения, т.е. стенки исчезали полностью, причем намагничивание происходило как смещением доменных стенок, так и перераспределением ряби намагниченности. Увеличение среднего размера зерен до 10 мкм после отжига при 1073 К не приводит к существенным изменениям ДС (рис. 16). Характер ДС не изменяется даже в пределах достаточно крупных зерен. Поведение ДС в магнитном поле указывает, что в этом случае однодоменное состояние не возникает, а перемагничивание осуществляется, в основном, смещением доменных стенок.

Доменная структура Fe. ДС образца СМК (размер зерен 100 нм) Fe (рис. 2а) состоит из крупных доменов, охватывающих большое количество микрокристаллитов. Доменные стенки искривлены и, в основном, направлены произвольно - проходят как вдоль границ кристаллитов, так и пересекают их, не меняя направления. Средняя ширина доменов составляет 5 мкм. Как и в случае Ni, при малом увеличении и большой степени дефокусировки выявляется блочная структура границ доменов. При наложении вертикального магнитного поля 44 кА/м начиналось смещение доменных стенок, а в поле 110 кА/м образец намагничивался до насыщения, причем намагничивание происходило как смещением доменных стенок, так и перераспределением ряби намагниченности. Для сравнения на рис. 2б приведен снимок крупнозернистого образца Fe. ДС в этом структурном состоянии имеет более правильный вид - доменные стенки прямолинейны, а рябь намагниченности менее выражена. В отличие от СМК образца в каждом зерне формируется собственная ДС. Доменные стенки соеди-

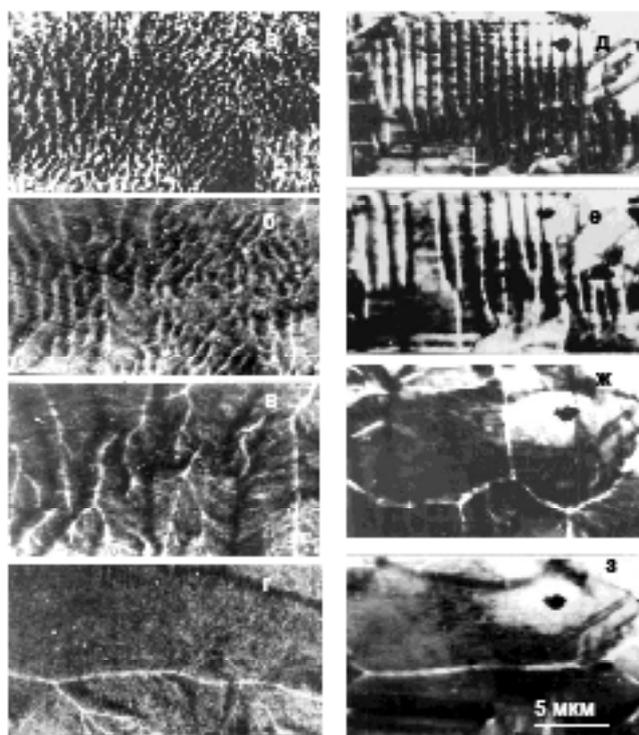


Рис. 4. Доменная структура СМК (а-г) и крупнозернистого (д-и) Со при нагреве "in situ" 293 К (а,д), 470 К (б,е), 530 К (в,ж), 570 К (г,з).

няются на границах зерен. Вместе с тем, средняя ширина доменов остается практически такой же, как в СМК образце. В поле 1,6 кА/м начиналось смещение доменных стенок, а в поле 50 кА/м образец намагничивался до насыщения.

Доменная структура Со. Наблюдения ДС кобальта с СМК структурой показали, что несмотря на то, что размер микрокристаллитов в структуре близок к пределу однодоменности, однодоменное состояние, также как и в Ni и Fe, не реализуется, а формируются полосовые домены, охватывающие множество микрокристаллитов (рис. 3а). Доменные стенки однородны по контрасту и в основном проходят по границам микрокристаллитов. Наличие преимущественных ориентировок [8] и сравнительно высокое значение обменной энергии приводят к тому, что магнитные моменты соседних микрокристаллитов выстраиваются параллельно под действием обменных сил. Вместе с тем, локальные отклонения оси легкого намагничивания от направления усредненного магнитного момента, приводят к локальному изменению ширины доменов и направления доменных стенок. В целом, характер ДС образца Со с СМК структурой близок к наблюдаемому в крупнокристаллическом образце (рис. 3б). Это, в свою очередь, позволяет считать, что механизм формирования ДС одинаков в обоих случаях и определяется фундаментальными магнитными константами.

Этот вывод подтверждается наблюдениями ДС Со при нагреве "in situ" (рис. 4). В СМК и крупнокристаллическом образцах Со изменения ДС в процессе нагрева практически совпадают - начал с 490 К ширина доменов увеличивается, при температуре 530 К в доменных стенках возникает тонкая структура - периодические изменения контраста и поперечные перевязки (линии Бло-

ха), внутри доменов появляется рябь намагниченности. С увеличением температуры неоднородности на доменных стенках становятся более заметными, и ДС теряет регулярно-полосовой характер. Вблизи температуры 570 К в узком температурном интервале доменные стенки первоначальной ДС исчезают и формируются доменные стенки, перпендикулярные исходным.

Наблюдаемые при нагреве изменения ДС объясняются температурной зависимостью констант магнитокристаллической анизотропии (K_1 и K_2) Со в интервале температур 300-570 К [9]. В этом интервале температур K_1 уменьшается, проходит через ноль и становится отрицательной, а K_2 , плавно уменьшаясь, остается положительной во всем интервале температур, что приводит к изменению анизотропии кобальта от одноосной ($K_1 > 0$, $K_2 > 0$) до плоскостной ($K_1 < 0$, $K_2 < 1/2|K_1|$) и, в свою очередь, приводит к изменению направления намагниченности в кристаллах и ориентации доменных стенок.

4. Обсуждение результатов

В целом, наблюдения ДС чистых ферромагнетиков Ni, Fe и Co с СМК структурой показали, что несмотря на то, что размер микрокристаллитов в структуре близок к пределу однодоменности (см табл. 1), однодоменное состояние ни в одном из исследованных металлов не реализуется, а формируются домены, охватывающие множество микрокристаллитов. В Ni и Fe эти домены не имеют регулярной структуры, а в Co формируется полосовая доменная структура. Это может быть связано с тем, что в тонких объектах (~100 нм) возникает резкая анизотропия формы [10], обусловленная большой энергией размагничивания $4\pi I_s^2$. Поскольку Ni и Fe относятся к низкоанизотропным ферромагнетикам ($K_1 \ll 2\pi I_s^2$), вектор намагниченности имеет тенденцию лежать в плоскости образца, так как в этом случае магнитостатическая энергия минимальна. Из-за наложения наведенной одноосной и естественной многоосной анизотропии в кристаллитах возникают локальные вариации магнитной анизотропии и направления легкого намагничивания, что приводит к неоднородности намагниченности и проявляется на изображении ДС в виде ряби намагниченности.

Кобальт, хоть и является низкоанизотропным ферромагнетиком, имеет $K_1 \sim 2\pi I_s^2$, поэтому направление вектора намагниченности определяется магнитокристаллической анизотропией и коррелирует с ориентацией кристаллографических осей.

Другая особенность ДС СМК Ni и Fe - блочные доменные стенки с "перевязками" ("cross-line") также обусловлена наведенной одноосной анизотропией в плоскости образца. Однако наряду с этим фактором важную роль здесь играет и толщина образца. Ширина блоховской доменной стенки δ в Ni и Fe превышает 100 нм. Эта величина того же порядка что и толщина фольги, поэтому возникает переходная блочная структура доменной стенки, состоящая из чередующихся чисто блоховских участков и участков в которых вектор намагниченности перпендикулярен плоскости границ. Такая сложная магнитная структура неустойчива в магнитном

поле и при наложении перпендикулярного магнитного поля в доменной стенке происходит перераспределение векторов намагниченности таким образом, что увеличивается длина участков с вектором намагниченности параллельным полю. При этом изменяется количество «перевязок» и уменьшается контраст на изображении доменной стенки, что и наблюдалось в эксперименте. В случае Со толщина блоховской стенки составляет всего 16 нм, что много меньше толщины фольги, поэтому здесь при комнатной температуре наблюдаются лишь блоховские стенки. Сложные доменные границы появляются в Со при нагреве в области температур где величина K_1 уменьшается почти до нуля, а толщина доменной стенки увеличивается в соответствии с $\delta \sim 1/\sqrt{K_1}$ становясь соизмеримой с толщиной фольги.

Вышесказанное позволяет утверждать, что появление доменных стенок со сложной структурой в Ni и Fe обусловлено, в первую очередь, малой толщиной фольги. Наблюдаемая значительная неоднородность магнитной структуры внутри доменов (рябь намагниченности) может быть обусловлена не только малой толщиной исследуемых объектов. Дополнительный вклад в наведенную анизотропию вносит магнитострикция, поскольку, как показали рентгеноструктурные исследования [3, 8], после ИПД при комнатной температуре высок уровень внутренних напряжений. Причем этот вклад играет большую роль в неотожженном образце Ni, имеющего высокое значение константы магнитострикции, и в меньшей степени проявляется в образцах Fe, Co, а также в образце Ni, после высокотемпературного отжига. Однако во всех чистых поликристаллических ферромагнетиках главную роль в перемагничивании играет смещение доменных стенок.

5. Заключение

В массивных низкоанизотропных ферромагнетиках (Ni, Fe, Co) уменьшение размера зерен до субмикронного не приводит, в целом, к изменению характера ДС и механизма перемагничивания. опыты с наложением магнитного поля "in situ" показывают, что намагничивание в основном происходит смещением доменных стенок, что согласуется с исследованиями гистерезисных свойств. Коэрцитивная сила, хотя и увеличивается в десятки раз, однако не достигает порядка величины теоретических значений, характерных для однодоменного состояния. Определяющая роль константы магнитокристаллической анизотропии в параметрах ДС продемонстрирована в опытах "in situ" нагрева образцов Со с СМК и крупнозернистой структурой.

Литература

1. E.F.Kneller, F.E.Luborsky, J. Applied Physics. **34**, 656 (1963).
2. O.A. Ivanov, A.Ye Yermakov, Ya.S. Shur The Physics of Metals and Metallography **33** (3), 558 (1972). (in Russian) [Иванов О.А., Ермаков А.Е., Шур Я.С. ФММ. **33** (3), 558 (1972)]
3. Kh.Ya.Mulyukov, G.F. Korznikova, R.Z. Abdulov,

- R.Z.Valiev J. Magn. and Magn Mat. **89**, 207 (1990)
4. H.Kronmuller, R.Fisher, M.Bachman, T.Leineweber J. Magn. Magn Mat. **203**, 12 (1999)
5. E.G. Ekomasov, R.R. Murtazin Letters on Materials. **2** (1), 9 (2012) (in Russian) [Е.Г. Екомасов Муртазин Р.Р. Письма о материалах. **2** (1), 9 (2012)].
6. G. S. Kandaurova L.G. Onoprienko The domain structure of ferromagnets. Basic questions of micromagnetism. Sverdlovsk, URGU (1986) 136 p. (in Russian) [Г.С. Кандаурова, Л.Г. Оноприенко Доменная структура ферромагнетиков Основные вопросы микромагнетизма. Свердловск: УРГУ. (1986) 136 с.]
7. A.D. Booth, M.J. Bowman Materials Characterization, **39** (2-5), 139 (1997).
8. Kh.Ya Mulyukov G.F. Korznikova R.Z.Valiev Phys.Stat.Sol. (a), **125**, 609 (1991)
- 9 A.I. Mitsek Phase transformations in crystals with magnetic structure Kiyev, Naukova Dumka (1986) [А.И. Мицек Фазовые переходы в кристаллах с магнитной структурой. - Киев: Наукова думка (1989) 318 с.]
10. S.Chikazumi, Physics of Ferromagnetism Moscow Mir, (1987) 420 p. (in Russian) [С. Тикадзуми, Физика ферромагнетизма. Магнитные характеристики и их практические применения. – М.:Мир, (1987) 420с.]