

УДК 669.854'12'25'71 : 537.322, : 538.65

**ТЕРМО- И МАГНИТОУПРУГИЕ СВОЙСТВА
СПЛАВА $\text{La}(\text{Fe}_{0.873}\text{Co}_{0.007}\text{Al}_{0.12})_{13}$
В ОБЛАСТИ ИНДУЦИРУЕМОГО ПОЛЕМ
МАГНИТНОГО ФАЗОВОГО ПЕРЕХОДА ПЕРВОГО РОДА**

К. Б. Власов, Е. А. Розенберг, А. В. Четвериков

Для сплава $\text{La}(\text{Fe}_{0.873}\text{Co}_{0.007}\text{Al}_{0.12})_{13}$ изучены термическое расширение, поперечная магнитострикция и ее последствие в области существования индуцируемого магнитным полем фазового перехода первого рода из антиферро- в ферромагнитное состояние. Показано, что последствие магнитострикции (ПМС) обусловлено флуктуационным механизмом. В некоторых случаях наблюдается аномальное последствие, для которого характерны изломы и скачки на линейных зависимостях магнитострикции от логарифма времени. Закономерности, описывающие ПМС, оказываются едиными для магнетиков, в которых фазовый переход происходит неоднородным образом путем зародышеобразования новой фазы и ее последующего роста.

1. В последнее время довольно интенсивно исследуются магнитные фазовые переходы первого рода [1, 2]. Весьма часто при таких переходах наблюдаются гистерезисные эффекты, связанные с наличием двухфазного состояния в некоторой области температур T или магнитных полей H (наиболее широко используемых внешних параметров, меняющих состояние магнетика). Существование же двухфазного состояния непосредственно проявляется в различных физических свойствах исследуемых объектов. По нашему мнению, характерными для рассматриваемых переходов должны быть и релаксационные (изменение физических свойств со временем t) эффекты.

В [3] нами были подробно исследованы и установлены закономерности магнитного последствия магнитострикции (ПМС) вблизи температуры спонтанного (по T) магнитного фазового перехода 1-го рода из антиферромагнитного (АФ) в состояние со спонтанной намагниченностью соединения $\zeta\text{-Mn}_5\text{Ge}_2$. В нем существуют фазовые переходы 1-го рода по H и T и возникает единый температурно-полевой гистерезис (в данном случае — для магнитострикции). Проверка предположения об универсальности релаксационных эффектов и их закономерностей, установленных в [3], требует изучения магнетиков с иным, чем у $\zeta\text{-Mn}_5\text{Ge}_2$, типом магнитных фазовых диаграмм. В данной работе это сделано для сплава $\text{La}(\text{Fe}_{0.873}\text{Co}_{0.007}\text{Al}_{0.12})_{13}$. Он отличается от $\zeta\text{-Mn}_5\text{Ge}_2$ типом магнитоактивных ионов и H - T -фазовой диаграммой. А именно, в изученном интервале изменений T и H для $\zeta\text{-Mn}_5\text{Ge}_2$ производная критического поля перехода 1-го рода по T отрицательна, а в этом сплаве — положительна. Кроме того, в нем такой переход отсутствует при изменении T для $H=0$, а внешнее $H \neq 0$ при $T=\text{const}$ индуцирует фазовый переход первого рода из исходного АФ в ферромагнитное (Ф) состояние. В результате удается исследовать зависимость ПМС от температуры, используя относительно небольшие значения H . Отметим сразу, что наличие магнитного последствия намагниченности при переходах 1-го рода по H установлено, например, для ErGa_2 и Fe-Rh в [4, 5], однако его закономерности в этих работах не рассматривались.

2. Исследуемый сплав имеет кубическую кристаллическую структуру типа NaZn_{13} и был получен путем легирования кобальтом базового $\text{La}(\text{Fe}_{0.83}\text{Al}_{0.12})_{13}$ (методика его изготовления и аттестации описана в [6]). Проведенные в [6] измерения намагниченности и начальной восприимчивости $\text{La}(\text{Fe}_{0.873}\text{Co}_{0.007}\text{Al}_{0.12})_{13}$ показали, что в отсутствие магнитного поля он находится в АФ-состоянии вплоть до точки Нееля $T_N \approx 184$ К. Наложение H вызывает переход в Ф-состояние при $T < T_N$. Согласно [6], индуцированное полем при 4.2 К Ф-состояние сохранялось и в отсутствие H вплоть до $T_k \approx 118$ К, в которой восприимчивость резко уменьшалась до значений в АФ-состоянии. При $T > T_k$ Ф-состояние после снятия поля не сохранялось, а имел место гистерезис по H .

Все измерения проведены на образцах в виде плоскопараллельных пластинок размерами $\approx 6 \times 4 \times 1$ мм, вырезанных электроэрозионным методом из поликристаллических слитков. Для изучения последствий (как и в [3]) измерялись магнитоэстроикционные (МС) деформации. Это обусловлено, во-первых, возможностью их прецизионного (до 10^{-7}) измерения малобазными тензодатчиками сопротивления по методике [7]. Во-вторых, большими величинами магнитоэстроики при таких переходах в базовом

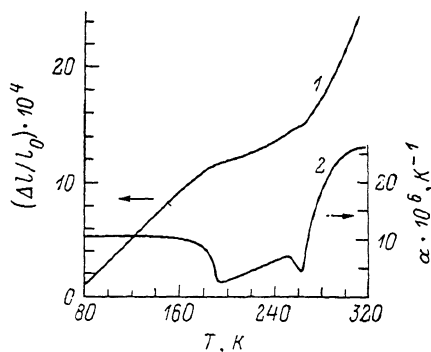


Рис. 1. Температурные зависимости термического расширения (1) и его коэффициента (2) сплава $\text{La}(\text{Fe}_{0.873}\text{Co}_{0.007}\text{Al}_{0.12})_{13}$.

сплаве (согласно [8], его объемная МС $\omega_s \approx 10^{-6}$). В-третьих, последствие обусловлено изменением во времени состояния магнетика, которое описывается МС деформациями, так же как и другими термодинамическими параметрами (намагниченностью, теплоемкостью и др.).

Исследовалось относительное удлинение (линейное термическое расширение) $\Delta l/l_0 = (l_T - l_0)/l_0$ (где l_T и l_0 — длины образца при температурах T и 77 К соответственно) и поперечная МС $\lambda_{\perp} = [l(H, T) - l(0, T)]/l(0, T)$ в магнитных полях до 16 кЭ. При изучении процессов последствие после изменения поля ΔH наряду с мгновенной магнитоэстроикцией ММС измерялось ПМС, представлявшее собой изменение линейных размеров образца со временем для $H, T = \text{const}$. Оно определялось соотношением $[l(H, T, t) - l(0, T)]/l(0, T)$ и регистрировалось с периодом $\Delta t = 15$ с вплоть до достижения относительно устойчивого значения МС (изменения $\leq 10^{-7}$ за $\Delta t = 30$ с). Точность определения H составляла $\approx 2\%$, а стабильность температуры за время одного цикла измерений (≈ 100 мин) не хуже 0.5° .

3. Термическое расширение $\frac{\Delta l}{l_0}(T)$ было измерено в интервале от 80 до 320 К. Из рис. 1 видно, что на температурной зависимости $\Delta l/l_0$ наблюдаются две аномалии типа изломов вблизи $T_N \approx 184$ К и некоторой $T_1 \approx 265$ К, а также отсутствует гистерезис по T (отсутствует спонтанный фазовый переход 1-го рода). Еще яснее область аномального поведения термоупругих свойств $\text{La}(\text{Fe}_{0.873}\text{Co}_{0.007}\text{Al}_{0.12})_{13}$ выявляется по температурному поведению коэффициента термического расширения $\alpha(T)$. На кривой 2 рис. 1 она занимает интервал $180 \leq T \leq 300$ К. Наличие таких аномалий на зависимостях $(\Delta l/l_0)(T)$ и $\alpha(T)$, а также отклонения температурных изменений величины параметра решетки $a(T)$ от закона Дебая [6] при $T > T_N$ можно, как и в [6], связать с существованием ближнего магнитного порядка в некоторой области температур выше T_N . Более высокая (по сравнению с рентгеновской методикой [6]) точность измерений позволила выявить аномалию $(\Delta l/l_0)(T)$ и $\alpha(T)$, связанную с T_N .

Некоторые характерные зависимости λ_{\perp} от H исследуемого сплава для $T < T_N$ представлены на рис. 2. Исходным при всех температурах являлось АФ-состояние. С ростом поля при некотором его критическом значении $H_{\text{фп}}$ происходит фазовый переход. Он сопровождается магнитным гистерезисом МС деформаций, ширина петли которого определяется разностью $H_{\text{в}} - H_{\text{н}}$. Здесь $H_{\text{в}}$ и $H_{\text{н}}$ — напряженности магнитного поля, соответствующие полувысотам восходящей и нисходящей ветвей этой петли ($H_{\text{н}} < H_{\text{фп}} < H_{\text{в}}$). Исключение составляет петля рис. 2, а, снятая при 77 К. На ней при уменьшении H до нуля не восстанавливается исходное

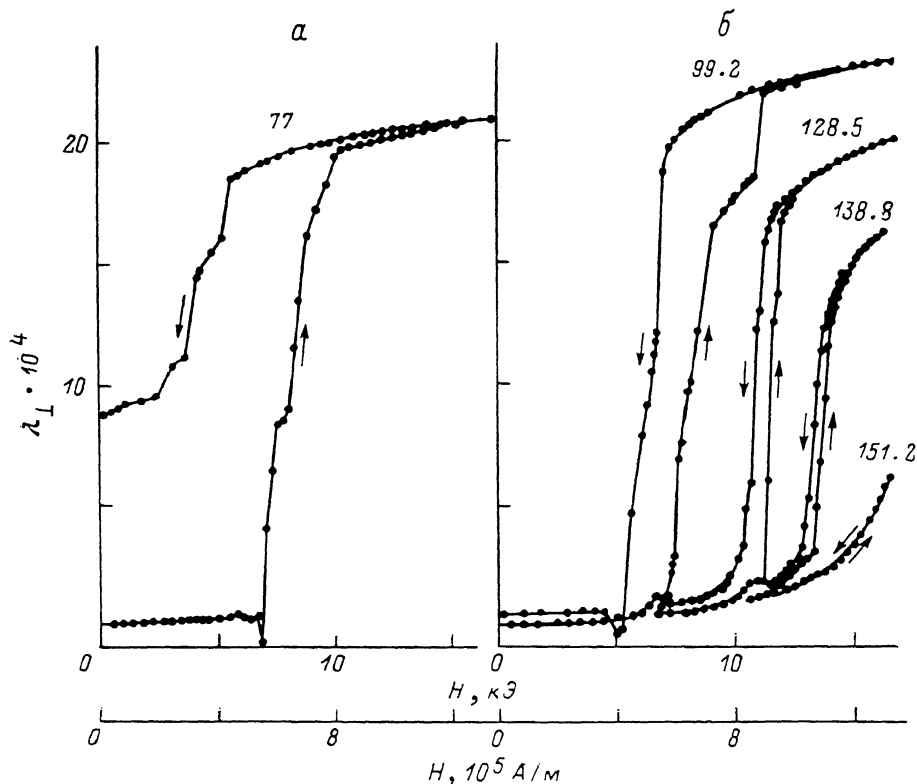


Рис. 2. Петли полевых гистерезисов магнитоэлектричества, связанных с фазовыми переходами АФ \rightarrow Ф \rightarrow АФ.

Цифры у петель — температуры измерения (К).

(соответствующее АФ-состоянию) значение λ_{\perp} . Это можно связать, во-первых, с сохранением Ф-состояния при выключении H (существованием спонтанной МС между Ф- и АФ-состояниями). Напомним, что в [6] индуцированное полем Ф-состояние сохранялось при $H=0$ и последующем нагреве. Во-вторых, с накоплением структурных дефектов из-за больших МС деформаций при переходах АФ \rightarrow Ф \rightarrow АФ (как и в [8] при измерении объемной МС). Остальные закономерности, следующие из данных рис. 2, — уменьшение ширины петель гистерезиса $\Delta H = H_{\text{в}} - H_{\text{н}}$ и величины изменения λ_{\perp} при переходах, их все более плавный характер (исчезновение скачков и изломов на ветвях петлей $\lambda_{\perp}(H)$), а также увеличение критического поля $H_{\text{фп}} = (H_{\text{в}} + H_{\text{н}})/2$ с ростом T хорошо коррелируют с наблюдавшимися в [6] для гистерезисов $M(H)$. Несколько меньшая величина изменения $\lambda_{\perp}(H)$ при 77 К (рис. 2, а) по сравнению с $\lambda_{\perp}(H)$ при 99.2 К (рис. 2, б) связана, по-видимому, с их измерением на разных образцах (из-за уже отмечавшихся больших МС деформаций ни один из них не выдерживал больше 3-х циклов переходов АФ \rightarrow Ф \rightarrow АФ при 77 К).

Особое внимание обращалось на процесс деформации вида петель гистерезиса $\lambda_{\perp}(H)$ при уменьшении T от сглаженных к петлям с более крутыми участками, содержащими даже скачки. Эта деформация сопровождается резким изменением времени последействия. Так, если при $T \approx 138.8$ К (когда петля относительно сглажена, рис. 2, б) время установления относительно устойчивого значения λ_{\perp} практически не поддается измерению, то при 99.2 К оно достигало десятков минут (рис. 2, б; 3, б). Увеличение сглаженности петель гистерезиса и уменьшение последействия с ростом T , по-видимому, связано с возрастанием роли тепловых флуктуаций.

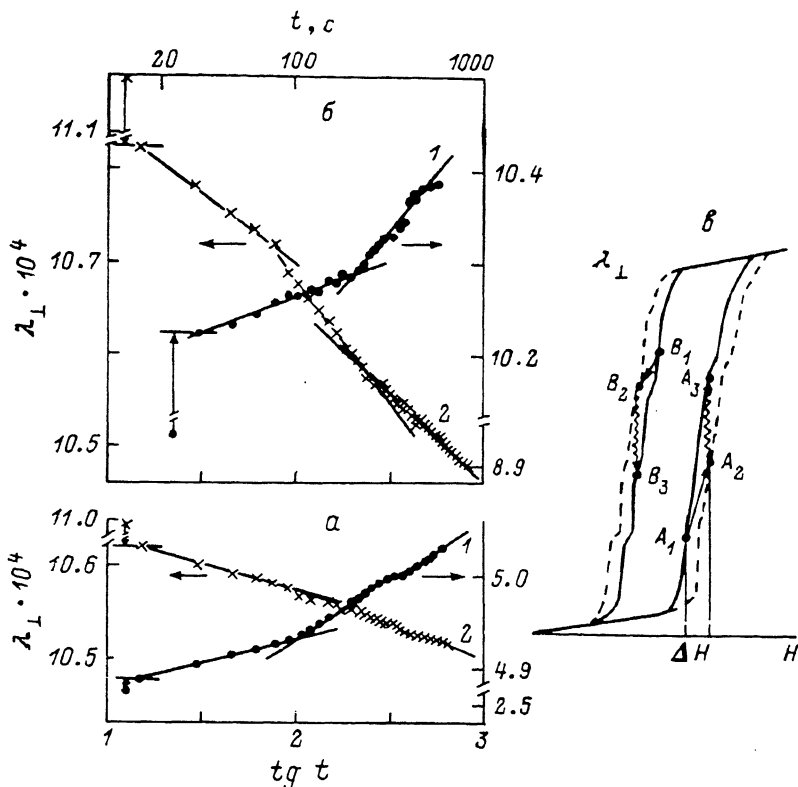


Рис. 3. Последействие магнитоустрикции в $\text{La}(\text{Fe}_{0.873}\text{Co}_{0.007}\text{Al}_{0.12})_{13}$.

1 — сняты на восходящей, 2 — на нисходящей ветвях петель гистерезисов $\lambda_{\perp}(H)$. а — $T \approx 114$ К, H , кЭ: 1 — 9.12, 2 — 6.42; б — $T \approx 99.2$ К. H , кЭ: 1 — 8.3, 2 — 8.5; в — схема возникновения ММС (стрелки) и ПМС (волнистые стрелки) при изменении поля на ΔH .

4. На рис. 3, а, б приведены результаты измерения МС деформаций на восходящих (кривые 1) и нисходящих (кривые 2) ветвях петель гистерезисов $\lambda_{\perp}(H)$ при температурах существования последействия магнитоустрикции. Видно, что после изменения магнитного поля на ΔH (типичные величины $\Delta H \approx 0.2 \div 0.3$ кЭ) регистрируется как мгновенная магнитоустрикция (ММС) — вертикальные стрелки на рис. 3, а, б, — так и ее последействие (ПМС). При этом (как и в [3]) значение ММС зависит от величины поля H , его изменения ΔH и температуры T . Из-за отличия фазовых диаграмм исследуемого сплава и $\zeta\text{-Mn}_5\text{Ge}_2$ [3] отсутствует зависимость эффекта от термической предыстории (нагрева или охлаждения). Однако он зависит от магнитной предыстории — получения данного состояния при увеличении или уменьшении H .

Влияние величин H и ΔH на ПМС косвенное, так как они определяют состояние, в которое переходит система перед началом последействия (рис. 3, в). Однако установлено, что изменения деформаций за время последействия ($\Delta\lambda_{\perp}$) при поле $H_{\text{в}}$ (или $H_{\text{н}}$) растут с понижением T (кривые 1 рис. 3, а, б, примерно соответствующие $H_{\text{в}}$). В то же время при $T = \text{const}$

значение $\Delta\lambda_{\perp}$ может меняться в зависимости от формы того участка на ветви петли гистерезиса, где происходит последствие (сравни величину $\Delta\lambda_{\perp}$ кривых 2 с кривыми 1 рис. 3, а, б).

Как и в [3], зависимости λ_{\perp} от t при ПМС линейны по $\lg t$. Однако наблюдаются случаи, когда кривые λ_{\perp} ($\lg t$) разбиваются на участки с разными наклонами (рис. 3, а, б) или на них возникают скачки, т. е. (согласно терминологии [3]) регистрируется аномальное последствие. Наличие аномального последствия, по нашему мнению, связано с существованием скачков и изломов на ветвях петель гистерезиса $\lambda_{\perp}(H)$ (рис. 2). Этот факт также аналогичен закономерности, обнаруженной в [3]. Как уже отмечалось, полученные результаты для ММС и ПМС сплава $\text{La}(\text{Fe}_{0.873}\text{Co}_{0.007}\text{Al}_{0.12})_{13}$ в области индуцируемого H фазового перехода 1-го рода во многом совпадают с данными [3]. Отмеченное обстоятельство позволяет использовать для их анализа представления, развитые в [3].

Петли гистерезисов $\lambda_{\perp}(H)$, приведенные на рис. 2, сняты при квазистатическом изменении поля (≤ 1 Э/с). Назовем их относительно устойчивыми. Помимо таких петель (набора равновесных состояний магнетика, соответствующих различным значениям T и H) существуют и мгновенно неустойчивые, возникающие, например, для достаточно быстрого изменения H на ΔH . После такого изменения (при наличии гистерезиса, когда фазовый переход происходит неоднородным образом, по зародышевому механизму) магнетик оказывается в некотором неравновесном нестабильном состоянии. В нашем случае этому соответствует возникновение ММС. Далее наблюдается ПМС, соответствующее переходу системы в равновесное состояние (связанное со смещением межфазных границ за время регистрации последствия Δt). Схематически эти процессы изображены на рис. 3, в при росте поля на восходящей ветви гистерезиса $\lambda_{\perp}(H)$ — переходы A_1 — A_3 и его уменьшении на нисходящей ветви — B_1 — B_3 . Экспериментально наблюдаемое уменьшение $\Delta\lambda_{\perp}$ при ПМС с ростом T можно в этой схеме представить как сближение относительно устойчивой и мгновенно неустойчивых (сплошные и штриховые кривые рис. 3, в) петель $\lambda_{\perp}(H)$.

Полученные в этой работе и [3] результаты свидетельствуют в пользу предположения о флуктуационном характере ПМС изучаемого сплава. Воспользуемся представлениями о флуктуационном последствии в ферромагнетиках развитыми, например, Неелем [9]. Согласно [9], мгновенному изменению H соответствует изменение намагниченности I ,

$$I = I_0 + \chi_{\text{необ}} S(Q + \lg t), \quad (1)$$

где I_0 — мгновенное изменение I , S — зависящая от материала постоянная магнитной вязкости, $\chi_{\text{необ}}$ — необратимая дифференциальная восприимчивость, определяемая как разность полной и обратимой дифференциальных восприимчивостей. Будем считать, что ПМС в данном случае аналогично (1) можно описать как

$$\lambda_{\perp} = (\lambda_{\perp})_0 + (\partial\lambda_{\perp}/\partial H)_{\text{необ}} S'(Q' + \lg t), \quad (2)$$

где в согласии с опытом λ_{\perp} зависит от логарифма времени.

Однако аномальное последствие (рис. 3, а, б) не описывается полностью соотношением (2). Уже упоминавшаяся связь скачков и изломов кривых $\lambda_{\perp}(\lg t)$ с формой петель гистерезисов $\lambda_{\perp}(H)$ может (аналогично [3]) быть объяснена следующим образом. Если формы относительно устойчивой и неустойчивой петель совпадают, то при ПМС (например, из состояния A_2 в A_3 на рис. 3, в) на участках ветвей, имеющих скачки или изломы, система неизбежно в момент времени t' попадет в промежуточно-неустойчивое состояние A' , соответствующее началу скачка или излома. В результате на зависимости $\lambda_{\perp}(\lg t)$ появятся наблюдаемые аномалии [3].

5. Проведенные исследования и их сопоставление с ранее полученными результатами [3] позволяют сделать следующие основные выводы. Во-первых, зависимость мгновенного изменения магнитострикции и ее

последствия от предыстории получения исходного магнитного состояния в области гистерезиса (по T и H) определяется видом фазовой диаграммы магнетика и температурно-полевой гистерезисной области на ней. Во-вторых, последствие (ПМС) вблизи магнитного фазового перехода 1-го рода происходит по флуктуационному механизму. Для случая МС-деформаций оно характеризуется линейной зависимостью магнитострикции от $\lg t$. Аномальное ПМС проявляется в наличии изломов и скачков на таких зависимостях. Показана его связь с формой петель магнитного гистерезиса магнитострикции. В-третьих, для $\text{La}(\text{Fe}_{0.873}\text{Co}_{0.007}\text{Al}_{0.12})_{13}$ изменение величины ПМС и появление аномальной ПМС при уменьшении T коррелируют с изменением вида петель магнитного гистерезиса магнитострикции — переходом от сглаженных к петлям со скачками и изломами.

В заключение благодарим А. С. Ермоленко и Е. В. Щербакову за предоставление образцов сплава.

Л и т е р а т у р а

- [1] Вонсовский С. В. Магнетизм. М.: Наука, 1971.
- [2] Завадский Э. А., Вальков В. И. Магнитные фазовые переходы. Киев: Наукова думка, 1980. 196 с.
- [3] Власов К. Б., Розенберг Е. А., Четвериков А. В. ЖЭТФ, 1987, т. 93, № 5 (11), с. 1812—1820.
- [4] Баранов Н. В., Дерягин А. В., Маркин П. Е., Синицын Е. В. ФНТ, 1984, т. 10, № 7, с. 761—765.
- [5] Баранов Н. В., Козлов А. И., Маркин П. Е. Письма в ЖТФ, 1985, т. 11, № 19, с. 1188—1192.
- [6] Ермоленко А. С., Щербакова Е. В., Андреев А. В., Баранов Н. В. ФММ, 1988, т. 65, № 4, с. 749—757.
- [7] Кутсар А. Р. ПТЭ, 1966, № 4, с. 171—173.
- [8] Palsira T. T. M., Nieuwenhuys G. Y., Mydosh J. A., Buschow K. H. J. Phys. Rev. B, 1985, vol. 31, N 7, p. 4622—4632.
- [9] Neel L. J. Phys. Rad., 1951, vol. 12, N 2, p. 339—351.

Институт физики металлов
УрО АН СССР
Свердловск

Поступило в Редакцию
17 ноября 1987 г.