

УДК 669.12 235 24 : 538.958.955

© 1991

ФЛУКТУАЦИОННОЕ ПОСЛЕДЕЙСТВИЕ ПРИ МАГНИТОСТРУКТУРНОМ ФАЗОВОМ ПЕРЕХОДЕ 1-го РОДА АНТИФЕРРО—ФЕРРОМАГНЕТИЗМ В СПЛАВЕ (Fe, Ni)Rh

Е. А. Розенберг, А. В. Четвериков

Детально исследовано поведение необратимых «восприимчивостей» χ_{irr} и d_{irr} , а также постоянных S_T и S_H , характеризующих магнитное последствие деформаций в сплаве $(Fe_{0.965}Ni_{0.035})_{0.49}Rh_{0.51}$ в области индуцируемых температурой и полем магнитоструктурных фазовых переходов 1-го рода. Из экспериментальных данных оценены универсальные (не зависящие от формы образца и вида зависимостей деформации от температуры и поля) константы последствия kT/r и kT/q , а также активационные объемы V_T и V_H . Полученные результаты сравниваются с известными для флуктуационного последствия намагниченности в высококоэрцитивных материалах. Они правильно описываются ранее построенной теорией [2].

1. В [1] было впервые экспериментально обнаружено гигантское по времени и величине магнитное последствие (МП) после изменения температуры T на примере последствия термического расширения при магнитоструктурном фазовом переходе 1-го рода (МФП-1) из антиферро- в ферромагнитное состояние для сплавов на основе $Fe_{0.49}Rh_{0.51}$. Дальнейшее изучение этого последствия в области МФП-1 в работе [2] позволило: 1) однозначно установить его флуктуационную природу, 2) обнаружить в упомянутых сплавах традиционно исследуемое в магнетиках МП после изменения магнитного поля H , 3) доказать эквивалентность T - и H - индуцируемого МП, 4) теоретически описать полученные результаты.

Следующим необходимым этапом исследования магнитного последствия при МФП-1 является подробное изучение наблюдаемых эффектов для индуцированных H и T фазовых переходов. Это, с одной стороны, позволит проверить справедливость теоретических представлений, развитых в [2], а с другой — даст возможность сопоставить полученные результаты с данными (см., например, [3-5]) по МП намагниченности высококоэрцитивных материалов при их перемагничивании. Эти задачи и решались в настоящей работе.

Все измерения проведены на поликристаллическом ОЦК сплаве $(Fe_{0.965}Ni_{0.035})_{0.49}Rh_{0.51}$, получение и аттестация которого описаны в [6]. С ростом T при $T_k^{\downarrow} \approx 151.5$ К в нем происходит спонтанный МФП-1 из антиферромагнитного (с волновым вектором $\mathbf{k} = \{1/2, 1/2, 1/2\}$) в ферромагнитное состояние ($\mathbf{k} = \{0, 0, 0\}$) [6]. Такой переход сопровождается, например, гигантскими аномалиями относительного удлинения [1, 2] порядка $2 \cdot 10^{-3}$, а также [6, 7] электро- и магнитосопротивления ≈ 80 мкОм·см и ≈ 80 % соответственно. Переход является гетерогенным (существуют две фазы), о чем свидетельствует то, что он совершается не скачком при одной температуре, а сравнительно плавно в интервале $\Delta T \approx 10$ К. При охлаждении из ферромагнитного состояния обратный гетерогенный МФП-1 регистрируется при $T_k^{\uparrow} \approx 122.5$ К. Гистерезис, таким образом, составляет 29 К.

Исследуемым внутренним термодинамическим параметром, как и в [1, 2], являлась деформация λ (ее выбор подробно обоснован в [2]). Деформации измерялись с точностью до $5 \cdot 10^{-7}$ малобазными тензодатчиками сопротивления по методике [8]. Температурный интервал измерений $77 \leq T \leq 200$ К включал в себя область гистерезисных изменений $\lambda(T)$ (область МФП-1), использовалось также постоянное магнитное поле $|H| \leq 16$ кЭ. Наложение H позволяет исследовать не только температурные, но и полевые сечения «многомерной» гистерезисной области МФП-1 в «пространстве» H, T, λ [2]. МП регистрируется на границах этой области (где нарушается линейность зависимостей $\lambda(H, T)$). Измерения последствия после «мгновенного» изменения H или T проводились через интервалы времени $\Delta t = 60$ с вплоть до достижения относительно устойчивого значения λ (изменения $\lambda \leq 5 \cdot 10^{-7}$ за $\Delta t = 120$ с). Точность стабилизации T и H при измерении МП составляла 0.02 К и 0.2 % соответственно.

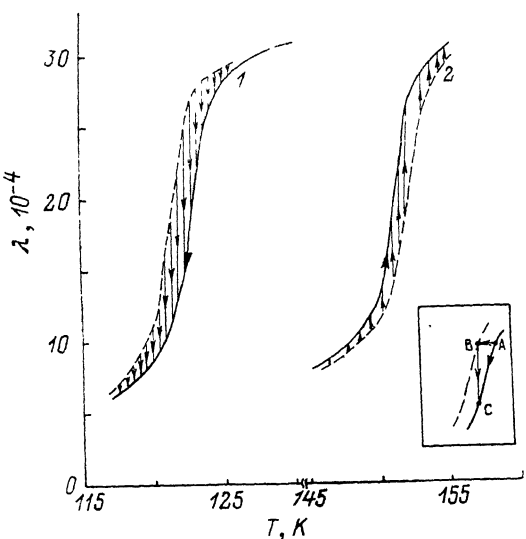


Рис. 1. Зависимости деформации сплава $(\text{Fe}, \text{Ni})_{0.49}\text{Rh}_{0.51}$ от температуры в области магнито-структурного фазового перехода 1-го рода.

1 — нисходящая, 2 — восходящая ветви гистерезисных изменений $\lambda(T)$. Сплошные кривые — относительно устойчивые, штриховые — неустойчивые состояния. На вставке — схема измерения магнитного последствия.

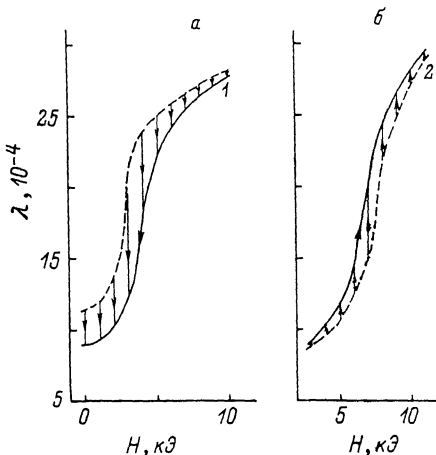


Рис. 2. Зависимости деформации от поля в области индуцированного H фазового перехода.

Обозначения те же, что и на рис. 1. Температура измерения (К): 1 — 119.4, 2 — 146.5.

Деформации λ измерялись как функции T, H и t

$$\lambda = \frac{\Delta l}{l} = \frac{l(T, H, t) - l(T_r, 0, \infty)}{l(T_r, 0, \infty)}, \quad (1)$$

где l — длина образца; T_r — реперная температура, равная в нашем случае 77 К; $t = \infty$ условно обозначает устойчивое во времени состояние. Для $H = 0$ деформация λ описывает термическое расширение изучаемого сплава и последствие термического расширения. Если $H \neq 0$, то λ соответствует термическому расширению и его последствию в магнитном поле.

2. На рис. 1 приведены нисходящая (1) и восходящая (2) ветви температурного гистерезиса термического расширения, существующего в сплаве $(\text{Fe}, \text{Ni})_{0.49}\text{Rh}_{0.51}$ при спонтанном МФП-1 по температуре. Штриховые кривые соответствуют неустойчивым, а сплошные — относительно устойчивым (после окончания МП) состояниям на этих ветвях. Измерения проведены следующим образом (см. вставку на рис. 1): образец медленно (со скоростью ≤ 5 К/ч) нагревался (или охлаждался) до заданного значения T и выдерживался при этой температуре $\Delta t \approx 1$ ч (точка А), затем

температура «мгновенно» (за время $\Delta t_1 \ll \Delta t_{\text{МП}}$ — время длительности МП) менялась на $\Delta T = 2$ К (точка *B*), далее она стабилизировалась и измерялось МП (вертикальные стрелки на рис. 1) в течение $\Delta t_{\text{МП}}$, пока не достигалось относительно устойчивое значение λ (точка *C*). Для получения следующих точек на кривых рис. 1 образец снова приводился в исходное состояние — охлаждался до 77 К (антиферромагнетик) или нагревался до 200 К (ферромагнетик), после чего повторялся описанный цикл измерений. Температуры измерений выбирались так, чтобы для соседних T интервалы изменений λ при МП перекрывались.

На рис. 2 представлены неустойчивые и относительно устойчивые восходящая и нисходящая ветви индуцированного H фазового перехода в изученном сплаве. Методика их измерения отличалась от изложенной ранее. Восходящие ветви (кривые 2, рис. 2) получены после нагрева образца до $T_1 \approx 146.5$ К $<$ $T_k^\uparrow \approx 151.5$ К, стабилизации этой температуры, выдержки при T_1 в течение часа, включения поля H требуемой величины и измерения МП при T_1 , $H = \text{const}$. Магнитная фазовая диаграмма исследуемого сплава [6, 7] такова, что наложение H уменьшает температуру перехода. В связи с этим нисходящие ветви (кривые 1, рис. 2) измерялись после охлаждения образца из ферромагнитного состояния до $T_2 \approx 119.4$ К $<$ T_k^\downarrow в магнитном поле $H_2 = 12$ кЭ, стабилизации этой температуры, выдержки в ней, уменьшения H_2 на ΔH требуемой величины и измерения МП при T_2 , $(H_2 - \Delta H) = \text{const}$. Отметим, что данные рис. 1, 2 являются прямыми экспериментальными подтверждениями существования «многомерной» гистерезисной области в «пространстве» T, H, λ вблизи МФП-1, на границах которой возникают процессы МП (переход от неустойчивых к относительно устойчивым состояниям). Впервые представления о таких областях были введены в [9] и далее развиты в [2].

Используя результаты, представленные на рис. 1, 2, удалось исследовать поведение параметров, описывающих МП, в области существования такого последствия. Из квазиравновесных, относительно устойчивых зависимостей $\lambda(T)$ и $\lambda(H)$ вычислялись необходимые для дальнейшего анализа МП необратимые коэффициент термического расширения α_{irr} и чувствительность по полю d_{irr}

$$\alpha_{irr} = \frac{\partial \lambda}{\partial T} - \left(\frac{\partial \lambda}{\partial T} \right)_{rev},$$

$$d_{irr} = \frac{\partial \lambda}{\partial H} - \left(\frac{\partial \lambda}{\partial H} \right)_{rev}. \quad (2)$$

Специально проведенный эксперимент показал, что обратимый коэффициент термического расширения $(\partial \lambda / \partial T)_{rev}$ практически постоянен и близок к измеренному в магнитно-однородных состояниях сплава (где зависимости $\lambda(T)$ линейны). Обратимая же чувствительность $(\partial \lambda / \partial H)_{rev}$ близка к нулю.

Для того чтобы универсальным и однозначным образом охарактеризовать все точки на кривых $\lambda(T)$ и $\lambda(H)$, введем величину необратимой деформации λ_{irr}

$$\lambda_{irr}(T, H) = \lambda_{\text{нзм}}(T, H) - \int_{T_r}^T \alpha_{rev} dT - \int_0^H d_{rev} dH, \quad (3)$$

где $\lambda_{\text{нзм}}$ — измеренная деформация, $T_r = 77$ К — реперная температура. Для нашего случая

$$\lambda_{irr}(T, H) = \lambda_{\text{нзм}}(T, H) - \alpha_{rev}(T - T_r). \quad (4)$$

Напомним, что при флуктуационном МП, вызванном изменениями T или H , зависимости λ от t имеют соответственно вид

$$\lambda_T = \text{const} + S_T \ln t,$$

$$\lambda_H = \text{const} + S_H \ln t, \quad (5)$$

где S_T и S_H — константы МП. Характерные зависимости $\lambda_T(\ln t)$ и $\lambda_H(\ln t)$, из которых вычислялись S_T и S_H , представлены на рис. 3. Видно, что для аномального (или гигантского) последействия [1, 2, 9] они не линейны. Т. е. константы МП меняются в процессе последействия. Согласно [2], это обусловлено изменением при МП относительного объема магнитных фаз, который характеризует величина λ_{irr} . Для каждого наблюдаемого процесса последействия (например, по T) из зависимости

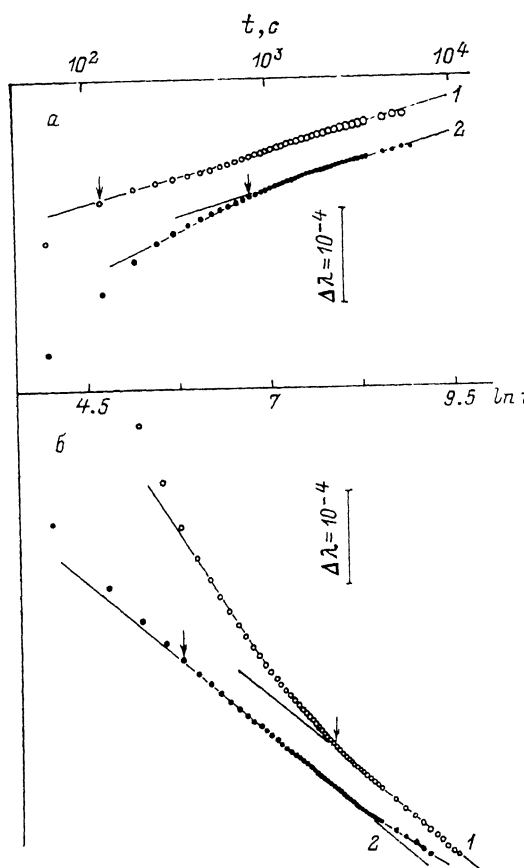


Рис. 3. Зависимости $\lambda(\ln t)$ при измерении магнитного последействия.

a — T -индуцированный фазовый переход, восходящая ветвь. Температура измерения (К): 1 — 153.4, 2 — 153; b — H -индуцированный фазовый переход, нисходящая ветвь. Значения изменения поля ΔH (кЭ): 1 — 9, 2 — 10.

$\lambda_T(\ln t)$, используя (4) и (5), можно получить кривые $S_T(\lambda_{irr})$. Как уже отмечено, при измерениях МП для соседних T интервалы изменений $\lambda_{взм}$ перекрывались. Согласно (4), величины $\lambda_{взм}$ однозначно связаны с λ_{irr} (перекрываются и интервалы изменений λ_{irr}). Оказалось, что в такой области перекрытия λ_{irr} значения $S_T(\lambda_{irr})$ для соседних T совпадают. Таким образом, S_T для данной ветви является однозначной функцией λ_{irr} . Аналогичный результат получен и для S_H .

Графики зависимостей $S_T(\lambda_{irr})$ и $S_H(\lambda_{irr})$ приведены на рис. 4 (а, б). Там же изображены зависимости $\chi_{irr}(\lambda_{irr})$ и $d_{irr}(\lambda_{irr})$. Как видно из рис. 4, а, зависимости S_T и χ_{irr} от λ_{irr} имеют сложный характер. На восходящей и нисходящей ветвях гистерезисного изменения $\lambda(T)$ наблюдаются три максимума. При этом положения максимумов и их абсолютные величины несколько различаются (ср. рис. 4, а, 1, 2), однако вид зависимостей $S_T(\lambda_{irr})$ и $\chi_{irr}(\lambda_{irr})$ для каждой из ветвей практически совпадает. Согласно рис. 4, б, параметры МП, индуцируемого полем, S_H и d_{irr} имеют более плавные зависимости от λ_{irr} с одним максимумом. Так же как и в случае

T -индуцированного МП (рис. 4, а), наблюдаются различия в величине и положении максимумов кривых $S_H(\lambda_{irr})$ и $d_{irr}(\lambda_{irr})$ на восходящей и нисходящей ветвях изменения $\lambda(H)$ (ср. рис. 4, б, 1, 2). Сохраняется и совпадение вида этих зависимостей для каждой из ветвей. Более плавные зависимости $S_H(\lambda_{irr})$ и $d_{irr}(\lambda_{irr})$ по сравнению с $S_T(\lambda_{irr})$ и $\chi_{irr}(\lambda_{irr})$ могут объясняться влиянием размагничивающего поля. Из-за неэллипсоидальной формы образца величина этого поля различна в разных его точках, что, по-видимому, приводит к наблюдаемому «размытию» зависимостей S_H и d_{irr} от λ_{irr} .

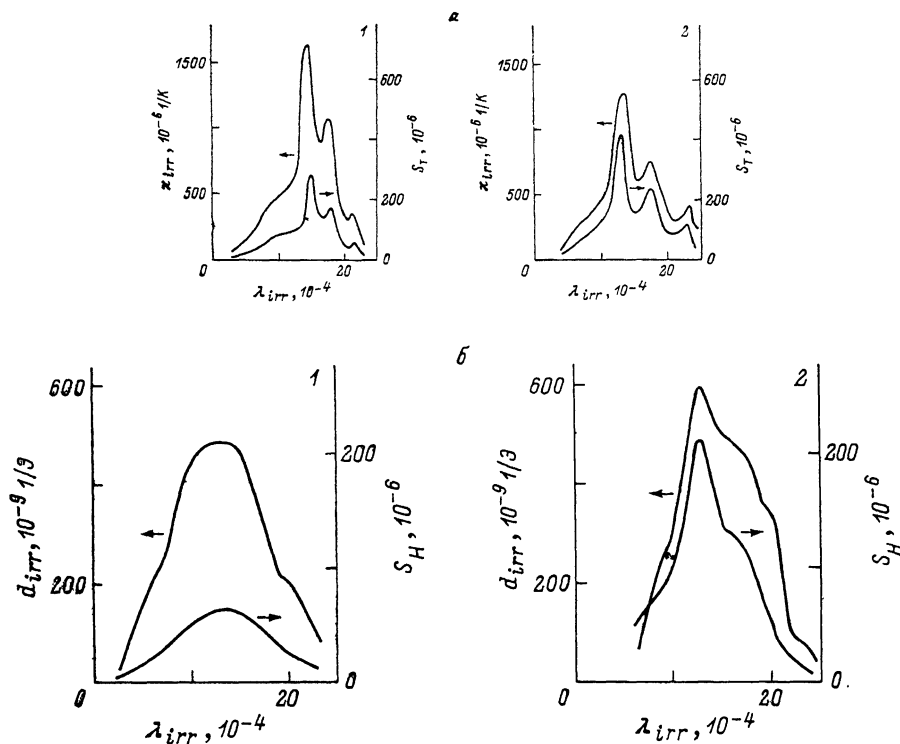


Рис. 4. Связь параметров последыствия с необратимой деформацией для T (а)- и H (б)-индуцированного фазового перехода.

1 — восходящая, 2 — нисходящая ветви гистерезисных зависимостей $\lambda(T)$.

3. Полученные данные позволяют определить аналогично [5, 10] не зависящие от формы ветвей гистерезисных изменений $\lambda(T, H)$ константы МП

$$\frac{kT}{r} = \frac{S_T}{\chi_{irr}}, \quad \frac{kT}{q} = \frac{S_H}{d_{irr}}, \quad (6)$$

где k — константа Больцмана; $r = \partial E_A / \partial T$, $q = \partial E_A / \partial H$ — производные энергии активации (величины энергетических барьеров, преодолеваемых межфазными границами в процессе T - и H -индуцируемых МП).

Значения kT/r и kT/q

	kT/r , К	kT/q , э	V_T , см ³	V_H , см ³
Восходящая ветвь	0.15 ± 0.02	132 ± 5	$20 \cdot 10^{-20}$	$12.7 \cdot 10^{-20}$
Нисходящая ветвь	0.27 ± 0.04	179 ± 5	$11 \cdot 10^{-20}$	$7.6 \cdot 10^{-20}$

Полученные значения константы kT/r для восходящей и нисходящей ветвей зависимости $\lambda(T)$ приведены в таблице. Они практически неизменны для всех λ_{irr} (т. е. температур, при которых происходит МФП-1), отличаясь друг от друга. Константы же kT/q меняются по величине. На рис. 5 представлены зависимости kT/q от поля H , при котором измерялись соответствующие величины d_{irr} . Видно, что значения kT/q слабо меняются при $H \geq 5$ кЭ и резко возрастают при $H \rightarrow 0$. Это, по-видимому, связано с уменьшением намагниченности ферромагнитной фазы в малых полях ($q \sim M_s$). Значения kT/q для $H \geq 5$ кЭ, где эта намагниченность, согласно [6], близка к намагниченности насыщения M_s , также приведены в таблице.

Используя полученные значения kT/r и kT/q , можно оценить величины активационных объемов V_T и V_H (преодолеваемых межфазной границей при термоактивируемом смещении между ближайшими положениями с локальным минимумом и максимумом граничной энергии). В соответствии с [2]

$$r = \frac{\partial E_A}{\partial T} = \frac{\partial (\Delta g^{i,j})}{\partial T} V_T, \quad (7)$$

$$q = \frac{\partial E_A}{\partial H} = \frac{\partial (\Delta g^{i,j})}{\partial H} V_H = M_s V_H, \quad (8)$$

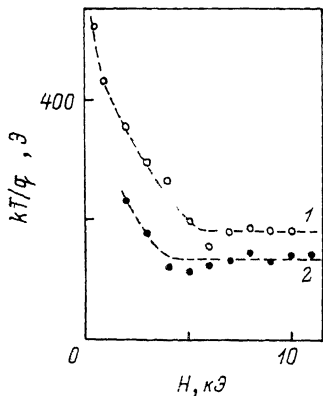


Рис. 5. Зависимость константы последействия kT/q от магнитного поля для H -индуцированного фазового перехода.

1 — нисходящая, 2 — восходящая ветви гистерезисных изменений $\lambda(H)$.

где $\Delta g^{i,j}$ — разность плотностей термодинамических потенциалов магнитных фаз. Для оценки $\partial (\Delta g^{i,j})/\partial T$ воспользуемся результатами теории [11], исходящей из электронной природы МФП-1 в сплавах на основе Fe—Rh. В [11] получена квадратичная зависимость поля перехода H_k от температуры

$$H_k(T) = H_{k0} \left(1 - \frac{T^2}{T_k^2} \right), \quad (9)$$

где H_{k0} — поле перехода при $T=0$, T_k — температура перехода при $H=0$. Для нашего сплава эта зависимость подтверждена экспериментально [6]. Тогда из условия $\Delta g^{i,j}=0$ на линии фазового перехода можно получить

$$\Delta g^{i,j}(T) = M_s H_{k0} \left(1 + \frac{T^2}{T_k^2} \right),$$

$$\frac{\partial (\Delta g^{i,j})}{\partial T} = \frac{2M_s H_{k0}}{T_k^2}. \quad (10)$$

И окончательно

$$V_T = \frac{kT_k^2}{2M_s H_{k0} (kT/r)},$$

$$V_H = \frac{kT}{M_s (kT/q)}. \quad (11)$$

Используя вычисленные kT/r и kT/q , а также величины $M_s \simeq 1220$ Гс, $H_{k0} \simeq 35$ кЭ [6] и $T_k \simeq 137$ К, можно оценить V_T и V_H для восходящей и нисходящей ветвей (см. таблицу). Видно, что величины активационных объемов несколько отличаются друг от друга, причем на восходящей ветви они больше, чем на нисходящей, и $V_T > V_H$.

Оценка средних активационных длин дает значение $l_T = \sqrt[3]{\bar{V}_T} \approx 5.4 \times 10^{-7}$ см, $l_H = \sqrt[3]{\bar{V}_H} \approx 4.6 \cdot 10^{-7}$ см. Согласно соотношениям (19) и (20) из [2], толщина межфазной границы, определяемая упругой энергией, $\delta_E \approx 6.5 \cdot 10^{-7}$ см. Таким образом, как и в случае высококоэрцитивных магнетиков [5], значения δ_E и $l_{T, H}$ хорошо коррелируют друг с другом.

Экспериментальные результаты, приведенные на рис. 1, 2, 4, 5 и в таблице, свидетельствуют о наблюдаемой «несимметрии» параметров МП на восходящих и нисходящих ветвях гистерезисных изменений $\lambda(T)$ и $\lambda(H)$ при МФП-1. Простейшее объяснение этого факта — свойства образца (реальная несимметрия ветвей зависимостей $\lambda(T)$ и $\lambda(H)$) такая, например, как существует для петли гистерезиса $\lambda(T)$ сплава $Fe_{0.49}(Rh, Pd)_{0.51}$ согласно [1]. В исследуемом же сплаве $(Fe, Ni)_{0.49}Rh_{0.51}$ подобная несимметрия ранее [1] не проявлялась, но могла выявиться при более детальных исследованиях МП в данной работе.

Не исключено также, что отмеченная несимметрия связана с различной спецификой зародышеобразования ферромагнитной фазы в антиферромагнитной матрице (восходящая ветвь), и наоборот (нисходящая ветвь). Аргументом в пользу такого предположения могут быть, например, различные температурные зависимости критических полей переходов H_k^{\uparrow} при росте H и H_k^{\downarrow} при его уменьшении для данного сплава, наблюдавшиеся в [7]. Однако для более четкого ответа на вопрос о природе несимметрии необходимы дальнейшие экспериментальные и теоретические исследования.

Следует отметить, что зависимости S и необратимых «восприимчивостей» от внешних параметров с максимумом типа приведенных на рис. 4, б наблюдаются и в высококоэрцитивных материалах [3-5]. Три максимума, последовательно возникающих для S_T и χ_{irr} в зависимости от λ_{irr} на рис. 4, а связаны, по-видимому, с особенностями образца и выявляются при измерениях с малым шагом по внешнему параметру (в данном случае — по T). Наблюдаемое сходство в зависимостях $S_{T, H}$, χ_{irr} , d_{irr} от λ_{irr} в нашем случае и для кривых $S(H)$, а также $\chi_{irr}(H)$, измеренных в [3-5], подтверждает общую (флуктуационную) природу МП, регистрируемого при перемагничивании ферромагнетиков и при МФП-1.

Однако между такими последствиями имеются и существенные отличия. В процессе МФП-1 проявляют себя большие обменные силы. В частности, при фазовом переходе, исследованном в данной работе, изменение знака обменного взаимодействия вызывает огромные упругие деформации. Это в свою очередь приводит к большим по времени и величине релаксационным эффектам (магнитному флуктуационному последствию). В процессе такого МП нарушается линейная связь исследуемого внутреннего термодинамического параметра с $\ln t$, характерная для флуктуационного последствия, — наблюдаются так называемые аномальное и гигантское МП [1, 2, 9].

Резюмируя полученные результаты, можно утверждать следующее. Подробно изучено поведение параметров, характеризующих магнитное последствие в сплаве $(Fe_{0.965}Ni_{0.035})_{0.49}Rh_{0.51}$ при H - и T -индуцированных магнитоструктурных фазовых переходах 1-го рода. С одной стороны, поведение этих параметров подчиняется общим закономерностям флуктуационного последствия, установленным, например, для высококоэрцитивных магнетиков [3-5]. Это поведение правильно описывается теорией, предложенной ранее [2]. С другой стороны, имеется ряд специфических особенностей, связанных с природой фазового перехода и наличием «многомерной» гистерезисной области в «пространстве» внешних (H , T) и внутренних (λ) термодинамических параметров. Получены прямые экспериментальные доказательства существования поверхностей неравновесных состояний на ее границах, где и возникает последствие. Локальные аномалии формы таких поверхностей влияют на вид зависимостей $\lambda(\ln t)$, регистрируемых при аномальном и гигантском последствиях.

Список литературы

- [1] Власов К. Б., Розенберг Е. А., Четвериков А. В., Баранов Н. В. // ФТТ. 1989. Т. 31. № 2. С. 219—221.
- [2] Vlasov K. B., Rozenberg E. A., Chetverikov A. V. // JMMM, 1991. V. 94. N 1. P. 96—108.
- [3] Givord D. et al. // JMMM. 1987. V. 67. N 3. P. L281—L285; J. Appl. Phys. 1987. V. 61. N 8. P. 3457—3459.
- [4] Viadieu T. et al. // J. de Physique. 1988. V. 49. N 12. Suppl. P. C8 651—652.
- [5] Street R. et al. // JMMM. 1987. V. 69. N 1. P. 106—112; J. de Physique. 1988. V. 49. N 12. Suppl. P. C8 629—630.
- [6] Баранов Н. В., Барабанова Е. А. // Металлофизика. 1988. Т. 10. С. 84—89.
- [7] Баранов Н. В., Синицын Е. В., Козлев А. И., Барабанова Е. А. // ФММ. 1991. № 2. С. 100—106.
- [8] Кутсар А. Р. // ПТЭ. 1966. № 4. С. 171—173.
- [9] Власов К. Б., Розенберг Е. А., Четвериков А. В. // ЖЭТФ. 1987. Т. 93. № 5. С. 1812—1820.
- [10] Gaunt P. // Phil. Mag. 1976. V. 34. N 5. P. 775—780.
- [11] Tu P. et al. // J. Appl. Phys. 1969. V. 40. N 3 (11). P. 1368—1369.

Институт физики металлов
УрО АН СССР
Екатеринбург

Поступило в Редакцию
24 июня 1991 г.