

©1995

## АНОМАЛИИ МОДУЛЯ ЮНГА, ВНУТРЕННЕГО ТРЕНИЯ И ТЕПЛООВОГО РАСШИРЕНИЯ В ОБЛАСТИ СПИН-ПЕРЕОРИЕНТАЦИОННОГО ФАЗОВОГО ПЕРЕХОДА В СОЕДИНЕНИИ TbFe<sub>11</sub>Ti.

*В.Ю.Бодряков, С.А.Никитин, Т.И.Иванова, И.С.Терешина*

Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова  
Поступила в Редакцию 13 июля 1994 г.

Впервые методом поперечных изгибных автоколебаний образца-тонкого стержня на частотах  $\sim 1.5$  kHz в интервале температур 100–430 К проведено детальное исследование температурных зависимостей модуля Юнга  $E$  и внутреннего трения  $Q^{-1}$  поликристаллического образца сплава TbFe<sub>11</sub>Ti, а также тензометрическим методом на монокристаллическом образце изучены особенности теплового расширения  $\Delta L/L$ . Обнаружено аномальное поведение кривых  $E(T)$ ,  $Q^{-1}(T)$ ,  $\Delta L/L(T)$  при температурах 240 и 375–380 К, а также кривой  $\Delta L/L$  при  $T = 325$  К, связанное с особенностями поведения магнитной структуры материала при этих температурах. Аномально большой термический гистерезис кривых  $E(T)$ ,  $Q^{-1}(T)$ ,  $\Delta L/L(T)$  свидетельствует о наличии широкой области метастабильных состояний, сопровождающих перестройку магнитной структуры TbFe<sub>11</sub>Ti.

Работа посвящена исследованию температурных зависимостей упругих (модуль Юнга  $E$  и тепловое расширение) и неупругих (внутреннее трение  $Q^{-1}$ ) свойств интерметаллического соединения TbFe<sub>11</sub>Ti с целью изучения особенностей спин-переориентированного перехода в этом соединении. Соединение интересно не только с физической (наличие состояний с различным типом магнитного упорядочения и переходов между ними), но и с практической (возможно применение соединения в качестве материала для приготовления постоянных магнитов) точки зрения. Исследованию спин-переориентационного перехода этого соединения посвящен целый ряд работ [1–4], однако данные о температуре  $T_{SR}$  и характере этого перехода крайне противоречивы. В работе [1] установлено, что возможно имеются две особенности в поведении констант анизотропии TbFe<sub>11</sub>Ti при температурах  $T_{s1} = 220$  К и  $T_{s2} = 450$  К. Однако в работах [2,3], в которых проводились измерения магнитной восприимчивости на ориентированных порошковых образцах соединения TbFe<sub>11</sub>Ti, наблюдался только один фазовый переход со скачкообразным характером изменения ориентации вектора магнитного момента от легкой оси к плоскости осей легкого намагничивания при температуре  $T_{s3} = 325$  К. Температура пе-

рехода определялась в [2,3] по характерной аномалии на кривой температурной зависимости магнитной восприимчивости. В работе [4], где проводились измерения намагниченности и магнитной восприимчивости на монокристалле TbFe<sub>11</sub>Ti обнаружена сильная зависимость  $T_{SR}$  от величины внешнего магнитного поля. Анализ литературных данных показывает, что необходимо проведение дополнительных исследований физических свойств соединений разными методами. При этом особое внимание следует обратить на исследования соединений TbFe<sub>11</sub>Ti в нулевом магнитном поле. В частности, до сих пор совершенно не изучены упругие свойства и релаксационные явления в области спин-переориентационных переходов соединения. В настоящей работе проведено исследование температурного поведения модуля Юнга  $E$  и внутреннего трения  $Q^{-1}$  на поликристаллических образцах TbFe<sub>11</sub>Ti, а также теплового расширения на образце, который представлял собой сросток монокристаллических зерен с разориентировкой кристаллографических осей в пределах 10°.

## 1. Технология приготовления образцов и методика измерений.

Образцы соединения TbFe<sub>11</sub>Ti были выплавлены в аргоно-дуговой печи на водоохлаждаемом медном полу. Фазовый анализ полученных слитков сплава TbFe<sub>11</sub>Ti проводился на дифрактометре ДРОН-3М с использованием  $K_{\alpha}$ -излучения меди. Было установлено, что полученные слитки практически однофазны и имеют структуру типа ThMn<sub>12</sub>. Было обнаружено лишь небольшое количество примесной фазы  $\alpha$ -Fe (~ 5 %). Из слитков были выделены относительно хорошо сформированные монокристаллы. Контроль и отбор образцов для измерений проводился по рентгенограммам Лауэ, полученным практически со всей поверхности образца.

Для измерений теплового расширения был взят образец, имеющий разориентировку монокристаллических блоков в пределах десяти градусов. Образец имел форму диска диаметром  $3.5 \pm 0.05$  mm и толщиной  $0.8 \pm 0.05$  mm. Кристаллографическая ориентировка образца выявила расположение в плоскости диска направлений [001] и [110]. Измерение теплового расширения проводилось тензометрическим методом. Методика измерений была описана ранее в [5]. Направление измерения теплового расширения совпало с преимущественным направлением кристаллографической оси  $c$  кристалла. Образец предварительно охлаждался до температуры 80 K. Далее производился нагрев образца, причем скорость изменения температуры не превышала 1 K/min. Измерения проводились в интервале температур 80–400 K.

Температурные зависимости модуля Юнга  $E(T)$  и внутреннего трения  $Q^{-1}(T)$  поликристаллического образца сплава TbFe<sub>11</sub>Ti измерялись в интервале температур 100–430 K методом поперечных изгибных автоколебаний образца-тонкого стержня, возбуждаемых электростатическим образом на частотах  $f \sim 1.4$ –1.5 kHz и поддерживаемых с помощью цепи обратной связи [6]. Размеры консолино закрепленного образца, приготовленного из первоначального слитка TbFe<sub>11</sub>Ti электроискровым способом, составляли: длина  $l = 11.7 \pm 0.05$  mm, толщина  $h = 0.25 \pm 0.005$  mm, ширина  $a = 0.8 \pm 0.05$  mm. Частота колебаний образца при  $T = 300$  K была равной  $f = 1.4408$  (при охлаждении) и

1.4279 кГц (при нагревании образца). Абсолютная точность измерения модуля Юнга определялась в основном точностью измерения геометрических размеров образца и составляла  $\pm 5.7\%$ ; точность определения величины относительного изменения модуля была на два порядка выше. Величина модуля Юнга исследованного образца соединения  $\text{TbFe}_{11}\text{Ti}$  при  $T = 300$  К составляла  $E_{300} = 381.2 \pm 21.8$  (при охлаждении) и  $374.4 \pm 21.4$  ГПа (при нагревании образца). Внутреннее трение  $Q^{-1}$ , измерявшееся одновременно с модулем Юнга, определялось по числу затухающих колебаний образца между двумя определенными уровнями амплитуды колебаний после прерывания цепи обратной связи. Погрешность определения величины  $Q^{-1}$  определялась разбросом экспериментальных точек в серии из четырех последовательных отсчетов при каждом значении температуры и достигала нескольких процентов. До начала измерений величин модуля Юнга и внутреннего трения образец вначале сравнительно быстро (со скоростью  $\sim 3$  К/мин) нагревался до 424 К, потом в процессе измерений медленно охлаждался до 100 К, а затем вновь также медленно нагревался до 428 К. Кроме того, дополнительные измерения  $E$  и  $Q^{-1}$  проводились при медленном нагреве и последующем охлаждении образца в интервале температур 280–430 К. Средняя скорость изменения температуры составляла  $\sim 1$  К/мин, но не превышала 1.5 К/мин. Температура контролировалась термопарой медь-константан с абсолютной точностью  $\pm 0.5$  К.

## 2. Результаты измерений и обсуждение.

Кривая температурной зависимости  $\Delta L/L$  для монокристалла  $\text{TbFe}_{11}\text{Ti}$  представлена на рис. 1 в интервале температур 80–400 К. Во всем исследованном интервале температур  $\Delta L/L$  монотонно возрастает с увеличением температуры. Монотонный ход кривой теплового расширения нарушается при  $T > 300$  К, где наклон кривой претерпевает значительные изменения, зависимость  $\Delta L/L$  при этом сопровождается значительным температурным гистерезисом. Следует отметить также хорошо выраженное изменение наклона кривой теплового расширения при  $T = 140$  К и слабо выраженный излом при  $T = 250$  К. Описанным особенностям кривой  $\Delta L/L$  соответствуют хорошо выраженные особенности на кривой температурной зависимости линейного коэффициента теплового расширения этого же образца  $\text{TbFe}_{11}\text{Ti}$   $\alpha(T)$  для случая нагрева образца (вставка к рис. 1). Кривая  $\alpha(T)$  была получена численным дифференцированием кривой  $\Delta L/L$ .

Температурные зависимости модуля Юнга  $E$  и внутреннего трения  $Q^{-1}$  поликристаллического образца соединения  $\text{TbFe}_{11}\text{Ti}$  в интервале температур 100–430 К при нагреве и охлаждении представлены на рис. 2. Кривая температурной зависимости  $E(T)$  демонстрирует ряд хорошо выраженных особенностей. На фоне обычного уменьшения модуля Юнга с температурой наблюдаются минимумы при температурах  $T = 370$  (в случае охлаждения образца) и 374 К (в случае его нагрева). Кроме того, обнаружены перегибы на кривой  $E(T)$  при температурах 330–290 К при охлаждении и 240–280 К при нагреве образца. Температурная зависимость модуля Юнга сопровождается значительным гистерезисом, полностью исчезающем ниже 240 К. Температурная зависимость модуля Юнга  $\text{TbFe}_{11}\text{Ti}$  анализировалась

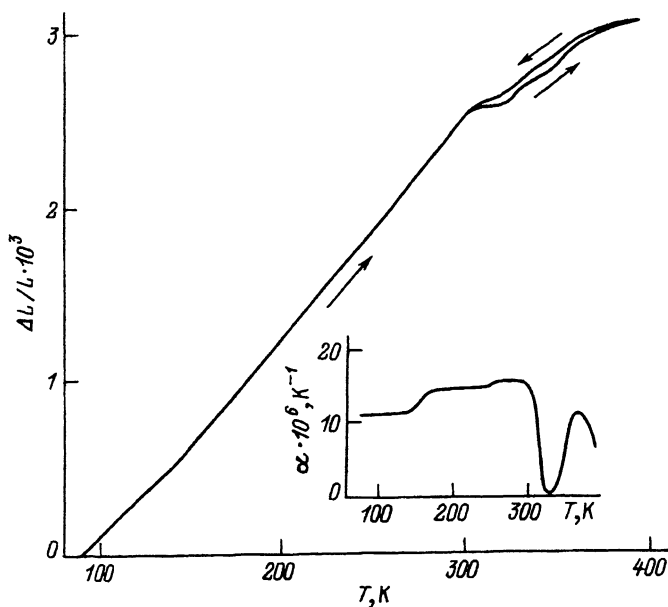


Рис. 1. Температурная зависимость теплового расширения  $\Delta L/L$  монокристаллического образца  $TbFe_{11}Ti$ .

На вставке — температурная зависимость линейного коэффициента теплового расширения  $\alpha$  монокристаллического образца  $TbFe_{11}Ti$ .

в рамках феноменологической модели твердого тела как квантового ансамбля ангармонических осцилляторов [7]. В результате проведенных расчетов, методика которых была описана ранее [8], найдено, что в интервале температур 100–200 К температурная зависимость модуля Юнга хорошо описывается теоретической расчетной кривой  $E_{calc}(T)$  с характеристической температурой Дебая  $\Theta_D = 151$  К. Экстраполированное к  $T = 0$  значение модуля Юнга равно  $E_0 = 406.72 \pm 0.05$  ГПа. На температурной зависимости внутреннего трения  $Q^{-1}(T)$  образца  $TbFe_{11}Ti$  также наблюдается ряд хорошо выраженных аномалий, коррелирующих с особенностями кривой  $E(T)$ . Это острые максимумы внутреннего трения при  $T = 378$  (в случае охлаждения образца) и 374 К (в случае его нагрева), а также широкие пологие максимумы при температуре  $\sim 235$  К. Кроме того, зависимость  $Q^{-1}(T)$  сопровождается значительным температурным гистерезисом, исчезающим ниже 150 К. Температурная зависимость внутреннего трения в интервале температур 350–400 К представлена на вставке к рис. 2, которая дает детальное представление о поведении внутреннего трения в области максимумов.

Зависимость  $Q^{-1}(T)$  в области максимумов при  $T \approx 240$  К представлена на рис. 3, а в случае охлаждения и на рис. 3, б в случае нагрева образца. Точками на рис. 3, а, б представлены средние по четырем измерениям значения внутреннего трения для каждой температуры. Сплошными линиями представлены расчетные кривые  $Q_{calc}^{-1}(T)$ , построенные по результатам компьютерных расчетов, описанных далее. Характер столь широких и пологих максимумов внутреннего трения указывает на их вероятное релаксационное происхождение [9,10].

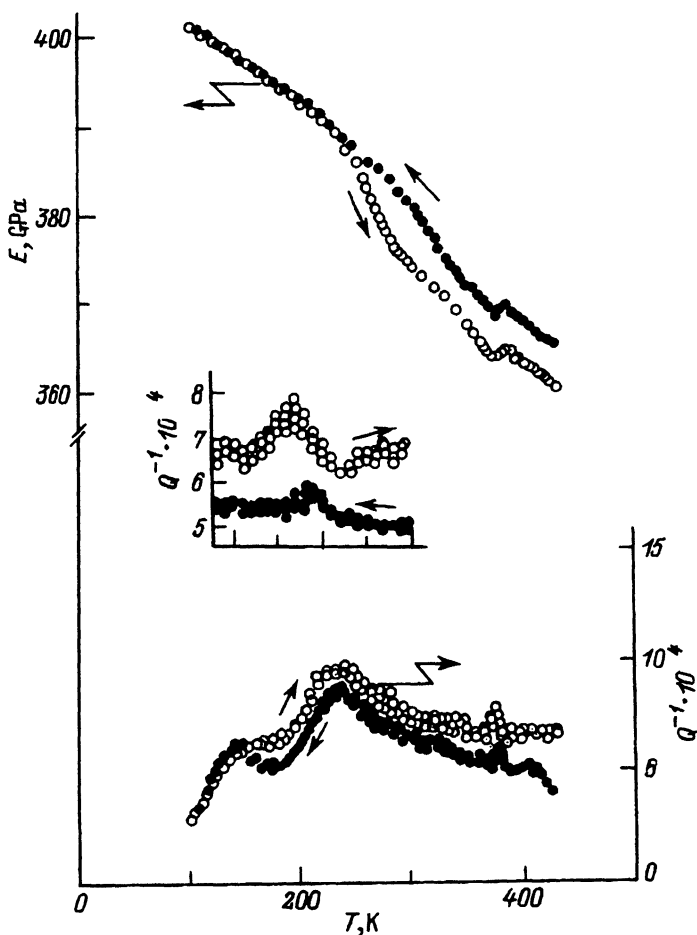


Рис. 2. Температурные зависимости модуля Юнга  $E$  и внутреннего трения  $Q^{-1}$  поликристаллического образца сплава  $TbFe_{11}Ti$ .

На вставке — температурная зависимость внутреннего трения  $Q^{-1}$  поликристаллического образца сплава  $TbFe_{11}Ti$  в интервале температур 355–400 К.

Для проверки такого предположения и определения природы возможных механизмов релаксации, ответственных за появление описанных максимумов  $Q^{-1}$ , были проведены теоретические расчеты.

Если релаксационный процесс характеризуется энергией активации релаксации  $E_a$  и характерным временем релаксации  $\tau_0$ , то соответствующая этому релаксационному процессу кривая температурной зависимости внутреннего трения может быть описана выражением [9,10]

$$Q_{\text{calc}}^{-1}(T) = Q_0^{-1} + 2Q_{\text{max}}^{-1} \frac{2\pi f\tau}{1 + (2\pi f\tau)^2}, \quad (1)$$

где  $Q^{-1}$  — фоновая величина внутреннего трения, которая предполагается не зависящей от температуры, что удовлетворительно выполняется при температурах ниже или не слишком выше комнатной;  $Q_{\text{max}}^{-1}$  — максимальная (над фоном) величина внутреннего тре-

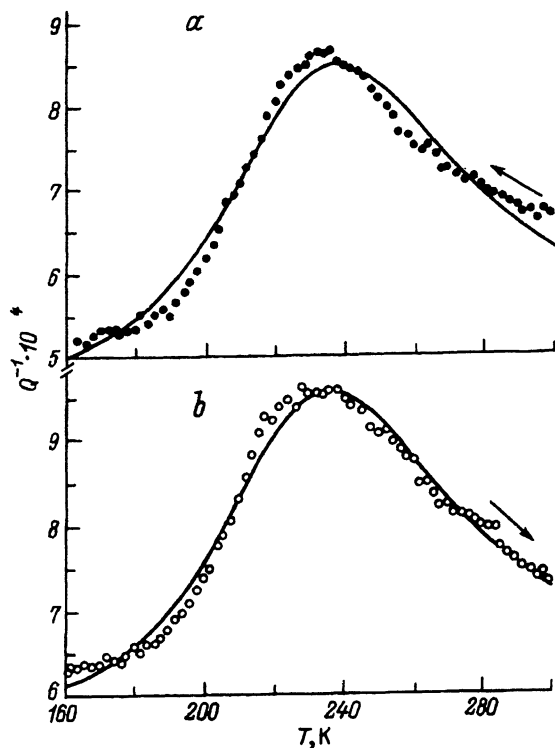


Рис. 3. Температурная зависимость внутреннего трения  $Q^{-1}$  поликристаллического образца сплава  $TbFe_{11}Ti$  в интервале температур 160–300 К в случае уменьшения (а) и увеличения (б) температуры.

Сплошные линии — теоретический расчет.

ния:  $f = f(T)$  — измеряемая частота колебаний образца; и наконец  $\tau = \tau(T)$  — время релаксации, которое может быть найдено из уравнения Аррениуса

$$\tau(T) = \tau_0 \exp(E_a/k_B T). \quad (2)$$

Очевидно, максимум внутреннего трения достигается при условии  $2\pi f\tau = 1$ . Такой релаксационный процесс должен также сопровождаться характерным перегибом кривой  $E(T)$  [9], что и наблюдалось экспериментально (рис. 2). Варьируя в качестве независимых параметров  $E_a$  и  $\tau_0$  и добиваясь наилучшего совпадения (наименьшей среднеквадратичной ошибки) экспериментальной и теоретической (1) кривых  $Q(T)$ , можно определить величины  $Q_0^{-1}$ ,  $Q_{\max}^{-1}$ ,  $E_a$  и  $\tau_0$ . Эти параметры, вычисленные указанным способом, приведены в таблице, а соответствующие расчетные кривые  $Q_{\text{calc}}^{-1}(T)$  представлены сплошными линиями в случае уменьшения (рис. 3, а) и в случае увеличения температуры образца (рис. 3, б). Видно вполне удовлетворительное согласие теоретических и экспериментальных данных, особенно в случае нагрева образца (рис. 3, б). Таким образом, можно считать, что максимумы внутреннего трения при температуре  $T \approx 240$  К связаны с релаксационным процессом с энергией активации  $E_a \approx 0.16$  эВ и характерным временем релаксации  $\tau_0 \approx 10^{-4}$  с. Столь низкое значение энергии активации и, наоборот, очень большое характерное время релаксации не позволяют связать обнаруженный релаксационный процесс с традиционными для металлов релаксационными механизмами внутреннего трения [9,10]: термоактивированной миграцией дислока-

Расчетные характеристики релаксационных максимумов  
внутреннего трения при температуре  $T \approx 240$  К  
поликристаллического образца сплава  $TbFe_{11}Ti$ .

Параметр	Температура уменьшается	Температура увеличивается
$\Delta T$ , К	300–166	160–300
$N$	69	71
$Q_0^{-1} \cdot 10^4$	$4.85 \pm 0.20$	$5.94 \pm 0.15$
$Q_{max}^{-1} \cdot 10^4$	$3.61 \pm 0.08$	$3.61 \pm 0.06$
$T_m$ , К	$238 \pm 1$	$236 \pm 1$
$E_a$ , eV	$0.16 \pm 0.02$	$0.16 \pm 0.02$
$\tau_0$ , s	$10^{-(4.35 \pm 0.42)}$	$10^{-(4.37 \pm 0.43)}$

Примечание.  $\Delta T$  — температурный интервал, на котором производились расчеты;  $N$  — число экспериментальных точек в температурном интервале  $\Delta T$ ;  $Q_0^{-1}$  — фоновая величина внутреннего трения;  $Q_{max}^{-1}$  — максимальная (над фоном) величина внутреннего трения;  $T_m$  — расчетная температура максимума внутреннего трения;  $E_a$  — энергия активации релаксационного процесса;  $\tau_0$  — характерное время релаксации.

ций (в частности, типа примесных атомов внедрения, например, газообразующих O, C, N) или с релаксацией внутренних напряжений в материале. Можно предположить, что обнаруженный релаксационный процесс связан с перестройкой магнитной структуры  $TbFe_{11}Ti$ , индуцированной волной сжатия–растяжения, возникающей в колеблющемся образце, с температурой термоактивации  $T_m \approx 240$  К. Близость измеряемой частоты колебаний образца  $f$  и обратного характерного времени релаксации  $\tau_0^{-1}$  подтверждает возможность такой интерпретации.

Значительный температурный гистерезис, наблюдавшийся при температурах  $T \geq 240$  К (по данным измерений модуля Юнга) или при  $T \geq 150$  К (по данным измерений внутреннего трения), свидетельствует о наличии весьма широкой области метастабильности состояний магнитной структуры сплава  $TbFe_{11}Ti$ , вероятно, связанных со сложной доменной структурой материала.

Таким образом, проведенные исследования температурных зависимостей модуля Юнга  $E$ , внутреннего трения  $Q^{-1}$  и теплового расширения  $\Delta L/L$  в области температур спин-переориентационного перехода 240–370 К в соединении  $TbFe_{11}Ti$  обнаружили наличие характерных аномалий на этих кривых. Эти аномалии свидетельствуют о сложном характере процесса спиновой переориентации от плоскости легкого намагничивания к оси легкого намагничивания в температурном интервале 240–370 К, что, по-видимому, определяется сложным устройством доменной структуры образца и сильной зависимостью характера перехода от первоначального магнитного состояния материала. Температурный гистерезис упругих свойств, а также широкий максимум внутреннего трения и характер релаксационных процессов в области спин-переориентационного перехода позволяют сделать вывод о наличии широкой области метастабильных состояний, сопровождающих перестройку магнитной структуры  $TbFe_{11}Ti$ .

Исследования поддержаны грантами Российского фонда фундаментальных исследований и Международного научного фонда (Дж. Сороса).

## Список литературы

- [1] Hu Bo-Ping, Li Hong-Shuo, Gavigan J.P., Coey J.M.D. // J. Phys. C.: Condens. Matter. 1989. V. 1. N 4. P. 755-770.
- [2] Boltich E.B., Mo B.M., Zhang L.Y., Paurarian F., Malik S.K., Sankar S.J., Wallace W.E. // J. Magn. Magn. Mater. 1989. V. 78. N 3. P. 364-370.
- [3] Zhang L.Y., Boltich E.B., Sinha V.K., Wallace W.E. // IEEE Trans. Magn. 1989. V. 25. N 5. P. 3303-3305.
- [4] Andreev A.V., Kudrevatykh N.V., Razgonyaev S.M., Tarasov E.N. // Physica B. 1993. V. 183. N 3. P. 379-384.
- [5] Шубин В.В. Автореф. канд. дис. М.: МГУ, 1986. 18 с.
- [6] Катаев Г.И., Шубин В.В. // Физическая электроника и вопросы электромагнетизма. Новгород: НПИ, 1985. С. 70-78; Деп. ВИНТИ рег. № 3990-85.
- [7] Lakkad S.C. // J. Appl. Phys. 1971. V. 42. N 11. P. 4277-4281.
- [8] Никитин С.А., Годовиков С.К., Бодряков В.Ю., Авенариус И.А. // Изв. РАН. Сер. физ. 1994. Т. 58. № 4. С. 15-19.
- [9] Зинер К. // Упругость и неупругость металлов / Под ред. С.В. Вонсовского. М.: Иностран. лит., 1954. 396 с.
- [10] Постников В.С. Внутреннее трение в металлах. М.: Металлургия, 1969. 332 с.