05,11

Особенности критической динамики в магнитноодноосном гексаферрите PbFe₁₂O₁₉

© А.А. Безлепкин, С.П. Кунцевич

Харьковский национальный университет им. В.Н. Каразина, Харьков, Украина E-mail: anatoliy.a.bezlyepkin@univer.kharkov.ua

(Поступила в Редакцию 24 апреля 2017 г.)

Сформулированы условия, при которых термодинамическая теория критического замедления скорости релаксации параметра порядка описывает поведение магнитноодноосных кристаллов. С учетом сформулированных условий изучены особенности динамической магнитной восприимчивости и критического замедления скорости релаксации намагниченности PbFe₁₂O₁₉ в области температуры Кюри. Полученные экспериментальные результаты хорошо согласуются с капельной моделью фазового перехода. В рамках капельной модели на основе экспериментальных данных получено оценочное значение корреляционной длины для намагниченности в температурной области критического замедления скорости релаксации.

DOI: 10.21883/FTT.2018.01.45289.139

1. Введение

В работе [1] была создана термодинамическая теория критического замедления скорости релаксации параметра порядка. Теория основывалась на феноменологическом предположении, что критическая динамика носит чисто релаксационный характер. Считалось, что в выражении для скорости изменения параметра порядка кинетический коэффициент остается постоянным. Было показано, что в этом случае переход параметра порядка к равновесному значению происходит очень медленно, а время релаксации τ при приближении к температуре фазового перехода T_c со стороны более низких температур растет в соответствии с выражением [1]

$$\tau \sim (T_c - T)^{-1}.\tag{1}$$

В магнитоупорядоченных веществах, если не создавать специальных условий, релаксационные процессы в магнитном поле будут происходить при наличии прецессионного движения магнитных моментов, что не учитывается в термодинамической теории. В магнитноодноосном кристалле существуют области однородной намагниченности — домены с ориентацией вектора намагниченности вдоль поля анизотропии — и переходные области между доменами — доменные границы. Ширина доменных границ обусловлена конкуренцией между ростом энергии анизотропии и уменьшением обменной энергии при увеличении ширины границы. В высокоанизотропных магнитноодноосных кристаллах ширина доменных границ гораздо меньше ширины доменов, а отношение объемов доменов к объему доменных границ составляет ~ 1 · 10³ [2]. Поэтому при намагничивании таких кристаллов слабым магнитным полем, приложенным вдоль поля магнитной кристаллографической анизотропии, влияние доменных границ носит косвенный характер, их размеры практически не изменяются, а основной вклад в намагниченность вносят домены, в которых векторы намагниченности ориентированы вдоль переменного магнитного поля. В этом случае в уравнении движения для намагниченности отсутствует прецессионное слагаемое, а динамика намагниченности носит релаксационный характер.

В работе [3] была рассмотрена динамика намагниченности в магнитном одноосном кристалле при ориентации вектора намагниченности и вектора магнитного поля вдоль поля магнитной анизотропии. В этом случае действительная χ' и мнимая χ'' составляющие магнитной восприимчивости имеют вид [3,4]

$$\chi' = \frac{\chi_0}{1 + \omega^2 \tau^2}, \qquad \chi'' = \frac{\chi_0 \omega \tau}{1 + \omega^2 \tau^2}, \tag{2}$$

где χ_0 — величина магнитной восприимчивости при $\omega \to 0$; ω — частота внешнего переменного магнитного поля; τ — время релаксации при отклике намагниченности на переменное магнитное поле.

Из соотношений (1), (2) следует, что если $\chi_0 = \text{const}$ при критическом замедлении скорости релаксации $\tau \to \infty, \chi' \to 0, a \chi'' \to \chi_0/2$ при $\omega \tau = 1$.

При произвольной ориентации образца относительно магнитного поля χ_0 будет зависеть от температуры и магнитного поля. Для магнитноодноосных кристаллов при ориентации магнитного поля вдоль поля магнитной анизотропии и соответственно вдоль направления легкого намагничивания величина χ_0 постоянна и определяется выражением [5]

$$\chi_0 = N^{-1} = \text{const},\tag{3}$$

где *N* — размагничивающий фактор образца.

Соотношение (3) выполняется в интервале магнитных полей, задаваемом выражением [5]

$$H < NI_s, \tag{4}$$

где I_s — намагниченность насыщения [6].

Величина I_s мала в области температуры Кюри, поэтому условие $\chi_0 = \text{const}$ при фазовом переходе будет выполняться в малых магнитных полях. Для наблюдения критического замедления скорости релаксации при изучении χ' и χ'' необходимо выполнение условий (3), (4) при ориентации переменного магнитного поля вдоль поля магнитной анизотропии в магнитноодноосном кристалле.

В настоящей работе с учетом сформулированных условий изучены особенности критической динамики в гексаферрите PbFe₁₂O₁₉ (PbM) в области температуры Кюри. Исходя из экспериментальных данных, получено оценочное значение корреляционной длины для намагниченности в температурной области критического замедления скорости релаксации.

2. Образцы и методика измерений

Монокристаллы PbM были выращены методом раствора в расплаве флюса PbO. Синтез производился в интервале температур $950-1050^{\circ}$ C на вращающейся затравке. Фазовый анализ контролировался рентгенографическим методом. Постоянные кристаллической решетки исследуемого феррита при комнатной температуре: a = 0.589 nm, c = 2.312 nm.

Действительная часть динамической магнитной восприимчивости χ' определялась резонансным методом, исходя из экспериментальных значений резонансной частоты *LC*-контура, в катушке индуктивности которого помещался исследуемый образец. Образцы имели форму, близкую к сферической, с диаметром ~ 5 mm. Для определения χ' использовалась формула

$$\mu'(t) \cong 1 + \chi'(T) = B\left[f_1^{-2}(T) - f_2^{-2}(T)\right], \qquad (5)$$

где $\mu'(T)$ — действительная часть магнитной проницаемости; *B* — величина, зависящая от параметров контура и включающая постоянные численные коэффициенты, в том числе и коэффициент заполнения катушки образцом; $f_1(T)$ — частота контура с образцом при температуре *T*; $f_2(T)$ — частота пустого контура при температуре *T*.

Поскольку определить точное значение коэффициента заполнения катушки образцом не представляется возможным, величина χ' приведена в относительных единицах. Для измерения характеристик контура использовался анализатор спектров СК4-59. Точность определения частоты контура ~ 2 kHz.

Катушка индуктивности изготавливалась из платиновой проволоки, помещалась в электрическую печь, питание которой осуществлялось постоянным током. Нагреватель наматывался бифилярно на медную трубку, которая обеспечивала однородность температуры в рабочем пространстве печи. Исследования были проведены в переменных магнитных полях, не превышающих $1 \cdot 10^{-3}$ Oe.

Экспериментальные результаты и обсуждение

На рис. 1 (кривая I) представлена зависимость резонансной частоты LC-контура с кристаллом PbFe₁₂O₁₉, ориентированным гексагональной осью с вдоль переменного магнитного поля с частотой 63.8 MHz в интервале



Рис. 1. Температурная зависимость частоты измерительного контура (1) и напряжения на контуре (2) с образцом PbFe₁₂O₁₉, ориентированным осью с вдоль переменного магнитного поля катушки контура.



Рис. 2. Температурная зависимость действительной части магнитной восприимчивости χ' образца PbFe₁₂O₁₉ в направлении легкого намагничивания вблизи частот 24.3 MHz (*1*) и 63.8 MHz (*2*) в области температуры Кюри.

температур 420-460° С. Определенные из экспериментальных данных с помощью соотношения (5) величины χ' в относительных единицах, приведены на рис. 2 (кривая 2). Как видно из рисунка, на фоне широкого максимума χ' в области температуры 430°С имеет место пикообразное уменьшение χ' . Минимальное значение χ' имеет при температуре T_c . Из соотношения (2) следует, что при критическом замедлении скорости релаксации и росте τ уменьшение χ' должно сопровождаться ростом χ'' . Величина χ'' обратно пропорциональна добротности контура и обратно пропорциональна напряжению на нем. На рис. 1 (кривая 2) представлена зависимость напряжения на LC-контуре в интервале температур 420-460°С. Как видно из рисунка, при температуре минимума χ' величина напряжения минимальна, что соответствует максимальному значению χ'' . Поэтому пикообразное уменьшение χ' обусловлено ростом τ и соответственно критическим замедлением скорости релаксации параметра порядка — намагниченности. В работе [7] показано, что температура Кюри, определенная по максимуму χ'' , совпадает с температурой Кюри, определенной нейтронографическим методом. Поэтому температура $T_c = 430^{\circ}$ С, соответствующая максимуму χ'' , является температурой Кюри.

Рассматриваемые особенности поведения χ' не наблюдались на кристаллах, не обладающих осью легкого намагничивания. На рис. 3 представлена зависимость $\chi'(T)$ гексаферрита Zn₂Ba₂Fe₁₂O₂₂ (Zn₂Y), имеющего плос-



Рис. 3. Температурная зависимость действительной части магнитной восприимчивости χ' образца $Zn_2Ba_2Fe_{12}O_{22}$ (Zn_2Y) в направлении легкого намагничивания вблизи частоты 41.5 MHz в области температуры Кюри.



Рис. 4. Зависимость параметра *К* от частоты для феррита PbFe₁₂O₁₉.

кость легкого намагничивания [4]. Переменное магнитное поле ориентировано в базисной плоскости кристалла, которая является плоскостью легкого намагничивания. Температура Кюри феррита $Zn_2Y T_c = 140^{\circ}C$ [4]. Как видно из рисунка, в области температуры Кюри не наблюдается пикообразного уменьшения χ' .

На рис. 2 (кривая 1) представлена зависимость $\chi'(T)$ при частоте переменного поля 24.3 MHz в интервале температур 420–460°С. Кристалл РbM ориентировался гексагональной осью вдоль переменного магнитного поля. Как видно из рисунка, относительная величина пика при температуре Кюри несколько меньше пика на частоте 63.8 MHz. Для характеризации их соотношения использовалась величина K, равная

$$K = \frac{\chi'_{\min}}{\chi'_{\max}},\tag{6}$$

где χ'_{\min} — минимальное значение, а χ'_{\max} — максимальное значение в окрестности точки Кюри.

На рис. 4 представлена зависимость K от частоты переменного магнитного поля. При уменьшении частоты растет K. При K = 1 пик не наблюдается. Величина K = 1 соответствует частоте $f_{\min} \approx 1 \cdot 10^7$ Hz.

Полученные экспериментальные результаты указывают ют на следующий физический механизм, ответственный за наблюдаемые особенности критической динамики, согласно капельной модели фазового перехода из магнитоупорядоченного состояния в парамагнитное [8]. В области критической динамики весь объем кристалла заполнен каплями, представляющими собой флуктуационные магнитоупорядоченные корреляционные образования, характеризуемые определенным значением параметра порядка — намагниченности. В течение времени жизни корреляционных образований могут возбуждаться колебательные моды намагниченности. Пространственные колебания намагниченности вследствие магнитоупругой связи будут возбуждать упругие колебания кристаллической решетки с длиной волны

$$\lambda = v \cdot f^{-1}, \tag{7}$$

где v — скорость упругой волны в кристалле.

Феррит содержит капли всех размеров, вплоть до максимального, равного корреляционной длине ξ [8]. В кристалле нет капель размера $R > \xi$, но есть капли с размерами $R < \xi$. Критическая динамика, согласно [9], возникает при выполнении условия

$$\frac{2\pi}{\lambda}\xi = \xi q > 1, \tag{8}$$

где q — модуль волнового вектора.

Переход от критической динамики к гидродинамическому режиму соответствует выполнению условия [9]

$$\frac{2\pi}{\lambda}\xi < 1. \tag{9}$$

Поэтому предельная частота $f_{\text{lim}} \approx 10 \text{ MHz}$ соответствует предельной длине волны λ_{lim} , больше которой критическая динамика отсутствует. Из соотношений (8), (9) следует:

$$\xi \approx \frac{\lambda_{\rm lim}}{2\pi} = \frac{V}{2\pi f_{\rm lim}}.$$
 (10)

При увеличении частоты уменьшается длина волны, в рассматриваемый процесс вовлекаются флуктуационные образования с $R < \xi$, что приводит к росту объема кристалла, охваченного критической динамикой и соответственно к уменьшению χ' в области температуры Кюри.

В литературе отсутствуют сведения о скорости распространения упругих волн в $PbFe_{12}O_{19}$. Поэтому для оценки величины ξ использовалось значение скорости продольных упругих волн при комнатной температуре $v = 7.1 \cdot 10^3$ m/s для феррита железо-иттриевого граната $Y_3Fe_5O_{12}$, имеющего близкий элементный состав и родственный тип химических связей [10]. В работах [11,12] показано, что изменение величины v в феррите $Y_3Fe_5O_{12}$ в области температуры Кюри и в интервале температур 20–450°C не превышает 5%.

Воспользовавшись значением $v = 7.1 \cdot 10^3$ m/s и величиной $f_{\rm lim} \approx 10$ MHz получим приближенное оценочное значение $\xi \approx 110 \,\mu$ m.

4. Выводы

1. Термодинамическая теория критического замедления при выполнении определенных условий описывает поведение магнитноодноосных кристаллов PbFe₁₂O₁₉ в области фазового перехода.

2. Полученные экспериментальные результаты хорошо согласуются с капельной моделью фазового перехода из магнитоупорядоченного состояния в парамагнитное.

3. Использование капельной модели позволяет на основе экспериментальных данных рассчитать корреляционную длину в области критического замедления скорости релаксации параметра порядка.

Список литературы

- Л.Д. Ландау, Н.М. Халатников. Докл. АН СССР, 96, 469 (1954).
- [2] С.В. Вонсовский. Магнетизм. Наука, М. (1970). 1032 с.
- [3] А.А. Безлепкин, С.П. Кунцевич. Весн. ХНУ. Сер. физ. 1135, 21, 71 (2014).
- [4] Х. Смит, Я. Вейн. Ферриты. ИЛ, М. (1962). 540 с.
- [5] Г.С. Кринчик. Физика магнитных явлений. МГУ, М. (1976). 367 с.
- [6] А.А. Безлепкин, С.П. Кунцевич, С.П. Палехин. Изв. вузов МВ и ССО СССР. Физика 7, 111 (1987).
- [7] Г.М. Драбкин, Я.А. Косман, В.В. Рудов. Письма ЖЭТФ 15, 379 (1972).
- [8] Л.П. Каданов. Критические явления, гипотеза универсальности, скейлинг и капельная модель. В сб. Квантовая теория поля и физика фазовых переходов. Мир, М. (1975). С. 7–32.
- [9] E. Frey, F. Schwabl. Adv. Phys. 43, 5, 577 (1994).
- [10] A.E. Klark, R.E. Strakha. J. Appl. Phys., 32, 6, 1172 (1961).
- [11] И.К. Камилов, Х.К. Алиев. ЖЭТФ 65, 5, 11, 1911 (1973).
- [12] Ю.А. Буренков, С.П. Никаноров. ФТТ 44, 2, 307 (2002).