

УДК 548:537.621

© 1992

ДИНАМИКА НИЗКОТЕМПЕРАТУРНОГО МАГНИТНОГО ПОВЕДЕНИЯ СПЛАВА $\text{Co}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}$

*Н. А. Белоус, И. А. Зорин, Н. В. Кулич, И. В. Леженко,
А. И. Товстолыткин*

Исследованы температурные и временные зависимости намагниченности сплава $\text{Co}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}$. Обнаружено, что эффекты старения сильно видоизменяют характер релаксационных кривых при температурах ниже $T_1 = 8.5$ К (температура перехода в состояние спинового стекла $T_f = 10$ К). Исследовано влияние небольших температурных вариаций на процессы старения. Сделан вывод, что максимальное время τ_{max} в спектре времен релаксации исследуемого сплава при $-T > 8.5$ К меньше 200 с. Особенности магнитного поведения сплава $\text{Co}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}$ связываются с хаотической локальной анизотропией антиструктурных образований кобальта.

Интерметаллическое соединение $\text{Co}_x\text{Ga}_{1-x}$ имеет структуру В2 (CsCl) в широком диапазоне концентраций $0.35 < x < 0.75$ [1]. При стехиометрическом составе решетка $\text{Co}_{0.50}\text{Ga}_{0.50}$ состоит из кобальтовой и галлиевой простых кубических подрешеток, смещенных друг относительно друга на половину объемной диагонали. При увеличении концентрации кобальта избыточные атомы Со случайным образом занимают антиструктурные позиции в подрешетке галлия и вместе с окружающими атомами кобальтовой подрешетки образуют антиструктурные дефекты (АСД). Концентрация антиструктурных дефектов приблизительно равна количеству избыточных атомов Со по отношению к $x = 0.50$, однако статистические флуктуации и особенности технологии приготовления образцов могут приводить к индуцированию дополнительных АСД [1-3].

Магнитное поведение сплавов системы $\text{Co}_x\text{Ga}_{1-x}$ ($x \geq 0.50$) определяется концентрацией и пространственным распределением антиструктурных дефектов [1-4]. При комнатной температуре магнитная восприимчивость $\text{Co}_x\text{Ga}_{1-x}$ является универсальной функцией концентрации АСД независимо от термообработки образцов [1-3]. В области низких температур зависящее от термообработки сложное поведение сплавов $\text{Co}_x\text{Ga}_{1-x}$ исследовалось в работах [2-8] и было объяснено взаимодействием антиструктурных дефектов. Авторы работ [3-5] делают вывод, что в сплавах с концентрацией АСД меньше 6% понижение температуры приводит к образованию магнитных кластеров и переходу к суперпарамагнитному состоянию, а при дальнейшем охлаждении — к переходу в состояние кластерного спинового стекла. В работах [7, 8] особенности поведения сплавов $\text{Co}_x\text{Ga}_{1-x}$ связываются с наличием хаотической анизотропии кластеров.

Для широкого класса спиновых стекол [9-11] характерны два уникальных свойства: 1) при постоянной температуре релаксация намагниченности зависит от времени ожидания t_w перед изменением внешнего магнитного поля (эффект старения) [9-12]; 2) ниже температуры перехода в состояние спинового стекла T_f термостатическая намагниченность M_{FC} уменьшается с течением времени ($T = \text{const}$) [9].

К настоящему времени влияние эффектов старения на процессы релаксации намагниченности в сплавах системы $\text{Co}_x\text{Ga}_{1-x}$ не изучалось. Нами были исследованы такие эффекты в сплаве $\text{Co}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}$ и проведен анализ результатов с позиций кластерной модели с хаотической анизотропией.

1. Образцы и методика эксперимента

Поликристаллические образцы соединения $\text{Co}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}$ были получены выплавкой в дуговой печи и последующим гомогенизирующим отжигом при 850°C в течение 24 ч. Для измерений был выбран образец массой 640 мг и формой, близкой к сферической.

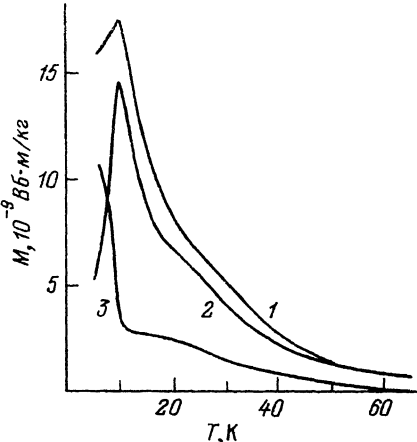
Измерения намагниченности производились СКВИД-магнитометром в магнитных полях $H_1 = 3985 \text{ А/м}$ и $H_2 \approx 0$. Кривые изотермической M_{ZFC} , термостатической M_{FC} и термоостаточной M_{TR} намагниченностей были получены при нагреве образца со скоростью $V_{\text{нагр}} \approx 30 \text{ мК/с}$ после предварительного охлаждения его со скоростью $V_{\text{охл}} \approx 530 \text{ мК/с}$ от температуры $T_r = 70$ до 5 К. При исследовании процессов релаксации намагниченности и влияния на них эффектов старения образец охлаждался в поле H_1 или H_2 со скоростью $V_{\text{охл}}$ от температуры T_r до температуры измерения T_m , выдерживался при данной температуре в течение времени t_w перед изменением внешнего поля, затем измерялась зависимость $M(t)$ через 3 с после изменения внешнего поля. При исследовании влияния малых температурных вариаций на эффекты старения образец после охлаждения от температуры T_r выдерживался в течение времени $t_{w\Delta}$ при температуре $T_m \pm |\Delta T|$, затем в течение t_w при температуре T_m и при этой же температуре измерялась зависимость $M(t)$ после изменения внешнего магнитного поля.

2. Результаты эксперимента и их обсуждение

1) Температурные зависимости намагниченности $\text{Co}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}$. На рис. 1 приведены результаты измерений изотермической $M_{ZFC}(T)$, термостатической $M_{FC}(T)$ и термоостаточной $M_{TR}(T)$ намагниченностей сплава $\text{Co}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}$ в интервале температур 5—65 К. Значения $M_{ZFC}(T)$ и $M_{FC}(T)$ были получены при нагреве образца в поле $H_1 = 3985 \text{ А/м}$ после охлаждения в полях $H_2 \approx 0$ и $H_1 = 3985 \text{ А/м}$ соответственно. Измерения $M_{TR}(T)$ проводились в поле H_2 после охлаждения в поле H_1 . Небольшие отличия приведенных на рис. 1 кривых от результатов, полученных в работе [7], объясняются использованием в данном эксперименте значительно меньших скоростей охлаждения и нагрева образца.

Основные особенности температурного поведения намагниченностей $M_{ZFC}(T)$, $M_{FC}(T)$ и $M_{TR}(T)$ можно подытожить следующим образом. 1. Наличие максимума на температурной зависимости изотермической намагниченности $M_{ZFC}(T)$ при $T_f = 10 \text{ К}$; значение $M_{ZFC}(T_f)/H_{\text{изм}}$ уменьшается с увеличением поля [7] ($H_{\text{изм}}$ — внешнее магнитное поле, в котором проводились измерения намагниченности). 2. Термостатическая намагниченность $M_{FC}(T)$ также достигает максимума при температуре $T_f = 10 \text{ К}$. 3. Отклонения $M_{FC}(T)/H_{\text{изм}}$ от кюри-вейссовского поведения и появление нелинейного вклада в намагниченность начинаются при температурах, намного превышающих T_f . 4. Существование значительной термоостаточной намагниченности $M_{TR}(T)$ и различия между $M_{ZFC}(T)$ и $M_{FC}(T)$ до температур, превышающих $5T_f$. 5. Во всем температурном диапазоне 5—65 К значения намагниченностей $\text{Co}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}$ с достаточно хорошей точностью удовлетворяют соотношению

$$M_{FC}(T) = M_{ZFC}(T) + M_{TR}(T). \quad (1)$$



термостатической намагниченности M_{TR} в сплаве $\text{Co}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}$ при температурах, превышающих $5 T_f$, а также существование различия между $M_{FC}(T)$ и $M_{ZFC}(T)$ до этих температур свидетельствует о начинающемся уже при $T > 5 T_f$ «замораживании» кластеров, обусловленном, по-видимому, хаотической локальной анизотропией. Уменьшение термостатической намагниченности M_{FC} с понижением температуры при $T < T_f$ может быть вызвано рекомбинацией кластеров или переориентацией их магнитных моментов [16].

2) Исследование влияния эффектов старения на релаксацию намагниченности сплава $\text{Co}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}$. На рис. 2 приведены зависимости M_{ZFC} от логарифма времени при различных температурах в диапазоне 5—13 К (время отсчитывается от момента включения магнитного поля). Все кривые, кроме 7, были получены после охлаждения образца от температуры $T_r = 70 \text{ К}$ до температуры измерения T_m и выдержки образца при температуре T_m в течение времени $t_{w1} = 200 \text{ с}$ перед включением магнитного поля $H_1 = 3985 \text{ А/м}$. Для кривой 7 время выдержки $t_{w2} = 900 \text{ с}$.

Отметим следующие особенности поведения $M_{ZFC}(\lg t)$ в диапазоне температур $T_m = 5\text{—}13 \text{ К}$ и интервале времени $t = 3\text{—}550 \text{ с}$. 1. Температурная зависимость величины $S = dM_{ZFC}/d(\lg t)$ имеет максимум при $T_1 = 8.5 \text{ К}$ (рис. 3), значения S рассчитывались на начальном, близком к линейному участке зависимостей $M_{ZFC}(\lg t)$. 2. При температурах ниже T_1 зависимости $M_{ZFC}(\lg t)$ нелинейны с положительной кривизной, ход кривых сильно зависит от времени ожидания t_w перед включением магнитного поля (ср. 6 и 7). 3. При температурах выше T_1 зависимости $M_{ZFC}(\lg t)$ линейны и их ход не зависит от t_w для $t_w \geq 200 \text{ с}$. 4. Обращает на себя внимание наличие долговременной релаксации намагниченности при температурах, превышающих $T_f = 10 \text{ К}$ (нами исследовано до 13 К).

Таким образом, при температурах ниже $T_1 = 8.5 \text{ К}$ эффекты старения сильно видоизменяют ход кривых $M_{ZFC}(\lg t)$, причем влияние этих эффектов на характер релаксации намагниченности усиливается с приближением T_m к T_1 ($T_m < T_1$). При температурах выше T_1 влияния эффектов старения на характер зависимостей $M_{ZFC}(\lg t)$ для $t_w \geq 200 \text{ с}$ не обнаружено.

Нами было более тщательно исследовано поведение $M_{ZFC}(t)$, а также $M_{FC}(t)$ и $M_{TR}(t)$ в широком интервале времени $t = 3\text{—}3000 \text{ с}$ при температуре $T_{m0} = 8.0 \text{ К}$ ($T_{m0}/T_f = 0.80$). На рис. 4 приведены зависимости $M_{ZFC}(\lg t)$ в магнитном поле $H_1 = 3985 \text{ А/м}$, полученные при различных временах ожидания $t_w = 200, 400$ и 800 с (кривые 2, 3 и 4 соответственно). Как видно из рисунка, поведение кривых определяется значением t_w , что отражает влияние эффектов старения на процесс релаксации M_{ZFC} и свидетельствует о том, что исследуемый сплав после охлаждения в нулевом магнитном поле находится при 8.0 К в

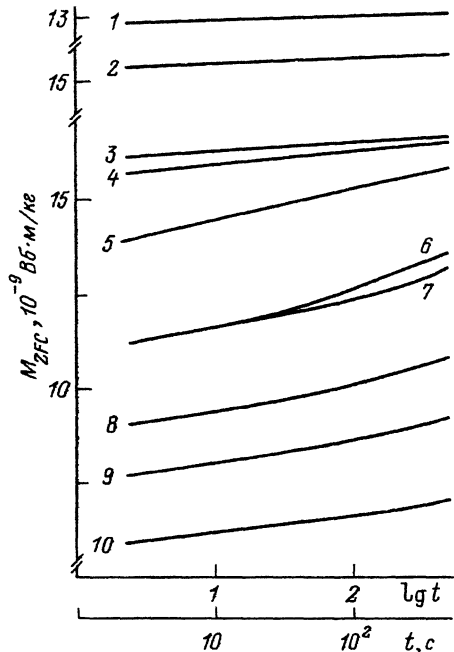


Рис. 2. Зависимости $M_{ZFC}(\lg t)$, измеренные в магнитном поле $H_1 = 3985$ А/м.

Температура, К: 13.0 (1), 10.9 (2), 10.1 (3), 9.6 (4), 8.9 (5), 8.1 (6, 7); 7.2 (8), 6.5 (9), 5.7 (10). Время ожидания $t_w = 200$ с для кривых 1—6, 8—10 и 900 с для кривой 7.

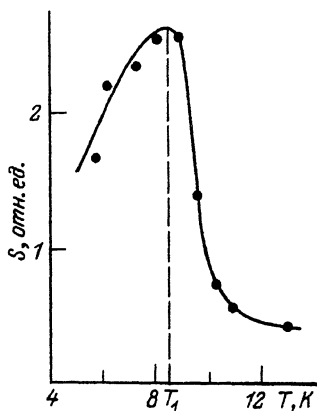


Рис. 3. Температурная зависимость коэффициента $S = dM_{ZFC}/dT$ (lg t).

неравновесном состоянии. Интересной особенностью поведения $M_{ZFC}(\lg t)$ является наличие точки перегиба при $t \approx t_w$ для соответствующих кривых рис. 4.

На кривой 1 рис. 4 приведена зависимость термостатической намагниченности M_{FC} от логарифма времени в поле $H_1 = 3985$ А/м при той же температуре $T_{m0} = 8.0$ ($t_w = 0$). Хотя релаксация M_{FC} намного слабее, чем M_{ZFC} , состояние, полученное после охлаждения в магнитном поле H_1 (FC-состояние), также является неравновесным. Об этом свидетельствует тот факт, что релаксация термоостаточной намагниченности $M_{TR}(t)$ зависит от времени выдержки системы в FC-состоянии после охлаждения в магнитном поле. На кривых 5—7 (рис. 4) приведены зависимости $M_{TR}(\lg t)$, полученные при временах ожидания $t_w = 1300, 400$ и 200 с соответственно. Как видно из рисунка, уменьшение намагниченности M_{TR} с течением времени имеет такие же характерные особенности, как и возрастание $M_{ZFC}(t)$ при различных t_w . Наличие подобных особенностей поведения $M_{TR}(\lg t)$ и $M_{ZFC}(\lg t)$ в зависимости от t_w свидетельствует о том, что спектры характерных времен релаксации для состояния, полученного после охлаждения в нулевом магнитном поле, и FC-состояния очень близки.

Для дальнейшего изучения процессов старения сплава $\text{Co}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}$ нами было исследовано влияние малых температурных изменений вблизи T_{m0} на эти процессы. Для этого образец после охлаждения в нулевом магнитном поле до температуры $T_{m0} \pm |\Delta T|$ был выдержан в течение $t_{w\Delta}$ при этой температуре, после чего выдерживался в течение $t_w = 200$ с при $T_{m0} = 8.0$ К перед включением магнитного поля $H_1 = 3985$ А/м. На рис. 5 приведены зависимости $M_{ZFC}(\lg t)$, измеренные при $T_{m0} = 8.0$ К для $\Delta T_1 = -0.3$ К ($T_{m1} = 7.7$ К), $\Delta T_2 = 0.4$ К ($T_{m2} = 8.4$ К) и $\Delta T_3 = 0.7$ К ($T_{m3} = 8.7$ К) (кривые 2—4 соответственно). Времена ожидания при данных температурах составляли $t_{w\Delta 1} = 400$ с (7.7 К) и $t_{w\Delta 2} = 50$ с

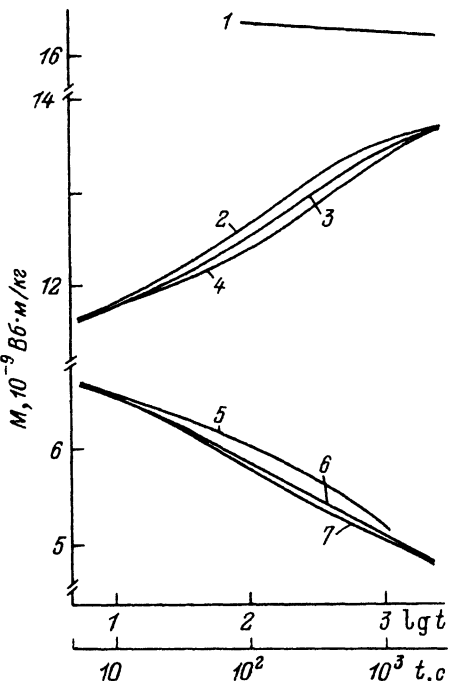


Рис. 4. Зависимости от логарифма времени термостатической (1), изотермической (2—4) и термоостаточной (5—7) намагниченностей.
 $T_{m0} = 8.0$ К, $H_1 = 3985$ А/м, $t_w = 0$ (1); 200 с (2, 7); 400 (3, 6); 800 (4) и 1300 с (5).

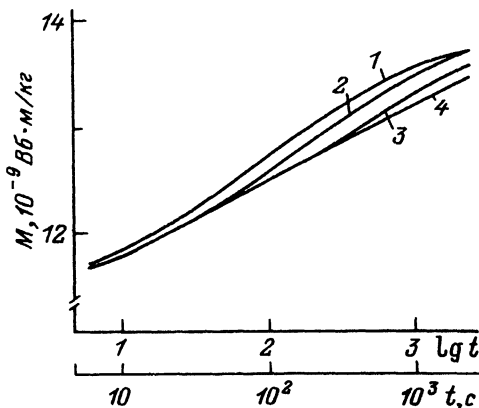


Рис. 5. Зависимости $M_{ZFC}(\lg t)$, измеренные в магнитном поле $H_1 = 3985$ А/м при температуре $T_{m0} = 8.0$ К после выдержки образца $\text{Co}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}$ без включения внешнего поля при различных температурах в течение времен $t_{w\Delta}$ и t_{w1} .
 Последовательность: 1 — $t_{w1} = 200$ с при $T_{m0} = 8.0$ К; 2 — $t_{w\Delta} = 400$ с при 7.7 К и $t_{w1} = 200$ с при 8.0 К; 3 — $t_{w\Delta} = 50$ с при 8.4 К и $t_{w1} = 200$ с при 8.0 К; 4 — $t_{w\Delta} = 50$ с при 8.7 К и $t_{w1} = 200$ с при 8.0 К.

(8.4 и 8.7 К). Для сравнения на этом же рисунке приведена зависимость $M_{ZFC}(\lg t)$ (кривая 1), полученная после выдержки в течение $t_w = 200$ с при $T_{m0} = 8.0$ К без предварительных температурных вариаций.

Особенностью поведения кривых 2—4 (рис. 5) является смещение точки перегиба в сторону больших времен по отношению к кривой 1. Процессы релаксации намагниченности M_{ZFC} , показанные на кривых 2—4, проходят так, как если бы образец был выдержан в течение времени $t_{app} = \mathcal{N}(\Delta T) t_{w\Delta} + t_{w1}$ при T_{m0} . Коэффициент $\mathcal{N}(\Delta T)$ сильно зависит от значения ΔT и для положительных ΔT больше 1, а для отрицательных — меньше. Для кривых рис. 5 $\mathcal{N}(-0.4\text{ К}) \approx 0.25$, $\mathcal{N}(0.3\text{ К}) \approx 18$ и $\mathcal{N}(0.7\text{ К}) \gg 18$. Таким образом, небольшие температурные изменения ускоряют процессы старения при положительных ΔT и замедляют при отрицательных, тогда как сам характер воздействия этих процессов на релаксацию намагниченности практически не изменяется.

В настоящее время влияние процессов старения на релаксацию намагниченности достаточно хорошо изучено в спиновом стекле Cu—Mn [9, 12, 17]. В работах [11, 18] показано, что зависимость характера изменения намагниченности от времени ожидания t_w характерна для неравновесных систем с широким сплошным спектром времен релаксации, простирающихся до максимального времени τ_{max} , зависящего от температуры и внешнего магнитного поля, причем в спиновых стеклах может достигать астрономических величин порядка $10^{20}—10^{40}$ с [18]. Такая система за время t_w при неизменных внешних условиях перейдет в

состояния Φ_1 , определяемое начальным состоянием Φ_0 , спектром времен релаксации и временем t_w . При включении внешнего магнитного поля H_1 изменение намагниченности с течением времени будет зависеть от состояния Φ_1 , поля H_1 и спектра времен релаксации. Точка перегиба на зависимостях $M(\lg t)$ примерно соответствует t_w (рис. 4), что свидетельствует о слабой зависимости спектра времен релаксации от внешнего магнитного поля. При малых изменениях температуры релаксация системы ускоряется при положительных ΔT и замедляется при отрицательных ΔT , что приводит к соответствующему смещению точки перегиба на зависимостях $M(\lg t)$.

Таким образом, в классических спиновых стеклах (типа Cu—Mn) конструирующим фактором является знакопеременный обмен, а в данном случае наряду с хаотическим обменом важную роль, по-видимому, играет хаотическая анизотропия фрактальных антиструктурных образований кобальта. Этим объясняется существенное различие в поведении сплавов Cu—Mn и Co—Ga, в частности при температурах, превышающих T_f (рис. 1):

Спектр времен релаксации Co—Ga является функцией, сильно зависящей от температуры и слабо зависящей от внешнего магнитного поля для небольших значений полей.

Тот факт, что при $T > 8.5$ К влияние эффектов старения на ход кривых $M(\lg t)$ при $t_w \geq 200$ с не обнаружено (рис. 2), свидетельствует о том, что τ_{\max} в спектре времен релаксации исследуемого сплава при $T > 8.5$ К меньше 200 с.

Авторы выражают глубокую благодарность А. Г. Леснику и А. И. Мицкеку за плодотворные дискуссии по теме данной работы.

Список литературы

- [1] Berner D., Geibel G., Gerold V., Wachtel E. // *J. Phys. Chem. Sol.* 1975. V. 36. N 4. P. 221—227.
- [2] Cywinski R., Booth J. G., Rainford B. D. // *J. Phys. F: Metal Phys.* 1977. V. 7. N 12. P. 2567—2581.
- [3] Meisel M. W., Zhou Wen-Sheng, Owers-Bradley J. R., Ochiai Y., Brittain J. O., Halperin W. P. // *J. Phys. F: Metal Phys.* 1982. V. 12. N 2. P. 317—331.
- [4] Cywinski R., Booth J. G., Rainford B. D. // *J. Phys. F: Metal Phys.* 1977. V. 7. N 12. P. 2567—2581.
- [5] Zhou Wen-Sheng, Meisel M. W., Owers-Bradley J. R., Halperin W. P. // *Phys. Rev. B.* 1983. V. 27. N 5. P. 3119—3121.
- [6] Akbarzadeh H., Keesom P. H., Meisel M. W., Halperin W. P. // *Phys. Rev. B.* 1984. V. 29. N 5. P. 2622—2629.
- [7] Белоус Н. А., Зорин И. А., Кулич Н. В., Лежненко И. В., Товстолыткин А. И. // *ФТТ.* 1990. Т. 32. № 5. С. 1520—1522.
- [8] Grover A. K., Gupta L. C., Vijayaraghavan R., Matsumura M., Nakano M., Asayama K. // *Sol. State. Commun.* 1979. V. 30. N 7. P. 457—460.
- [9] Lundgren L., Nordblad P., Svedlindh P., Beckman O. // *J. Appl. Phys.* 1985. V. 57. N 8. Pt II. P. 3371—3376.
- [10] Nordblad P., Svedlindh P., Ferre J., Ayadi M. // *J. Magn. Magn. Mat.* 1986. V. 59. N 3—4. P. 250—254.
- [11] Svedlindh P., Granberg P., Nordblad P., Lundgren L., Chen H. S. // *Phys. Rev. B.* 1987. V. 35. N 1. P. 268—272.
- [12] Granberg P., Sandlund L., Nordblad P., Svedlindh P., Lundgren L. // *Phys. Rev. B.* 1988. V. 38. N 10. P. 7097—7100.
- [13] Nagata S., Keesom P. H., Harrison H. R. // *Phys. Rev. B.* 1979. V. 19. N 3. P. 1633—1638.
- [14] Binder K., Young A. P. // *Rev. Mod. Phys.* 1986. V. 58. N 4. P. 801—976.
- [15] Youm D., Schultz S. // *Phys. Rev. B.* 1986. V. 34. N 11. P. 7958—7964.
- [16] Lundgren L., Svedlindh P., Beckman O. // *J. Phys. F: Metal Phys.* 1982. V. 12. N 11. P. 2663—2673.
- [17] Коренблит И. Я., Шендер Е. Ф. // *УФН.* 1989. Т. 157. № 2. С. 267—310.
- [18] Гинзбург С. Л. Необратимые явления в спиновых стеклах. М.: Наука, 1989. 152 с.