

УДК 669.15'24'26 : 538.214

© 1990

## О СОХРАНЕНИИ ДАЛЬНЕГО МАГНИТНОГО ПОРЯДКА В НЕЭРГОДИЧЕСКОЙ ВОЗВРАТНОЙ ФАЗЕ

А. З. Меньшиков, А. Е. Теплых

На сплавах  $\gamma\text{-Ni}_{80-x}\text{Fe}_x\text{Mn}_{20}$ , где реализуется полный переход по концентрации от ферромагнетизма к антиферромагнетизму, нейтроннографическими методами показано сохранение магнитного порядка в неэргодической возвратной фазе. Эксперименты по когерентному рассеянию нейтронов на сплавах в ферромагнитной области проведены на образцах, включающих изотоп  $\text{Ni}^{62}$  для получения условия «нулевой матрицы». Основное магнитное состояние возвратной фазы предложено рассматривать как смесь магнитной и спин-стекольной фаз, которые сосуществуют ниже  $T_f$  в виде топологически бесконечного магнитного кластера ( $D \geq 20$  нм) с поверхностью фрактального характера, испещренного спин-стекольными областями ( $d \leq 2$  нм), центрами которых являются фрустрированные атомы.

В неупорядоченных магнитных системах с конкурирующим обменным взаимодействием существуют состояния, в которых при изменении температуры происходят фазовые переходы типа парамагнетик—ферромагнетик (антиферромагнетик)—неэргодическая фаза. Последняя более известна в литературе как «возвратная фаза». Она существует ниже некоторой температуры  $T_f$ , где возникают явления необратимости магнитной восприимчивости и ряд других аномалий физических свойств (см., например, [1, 2]). По поводу основного магнитного состояния возвратной фазы до сих пор нет единого мнения как с теоретической, так и с экспериментальной точек зрения [3].

Действительно, из расчетов [4–6], выполненных в рамках модели Шеррингтона—Киркпатрика (ШК) [4], для изинговского спина с бесконечным радиусом взаимодействия вытекало, что ниже некоторой линии  $T_f$  (названной впоследствии линией де Алмейды—Таулеса (АТ) [5]) сильно неупорядоченный ферромагнетик переходит в неэргодическую фазу, которая описывается однородно отличными от нуля параметрами дальнего порядка и спин-стекольным (функцией Паризи  $q(x)$  [6]). Как показали затем Коренблит и Шендер [7], аналогичный переход претерпевают и сильно неупорядоченные антиферромагнетики, поэтому они предложили называть возвратную фазу ферромагнитным или антиферромагнитным спиновым стеклом.

Состояния, описываемые дальним магнитным порядком по  $Z$ -проекциям и спин-стекольным по  $X$ -,  $Y$ -проекциям полного момента, возникающие ниже линии АТ, вытекали также из расчетов Медведева [8], сделанных в рамках теории среднего поля для гайзенберговского спина с бесконечным радиусом взаимодействия. В его работах эти состояния получили названия асперомагнетизма и антиасперомагнетизма соответственно. Однако впоследствии Габэ и Тулуз (ГТ) [9] показали, что замораживание  $X$ -,  $Y$ -проекций гайзенберговского спина происходит при температурах несколько выше линии АТ, вызывая слабую необратимость. Естественно, что по ГТ на линии АТ, где происходит замораживание  $Z$ -проекций, дальний магнитный порядок должен уменьшаться, хотя и не исчезать полностью.

Успехи многих экспериментаторов были направлены на проверку справедливости этих теоретических выводов [10-18]. Однако разнообразие фактов и трудности их истолкования не давали возможности предпочесть какую-либо из этих моделей.

Анализ экспериментальных данных показывает, что практически во всех случаях антиферромагнитного спинового стекла параметр дальнего порядка, который однозначно определяется по температурной зависимости когерентного магнитного рассеяния, не испытывает каких-либо скачков при переходе через линию  $T_f$ . Однако такого вывода нельзя сделать из имеющихся экспериментальных данных для ферромагнитной возвратной фазы, поскольку магнитные методы становятся неопределенными из-за доменных эффектов, а нейтронографические исследования затруднены малостью вклада магнитного когерентного рассеяния на фоне большого рассеяния ядерной природы.

Попытки изучения когерентного ферромагнитного рассеяния, представленные на AuFe [10] и  $\text{Eu}_{1-x}\text{Sr}_x\text{S}$  [11] системах, привели к противополож-

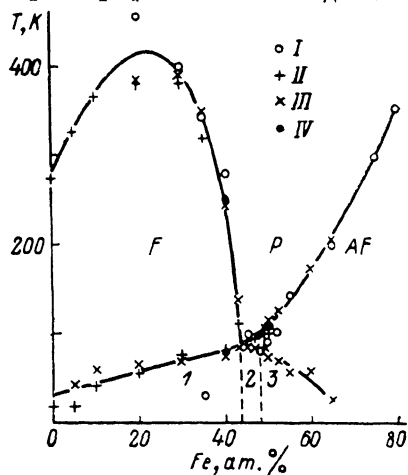


Рис. 1. Магнитная фазовая диаграмма  $\gamma\text{-Ni}_{80-x}\text{Fe}_x\text{Mn}_{20}$  сплавов.

F — ферромагнетик, P — парамагнетик, AF — антиферромагнетик. 1 и 3 — ферромагнитная и антиферромагнитная возвратные фазы соответственно, 2 — кластерное спиновое стекло. I — [20], II — [21], III — [22], IV — наст. раб.

ным результатам. В первом случае интенсивность ферромагнитного отражения изменялась в соответствии с функцией Бриллюэна, а во втором она падала при уменьшении температуры, свидетельствуя о «развале» ферромагнитного параметра порядка. Отсутствие однозначного вывода о поведении ферромагнитного параметра порядка в возвратных переходах в значительной мере оставляет открытым вопрос о природе основного состояния неэргодической фазы.

Цель настоящей работы состояла в том, чтобы на примере одной системы сплавов, где реализуется полный переход от ферромагнетизма к антиферромагнетизму, проследить за температурным изменением параметров порядка в сильно неупорядоченных ферромагнетиках и антиферромагнетиках при переходе в возвратную фазу. Для этого подходящим объектом оказалась система  $\gamma\text{-Ni}_{80-x}\text{Fe}_x\text{Mn}_{20}$  сплавов, где путем специального подбора изотопического состава можно значительно понизить ядерную компоненту когерентного рассеяния нейтронов и тем самым более надежно получить результат температурного изменения ферромагнитного когерентного рассеяния.

Магнитные свойства  $\gamma\text{-Ni}_{80-x}\text{Fe}_x\text{Mn}_{20}$  сплавов исследовались неоднократно [19-22], и по результатам статических и динамических измерений на магнитную фазовую диаграмму были нанесены основные линии, определяющие границы фаз (рис. 1); поэтому для изучения природы основного состояния возвратной фазы были взяты только те сплавы, где наблюдалось соответствующее необратимое поведение магнитной восприимчивости.

## 1. Методика эксперимента.

Сплавы  $\gamma\text{-Ni}_{80-x}\text{Fe}_x\text{Mn}_{20}$  с содержанием железа  $x=40, 48, 50$  ат. % выплавляли из чистых компонентов естественного изотопического состава. Отливки проковывались и проходили гомогенизацию при температуре

1050 °C в течение 100 ч; затем из поковок готовились образцы для магнитных и нейтронографических исследований, которые перед проведением измерений проходили закалку в воду после отжига при 1050 °C в течение 2 ч. Кроме того, дополнительно был изготовлен образец сплава  $\text{Ni}_{40}\text{Fe}_{40}\text{Mn}_{20}$  с использованием изотопа  $\text{Ni}^{62}$ , у которого отрицательная амплитуда ядерного рассеяния  $b = -0.87 \cdot 10^{-12}$  см (паспортные данные по составу изотопа  $b = -0.846 \cdot 10^{-12}$  см). Это позволило при заданной концентрации компонентов Fe ( $b = 0.95 \cdot 10^{-12}$  см) и Mn ( $b = -0.37 \cdot 10^{-12}$  см) получить сплав, приближающийся к условию «нулевой матрицы» для когерентного рассеяния. Указанный образец прошел такую же термообработку, как обычные образцы.

Исследования когерентного и некогерентного рассеяния нейтронов проводили на дифрактометре, установленном на одном из горизонтальных пучков реактора ИВВ-2М с использованием длины волны нейтронов  $\lambda = 0.181$  нм, полученной отражением от плоскости (111) пластически деформированного монокристалла германия. Магнитные исследования проводили на магнитометре с вибрирующим образцом в полях до  $1.6 \cdot 10^5$  А/м. Диапазон изменения температуры составлял от 4.2 до 300 К, что соответствовало изменению магнитного состояния до и выше температуры Кюри и Нееля указанных сплавов.

## 2. Экспериментальные результаты

**Магнитные измерения.** Для отождествления магнитного состояния указанных сплавов были проведены измерения температурных зависимостей намагниченности образцов, охлажденных до 4.2 К без маг-

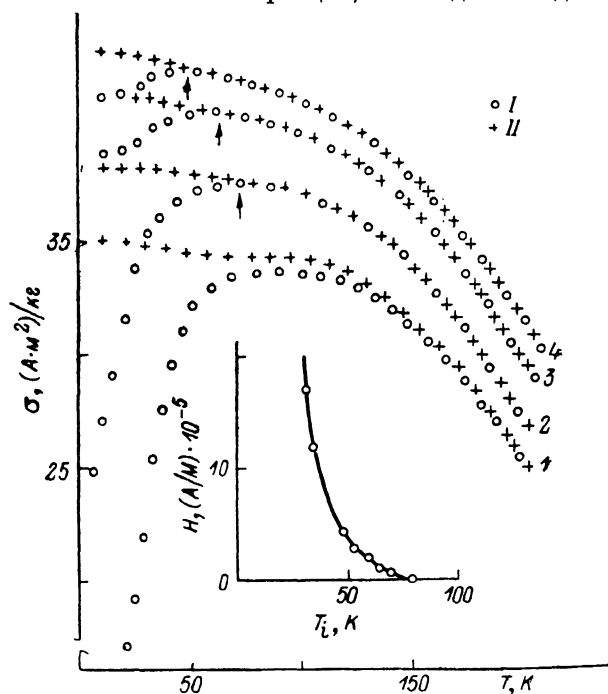


Рис. 2. Температурная зависимость ZFC (I) и FC (II) намагниченности  $\text{Ni}_{40}\text{Fe}_{40}\text{Mn}_{20}$  сплава с нулевой матрицей когерентного рассеяния в различных магнитных полях.

$H$ , А/м: 1 —  $3 \cdot 10^4$ , 2 —  $6 \cdot 10^4$ , 3 —  $1 \cdot 10^5$ , 4 —  $3 \cdot 10^5$ . Стрелки указывают  $T_c$  (H).】

нитного поля (ZFC) и в магнитном поле (FC). Для изотопического образца эти данные приведены на рис. 2, из которого видно, что ZFC- и FC-кривые расходятся при некоторой температуре  $T_c$ , зависящей от величины измерительного поля, как  $\sim H^t$ , где  $t$  изменяется от  $1/8$  до  $1/3$  с увеличением поля.

$H-T$ -диаграмма (см. вставку) позволяет с некоторой точностью определить  $T_i(0) = T_f = 80$  К. Это значение хорошо совпадает с температурой, полученной ранее другими методами [20], в том числе и измерениями ди-

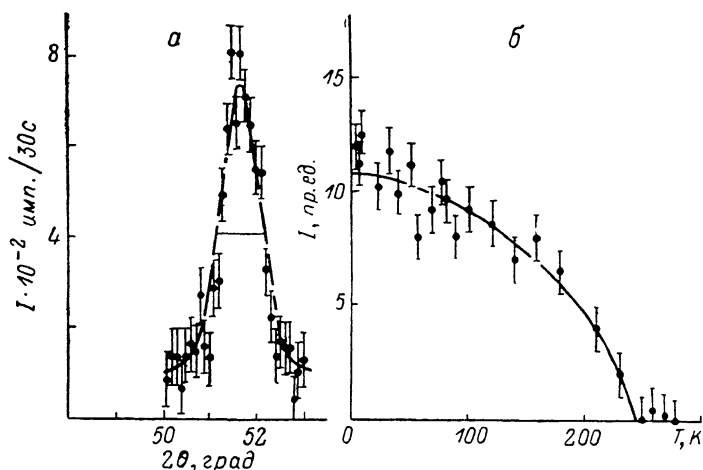


Рис. 3. Магнитный когерентный рефлекс  $(111)_M$  (а) для сплава  $Ni_{40}Fe_{40}Mn_{20}$  и температурная зависимость его интегральной интенсивности (б).

намической восприимчивости [21]. Температура Кюри этого сплава по магнитным данным  $T_c = 240$  К. Аналогичная необратимость магнитной восприимчивости присуща и антиферромагнитным сплавам с  $x = 48, 50$ . Приведенные на рис. 1 данные по  $T_f$  взяты из работы [22], где исследования проводились на образцах сплавов той же плавки.

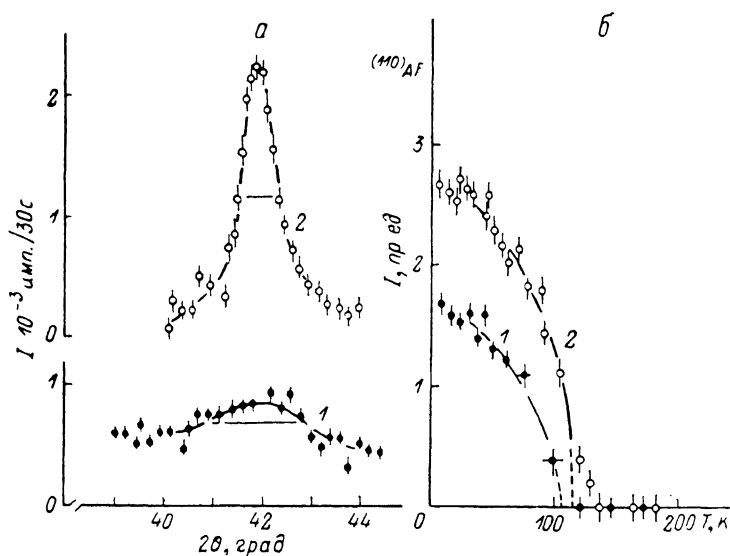


Рис. 4. Антиферромагнитные когерентные рефлексы  $(110)$  (а) для сплавов  $Ni_{32}Fe_{48}Mn_{20}$  (1),  $Ni_9Fe_{50}Mn_{20}$  (2) и температурные зависимости их интегральной интенсивности (б).

Р а с с е я н и е н е й т р о н о в. При исследовании когерентного рассеяния нейтронов оказалось, что изотопический образец действительно был близок к условию «нулевой матрицы» рассеяния, поскольку интенсивность структурных ядерных отражений оказалась слабой. При 4.2 К не было обнаружено никаких следов антиферромагнитного дальнего порядка

в положениях  $(1/2\ 1/2\ 0)$ ,  $(100)$  и  $(110)$ . В то же время интенсивность структурных отражений  $(111)$  и  $(200)$  при 4.2 К возросла.

На рис. 3, а представлена разность интенсивностей  $I_{4.2\text{ К}} - I_{300\text{ К}}$  в окрестности структурного отражения  $(111)$ . На рис. 3, б показана температурная зависимость интегральной интенсивности указанного рефлекса, которая подчиняется бриллюэновской зависимости для ферромагнетика с температурой Кюри  $T_c = 240\text{ К}$ . Как видно из рис. 3, точности измерений достаточно, чтобы сделать вывод, что никаких тенденций к уменьшению интенсивности ниже  $T_f = 80\text{ К}$  не существует. Не наблюдается также заметных изменений в ширине линии магнитного рефлекса по сравнению со структурным ядерным (рис. 3, сплошная линия), и его полуширина на полувысоте соответствует аппаратурному разрешению. Для этого использовано отражение  $(111)_\pi$  антиферромагнитного сплава с  $x=50$ , у которого отсутствует магнитный вклад в интенсивность. Форма рефлекса  $(111)_\pi$  описывается функцией Гаусса, что в совокупности с данными об отсутствии уширения свидетельствует о существовании областей когерентного рассеяния, размер которых превышает десятки нанометров.

Аналогичный вывод следует из данных по изучению когерентного рассеяния антиферромагнитной возвратной фазы. В левой части рис. 4 пред-

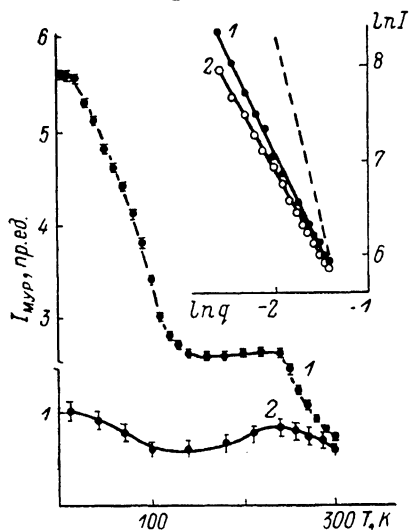


Рис. 5. Температурная зависимость интенсивности магнитного малоуглового рассеяния нейтронов для сплава  $\text{Ni}_{40}\text{Fe}_{40}\text{Mn}_{20}$ . 1 — 0.08, 2 — 0.15  $\text{\AA}^{-1}$ .

Рис. 5. Температурная зависимость интенсивности магнитного малоуглового рассеяния нейтронов для сплава  $\text{Ni}_{40}\text{Fe}_{40}\text{Mn}_{20}$ .

1 — 0.08, 2 — 0.15  $\text{\AA}^{-1}$ .

ставлен общий вид когерентных рефлексов  $(110)_\pi$  для сплавов с  $x=48$  и 50 при 4.2 К. Для сплава  $x=50$  этот рефлекс имеет гауссову форму и ширину, соответствующую аппаратурной при той же форме. Несколько более уширенным оказался тот же рефлекс для сплава с  $x=48$ . Однако температурная зависимость интенсивности рефлекса  $(110)_\pi$  показывает, что для обоих сплавов в окрестности температур возвратных переходов (80 и 75 К) отсутствуют какие-либо особенности. При этом температуры Нееля, полученные при данных по когерентному рассеянию нейтронов, хорошо коррелируют с данными магнитных исследований [21, 22].

В противоположность выводу, полученному из температурных зависимостей магнитного когерентного рассеяния нейтронов, исследование некогерентного малоуглового рассеяния нейтронов в области низких температур привело к обнаружению резкого возрастания интенсивности в области  $T_f$  ферромагнитного сплава (рис. 5). Интенсивность этого рассеяния увеличивается с уменьшением переданного импульса нейтрона  $q$ , а наложение внешнего магнитного поля величиной  $\sim 8 \cdot 10^4\text{ А/м}$  перпендикулярно вектору рассеяния не приводит к его исчезновению. На вставке рис. 5 показана угловая зависимость интенсивности рассеяния в логарифмических координатах в возвратной фазе 4.2 К (1) и парамагнитном состоянии 293 К (2). В обоих случаях наблюдается линейная зависимость, которая свидетельствует о выполнении закона  $I \sim 1/q^n$ , где  $n$  близко к 2. Но при переходе в возвратную фазу эта степень несколько возрастает, что свидетельствует о вкладах в малоугловое рассеяние, пропорциональных  $1/q^4$ .

Рассмотрим возможную интерпретацию полученных результатов, которую можно сформулировать как прямое доказательство сохранения параметра магнитного порядка (ферромагнитного и антиферромагнитного) в возвратной фазе на примере  $\gamma$ -NiFeMn сплавов. Заслуживают внимания два аспекта этого утверждения: насколько оно является общим и какова природа основного магнитного состояния такой возвратной фазы?

В настоящее время имеется достаточно много прямых экспериментальных доказательств о сохранении антиферромагнитного параметра порядка в возвратной фазе [1, 23]. Исследованные здесь сплавы с  $x=48$  и 50 подтверждают этот вывод.

Что касается возвратной ферромагнитной фазы, то сохранение магнитного параметра в  $\gamma$ -NiFeMn сплавах, полученное здесь, согласуется с выводами работ, выполненных на AuFe [10] и Ni<sub>3</sub>Mn [16] сплавах, но противоречит работе по Eu<sub>1-x</sub>Sr<sub>x</sub>S [11]. В связи с этим можно предположить, что, поскольку  $T_f \approx 5$  К для Eu<sub>1-x</sub>Sr<sub>x</sub>S значительно меньше, чем для AuFe и Ni<sub>3</sub>Mn (40 К) и  $\gamma$ -NiFeMn (80 К), по-видимому, на размер магнитного кластера в возвратной фазе большое влияние оказывают эффекты локальной анизотропии. Вероятно, анизотропные взаимодействия в Eu<sub>1-x</sub>Sr<sub>x</sub>S значительно меньше, чем в исследованных нами сплавах. Отсюда можно сделать вывод, что обращение в нуль ферромагнитного параметра порядка ниже  $T_f$  тем вероятнее, чем ниже  $T_f$ .

Остановимся теперь на природе основного магнитного состояния возвратной фазы с ненулевым параметром дальнего магнитного порядка. По-видимому, можно выделить две возможности: либо это одна фаза, описываемая одновременно дальним магнитным и спин-стекольным параметрами порядка, либо это смесь двух фаз, каждая из которых имеет свой параметр порядка. Если справедлива первая модель, то следует ожидать, что линии АТ и ГТ сливаются в одну, где одновременно хаотически замораживаются все компоненты спина, а радиус корреляции для магнитного и спин-стекольного параметра порядка является бесконечным.

Отсутствие температурного уширения ферромагнитного рефлекса (111)<sub>м</sub> в сплаве с  $x=40$  и антиферромагнитного рефлекса (110)<sub>м</sub> в сплавах с  $x=48$ , 50, а также плавное изменение его интенсивности с температурой позволяют сделать вывод, что магнитноупорядоченная фаза сохраняет параметр порядка в пределах области когерентного рассеяния вплоть до 4.2 К. Это может соответствовать первой модели, и тогда это состояние можно рассматривать как асперомагнитное или антиасперомагнитное, характеризующееся бесконечным радиусом корреляции по магнитному и спин-стекольному параметру порядка.

Однако появление малоуглового рассеяния нейтронов при низких температурах при данных переданных импульсах отражает факт существования неоднородностей спин-стекольного характера с конечным радиусом корреляции  $\sim 1-2$  нм. Эта величина может возрасти до десятков нанометров, если будем изучать рассеяния при меньших  $q$ , но так или иначе некогерентное рассеяние, которое непосредственно связано с неупорядоченной подсистемой спинов, появляется как результат существования спиновых флуктуаций конечных размеров.

По этим причинам в настоящей работе мы предлагаем рассматривать основное состояние возвратной фазы как смесь двух фаз. Одна из них описывается параметром дальнего магнитного порядка и соответствует бесконечному кластеру или кластерам конечных размеров не менее 20—50 нм, а другая — спин-стекольным параметром порядка в областях конечных размеров, обменно связанных через поверхностные спины с кластерами дальнего магнитного порядка. Пространственную картину этого можно представить следующим образом. Бесконечный кластер дальнего магнитного порядка имеет поверхность фрактального характера и сложным образом испещрен спин-стекольными областями, центрами которых являются фрустрированные атомы. Такие области спинового стекла по-

являются ниже температуры  $T_c$ , становятся дополнительными центрами образования статических доменных границ и способствуют резкому измельчению магнитных доменов, не устраняя совсем доменной структуры. При этом размер доменов еще достаточно велик (по крайней мере не менее 20—50 нм), чтобы утверждать о совпадении картины когерентного рассеяния в бесконечном кластере и в кластере больших, но конечных размеров. Фазовый переход в  $T_c$ , связанный с измельчением доменной структуры, конечно, приведет к изменению ферромагнитных свойств сплава в слабых полях. В частности, это проявляется в увеличении коэрцитивной силы ниже  $T_c$ , появлении смещенной петли гистерезиса в сплавах, охлажденных в магнитном поле до 4.2 К, а также в кажущемся «занулении» спонтанной намагниченности по измерению кривых  $\sigma(H)$  в малых полях [22]. Все это происходит из-за резкого уменьшения процессов смещения доменных границ при намагничивании и увеличении доли процессов вращения намагниченности. Последнее может являться и причиной того, что коэффициент обменной жесткости  $A$  в возвратной фазе ниже, чем в ферромагнитной [16].

Полученные здесь результаты о сохранении магнитного параметра порядка в возвратной ферромагнитной и антиферромагнитной фазах продемонстрированы нейтронографическими методами. Это следует понимать как утверждение о существовании областей когерентного рассеяния нейтронов в масштабе примерно  $D \geq 20$  нм. При этом области некогерентного рассеяния, связанные с областями, где нет дальнего порядка, имеют совсем другой масштаб неоднородностей,  $d \leq 2$  нм. Такое различие в масштабах объектов рассеяния свидетельствует о пространственной дисперсии магнитноупорядоченных и магнитноразупорядоченных областей. Поэтому предложенная здесь модель основного магнитного состояния возвратной фазы сводится к пониманию ее как смеси двух фаз — магнитноупорядоченной и спин-стекольной — или к представлению ее как фрустрированного магнетика, где в качестве дополнительных доменных границ выступают области атомных спинов, разориентированных относительно соседних доменов благодаря обменным силам. В ферромагнетике эти области появляются за счет увеличения при низких температурах антиферромагнитного взаимодействия, а в антиферромагнетике — ферромагнитного. Поэтому фазовый переход сильно неупорядоченного магнетика в возвратную фазу при некоторой температуре  $T_c$  следует понимать как кооперативное замораживание части обменно связанных спинов на поверхности фрактального характера, которая становится препятствием для движения доменных границ и приводит к резкому измельчению доменов.

Авторы считают своим приятным долгом выразить благодарность Ю. А. Дорофееву за помощь в эксперименте, а А. В. Заборову за обсуждение результатов.

#### Список литературы

- [1] Huang C. Y. // JMMM. 1985. V. 51. N 1. P. 1—74.
- [2] Fisher K. // Phys. St. Sol. (b). 1983. V. 116. P. 357—388; 1985. V. 130. P. 13—32.
- [3] Salamon M. B. // J. Appl. Phys. 1987. V. 61. N 8. P. 2942—2947.
- [4] Sherrington D., Kirkpatrick S. // Phys. Rev. 1975. V. 35. P. 1792.
- [5] de Almeida J. R. L., Thouless D. J. // J. Phys. A. 1978. V 11. P. 1983—1989.
- [6] Parisi G. // J. Phys. A. 1980. V. 13. N 3. P. 1101—1107.
- [7] Кореяблит П. Я., Шендер Е. Ф. // ЖЭТФ. 1985. Т. 89. № 11. С. 65—75.
- [8] Медведев М. В. // ФТТ. 1979. Т. 21. № 11. С. 3356—3367.
- [9] Gabay M., Toulouse G. // Phys. Rev. Lett. 1981. V. 47. N 3. P. 201—203.
- [10] Murani A. P. // Sol. St. Comm. 1980. V. 34. P. 705—709; Phys. Rev. 1983. V. 28B. N 1. P. 432—440.
- [11] Maletta H. // J. Appl. Phys. 1979. V. 50. N 11. P. 7312—7316.
- [12] Дорофеев Ю. А., Меньшиков А. З., Такзей Т. А. // ФММ. 1983. Т. 55. № 5. С. 949—956.
- [13] Alplli G., Shapiro S. H., Birrgenan R. J., Chen H. S. // Phys. Rev. 1984. V. 29. N 5. P. 2589—2598.

- [14] Такзей Г. А., Костышин А. М., Гребенюк Н. П., Сыч И. И. // ЖЭТФ. 1986. Т. 89. № 6 (12). С. 2181—2189.
- [15] Такзей Г. А., Костышин А. М., Сыч И. И. // Письма в ЖЭТФ. 1986. Т. 43. № 9. С. 425—428.
- [16] Abdul-Razzag W., Kouvel J. S., Clans H. // Phys. Rev. B. 1984. V. 30. N 11. P. 6480—6488.
- [17] Aerpli G., Shapirro S. M., Maletta H., Bergenceon R. J., Chen H. S. // J. Appl. Phys. 1984. V. 551. N 6. P. 1628—1633.
- [18] Рунов В. В., Гинабург С. Л., Топерверг Б. П., Третьяков В. Д., Окороков А. И., Мальцев Е. И. // ЖЭТФ. 1988. Т. 94. № 1. С. 325—336.
- [19] Меньшиков А. З., Казанцев В. А., Кузьмин Н. Н. // ЖЭТФ. 1986. Т. 71. № 2. С. 648—655.
- [20] Menshikov A. Z., Burlet P., Chamberod A., Tholence J. L. // Sol. St. Comm. 1981. V. 34. N 10. P. 1093—1095.
- [21] Дерягин А. В., Тьков А. В. // ЖЭТФ. 1985. Т. 88. № 1. С. 237—242.
- [22] Такзей Г. А. // Автореф. докт. дис. Киев, 1988. 389 с.
- [23] Po-Zen Wong, von Molnar, Palstra T. T., Mydosh J. A., Yoshizawa H., Shapiro S. M. // Phys. Rev. Lett. 1985. V. 55. N 19. P. 2043—2046.

Институт физики металлов  
УрО АН СССР  
Свердловск

Поступило в Редакцию  
6 марта 1989 г.