

05,11

## Анализ приближения к намагниченности насыщения и динамики размагничивания аморфного спинового стекла PrDyFeCoB

© Е.В. Дворецкая<sup>1</sup>, Д.В. Королев<sup>1,2</sup>, О.В. Коплак<sup>1</sup>, Р.Б. Моргунов<sup>1-3</sup>

<sup>1</sup> Институт проблем химической физики РАН,  
Черноголовка, Россия

<sup>2</sup> Всероссийский научно-исследовательский институт авиационных материалов,  
Москва, Россия

<sup>3</sup> Тамбовский государственный технический университет,  
Тамбов, Россия

E-mail: o.koplak@gmail.com

Поступила в Редакцию 2 июля 2021 г.

В окончательной редакции 2 июля 2021 г.

Принята к публикации 3 июля 2021 г.

Представлен анализ полевой и временной зависимостей намагниченности аморфно-кристаллических микропроводов PrDyFeCoB. Установлено, что кривая намагниченности вблизи поля насыщения имеет более плавное приближение к насыщению, чем в ферромагнетике, что согласуется с теоретическими предсказаниями для спин-стекольного состояния сплава в аморфном состоянии в рамках модели случайной магнитной анизотропии. Обнаружены отклонения динамики релаксации намагниченности микропроводов от логарифмической временной зависимости и исчезновение этой разницы при наблюдении магнитной релаксации в магнитном поле. Это свидетельствует о типичной динамике перемагничивания спинового стекла в нулевом поле и ферромагнитном характере размагничивания в поле, отличном от нуля. Полученные результаты свидетельствуют о наличии в микропроводах PrDyFeCoB экзотического магнитного состояния материала со стохастической локальной магнитной анизотропией.

**Ключевые слова:** спиновое стекло, ферримагнетик, редкоземельные сплавы, случайная магнитная анизотропия.

DOI: 10.21883/FTT.2021.11.51590.158

### 1. Введение

Спиновые стекла с высокой локальной магнитной анизотропией давно привлекают внимание, как новые среды с необычными магнитными свойствами. Примером таких материалов могут служить аморфные сплавы интерметаллидов DyFeB, интенсивно исследуемые некоторое время назад [1–5]. Характерной особенностью этой группы сплавов является значительная энергия одноионной магнитной анизотропии  $D$ , сильно превышающая энергию обменного взаимодействия ионов  $J$ . Выполнение условия  $D \gg J$  приводит к такой ситуации в аморфном материале, при которой вариации магнитной анизотропии и хаотизация осей анизотропии в отдельных ионах приводят к беспорядку намагниченности, а не вариации межатомных расстояний  $r$ , модулирующие величину обменного взаимодействия  $J(r)$  [1]. Значительная асимметрия одноионной анизотропии в редкоземельных сплавах приводит к появлению в них специфических состояний спинового стекла, таких как изинговское спиновое стекло, а также к появлению спин-переориентационных переходов, вызываемых сравнительно слабым магнитным полем. Отметим, что физическая природа спинового стекла с редкоземельными ионами отличается от спин-стекольных состояний в аморфных сплавах на основе переходных металлов (FeSi, FeCoSi и т.п.), в которых

атомный беспорядок создает хаотичность в распределении величины обменного взаимодействия  $J(r)$ , а не магнитной анизотропии.

В работах [6,7] был обнаружен спин-переориентационный переход в микропроводах PrDy-FeCo-B, который заключается в резком росте магнитного момента микропровода в 3–10 раз при приложении магнитного поля 100–1000 Oe вдоль микропровода при 250 K. При других температурах требовалось другое критическое поле, так что зависимость критической температуры этого перехода от критического поля переключения состояний подчинялась известному закону Альмейды–Таулеса, полученному теоретически для спиновых стекол с высокой магнитной анизотропией [8]. Сплав PrDy-FeCo-B в кристаллических фазах 2-14-1, 1-4-1 и др. является изоструктурным ранее исследованному сплаву DyFeB, в котором был обнаружен теоретически предсказанный переход Альмейды–Таулеса. Различие заключается лишь в том, что в подрешетке переходных металлов часть ионов железа замещается ионами  $\text{Co}^{2+}$  с большей анизотропией, а в редкоземельной подрешетке часть ионов  $\text{Dy}^{3+}$  замещены близкими к ним ионами  $\text{Pr}^{3+}$  с несколько меньшими значениями одноионной анизотропии. В остальном, также как в работах [1–5], в аморфных микропроводах проявляется спин-переориентационный переход между спин-стекольным (SSG) и ферримагнит-

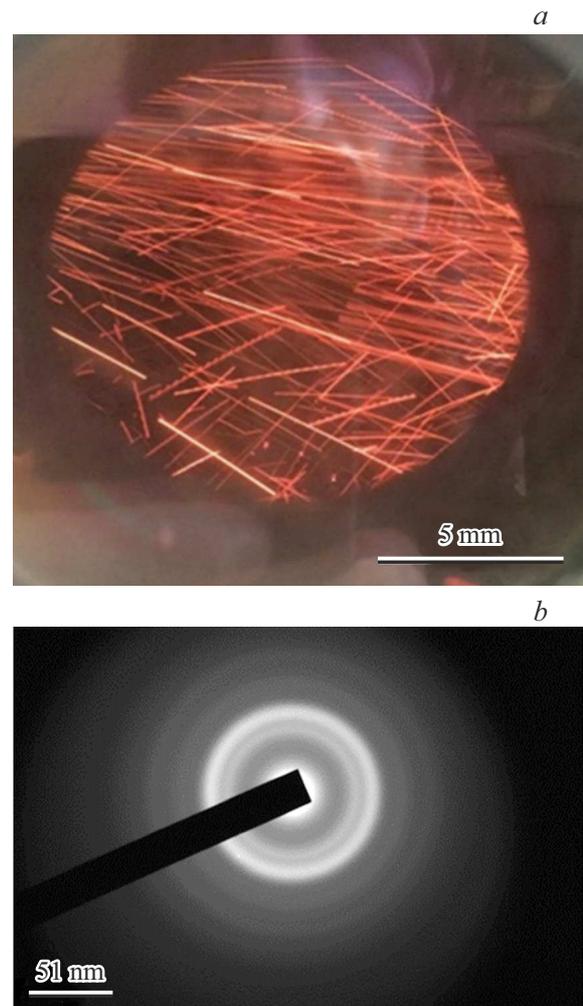
ным (FM) состояниями. Физические процессы, лежащие в основе такого перехода, были рассмотрены с помощью кластерной теории перколяций (или теории протекания) [9], которая применяется к островкам аморфного материала, возникших случайным образом в результате корреляции осей одноионной анизотропии в локальных областях материала [10]. Увеличение магнитного поля ведет к росту таких островков и постепенному распространению ферромагнитных областей, вытесняющих спин-стекольное состояние. При уменьшении температуры преодоление барьера магнитной анизотропии осложняется, и требуется все большее поле для переключения в ферромагнитное состояние. Выполнимость предсказаний Альмейды–Таулеса для границы такого перехода в пространстве поле-температура ( $H-T$ ) была проверена нами в предыдущих работах, подтвердивших переход  $SSG \rightarrow FM$  [6,7].

Еще одним признаком спин-стекольного состояния, даже более общим, пригодным для спиновых стекол разного типа, являются: более плавный подход к намагниченности насыщения  $M_S$  при увеличении магнитного поля [11], а также специфические временные зависимости намагниченности при изменении внешнего поля, отличные от логарифмической зависимости [7], наблюдаемой в структурно-несовершенных ферромагнетиках. Приближение намагниченности к насыщению в аморфных ферромагнетиках изучалось в работах Кронмюллера [10,12,13], а также анализировалось в работах Чудновского с соавторами [14–17], которые предложили объяснение этому явлению на основе представлений о хаотическом распределении обменного взаимодействия. В работе [18] были получены аналогичные теоретические объяснения кривым намагничивания для ситуации, когда хаотичным является распределение магнитной анизотропии по величине и знаку.

Целью настоящей работы являлись проверка формы полевых зависимостей намагниченности при приближении к насыщению (в сильных полях) в аморфных микропроводах, а также установление временных зависимостей самопроизвольного размагничивания аморфных микропроводов PrDyFeCoB и их сравнении с магнитной релаксацией ферромагнитного состояния, индуцированного полем в этом же микропроводе PrDyFeCoB.

## 2. Методика и образцы

Аморфные микропровода с объемной долей аморфного материала до 86%, были получены сверхбыстрым охлаждением капли расплава PrDyFeCoB на вращающемся медном цилиндре, охлаждаемом водой. Скорость охлаждения расплава в аналогичных условиях составляет обычно  $10^6$  K/s [7]. Каплю расплава получали на острие спеченного магнита при его разогреве электронным пучком. Быстрое вращение цилиндра с линейной скоростью поверхности 50 м/с вытягивало расплав, затвердевающий в форме микропроводов, близ-



**Рис. 1.** (а) Формирование микропроводов в процессе вытягивания расплава на охлаждающем цилиндре. (б) Электронно-дифракционное изображение, полученное для ламели, вырезанной из микропровода (ширина щели 51 нм).

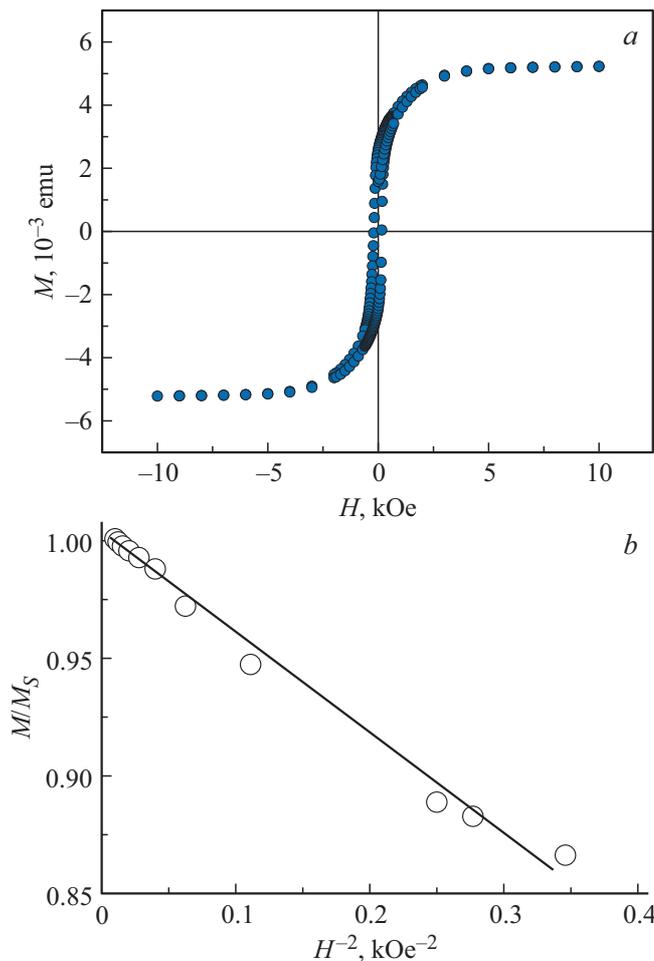
кой к цилиндрической, длиной 10–20 мм и диаметром 50–100  $\mu\text{m}$  (рис. 1, а). Ранее нами сообщалось об исследовании химического и фазового состава микропроводов с помощью просвечивающей электронной микроскопии (TEM), рентгено-дифракционного анализа (XRD), фазового контраста отраженных электронов (BSE), рентгеновской фотоэлектронной спектроскопии (XPS) и энерго-дисперсионных спектров (EDX), полученных в сканирующем электронном микроскопе (SEM) [6,7].

Мы использовали просвечивающий электронный микроскоп высокого разрешения HR TEM JEOL для получения электронно-дифракционных изображений, с помощью которых можно было убедиться, что основной объем микропроводов составляет аморфная фаза, демонстрирующая гало (рис. 1, б). Интегральный магнитный момент микропровода и его зависимости от поля и времени были записаны в SQUID-магнетометре MPMS XL Quantum design при 300 К.

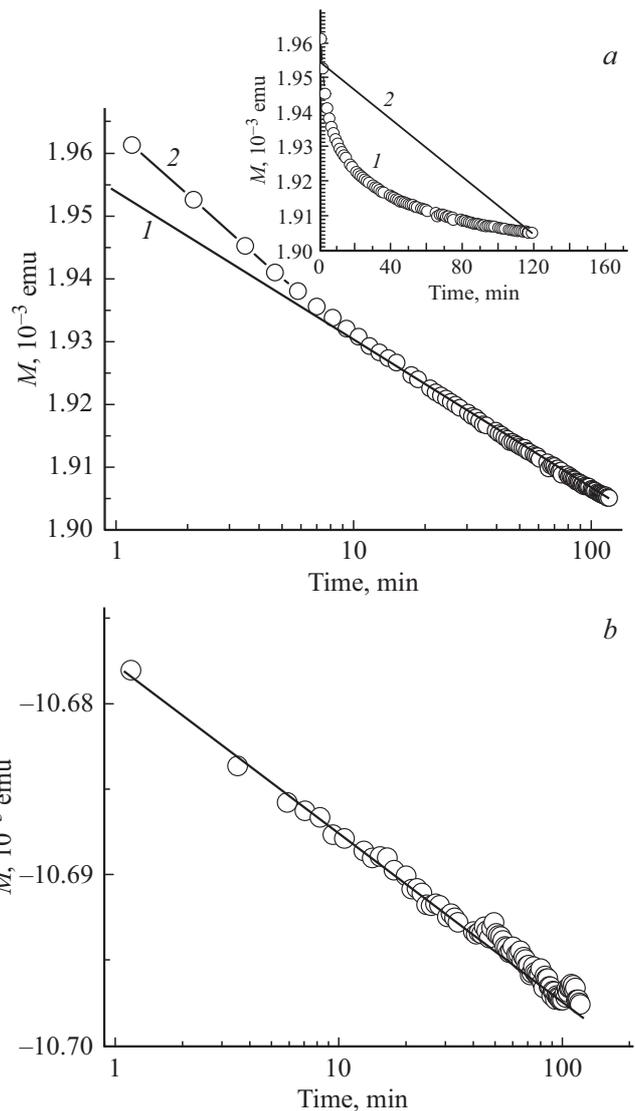
### 3. Экспериментальные результаты

Зависимость магнитного момента микропровода от магнитного поля показана на рис. 2, *a*. Видно, что приближение к насыщению характеризуется длинным пологим участком кривой  $M(H)$ , не характерным для ферромагнитного состояния. Для проверки выполнимости предсказаний теории участок, в котором  $M/M_S > 0.85$  (как это обычно делается в работах, посвященных анализу полевой зависимости намагниченности), был построен в координатах  $M(1/H^2)$ , в которых наблюдалось спрямление полевой зависимости магнитного момента (рис. 2, *b*).

Далее нами проведены опыты по исследованию релаксации магнитного момента в разных условиях. В первой серии опытов поле от величины +1 кОе скачком переключалось к нулевому значению, и после установления нулевого значения (примерно за 40 с) начиналась запись зависимости магнитного момента от времени. Результа-



**Рис. 2.** Зависимость магнитного момента микропровода от магнитного поля (*a*), и полученный из нее фрагмент зависимости приведенного к намагниченности насыщения магнитного момента  $M/M_S$  от величины  $1/H^2$  (*b*). Сплошной линией показана аппроксимация, обсужденная в тексте.



**Рис. 3.** (*a*) Зависимость магнитного момента микропровода от времени после выключения магнитного поля 1 кОе до нуля. Сплошной линией 1 показана логарифмическая зависимость  $M = S_0 \ln(t/\tau)$ , а сплошная линия 2 — аппроксимация формулой (5), описанной в тексте. На врезке показана та же зависимость с логарифмическим масштабом по вертикальной оси и линейным масштабом по горизонтальной оси. (*b*) Зависимость магнитного момента микропровода от времени после переключения поля от +1 кОе к отрицательному значению -1 кОе. Сплошной линией показана логарифмическая зависимость  $M = S_0 \ln(t/\tau)$ .

ты показаны на рис. 3, *a*. Видно, что в полулогарифмических координатах эта зависимость не спрямляется, хотя при исследовании нами поликристаллических магнитов близкого химического состава, это спрямление имело место [19]. Таким образом, в нулевом магнитном поле, когда ожидаемо, что аморфный микропровод пребывает в спин-стекольном состоянии, магнитная релаксация его магнитного момента отличается от логарифмической релаксации ферромагнетика.

Во второй серии опытов, направленных на исследование динамики магнитной релаксации, магнитное поле от значения  $+1$  кОе скачком переключали к отрицательному значению  $-1$  кОе (т. е. меняли направление внешнего магнитного поля). Поскольку ранее было установлено, что при высоких температурах в магнитном поле  $1$  кОе происходит переход  $SSG \rightarrow FM$ , можно было ожидать, что микропровод в магнитном поле, большем порогового значения, находится в ферримагнитном состоянии. На рис. 3, *b* показана релаксация магнитного момента микропровода, записанная после переключения поля от  $+1$  кОе к  $-1$  кОе. Видно, что в таком же диапазоне времен, что и в первой серии опытов, наблюдается логарифмическая зависимость магнитного момента от времени, наблюдаемая ранее в поликристаллических материалах близкого химического состава [20].

Таким образом, в аморфных микропроводах  $PrDyFeCoV$  наблюдается медленное приближение намагниченности к насыщению с ростом магнитного поля, а также отклонение временной зависимости перемагничивания от логарифмической зависимости в нулевом магнитном поле.

#### 4. Обсуждение экспериментальных результатов

Согласно теории Е.М. Чудновского с соавторами, полевая зависимость изменения магнитного момента образца  $\Delta M$  должна соответствовать следующим предсказаниям. В „слабых“ полях, меньших величины обменного взаимодействия, выраженного в единицах поля, т. е. при  $H \ll H_{ex}$ :

$$\Delta M/M_S(H) = v/30(H_r/H_{ex})^2(H_{ex}/H)^{1/2}, \quad (1)$$

в „сильных“ полях, больших величины обменного взаимодействия, т. е. при  $H \gg H_{ex}$ :

$$\Delta M/M_S(H) = 1/15(H_r/H)^2. \quad (2)$$

Мы воспользовались выражением (2), чтобы построить зависимость  $M(1/H^2)$ , и убедились в его справедливости (рис. 2, *b*).

Переходя к обсуждению зависимости намагниченности от времени, отметим, что классическая функция, описывающая релаксацию ферромагнетиков с широким спектром препятствий доменных стенок (с равно распределенной плотностью вероятности амплитуды препятствий), подчиняется обычно логарифмической зависимости

$$M(t) = S_0 \ln(t/\tau), \quad (3)$$

где  $S$  — постоянная величина, называемая магнитной вязкостью, а  $\tau$  — константа, характеризующая длительность процесса. Такая зависимость должна была бы спрямляться в полулогарифмических координатах

$M \sim \lg(t/\tau)$ , однако из рис. 3, *a* следует, что спрямление отсутствует (сплошная линия 1 на рис. 3, *b* соответствует функции (3)). В совершенном ферромагнетике это могло бы говорить о том, что энергетический спектр препятствий отличается от равномерного распределения. Однако очевидно, что спеченные магниты такого типа, быстроохлажденный расплав, это объекты с широким спектром препятствий и в них трудно ожидать иного распределения. Кроме того, плотность вероятности энергии препятствий в виде узкой функции, близкой к  $\delta$ -функции, должна была бы приводить к экспоненциальной зависимости  $M(t) \sim \exp(-t/t_0)$ . Временные зависимости магнитного момента в спиновом стекле также могут подчиняться экспоненциальной функции с показателем степени  $0 < n < 1$  [4]. При температурах ниже температуры „замерзания“ хаотичных спиновых ориентаций временная зависимость магнитного момента примет вид:

$$M(t) \sim \exp(-t/t_0)^n. \quad (4)$$

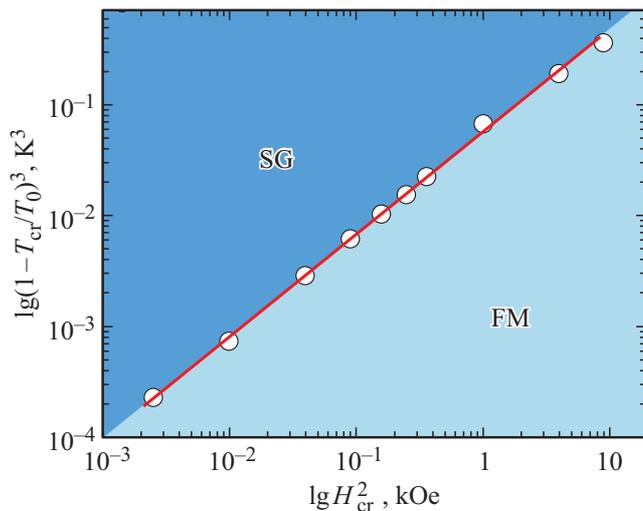
Однако, ни чисто экспоненциальная функция, ни экспоненциальная функция со степенью (4) не описывают полученную временную зависимость, поскольку отклонение от прямой в координатах  $\lg(M(t))$  становится еще более сильным (см. вставку на рис. 3, *a*). Еще одним способом описания динамики перемагничивания спин-стекловых материалов является функция, полученная в рамках фрактально-кластерной модели, описанной во введении

$$\partial M/\partial t = A(t/\tau)^{-k} \exp(-t/\tau)^{-kf}. \quad (5)$$

В этой функции  $k$  и  $f$  — статические и динамические показатели степени, а  $\tau \sim 10^{-13}$  с — постоянная времени, характеризующая длительность спинового перехода под действием спиновой релаксации. Аппроксимация зависимости  $M(t)$  функцией (5) показана линией 2 на рис. 3, *a*. Видно, что не только полевая зависимость (рис. 2, *b*), но и временная зависимость (рис. 3, *a*) хорошо описываются в рамках одной и той же фрактально-кластерной модели.

Наконец, возможность инициирования магнитного перехода  $SSG \rightarrow FM$  магнитным полем, установленная в [6,7,17] говорит о том, что магнитная релаксация в том же микропроводе может оказаться характерной для ферромагнетика, если подавить спин-стекловое состояние полем. Для проверки этого предположения была построена динамика перемагничивания в отрицательном (обратном по направлению) магнитном поле, в котором наблюдалась логарифмическая зависимость  $M = S_0 \ln(t/\tau)$  (рис. 3, *b*). Этот факт означает, что магнитного поля  $1$  кОе достаточно, чтобы динамика перемагничивания соответствовала ферримагнетику с широким спектром препятствий для движения доменных стенок.

На рис. 4 показана граница между  $SSG$  и  $FM$  состояниями, определенная по резкому скачку магнитного



**Рис. 4.** Граница перехода между спин-стекольным (SSG) и ферромагнитным (FM) состояниями микропровода в пространстве поле–температура ( $H_{cr}^2 - T_{cr}^3$ ). Сплошной линией показана аппроксимация формулой Альмейды–Таулеса.

момента микропровода, измеряемому в разных температурах и магнитных полях. Эта граница представляет собой зависимость критического поля перехода  $H_{cr}$  от критической температуры перехода  $T_{cr}$ . Во многих статьях, посвященных переходу Альмейды–Таулеса, зависимость описывается формулой [21]:

$$H_{cr} = H_0 (1 - T_{cr}(H)/T_{SG}(0))^\alpha, \quad (6)$$

в которой показатель степени  $\alpha$  играет ключевую роль. Он определяет тип спинового стекла. Имеется два предельных случая: гейзенберговское спиновое стекло, характеризующееся значением  $\alpha = 3/2$  и изинговское спиновое стекло, для которого  $\alpha$  может отличаться от  $3/2$ . Мы построили зависимость квадрата критического поля  $H_{cr}^2$  от куба критической температуры  $T_{cr}^3$ , чтобы проверить, является ли граница раздела фаз прямой линией в этих координатах. Из рис. 4 следует, что условие перехода  $SSG \rightarrow FM$  выполняется в исследуемых микропроводах.

## 5. Выводы

1) Получены микропровода  $\text{PrDyFeCoV}$  с высокой долей аморфной фазы до 86%, в которых приближение намагниченности к насыщению подчиняется известной закономерности  $M \sim 1/H^2$ , полученной в рамках кластерно-перколяционного подхода для спинового стекла.

2) Динамика перемагничивания в нулевом поле, в котором спин-стекольное состояние не подавлено, подчиняется предсказаниям кластерно-перколяционной теории в спиновых стеклах.

3) Динамика перемагничивания в ненулевом поле 1 кОе, в котором спин-стекольное состояние подавлено и произошел переход в ферромагнитное состояние,

подчиняется логарифмической зависимости, широко известной для ферромагнетиков с равновероятным распределением энергий препятствий для движения доменных стенок.

4) Полученные данные в совокупности с обнаруженной ранее границей перехода  $SSG \rightarrow FM$  свидетельствуют о том, что аморфные микропровода  $\text{PrDyFeCoV}$  являются спиновым стеклом с необычным спиновым беспорядком, поддерживаемым не вариациями обменного взаимодействия (как это имеет место в переходных аморфных сплавах), а вариацией случайных направлений локальных осей одноионной анизотропии ионов  $\text{Pr}^{3+}$  и  $\text{Dy}^{3+}$ .

## Благодарности

Авторы выражают благодарность Н.Н. Дремовой и И.И. Ходосу за помощь в получении SEM- и ТЕМ-изображений.

## Финансовая поддержка

Работа выполнена в рамках тематической карты Института проблем химической физики АААА-А19-119092390079-8, при поддержке проекта РФФИ (грант 20-32-70025) и программы грантов Президента РФ для поддержки ведущих научных школ (грант 2644.2020.2).

## Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

## Список литературы

- [1] B. Dieny, B. Barbara. *J. Phys.* **46**, 293 (1985).
- [2] S.J. Pickart, H.A. Alperin, R.J. Gambino, T.R. McGuire. *J. Appl. Phys.* **55**, 1763 (1984).
- [3] D.J. Sellmyer, S. Nafis. *J. Appl. Phys.* **57**, 3584 (1985).
- [4] И.В.Золотухин, Ю.Е. Калинин. *УФН* **160**, 9, 75 (1990).
- [5] R. Harris, M. Plischke, M.J. Zuckerman. *Phys. Rev. Lett.* **31**, 160 (1973).
- [6] О.В. Коплак, Е.В. Дворецкая, Д.В. Королев, Р.А. Валеев, В.П. Пискорский, А.С. Денисова, Р.Б. Моргунов. *ФТТ* **62**, 8, 1187 (2020).
- [7] O. Koplak, R. Morgunov. *Mater. Sci. Eng. B* **263**, 114845 (2021).
- [8] J.R.L. de Almeida, D.J. Thouless. *J. Phys. A* **11**, 983 (1978).
- [9] R.R.P. Singh, A.P. Young. *Phys. Rev. E* **96**, 012127 (2017).
- [10] H. Kronmüller. *J. Appl. Phys.* **52**, 1859 (1981).
- [11] В.А. Игнатченко, Р.С. Исхаков, Г.В. Попов. *ЖЭТФ* **82**, 5, 1518 (1982).
- [12] H. Kronmüller, A. Seeger. *J. Phys. Chem. Solids* **18**, 2–3, 93 (1961).
- [13] M. Fähnle, H. Kronmüller. *J. Magn. Magn. Mater.* **8**, 2, 149 (1978).
- [14] E.M. Chudnovsky, J. Tejada. *Eur. Lett.* 517 (1993).
- [15] J. Tejada, B. Martinez, A. Labarta, E. Chudnovsky. *Phys. Rev. B* **44**, 14, 7698 (1991).

- [16] E.M. Chudnovsky, R.A. Serota. Phys. Rev. B **26**, 2697 (1982);
- [17] E.M. Chudnovsky, R.A. Serota. J. Phys. C **16**, 4181 (1983).
- [18] И.Я. Коренблит, Е.Ф. Шендер. УФН **157**, 2, 5 (1989).
- [19] А.И. Дмитриев, А.Д. Таланцев, Е.И. Куницына, Р.Б. Моргунов, В.П. Пискорский, О.Г. Оспенникова, Е.Н. Каблов. ЖЭТФ **150**, 350 (2016).
- [20] E. Kunitsyna, O. Koplak, V. Kucheryaev, R. Valeev, D. Korolev, V. Piskorskii, R. Morgunov. J. Appl. Phys. **124**, 163906 (2018).
- [21] D.J. Sellmyer, S. Nafis. J. Magn. Magn. Mater. **54–57**, 113 (1986).

*Редактор Ю.Э. Китаев*