

Отзыв

официального оппонента на диссертационную работу Ершова Николая Владимировича «Закономерности формирования атомной структуры магнитомягких железокремнистых сплавов», представленную на соискание ученой степени доктора физико-математических наук по специальности 01.04.07 – Физика конденсированного состояния.

Изучение органической взаимосвязи магнитных свойств и кристаллической структуры в магнитомягких сплавах представляет актуальную задачу физики конденсированного состояния и весьма важно для прикладных целей разработки и создания элементов электромагнитных устройств с рекордными значениями коэрцитивной силы, магнитной проницаемости, гистерезисных потерь и других важных характеристик. Особый интерес в этой связи представляет исследование железокремнистых сплавов, свойства которых важны не только для широко используемых электротехнических сталей, но и для интенсивно изучаемых последнее время аморфных и нанокристаллических магнитомягких ферромагнетиков. При этом на первый план выходит изучение основных закономерностей формирования атомной структуры сплавов на основе железа и кремния, определяющей в значительной степени магнитомягкие свойства таких материалов. Проводимые ранее исследования в этом направлении были главным образом ограничены традиционными методами структурного анализа, включающего рентгеновскую дифрактометрию и ядерную гамма-резонансную спектроскопию, и магнитными измерениями, включающими магнитометрию и магнитооптическую микроскопию, которые не позволяли выявить связь магнитных свойств железокремнистых сплавов с тонкой структурой, наведённой атомами кремния при изменении их концентрации или возникающей в результате термической обработки. Существующий уровень понимания влияния термомагнитного и термомеханического отжига на наведённую магнитную анизотропию и процессы преобразования доменной структуры не позволяет адекватно описать поведение магнитомягких материалов, важную роль в формировании магнитных характеристик которых играют неоднородные кристаллические состояния, обусловленные распределением кремния в ОЦК решётке железа. Диссертационная работа Н.В. Ершова как раз и направлена на решение этой проблемы. Она посвящена выяснению закономерностей формирования атомной структуры магнитомягких железокремнистых сплавов в кристаллическом и нанокристаллическом состояниях, установлению зависимости их атомной структуры от концентрации кремния, условий отжига образцов в присутствии внешнего магнитного поля или поля механических напряжений, развитию представлений о влиянии структурных состояний на фундаментальные практически важные магнитные свойства, расширяющие возможности совершенствования магнитомягких сплавов и нанокомпозитов на основе железа. Полученные в результате выполнения диссертации данные важны с фундаментальной точки зрения для развития физики конденсированного состояния, они необходимы для построения теоретических представлений о деформации решётки в Fe-Si нанокластерах, для детального описания искажений решётки и их зависимости от кристаллографических направлений, а также для выявления влияния концентрации кремния на величину и анизотропию остаточных деформаций, их термическую стабильность. Эти сведения важны также для объяснения наблюдаемой смены типа магнитной анизотропии с продольной на поперечную при увеличении концентрации кремния в нанокристаллических системах Fe-Si-Nb-Cu-B. С практической точки зрения выявленные закономерности формирования атомной структуры позволяют оптимизировать магнитные характеристики в железокремнистых сплавах, являющихся основными магнитными материалами при изготовлении всевозможных магнитоэлектрических устройств. Поэтому считаю, что актуальность и значимость предпринятого Н.В. Ершовым исследования, не вызывает сомнений.

Краткий обзор состояния проблемы формирования магнитной анизотропии в легированном кремнием железе дан во **введении** диссертации. Отмечается, что было ранее обнаружено снижение величины коэрцитивной силы и увеличение магнитной проницаемости железокремнистых сплавов в процессе термомагнитной или термомеханической обработки. Для объяснения существенного улучшения магнитных свойств в этих материалах было предложено несколько теоретических моделей, в основе которых лежали представления о структурной диффузионной природе наведённой магнитной анизотропии, в частности, теория направленного парного упорядочения примесных атомов в твердом растворе замещения, вдоль одного из направлений легкого намагничивания. Однако, несмотря на то, что атомная структура и свойства магнитомягких Fe–Si сплавов интенсивно исследовались на протяжении многих лет, прямых структурных исследований, которые подтверждали бы эту теорию, не было. Такие исследования диссертантом были выполнены. Их результаты приведены в третьем и четвёртом разделах диссертации. Однако прежде чем проводить прямое экспериментальное изучение влияния атомной структуры на магнитные свойства Fe–Si сплавов необходимо было предварительно развить прецизионные методы регистрации локального распределения атомов кремния в железной решетке и провести теоретический анализ возможности такого распределения.

В **первом разделе** диссертации, посвящённом экспериментальному изучению атомного упорядочения в сплавах Fe–Si, диссертантом были использованы оригинальные и эффективные методики регистрации и анализа атомной структуры. Моно- и поликристаллические образцы железа и сплавов железа и кремния с содержанием кремния от 5 до 10% исследовались на рентгеновском дифрактометре, оборудованном четырехкружным гониометром. Было обнаружено, что в зависимости от концентрации кремния и температурной обработки в дифрактограммах сплавов между интенсивными брэгговскими рефлексами появлялись слабые широкие диффузные сверхструктурные пики (100), (300) и (111), отвечающие упорядоченной фазе кремния $B2$, и $(\frac{1}{2} \frac{1}{2} \frac{1}{2})$, $(1\frac{1}{2} 1\frac{1}{2} 1\frac{1}{2})$, отвечающие упорядоченной фазе кремния $D0_3$. Диссертант показал, что в сплаве после отжига при температуре выше температуры Кюри (T_C) имеются локально упорядоченные кластеры $B2$ типа, тогда как фаза $D0_3$ появляется в сплавах с концентрацией Si 8% и выше и растёт в объёме после отжига при $T < T_C$. Это позволило сформулировать условия формирования заданного структурного состояния сплава, когда при 8 % и более кремния ближний порядок $D0_3$ типа является равновесным состоянием при пониженных температурах, в то время как ближний порядок $B2$ типа формируется в области высоких температур и сохраняется в сплаве при охлаждении ниже T_C .

Во второй части раздела представлены данные экспериментального изучения образцов Fe–Si методом ядерной гамма-резонансной спектроскопии. С использованием метода разложения спектров на подспектры и данных о зависимости сверхтонких полей от количества атомов кремния в ближайших координационных сферах атома железа были определены доли отдельных конфигураций атомов кремния в нескольких ближайших к атому железа координационных сферах. Из анализа изменений относительной доли основных конфигураций атомов кремния в координационных сферах и данных о зависимости сверхтонких полей от количества атомов кремния в ближайших координационных сферах атома железа автором установлено, что доля атомов кремния, которые не участвуют в образовании локального упорядочения $B2$ типа, уменьшается по мере увеличения концентрации кремния до 8 % кремния. Оба метода, рентгеновской дифракции и ядерной гамма-резонансной спектроскопии, дают дополняющие друг друга данные о локальной атомной структуре в неупорядоченных сплавах, позволяя применять этот комбинированный подход для анализа изменений в структуре магнитомягкого железокремниевое сплава и сравнения структуры нанокристаллов с магнитными характеристиками сплава. Полученные в этом разделе результаты представляют собой

серьезный вклад в понимание формирования упорядоченного состояния атомов в сплавах и важны для объяснения магнитных свойств в кремнистом железе.

Во втором разделе представлены данные теоретического моделирования из первых принципов атомной структуры магнитомягких железокремнистых сплавов, ближнего порядка и локальных деформаций ОЦК решётки. Приведены оценки влияния температуры и концентрации атомов кремния на распределение этих атомов в решётке. Из анализа данных, полученных при моделировании локальных деформаций решётки железа вокруг атома кремния и диффузного рассеяния рентгеновских лучей, обусловленного этими деформациями, диссертант делает вывод о том, что растворение кремния в железе является энергетически выгодным, заполняя одну из подрешёток, *B2* или *D0₃*. Причём при температурах, превышающих температуру Кюри, образование сверхструктуры *B2* более предпочтительно по сравнению со сверхструктурой *D0₃*. Особо следует выделить результаты, касающиеся влияния магнитного состояния сплава на его локальную структуру и наоборот. Исходя из расчёта энергии эффективного парного взаимодействия атомов кремния, было показано, что отсутствует тенденция к образованию пар атомов кремния в результате их прямого взаимодействия в ферромагнитном состоянии железа, как это предполагалось в ранней теории направленного упорядочения. Отмечается, что возникающая при отжиге анизотропия атомной структуры в виде направленного упорядочения пар атомов Si-Si может являться следствием изменения общей морфологии областей ближнего порядка. Моделирование распределения атомов в сплаве при разных температурах и для концентраций кремния от 4 до 10 %, показало, что ближний порядок в расположении атомов кремния в ферромагнитном и парамагнитном состояниях будет различаться. В ферромагнитном состоянии пары атомов кремния находятся в позициях характерных для сверхструктуры *D0₃*, а в парамагнитном состоянии в положениях, соответствующих сверхструктуре *B2*. Диссертант подчёркивает, что метастабильные состояния кластеров *B2* типа в ферромагнитной фазе, образуются в парамагнитном состоянии и наследуются при последующем охлаждении сплава ниже T_C . Изменение ближнего порядка с *B2* на *D0₃*, которое требует перестройки Si-Si пар, связано с преодолением потенциального барьера. Этот процесс термоактивируемый и проходит, как указывает автор, при отжиге с участием вакансий. Приведённые в этом разделе результаты указывают на важную роль направленного упорядочения *B2* кластеров в ферромагнитном состоянии железной матрицы. Полученные здесь результаты очень интересны и носят принципиальный характер.

В третьем разделе представлено изучение влияния термомагнитной и термомеханической обработок на локальную атомную структуру железокремнистых сплавов. Используя развитые автором и описанные в первом разделе методики исследовались кристаллические образцы с осевой магнитной анизотропией, специально наведённой в процессе отжига вдоль одной из осей лёгкого намагничивания. В начале раздела дана исчерпывающая информация об образцах и их магнитных параметрах. Диссертант с помощью ориентационно-чувствительного структурного метода провёл широкое комплексное исследование атомной структуры монокристаллов магнитомягкого железокремнистого сплава, сравнивая дифрактограммы, измеренные как вдоль, так и поперёк оси наведённой магнитной анизотропии. В отличие от магнитно-изотропных образцов, полуширина диффузных пиков, измеренных при сканировании вдоль этой оси оказалась меньше, чем поперёк нее, что однозначно указывало на преимущественную ориентацию в процессе термомагнитной или термомеханической обработки пар кремния в *B2* кластерах. В результате Н.В. Ершову в монокристаллах Fe-Si сплавов с ~6 % кремния, предварительно подвергнутых термомагнитной обработке при температуре, не превышающей T_C , в постоянном магнитном поле для наведения анизотропии магнитных свойств вдоль оси [001] удалось обнаружить анизотропию пространственного распределения областей с локальным упорядочением *B2* типа вдоль этой наведенной оси. Что подтверждается результатами ядерной гамма-резонансной спектроскопии. Так, если

после закалки в образцах пары Si–Si (B2 кластеры) распределялись равновероятно по всем легким осям, то после термомагнитной обработки выделяется направление преимущественной ориентации пар Si–Si вдоль оси наведенной магнитной анизотропии. Диссертантом убедительно показано, что в закаленных железокремнистых сплавах с увеличением содержания кремния до 8-10%, области кластеров с локальным порядком B2 типа при отжиге при температуре ниже температуры Кюри убывает, а области $D0_3$ фазы быстро растут в объеме и размерах, как это и предсказывалось при моделировании во втором разделе диссертации. Особо стоит отметить стабилизацию полосовой доменной структуры в пластинках кристалла с 6 % кремния, имеющих госсовскую текстуру, после отжига при температуре ниже T_C и последующего охлаждения. Возвращение доменов после намагничивания этих образцов в исходное состояние определенно свидетельствует о сформировавшемся и затем замороженном локальном анизотропном распределении B2 кластеров вдоль эффективного внутреннего магнитного поля ферромагнетика. В данном разделе приведены результаты, указывающие на важную роль типа упорядочения локальной кристаллической структуры в кластерах магнитомягких сплавов на формирование наведенной анизотропии и поведение доменной структуры в них.

В четвертом разделе детально исследованы атомная структура и ее корреляция с магнитными свойствами нанокристаллических сплавов системы $Fe_{87-x}Si_xNb_3B_9Cu_1$ с изменяющейся концентрацией кремния X . Особенностью данного материала является равномерное распределение в аморфной матрице железокремнистых ОЦК зёрен, что позволило диссертанту с успехом применить методы регистрации и анализа локальной атомной структуры в Fe–Si зёрнах, развитые для массивных железокремнистых сплавов. Из комплексного анализа экспериментальных данных, полученных при регистрации дифрактограмм и ядерных гамма-резонансных спектров в ленточных образцах изучаемых сплавов было убедительно показано, что при содержании кремния более 10% в нанокристаллах наблюдается упорядоченная фаза со структурой $D0_3$, объёмная доля которой достигает 80% при 13.5% кремния. В этом случае после отжига при температуре, не превышающей T_C , под нагрузкой, создающей растягивающее напряжение, в нанокристаллах сплава выявлено увеличение межплоскостных расстояний вдоль направления приложения напряжения и их уменьшение в поперечном направлении. А также установлено, что деформации вдоль направлений $\langle 111 \rangle$ не наблюдаются, а в направлениях $\langle 100 \rangle$ они максимальные вне зависимости от концентрации кремния в сплаве. При этом тип наведённой магнитной анизотропии, которая формируется после охлаждения и снятия нагрузки, от концентрации кремния в сплаве зависит. Как было установлено диссертантом, при $X < 9$ магнитная анизотропия наводится вдоль ленты (вдоль $\langle 100 \rangle$), благодаря положительной магнитострикции λ_{100} неупорядоченной фазы Fe–Si сплава, доля которой в объёме преобладает, тогда как $X > 9$ магнитная анизотропия наводится поперёк ленты (поперёк $\langle 100 \rangle$), благодаря отрицательной величине λ_{100} упорядоченной фазы $D0_3$ сплава, доля которой при таких концентрациях Si преобладает. В то же время отмечается, что после термомагнитной обработки при низких значениях X деформации решётки нанокристаллов не обнаружено, хотя магнитная анизотропия в ленточных образцах наводится, что говорит в пользу формирования в сплаве атомных структур B2. Также установлено, что значения полей насыщения и коэрцитивного в значительной степени зависят от времени отжига, что важно для практического использования таких материалов. Полученные в этом разделе результаты представляют собой серьезный вклад в понимание физических основ упорядоченного состояния атомов в сплавах Fe–Si–B–Nb–Cu и важны для объяснения их магнитных свойств.

По диссертационной работе следует сделать ряд замечаний.

1. При обосновании стабилизации полосовых доменных границ после отжига при температуре, не превышающей температуру Кюри, говорится об определяющей роли внутренних замыкающих доменов, которые на магнитооптическом изображении доменной структуры на рисунке 3.11 не видны. Однако замыкающие домены возникают

на «торцах» полосовой доменной структуры, уменьшая энергию, возникающих на этих торцах полей рассеяния. В полосовой доменной структуре с параллельной 180-градусной ориентацией намагниченности в соседних доменах магнитостатических полей рассеяния не возникает, а, следовательно, и замыкающих доменов там быть не может. Таким образом, стабилизирующая роль локальной наведённой анизотропии скорее всего связана с другими элементами доменной структуры, например, доменными границами, но не замыкающими доменами.

2. В тексте утверждается, что «Приводимые здесь результаты МНК разложения были получены с использованием линейной зависимости фона рассеяния от угла 2θ », однако на рисунках 1.6, 1.7 и 1.25 фон изображён нелинейной функцией.

3. Остаточный эффект индуцированной магнитной анизотропии R в таблице 4.2 не соответствует значениям, вычисленным по формуле 4.1, как это представлено в тексте.

4. Трудно согласиться с утверждением, что на рисунке 1.4 отмечается «...один широкий диффузный максимум (111) при $x = 0.06$ ». Пика не видно.

5. При оформлении рисунков допущены неоднозначности в оформлении. Так на рисунке 4.33 не показано какой график к какой оси ординат относится, а на рисунке 3.11 не приведены ни масштаб изображения, ни направление намагниченности, ни ориентация осей кристалла.

6. В оформлении формул присутствуют неточности: так несколько формул приведены без сквозной нумерации, на стр.256 формула обозначена под номером 7.2, тогда как до нее была формула 4.2, а после нее – 4.3; не объясняется как получены формулы на стр. 162 и 255; нет описания переменных в формулах на стр. 115 и отчасти на стр.239.

7. В тексте имеются такие жаргонные и неточные выражения как «острая анизотропия», «доменная текстура», «продольная и поперечная магнитные анизотропии», «ширина на полувысоте максимума пика», применение термина «текстура» к монокристаллам и ряд других.

8. Также имеются ряд мелких опечаток. Например, ссылка на рисунок 1.12 на стр.62 не соответствует описываемому его тексту, или « $2\theta = 17.8$ » на стр. 59.

Сделанные замечания ни в коей мере не снижают общей высокой оценки диссертационной работы в целом. Работа Н.В. Ершова представляет собой цельный законченный научный труд. Результаты проведенных Н.В. Ершовым исследований существенно расширяют наши представления о закономерностях формирования атомной структуры в магнитомягких твёрдых растворах с наведённой магнитной анизотропией в зависимости от концентрации легирующей примеси и условий термообработки. Им решена серьезная научная проблема, связанная с установлением типа атомного упорядочения атомов примеси в нанокристаллических областях сплавов, существенно влияющего на магнитные характеристики в них. Комплексный подход к проблеме, совокупность высокоэффективных методов получения и анализа информации о структурных и магнитных свойствах изучаемых систем, а также глубина и высокий научный уровень обсуждения полученных результатов свидетельствуют о надежности экспериментальных результатов и о достоверности и обоснованности сделанных в работе важных выводов. Результаты исследований неоднократно докладывались на отечественных и международных конференциях, опубликованы в журналах и хорошо известны специалистам. Они, несомненно, будут полезны для выяснения природы важных характеристик магнитных сплавов, для разработки электромагнитных устройств на их основе и для других применений в экспериментальных исследованиях и приложениях физики конденсированного состояния в академических, вузовских и прикладных организациях. Автореферат и публикации диссертанта правильно и достаточно полно отражают содержание диссертации. У меня нет никаких сомнений в том, что работа Н.В. Ершова «Закономерности формирования атомной структуры магнитомягких железокремнистых сплавов» удовлетворяет критериям Положения о порядке присуждения учёных степеней, предъявляемым к диссертациям на соискание учёной

степени доктора физико-математических наук по специальности 01.04.07 – физика конденсированного состояния, а её автор Николай Владимирович Ершов заслуживает присуждения ему учёной степени доктора физико-математических наук.

Официальный оппонент

Доктор физико-математических наук,
главный научный сотрудник Института
физики твердого тела РАН

В.С. Горнаков
27 января 2020

Адрес служебный: 142432, ИФТТ РАН,
Московская обл., г.Черноголовка,
ул. Академика Осипьяна д.2

Тел.: +7(496) 5228272

E-mail: gornakov@issp.ac.ru

Подпись главного научного сотрудника
В.С. Горнакова заверяю,
Учёный секретарь ИФТТ РАН,
кандидат физико-математических наук

А.Н. Терещенко

С отзавком одноклассен

/Н.В.Ершов/

30 января 2020 года

Сведения об официальном оппоненте

ФИО: Горнаков Владимир Степанович

Учёная степень, звание: доктор физико-математических наук, специальность 01.04.07 - физика конденсированного состояния.

Полное наименование организации: Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Институт физики твёрдого тела Российской академии наук

Должность: главный научный сотрудник

Почтовый адрес: 142432, Московская обл., г.Черноголовка, ул. Академика Осипьяна, д.2

Тел.: +7(496) 5228272

E-mail: gornakov@issp.ac.ru

Публикации в сфере исследований, которым посвящена диссертация

1. Температурная зависимость обменной анизотропии ферромагнитной пленки GdFeCo, связанной с антиферромагнетиком IrMn, О. В. Коплак, В. С. Горнаков, Ю. П. Кабанов, Е. И. Куницына, И. В. Шашков, Письма в ЖЭТФ, 109, 753 – 760 (2019).
2. Доменная структура и микромеханизмы перемангничивания в квазидвумерных обменно-смещенных наномангнетиках, В.С. Горнаков, И.В. Шашков, М.А. Лебедин, Т.А. Лебедин, Физика твердого тела, 60, 2181-2189 (2018).
3. Breakdown of antiferromagnet order in polycrystalline NiFe/NiO bilayers probed with acoustic emission, М. А. Lebyodkin, Т. А. Lebedkina, I. V. Shashkov, V. S. Gornakov, Applied Physics Letters 111, 032407 (2017).
4. Role of internal stresses in the formation of magnetic structure and magnetic properties of iron-based glass coated microwires, N. N. Orlova, V. S. Gornakov, and A. S. Aronin, Journal of Applied Physics 121, 205108 (2017).
5. Experimental investigation of the effect of thresholding on temporal statistics of avalanches, М.А. Lebyodkin, I.V. Shashkov, Т.А. Lebedkina, V.S. Gornakov, PHYSICAL REVIEW E, 95, 032910 (2017).
6. Shape critical properties of patterned Permalloy thin films, R.D. Shull, Yu.P. Kabanov, V.S. Gornakov, P.J.Chen, and V. I. Nikitenko, Journal of Magnetism and Magnetic Materials, , 400, 191-199 (2016).

Учёный секретарь ИФТТ РАН,
кандидат физико-математических н

А.Н. Терещенко