



## Yüzüncü Yıl Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Dergisi

<https://dergipark.org.tr/tr/pub/yyufbed>



Araştırma Makalesi

### Mekanik Alaşımlama ile Sentezlenen Eş-molar Fe-Si-Cu/Nb (at.%) Nanokristallerinin Yapısal, Morfolojik ve Manyetik Özelliklerinin Araştırılması

Seval Hale GÜLER<sup>\*1</sup>, Tuncay ŞİMŞEK<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Munzur Üniversitesi, Nadir Toprak Elementleri Uygulama ve Araştırma Merkezi, 62000, Tunceli, Türkiye

<sup>2</sup> Kırıkkale Üniversitesi, Araçlar ve Ulaştırma Teknolojileri Bölümü, 71451, Kırıkkale, Türkiye

Seval Hale GÜLER, ORCID No: [0000-0001-5888-9437](https://orcid.org/0000-0001-5888-9437), Tuncay ŞİMŞEK, ORCID No: [0000-0002-4683-0152](https://orcid.org/0000-0002-4683-0152)

\*Sorumlu yazar e-posta: [sevalhaleguler@munzur.edu.tr](mailto:sevalhaleguler@munzur.edu.tr)

#### Makale Bilgileri

Geliş: 22.01.2023  
Kabul: 09.05.2023  
Online Aralık 2023

DOI: [10.53433/yyufbed.1240484](https://doi.org/10.53433/yyufbed.1240484)

#### Anahtar Kelimeler

Fe-Si alaşımları,  
Manyetik malzemeler,  
Mekanik alaşımlama,  
Nano malzemeler,  
SEM,  
XRD

**Öz:** Bu çalışmada mekanik alaşımlama yöntemi ile Argon atmosferi altında eş molar nanokristal Fe-Si-Cu (at.%) ve Fe-Si-Nb (at.%) alaşımları sentezlenmiştir. Deneysel parametreleri 350 rpm, 10:1 BPR, 120 saat olarak belirlenmiştir. Sentezlenen alaşımların faz yapıları X-Işınlı difraktometresi ile, morfoloji ve elementel analizleri SEM-EDS ile, manyetik özellikleri ise oda sıcaklığında titreşimli örnek manyetometresi (VSM) tekniği ile araştırılmıştır. Fe-Si-Cu alaşımlarının kristalit boyutu öğütme başlangıcı, 30, 60 ve 120 saat öğütme sonrası sırasıyla 102.3, 22.5, 15.9 ve 8.6 nm, örgü gerinimleri ise %0.164, % 0.510, %0.672 ve %1.165 olarak bulunurken, Fe-Si-Nb alaşımı için ise kristalit boyutları 140.8, 42.9, 16.8 ve 7.8 nm, örgü gerinimleri ise % 0.134, % 0.301, % 0.639 ve % 1.271 olarak hesaplanmıştır. Manyetizma sonuçlarına göre, Fe-Si-Cu (at.%) alaşımlarının doyum manyetizasyonu (Ms) 3146 emu/g olarak bulunurken, Fe-Si-Nb (at.%) alaşımlarının doyum manyetizasyonu 8.91 emu/g olarak bulunmuştur. Fe-Si alaşım sistemine Nb katkısının kuarzivite değerlerinde artışa sebep olduğu belirlenmiştir.

### Investigation of Structural, Morphological and Magnetic Properties of Equi-molar Fe-Si-Cu/Nb (at.%) Nanocrystals Synthesized by Mechanical Alloying

#### Article Info

Received: 22.01.2023  
Accepted: 09.05.2023  
Online December 2023

DOI: [10.53433/yyufbed.1240484](https://doi.org/10.53433/yyufbed.1240484)

#### Keywords

Fe-Si alloys,  
Magnetic materials,  
Mechanical alloying,  
Nanomaterials,  
SEM,  
XRD

**Abstract:** In this study, equimolar nanocrystalline Fe-Si-Cu (at.%) and Fe-Si-Nb (at.%) alloys were synthesized under an Argon atmosphere by a mechanical alloying method. Experimental parameters were determined as 350 rpm, 10:1 BPR, 120 hours. Phase structures of the synthesized alloys were investigated by X-Ray diffractometry, morphology and elemental analyzes were investigated by SEM-EDS, and magnetic properties were investigated by vibrating sample magnetometer (VSM) technique at room temperature. The crystallite size of the Fe-Si-Cu alloy was found to be 102.3, 22.5, 15.9 and 8.6 nm at the beginning of grinding, after 30, 60 and 120 hours grinding, respectively, and the lattice strains were 0.164%, 0.510%, 0.672% and 1.165%, while the Fe-Si-Cu alloy For the Nb alloy, the crystallite sizes were calculated as 140.8, 42.9, 16.8 and 7.8 nm, and the lattice strains were calculated as 0.134%, 0.301%, 0.639% and 1.271%. According to the magnetism results, the saturation magnetization (Ms) of the Fe-Si-Cu (at.%) alloy was found to be 3146 emu/g, while the saturation magnetization of the Fe-Si-Nb (at.%) alloy was found to be 8.91 emu/g. It was determined that Nb addition to the Fe-Si alloy system caused an increase in the coercivity values.

## 1. Giriş

Günümüzde enerji kullanımı, sektörlerde hayati ve ekonomik bir rol oynamaktadır (Ouyang ve ark., 2019). Son zamanlarda, enerji tasarrufu konusundaki çalışmalar, teknolojiye gelişmeler ile paralel olarak gelişme göstermektedir (Ohta & Yoshizawa, 2011). Yaşam kalitesinden ödün vermeden sera gazı (GHG) emisyonunu azaltmaya yönelik olası yaklaşımlardan biri, son derece düşük çekirdek kayıplarına sahip gelişmiş bir manyetik çekirdek malzemesi geliştirmektir. Bu tür gelişmiş bir yumuşak manyetik malzeme, araç uygulamaları için dağıtım trafolarının ve elektrik motorlarının verimliliğini artıracak ve kamu hizmeti ve ulaşım sektöründen kaynaklanan küresel sera gazı emisyonunun bastırılmasına yol açacaktır (Suzuki & Herzer, 2012). Yumuşak manyetik malzemeler, enerji dönüştürücü cihazlarda enerji verimliliğini artırmak için önemli bir rol oynamaktadır (Azuma ve ark., 2020). Manyetik özellikler, dağıtım/güç transformatörleri, manyetik yükselteçler, filtreler ve sensörler vb. uygulamalar için kimyasal bileşimlerin değiştirilmesi sağlanmaktadır (Şimşek ve ark., 2022). Son yayınlar, elektrik trafo çekirdekleri ve elektrik motoru uygulamalarındaki önemleri nedeniyle Fe-Co ve Fe-Ni ve Fe-Si dahil olmak üzere çeşitli ferromanyetik alaşımlar üzerine yoğunlaşmıştır (Chaudhary ve ark., 2020; Zaporotskova ve ark., 2020; Zhao ve ark., 2022).

Demir bazlı alaşımlar olarak kullanılan iki ana malzeme vardır: Bunlar Si çeliği ve Ferrittir. En yaygın olarak kullanılan yumuşak manyetik malzemeler olan Si çelikleri, yaklaşık 1.8-2T gibi yüksek bir Bs'ye sahiptir, ancak çekirdek kayıpları büyüktür (Kwon ve ark., 2020). Yumuşak manyetik Fe-Si alaşımları, güç kayıplarını azaltmak için arzu edilen yüksek manyetik geçirgenlik ve elektriksel direnç sergilemelidir (Haines ve ark., 2022). Fe bazlı amorf alaşımların yumuşak manyetik özellikleri, rastgele manyetik anizotropi nedeniyle Si'li çelikler ve Ferritlerden üstündür. Nano yapıları ferromagnetlerde mükemmel yumuşak manyetik özellikler, öncelikle amorf bir demir matris içinde dağılmış nanokristalin  $\alpha$ -Fe(Si) taneciklerinin oluşumuna atfedilir (Yoshizawa ve ark., 1988). Fe-Si alaşımlarında, silikon içeriği arttıkça manyetik özellikler gelişir, ancak süneklik azalır ve bu da işlemeyi zorlaştırır (Dövme ve toz metalürjisi yöntemleri için). İşleme zorluklarına ek olarak, yıllar içinde elektromanyetik cihazların boyutu küçülmüştür ve artık daha karmaşık şekillerin gerekliliği ortaya çıkmıştır (Páez-Pavón ve ark., 2016). Mikro yapıya bakıldığında ise, %10'a kadar Si içeriğinde, rastgele ikame demir atomları Si atomları ile birlikte HMK demirde çözünmektedir. Silisyum içeriğinde %31 Si'ye kadar bir artış, sıralı DO<sub>3</sub> yapısına doğru bir faz geçişine yol açar (Turtelli ve ark., 2005).

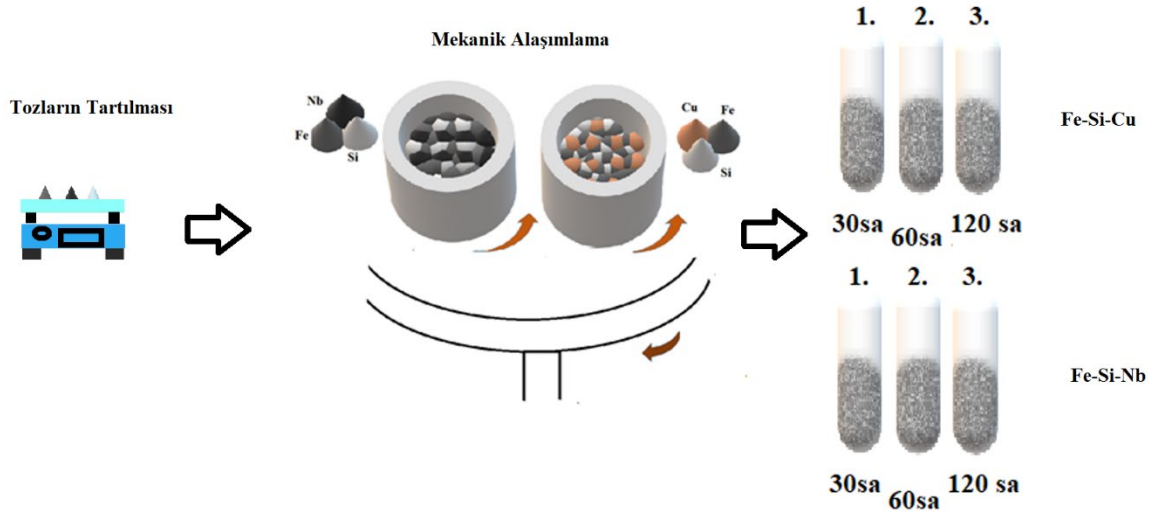
Yüksek doyumluk, manyetik akı yoğunluğuna (Bs) ve iyi üretilebilirliğe sahip Fe bazlı yumuşak manyetik alaşımlar geliştirmek için, Nb ilavesinin, yumuşak manyetik özellikleri artırmanın yanı sıra optimum tavlama sıcaklık aralığını genişletmede ve  $\alpha$ - Fe tanesini inceltmede etkili olduğu bulunmuştur (Wan ve ark., 2016). Bunun nedeni zayıf bir şekilde Fe içeren niyobyumca zengin bölgeler manyetik ortamlar tespit edilmesi ve tane sınırına yerleşen Nb'nin büyümeyi sınırlamasıdır (Yoshizawa ve ark., 1988; Gao & Fultz, 1994; Marin ve ark., 1998). Histerezis döngüleri ve nükleer manyetik rezonans (NMR) ölçümleri, Fe-Si sistemine Nb atomlarının eklenmesiyle zorlayıcılığın güçlü bir şekilde arttığını göstermiştir. Bu geliştirmenin nedeninin tane büyümesini engelleyen Nb atomlarının varlığı nedeniyle malzemede yüksek stres oluşumu ve ek olarak bu atomların domain duvarı sabitlemesine neden olması olarak sıralanmıştır (Penton-Madrigal ve ark., 2005; Turtelli ve ark., 2005). Bir Fe-Si-Cu bileşimi, manyetik özellikleri büyük ölçüde azaltmadan gelişmiş mekanik mukavemet ve elektriksel direnç sağlar (Sunday & Taheri, 2017). Daha yüksek Cu içeriği, yüksek Si içerikli alaşımlarda daha mükemmel yumuşak manyetizma özelliklerine yol açar ve optimum tavlama sıcaklığı aralığı genişletir (Ohta & Yoshizawa, 2008). Cu atomlarının yapı içerisinde, kristalleşme sürecinin çok erken bir aşamasından itibaren YMK bir yapıya sahip Cu'ca zengin bölgeler (kümeler) oluşturduğu ve Cu kümelenmesinin birincil kristalleşmeden önce meydana geldiği ve Cu kümelerinin Fe fazı için heterojen çekirdeklenme bölgeleri olarak hizmet ettiği tespit edilmiştir (Yoshizawa ve ark., 1988; Marin ve ark., 1998; Tsepelev ve ark., 2018; Li ve ark., 2021).

Bu çalışmada, Fe-Si-Nb ve Fe-Si-Cu alaşımları mekanik alaşımlama yöntemi kullanılarak üretilmiş ve mekanik alaşımlamanın yapısal, morfolojik ve manyetik özelliklere etkisi incelenmiştir

## 2. Materyal ve Yöntem

Bu çalışmada elementel Fe (Merck, % 99.9, 150  $\mu\text{m}$ ), Si (Merck, % 99.9, 20  $\mu\text{m}$ ), Cu (Merck, % 99.9, 37  $\mu\text{m}$ ) ve Nb (Merck, % 99.9, 30  $\mu\text{m}$ ) tozları kullanılmıştır. Sentez deneyleri gezegensel tip öğütücüde (Retch PM-100) Argon atmosferi içerisinde gerçekleştirilmiştir. Şekil 1’de deney akış şeması verilmiştir. Deneyler 350 rpm dönme hızında, 10:1 bilye toz oranında (BPR), 250 ml hacimli sertleştirilmiş çelik pota ve bilyelerle gerçekleştirilmiştir. 1. Deney setinde eş molar Fe-Si-Cu, 2. deney setinde ise eş molar Fe-Si-Nb tozları hassas terazide tartılarak potaya konmuştur. Her bir deney için 12 gr toz tartılmıştır. Öğütücü 30, 60 ve 120 saat süre ile çalıştırılmıştır. Belirlenen sürelerde cihaz durdurularak potadan analizler için 100 mg numune alınmıştır. Öğütmenin daha etkin olması, üretilen tozların homojen eldesi ve potanın daha fazla ısınmasının engellenmesi için cihaz her 30 dakika öğütme sonrasında 15 dakika süre ile durdurulmuş ve ardından tersi yönde 30 dakika çalıştırılmıştır.

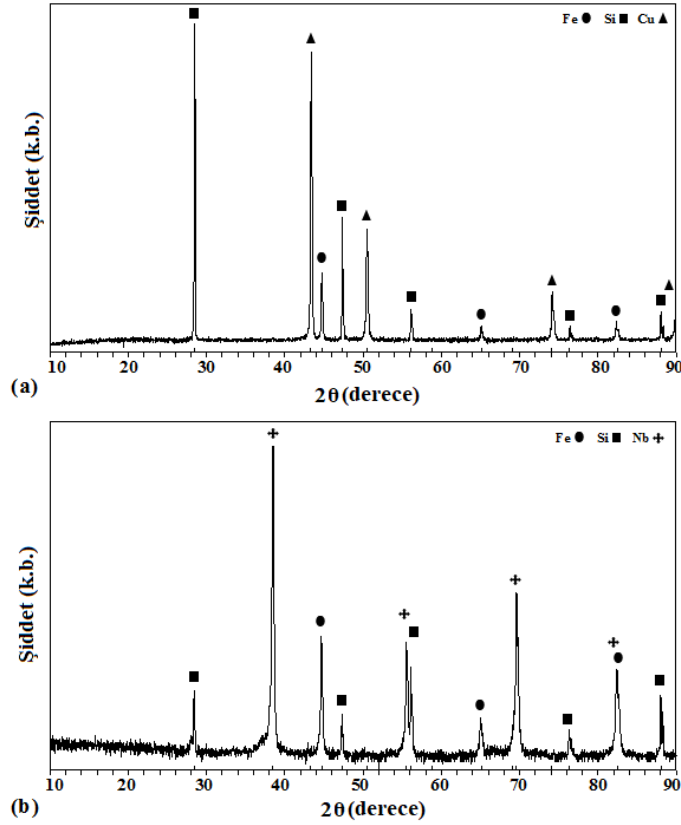
Sentezlenen tozların yapısal analizleri XRD (Panalytical Empyran) analizleri ile belirlenmiştir.  $\text{CuK}\alpha$  ışınması yapan cihazda  $2\theta$  aralığı  $20^\circ$ ’den  $90^\circ$ ’ye kadar  $0.046^\circ$  adım aralığında ölçümler yapılmıştır. Tozların kristalit boyutları ve örgü gerinimleri X’Pert High Score yazılımı ile hesaplanmıştır. Sentezlenen numunelerin mikroyapıları ve elementel analiz tayinleri ise tarayıcı elektron mikroskopu (SEM-EDX, FEI-Quanta) yapılmıştır. Manyetik malzemeleri karakterize etmek için en yaygın kullanılan manyetometrik teknik, titreşimli numune manyetometrisidir (VSM). Alternatif manyetik alan, VSM’nin başlatma bobinlerinde bir elektromotor kuvvet indükler. Referans ve bobinlerde indüklenen gerilimler karşılaştırıldığında aradaki fark örneğin manyetik momenti ile orantılı bir değer verir. Sonuçta bir histerezis eğrisi elde edilir (Lopez-Dominguez ve ark., 2018). Bu eğriden numunenin manyetik özellikleri çıkarılabilir. Örneklerin manyetik ölçümleri ise titreşimli örnek manyetometresi ile (Quantum Design Physical Properties Measurement System; PPMS) oda sıcaklığında gerçekleştirilmiştir.



Şekil 1. Deney akış şeması.

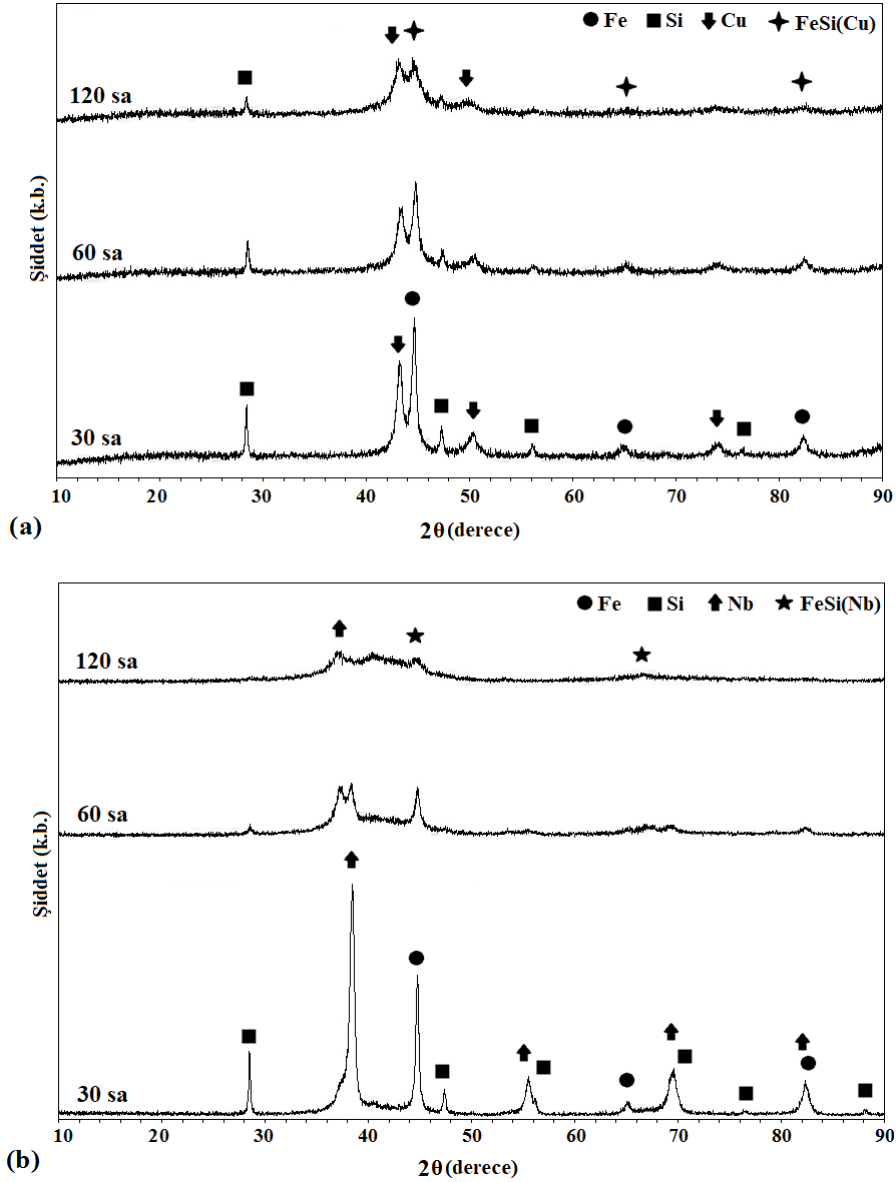
## 3. Bulgular ve Tartışma

Şekil 2’de Fe-Si-Cu ve Fe-Si-Nb alaşımlarının öğütme öncesi XRD deseni verilmektedir. Şekil 2a incelendiğinde Fe (ICDD Kart No: 87-0722, kübik,  $\text{Im-3m}$ ) fazı, Si (ICDD Kart No: 75-0589, kübik,  $\text{Fd-3m}$ ) fazı ve Cu (ICDD Kart No: 99-0034, kübik,  $\text{Fm-3m}$ ) fazına ait pikler görülmüştür. Şekil 2 b’deki XRD deseninde ise Fe ve Si fazlarının yanı sıra Nb (ICDD Kart No: 35-0789, kübik,  $\text{Im-3m}$ ) fazına ait pikler tespit edilmiştir. Yapılan XRD analizlerinden, başlangıç tozlarının içerisinde herhangi bir safsızlığa ait pik tespit edilmemiştir.



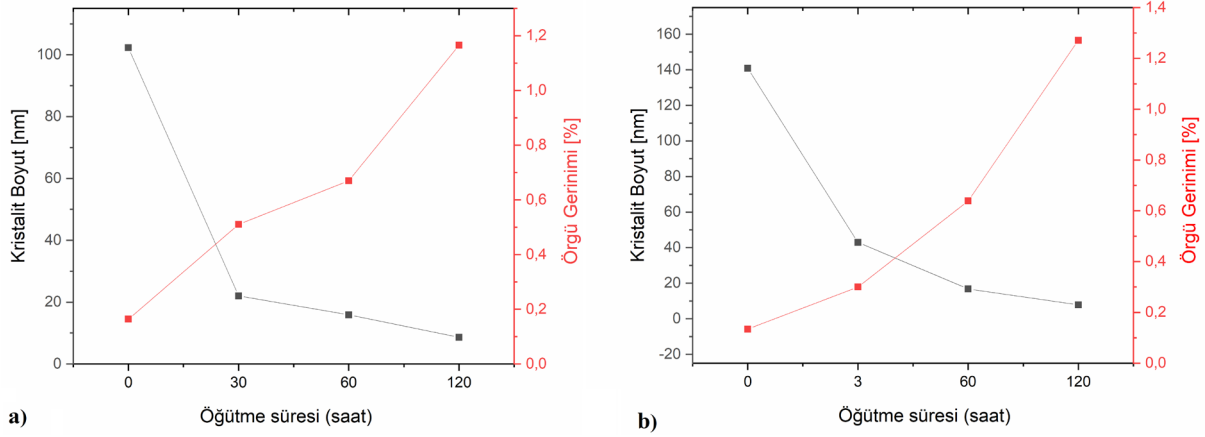
Şekil 2. a) Fe-Si-Cu (at.%) alaşımlarının sentezi için kullanılan başlangıç tozlarının XRD deseni b) Fe-Si-Nb (at.%) alaşımlarının sentezi için kullanılan başlangıç tozlarının XRD deseni.

Fe-Si-Cu (at.%) ve Fe-Si-Nb (at.%) alaşımlarının 30, 60 ve 120 saat öğütme süreleri sonrası XRD analizleri Şekil 3'de verilmektedir. Şekil 3a'daki Fe-Si-Cu alaşımlarının 30 saatlik öğütme sonrası XRD deseni incelendiğinde, Si elementinin ve Cu elementinin piklerinin şiddetlerinin önemli ölçüde azaldığı, Fe'ye ait pik şiddetinin ise arttığı ve Fe(SiCu) katı çözeltilisi fazının oluşmaya başladığı tespit edilmiştir. 60 saatlik öğütme süresi sonucunda başlangıç elementlerinin piklerinin azalmaya devam ettiği ve Fe(SiCu) katı çözeltilisinin piklerinin altında kalan alanın azalmaya devam ettiği görülmektedir. Öğütme sonunda ise Fe(SiCu) katı çözeltili fazına ait piklerin altında kalan alanların genişlemesiyle birlikte kristalit boyutunun azaldığı, alaşımların amorflaşmaya başladığı ve bununla birlikte ortamda bir miktar Si ve Cu elementlerinin kaldığı belirlenmiştir. Mekanik alaşımlama yönteminde uzun öğütme süreleri sonucunda alaşım tozlarının, bilye ve öğütme kabı arasındaki şiddetli çarpışmalar ve plastik deformasyonlar sonrasında amorflaşmaya başladığı görülmektedir. Fe(SiCu) fazının oluşmasıyla birlikte bu faza ait  $44.71^\circ$ 'deki pikin daha küçük  $2\theta$  açılara doğru kayması, Si ve Cu'nun Fe latisi içerisinde öğütme süresine bağlı olarak, katı bir çözeltili oluşturmaya devam ettiğini göstermektedir. Öğütme süresinin artması mekanik alaşımlama yönteminde pikin genişlemesine ve kaymasına neden olur (Hajalilou ve ark., 2018). Şekil 3b'deki grafik incelendiğinde ise, benzer şekilde öğütmenin ilk aşamalarından itibaren Fe, Si ve Nb elementlerinin pik şiddetlerinin azaldığı ve Fe latisi içerisinde çözünenin başladığı görülmektedir. Öğütmenin sonunda ise Fe(SiNb) katı çözeltili fazının pik genişliğinin arttığı ve bu faza ait en şiddetli pikin ise  $44.65$  dereceden  $44.75$  değerine, daha büyük  $2\theta$  açılara kaydığı görülmektedir. Bu değişim, nispeten daha büyük atom yarıçapına ait Nb atomlarının Fe kafesi içerisinde çözünmesinden kaynaklandığı düşünülmektedir.



Şekil 3. a) Fe-Si-Cu (at.%) alaşımlarının 30, 60 ve 120 saat öğütme sonrası XRD deseni b) Fe-Si-Nb (at.%) alaşımlarının 30, 60 ve 120 saat öğütme sonrası XRD deseni.

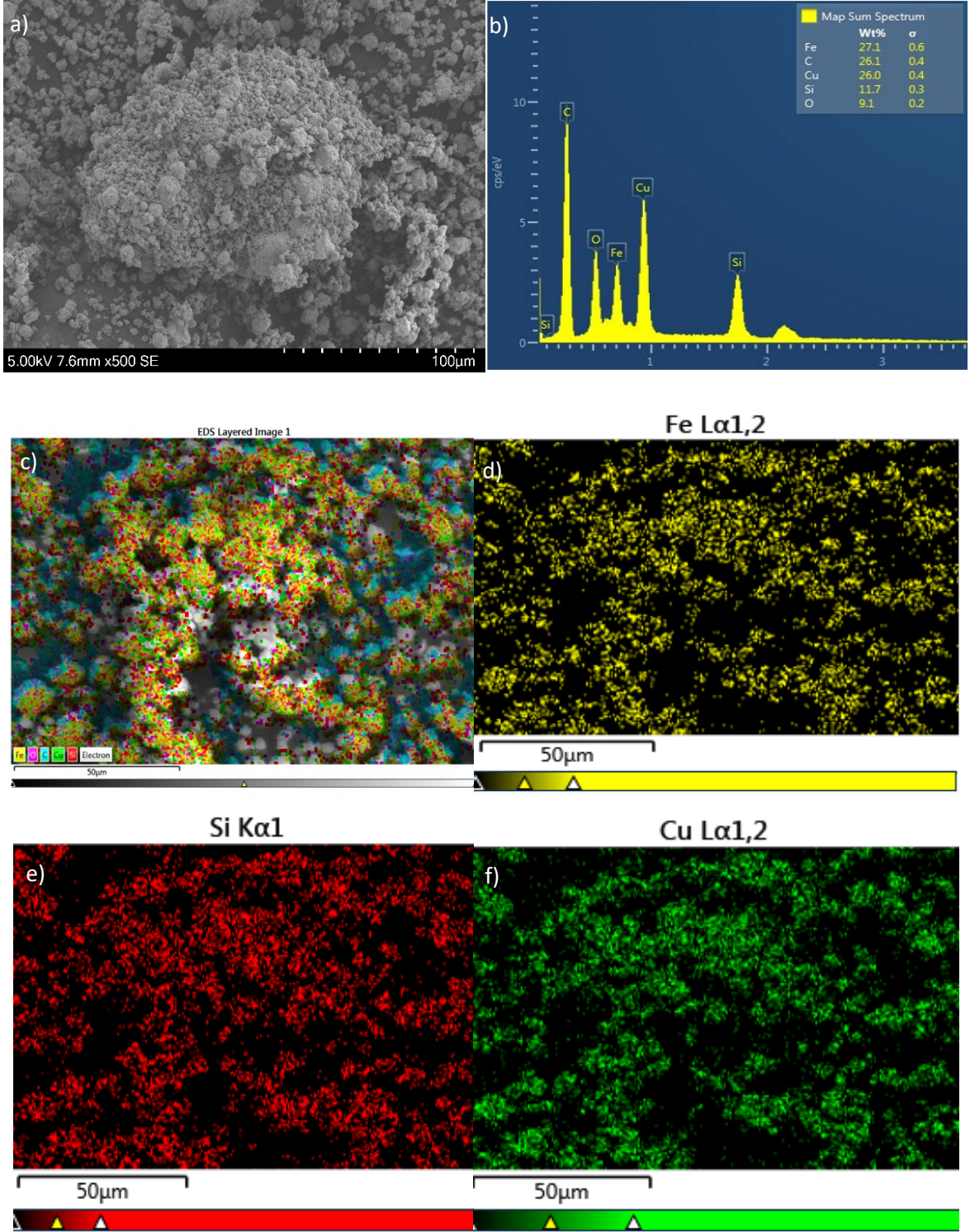
Şekil 4'te ise Fe-Si-Cu ve Fe-Si-Nb alaşımlarının farklı öğütme sürelerine karşı, kristalit boyut ve örgü gerinimi grafikleri verilmektedir. Şekil 3'deki her iki alaşıma ait grafiklerden öğütme başlangıcından itibaren piklerin şiddetlerinin azaldığı ve piklerin altında kalanların azaldığı görülmektedir. Bu durum mekanik alaşımlamada kristalit boyuttaki azalma ve örgü gerinimlerindeki artışlardan kaynaklanmaktadır (Suryanarayana, 2004). Kullanılan yöntemde, bilye ve öğütme potası arasında kalan tozlar şiddetli bir şekilde plastik deformasyona uğramaktadır. Öğütmenin ilk başlarında kırılan, daha sonra soğuk kaynaklanan tozlar ardından yassılaşıyor tekrar kırılmaktadır. Bu süreç devam ettikçe, belirli bir aşamadan sonra deformasyon sertleşmesi gerçekleşerek tozların boyutları çok fazla değişmemekte ancak üzerlerindeki gerinimler artmaya devam etmektedir. Fe-Si-Cu alaşımlarının kristalit boyutu öğütme başlangıcı, 30, 60 ve 120 saat öğütme sonrası sırasıyla 102.3, 22.5, 15.9 ve 8.6 nm, örgü gerinimleri ise %0.164, %0.510, %0.672 ve %1.165 olarak hesaplanmıştır. Fe-Si-Nb alaşımı için ise kristalit boyutları 140.8, 42.9, 16.8 ve 7.8 nm, örgü gerinimleri ise %0.134, %0.301, %0.639 ve %1.271 olarak bulunmuştur.



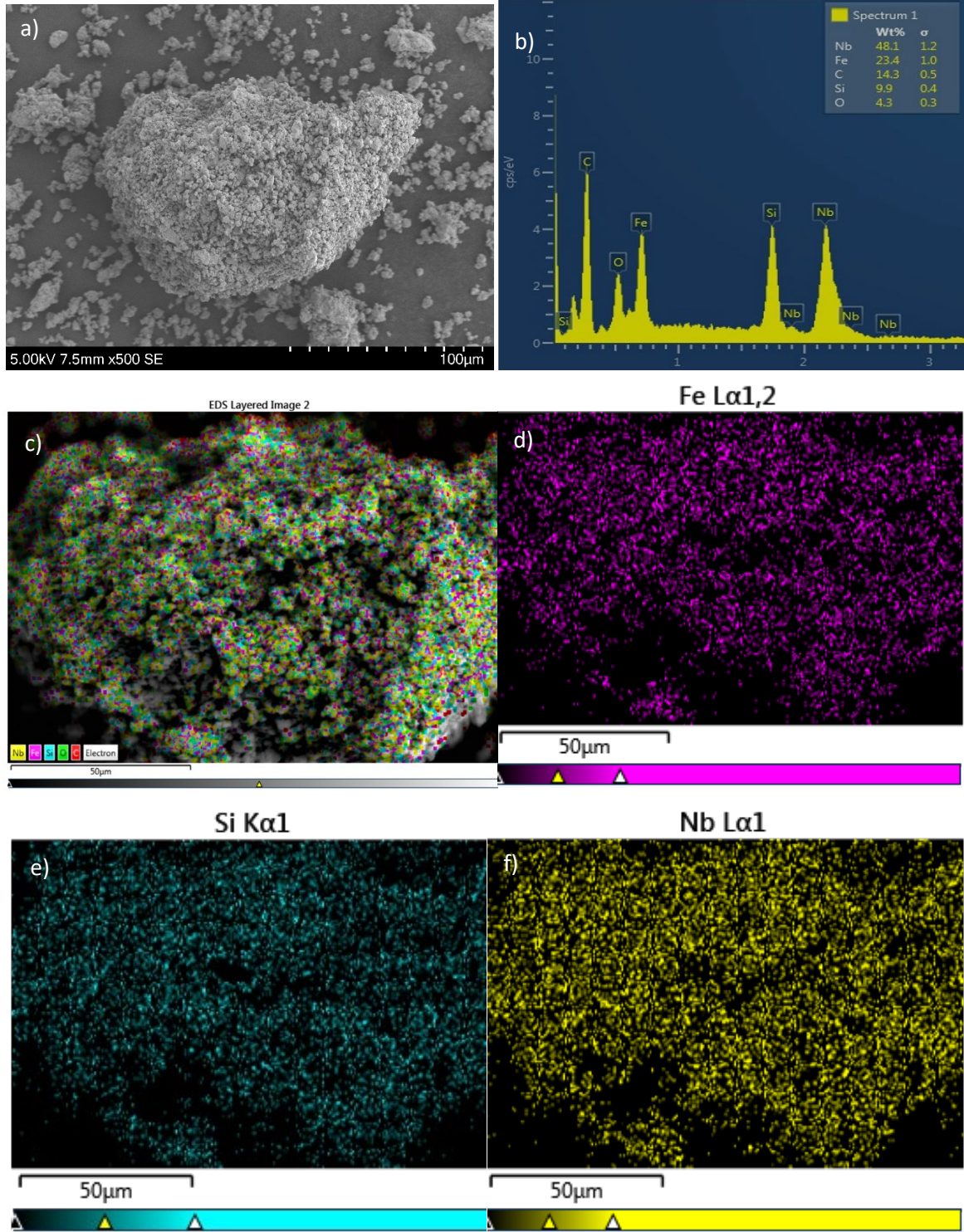
Şekil 4. a) Fe-Si-Cu (at.%) alaşımının kristalit boyut ve örgü gerinimi b) Fe-Si-Nb (at.%) alaşımının kristalit boyut ve örgü gerinimi.

Şekil 5.a'daki SEM görüntüsü sonuçlarından görüldüğü üzere, tozlar 120 saat öğütme sonucunda nano boyutlu küresel ve düzgün bir yapıdadır (Escorial ve ark., 1991). Demir, silisyum ve bakır arasındaki sertlik ve süneklik farklılıklarından dolayı beklendiği gibi katmanlı yapılar gözlenmemiştir. Mekanik alaşımlama mekanizmasında tozlar bilye-bilye ve kap-bilye etkileşimleri sonucu şiddetli plastik deformasyona uğrar (Suryanarayana, 2004; Şimşek ve ark., 2021). Mekanik alaşımlama ile alaşımlanmış parçacıklarda 120 saatlik öğütmeden sonra neredeyse tam homojenlik gözlemlenebilir, bu da yüksek derecede alaşımlamaya işaret eder. Şekil.5a'daki SEM görüntüsünde numunelerin partikül boyutunun nano boyuta inmesinden dolayı topaklaşmalar görülmektedir. Daha öncede belirtildiği gibi uzun öğütme süresi boyunca tekrarlayan soğuk kaynaklanma, düzleştirme ve kırılma, parçacıkların enerjisinde artışa sebep olmaktadır (Suryanarayana, 2001). Bu durum yeni yüzeyler oluşturur ve bu yüzeyler oldukça aktiftir. Bu nedenle nano boyutlu toz partikülleri enerjilerini düşürmek için bir arada durma eğilimi gösterir. Bu topaklaşmanın ana nedenidir (Mourdikoudis ve ark., 2018). Şekil 5.b'de verilen EDX sonuçlarına göre Fe, Cu ve Si görülmektedir. Toz içeriğinde görülen karbon miktarının iletken banttardan kaynaklandığı düşünülmektedir. Şekil 5.c'de Numunelerin elementel haritalanması büyük demir yığınlarının içindeki küçük Si ve Cu parçacıklarının varlığı göstermektedir.

Şekil 6a'daki SEM görüntüsü sonuçları Fe-Si-Cu numunelerde olduğu gibi, Fe-Si-Nb numuneler küresel ve düzgün bir yapıdadır. Nb düşük yoğunluklu refrakter bir metaldir. Bundan dolayı mekanik alaşımlama sonunda yine katmanlı yapı görülmez. Fe-Si-Nb 'da 120 saatlik öğütmeden sonra tam homojenlik gözlemlenebilir. XRD analizi sonuçlarından hesaplanan ve SEM sonuçları ile teğit edilen 120 saat öğütme sonunda elde edilen partikül boyutu Fe-Si-Cu numune ile benzerdir. Fe-Si-Nb'lu numunelerde de nano boyutlarından kaynaklı olarak topaklaşma SEM görüntülerinde görülmektedir. Şekil 6b'de verilen numunelerin EDX sonuçlarına göre Fe,Si,Nb ve karbon banttardan kaynaklı C görülmektedir. Şekil 6c'de Numunelerin Elementel haritalanması, Fe,Si ve Nb'un homojen dağılımını göstermiştir.



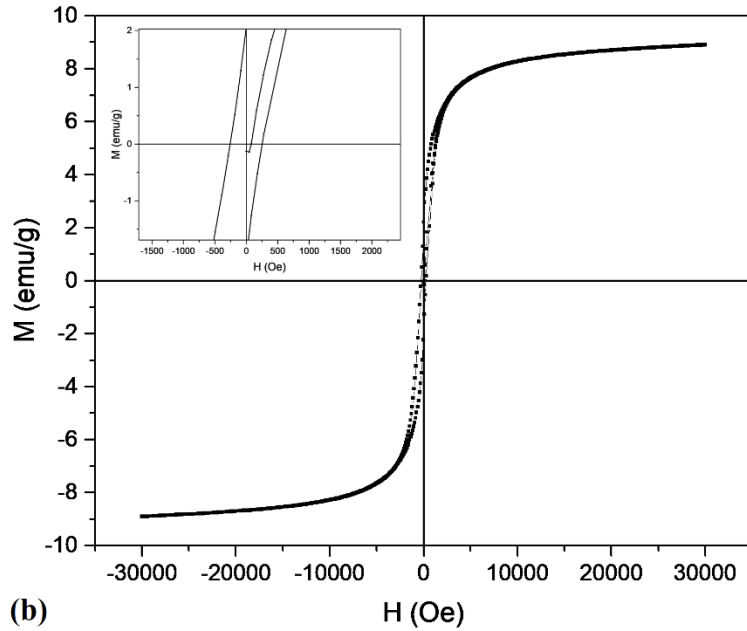
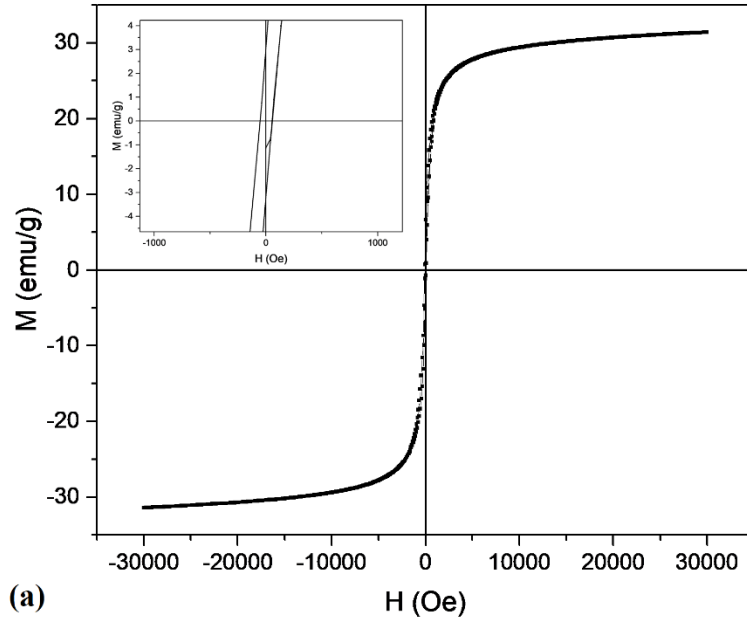
Şekil 5. a)120 saat öğütme sonrası Fe-Si-Cu (at.%) alaşımların SEM görüntüsü b) Fe-Si-Cu (at.%) alaşımlarının EDX analizi c-f) Elementel haritalama.



Şekil 6. a) 120 saat öğütme sonrası Fe-Si-Nb SEM görüntüsü b) Fe-Si-Cu (at.%) alaşımlarının EDX analizi c-f) Elementel haritalama.

Şekil 7’de Fe-Si-Cu (at.%) ve (b) Fe-Si-Nb (at.%) alaşımlarının oda sıcaklığındaki manyetik alana bağlı manyetizasyon  $M(H)$  eğrileri gösterilmektedir.





Şekil 7. a) Fe-Si-Cu (at.%) ve b) Fe-Si-Nb (at.%) alaşımlarının 300 K sıcaklıklardaki ölçülen histerisis eğrileri.

Çizelge 1’de histerisis eğrilerinden elde edilen doyum mıknatıslanması ( $M_s$ ), koerzivite ( $H_c$ ) ve artık mıknatıslanma oranı ( $M_r$ ) değerleri verilmektedir. Analizler sonucunda her iki örneğinde ferromanyetik özellik sergilediği görülmektedir. Fe-Si-Cu (at.%) alaşımının doyum manyetizasyonu ( $M_s$ ) 31.46 emu/g, koerzivite değerleri ( $H_c$ ) ise 53.36 Oe olarak, Fe-Si-Nb (at.%) alaşımı için ise 8.91 emu/g ve 265.39 Oe olarak bulunmuştur. Fe-Si alaşımı içerisine Nb katıldığında daha düşük doyum manyetizasyonu ve görece yüksek koerzivite değerlerinin gözükmesi, artan öğütme süresine bağlı olarak amorflaşma ve örgü üzerindeki bozulmalara atfedilmektedir (Obaidat ve ark., 2015).

Ayrıca, tozların mekanik gerilimleri ve dislokasyon miktarının artması  $H_c$ 'nin artmasına neden olabilir (Shi & Yao, 2020). Shyni ve Alagarsamy’in Fe-Si ile ilgili yaptığı çalışmada Si oranını en fazla %40 çıkarmışlar ve Si içeriğinin artmasının doyum manyetizasyonu azalttığını söylemişlerdir.  $M_s$  değerindeki değişiklikleri ise Fe-Si tozlarında Fe 3d bandının 3p elektronları ile kısmi dolması ile ilişkilendirmişlerdir (Shyni & Alagarsamy, 2014). Literatür bazı çalışmalar bakıldığı zaman öğütme süresinin artmasının doyum manyetizasyonunun azalmasına sebep olduğu, bunun nedenini öğütme

sırasında bilye ve öğütme kabından toza geçen kontaminasyona bağlanmışlardır (Du & Ramanujan, 2005; Gonzalez ve ark., 1995). Fe<sub>50</sub>Ni<sub>50</sub> alaşımı ile yapılan başka bir çalışmada 60 saat öğütmeye kadar Ms değerinin arttığı bildirilmiştir. Bunun sebebini kafes gerinimlerinin gevşemesine bağlanmışlardır. Aynı çalışmada daha yüksek öğütme sürelerine çıktıklarında yine kontaminasyona bağlı olarak Ms değerinin düştüğünü göstermişlerdir. Ek olarak, Hc değerinin direk kristalin anisotropisi ile ilişkili olduğunu belirtmişlerdir (Hajalilou ve ark., 2018).

Çizelge 1. Fe-Si-Cu (at.%) ve Fe-Si-Nb (at.%) alaşımlarının Ms, Hc ve Mr değerleri

Alaşım	Kristalit boyut (nm)	M <sub>s</sub> (emu/g)	H <sub>c</sub> (Oe)	M <sub>r</sub>
Fe-Si-Cu (at.%)	8.6	31.46	53.36	3.17
Fe-Si-Nb (at.%)	7.8	8.91	265.39	2.09

#### 4. Sonuç

Elde edilen bulgular değerlendirildiğinde, eş molar Fe-Si-Cu (at.%) ve Fe-Si-Nb (at.%) nanokristallerinin mekanik alaşımlama tekniği ile başarılı bir şekilde elde edildiği tespit edilmiştir. Beklendiği gibi şiddetli deformasyonlar sonucunda alaşımların kristalit boyutları ilk başta hızlıca azalırken, öğütmenin sonlarına doğru ise deformasyon sertleşmesinin gerçekleşmesiyle daha stabil hale gelmiştir. Örgü gerinimleri ise tekrarlanan kırılma, yassılaşıma, soğuk kaynaklanma ve yeniden kırılma neticesinde artmaya devam etmiştir. Fe-Si-Cu alaşımının ve FeSiNn alaşımlarının kristalit boyutları öğütme başlangıcı, 30, 60 ve 120 saat öğütme sonrası sırasıyla 102.3, 22.5, 15.9 ve 8.6 nm ve 140.8, 42.9, 16.8 ve 7.8 nm olarak hesaplanmıştır. Örgü gerinimleri ise Fe-Si-Cu için sırasıyla %0.164, %0.510, %0.672 ve Fe-Si-Nb alaşımları için %1.165 ve %0.134, %0.301, %0.639 ve % 1.271 olarak bulunmuştur. SEM ve EDX sonuçlarına bakıldığında 120 saat öğütme sonunda elementlerin yapıda nano boyutlu ve homojen bir dağılım gösterdiği buda alaşımlamanın başarılı olduğunun kanıtıdır. Titreşimli örnek manyetometresi (VSM) sonuçları, her iki alaşımında ferromanyetik özellik gösterdiğini ortaya koymuştur. Fe-Si-Cu (at.%) alaşımı için Ms 31.46 emu/g, Hc ise 53.36 Oe olarak, Fe-Si-Nb (at.%) alaşımı için ise Ms 8.91 emu/g ve Hc 265.39 Oe olarak bulunmuştur.

#### Teşekkür

Yazarlar, manyetizma analizleri için, Hacettepe Fizik Mühendisliği, Süper İletkenlik ve NanoTeknoloji Grubu (SNTG) laboratuvarına teşekkür etmektedir.

#### Kaynakça

- Azuma, D., Ito, N., & Ohta, M. (2020). Recent progress in Fe-based amorphous and nanocrystalline soft magnetic materials. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 501, 166373. doi:10.1016/j.jmmm.2019.166373
- Chaudhary, V., Yadav, N. M. S. K. K., Mantri, S. A., Dasari, S., Jagetia, A., Ramanujan, R., & Banerjee, R. (2020). Additive manufacturing of functionally graded Co-Fe and Ni-Fe magnetic materials. *Journal of Alloys and Compounds*, 823, 153817. doi:10.1016/j.jallcom.2020.153817
- Du, S., & Ramanujan, R. (2005). Mechanical alloying of Fe-Ni based nanostructured magnetic materials. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 292, 286-298. doi:10.1016/j.jmmm.2004.11.143
- Escorial, A. G., Adeva, P., Cristina, M., Martin, A., Carmona, F., Cebollada, F., Martin, V. E., Leonato, M., & Gonzalez, J. (1991). Ball milling mechanical alloying in the Fe<sub>100-x</sub>Si<sub>x</sub> system. *Materials Science and Engineering: A*, 134, 1394-1397. doi:10.1016/0921-5093(91)90998-3

- Gao, Z., & Fultz, B. (1994). Inter-dependence of grain growth, Nb segregation, and chemical ordering in Fe Si Nb nanocrystals. *Nanostructured Materials*, 4(8), 939-947. doi:10.1016/0965-9773(94)90100-7
- Gonzalez, J., Giri, L., & Giri, A. K. (1995). Magnetic properties of mechanically alloyed amorphous Fe<sub>50</sub>B<sub>50</sub>. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 140, 249-250. doi:10.1016/0304-8853(94)01228-8
- Haines, M., List III, F., Carver, K., Leonard, D., Plotkowski, A., Fancher, C., Dehoff, R. R., & Babu, S. (2022). Role of scan strategies and heat treatment on grain structure evolution in Fe-Si soft magnetic alloys made by laser-powder bed fusion. *Additive Manufacturing*, 50, 102578. doi:10.1016/j.addma.2021.102578
- Hajalilou, A., Kianvash, A., Lavvafi, H., & Shameli, K. (2018). Nanostructured soft magnetic materials synthesized via mechanical alloying: a review. *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*, 29, 1690-1717. doi:10.1007/s10854-017-8082-0
- Kwon, S., Kim, S., Yim, H., Kang, K. H., & Yoon, C. S. (2020). High saturation magnetic flux density of Novel nanocrystalline core annealed under magnetic field. *Journal of Alloys and Compounds*, 826, 154136. doi:10.1016/j.jallcom.2020.154136
- Li, Y., Jia, X., Zhang, W., Zhang, Y., Xie, G., Qiu, Z., Luan, J., Jiao, Z. (2021). Formation and crystallization behavior of Fe-based amorphous precursors with pre-existing  $\alpha$ -Fe nanoparticles—Structure and magnetic properties of high-Cu-content Fe-Si-B-Cu-Nb nanocrystalline alloys. *Journal of Materials Science & Technology*, 65, 171-181. doi:10.1016/j.jmst.2020.05.049
- Lopez-Dominguez, V., Quesada, A., Guzmán-Mínguez, J., Moreno, L., Lere, M., & García, M. A. (2018). A simple vibrating sample magnetometer for macroscopic samples. *Review of Scientific Instruments*, 89(3), 034707. doi:10.1063/1.5017708
- Marin, P., Vázquez, M., Olofinjana, A., & Davies, H. (1998). Influence of Cu and Nb on relaxation and crystallization of amorphous FeSiB (CuNb) wires. *Nanostructured Materials*, 10(2), 299-310. doi:10.1016/S0965-9773(98)00070-1
- Mourdikoudis, S., Pallares, R. M., & Thanh, N. T. (2018). Characterization techniques for nanoparticles: comparison and complementarity upon studying nanoparticle properties. *Nanoscale*, 10(27), 12871-12934. doi:10.1039/c8nr02278j
- Obaidat, I., Issa, B., Albiss, B., & Haik, Y. (2015). *Temperature dependence of saturation magnetization and coercivity in Mn<sub>0</sub>. 5Zn<sub>0</sub>. 5Gd<sub>0</sub>. 02Fe<sub>1</sub>. 98O<sub>4</sub> ferrite nanoparticles*. IOP Conference Series: Materials Science and Engineering. doi:10.1088/1757-899X/92/1/012012
- Ohta, M., & Yoshizawa, Y. (2008). Cu addition effect on soft magnetic properties in Fe–Si–B alloy system. *Journal of Applied Physics*, 103(7), 07E722. doi:10.1063/1.2829240
- Ohta, M., & Yoshizawa, Y. (2011). Recent progress in high Bs Fe-based nanocrystalline soft magnetic alloys. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 44(6), 064004. doi:10.1088/0022-3727/44/6/064004
- Ouyang, G., Chen, X., Liang, Y., Macziewski, C., & Cui, J. (2019). Review of Fe-6.5 wt% Si high silicon steel-A promising soft magnetic material for sub-kHz application. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 481, 234-250. doi:10.1016/j.jmmm.2019.02.089
- Páez-Pavón, A., Jiménez-Morales, A., Santos, T., Quintino, L., & Torralba, J. (2016). Influence of thermal debinding on the final properties of Fe–Si soft magnetic alloys for metal injection molding (MIM). *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 416, 342-347. doi:10.1016/j.jmmm.2016.05.031
- Penton-Madrigal, A., Turtelli, R. S., Estevez-Rams, E., & Grössinger, R. (2005). Structural evolution with Nb content in melt-spun Fe<sub>80</sub>–xSi<sub>20</sub>Nb<sub>x</sub> ribbons. *Journal of Alloys and Compounds*, 395(1-2), 63-67. doi:10.1016/j.jallcom.2004.11.026
- Shi, L., & Yao, K. (2020). Composition design for Fe-based soft magnetic amorphous and nanocrystalline alloys with high Fe content. *Materials & Design*, 189, 108511. doi:10.1016/j.matdes.2020.108511
- Shyni, P., & Alagarsamy, P. (2014). Thermomagnetic properties of nanocrystalline Fe–Si alloys with high Si content. *Physica B: Condensed Matter*, 448, 60-63. doi:10.1016/j.physb.2014.02.032
- Sunday, K. J., & Taheri, M. L. (2017). Soft magnetic composites: recent advancements in the technology. *Metal Powder Report*, 72(6), 425-429. doi:10.1016/j.mprp.2016.08.003

- Suryanarayana, C. (2001). Mechanical alloying and milling. *Progress in Materials Science*, 46(1-2), 1-184. doi:10.1016/S0079-6425(99)00010-9
- Suryanarayana, C. (2004). *Mechanical Alloying and Milling*, (pp. 59-78). New York, USA: Marcel Dekker. doi:10.1201/9780203020647
- Suzuki, K., & Herzer, G. (2012). Magnetic-field-induced anisotropies and exchange softening in Fe-rich nanocrystalline soft magnetic alloys. *Scripta Materialia*, 67(6), 548-553. doi:10.1016/j.scriptamat.2012.03.006
- Şimşek, T., Akgül, Ş., Güler, Ö., Özkul, İ., Avar, B., Chattopadhyay, A. K., Canbay, C. A., & Güler, S. H. (2021). A comparison of magnetic, structural and thermal properties of NiFeCoMo high entropy alloy produced by sequential mechanical alloying versus the alloy produced by conventional mechanical alloying. *Materials Today Communications*, 29, 102986. doi:10.1016/j.mtcomm.2021.102986
- Şimşek, T., Özkul, İ., Canbay, C. A., Avar, B., Şimşek, T., ... & Chattopadhyay, A. K. (2022). Effect of Cu, Sn and Sb addition on the structural, thermal and magnetic properties of body-centered cubic structured CoNiMnGaSi high entropy alloy. *Applied Physics A*, 128(6), 1-9. doi:10.1007/s00339-022-05667-x
- Tsepelev, V., Starodubtsev, Y. N., & Belozarov, V. Y. (2018). The effect of inhibitors on the structure and magnetic properties of nanocrystalline soft magnetic alloys. *Physics of Metals and Metallography*, 119(9), 831-836. doi:10.1134/S0031918X18090120
- Turtelli, R. S., Penton-Madrigal, A., Barbatti, C., Grössinger, R., Sassik, H., ... & Guimarães, A. P. (2005). Effect of the addition of Cr, Ta and Nb on structural and magnetic properties of Fe-Si alloys. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 294(2), e151-e154. doi:10.1016/j.jmmm.2005.03.073
- Wan, F., He, A., Zhang, J., Song, J., Wang, A., Chang, C., & Wang, X. (2016). Development of FeSiBNbCu nanocrystalline soft magnetic alloys with high B<sub>s</sub> and good manufacturability. *Journal of Electronic Materials*, 45(10), 4913-4918. doi:10.1007/s11664-016-4643-x
- Yoshizawa, Y., Oguma, S., & Yamauchi, K. (1988). New Fe-based soft magnetic alloys composed of ultrafine grain structure. *Journal of Applied Physics*, 64(10), 6044-6046. doi:10.1063/1.342149
- Zaporotskova, I. V., Radchenko, D. P., Kozhitov, L. V., Zaporotskov, P. A., & Popkova, A. V. (2020). Theoretical study of metal composite based on pyrolyzed polyacrylonitrile monolayer containing Fe-Co, Ni-Co and Fe-Ni metal atom pairs and silicon amorphizing admixture. *Modern Electronic Materials*, 6(3), 95-99. doi:10.3897/j.moem.6.3.63308
- Zhao, R., Huang, J., Yang, Y., Jiao, L., Dong, Y., ... & Li, J. (2022). The influence of FeNi nanoparticles on the microstructures and soft magnetic properties of FeSi soft magnetic composites. *Advanced Powder Technology*, 33(8), 103663. doi:10.1016/j.appt.2022.103663