

Автоколебания упорядоченной магнитной структуры

© С.К. Годовиков, В.П. Петухов, Ю.Д. Перфильев*, А.И. Фиров**

Научно-исследовательский институт ядерной физики
Московского государственного университета им. М.В. Ломоносова,
119899 Москва, Россия

* Московский государственный институт им. М.В. Ломоносова,
119899 Москва, Россия

** Институт металлургии и материаловедения им. А.А. Байкова Российской академии наук,
117911 Москва, Россия

(Поступила в Редакцию 10 августа 1999 г.
В окончательной редакции 6 декабря 1999 г.)

Впервые наблюдались автоколебания упорядоченной магнитной структуры. Они выявлены методом эффекта Мессбауэра в ферромагнитном соединении $Tb_{0.8}Y_{0.2}Fe_2$ и имеют период в несколько дней. Колебания были инициированы одиночным импульсом электрического поля ($\sim 10^8 \text{ kV} \cdot \text{cm}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$). Предложена феноменологическая модель явления.

Работа выполнена при поддержке гранта "Университеты России — фундаментальные исследования" № 5363.

Ферримагнитное соединение $TbFe_2$ хорошо изучено различными физическими методами. Известно, что оно обладает рекордно большими при $T = 293 \text{ K}$ магнитной анизотропией и магнитострикцией [1]. Подробно исследованы его мессбауэровские параметры, которые соответствуют двум магнитно неэквивалентным положениям атома Fe в структуре RFe_2 . В 1997 г. в $Tb_{0.8}Y_{0.2}Fe_2$ ($TbFe_2$ с немагнитной примесью Y) методом эффекта Мессбауэра был обнаружен эффект долговременной (дни, месяцы) релаксации упорядоченной магнитной структуры [2,3]. Он выражается в том, что после действия на образец импульса магнитного поля ($\sim 3 \text{ ms}$, до 250 kOe) часть моментов атомов Fe изменяет свою ориентацию, а затем медленно (дни, недели), аperiодическим образом возвращается в исходное состояние. Многообразие экстремальных физических свойств этого магнетика не ограничивается, по-видимому, перечисленным. Известно [1], что магнитная анизотропия в редкоземельных магнетиках имеет электростатическую природу. В связи с этим в настоящей работе была предпринята попытка изучения методом эффекта Мессбауэра релаксационных свойств магнитной структуры $Tb_{0.8}Y_{0.2}Fe_2$ под действием импульса электрического, на этот раз поля.

1. Методика и результаты экспериментов

Проведенный эксперимент с электрическим воздействием имел ряд методических особенностей. Образец представлял собой поликристаллический мессбауэровский поглотитель диаметром 25 и толщиной 0.2 mm, высаженный из взвеси порошка в клее на майларовую подложку. Все операции с образцом и измерения производились при $T = 293 \text{ K}$. Диск образца, изолированный прокладками из фторопласта толщиной 0.1 mm, зажимался между обкладками специально изготовленного

конденсатора с меняющимся зазором между пластинами. Напряжение на конденсатор (16–18 kV) подавалось от высоковольтного блока питания рентгеновского излучателя типа РЕИС-И. Электрический импульс с длительностью $\sim 0.3 \mu\text{s}$ создавался при замыкании пластин конденсатора, одна из которых была заземлена. Скорость изменения электрического поля составляла $\sim 10^8 \text{ kV} \cdot \text{cm}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$, воздействие на образец было однократным. Для измерений использовались мессбауэровский источник Co^{57} в Cr и установка "Персей", которая позволяет создавать доплеровское смещение объекта с точностью в $0.001 \text{ mm} \cdot \text{s}^{-1}$. Необходимый рентгеноструктурный анализ осуществлялся с использованием дифрактометра ДРОН-3.

Мессбауэровские измерения (несколько серий) производились сразу после электрического воздействия на образец. Время получения одного спектра составляло ~ 12 часов, интервал между измерениями — $\sim 1-2$ дня. Спектр разлагается на два секстета линий с различными магнитными полями (H_1 и H_2), изомерными сдвигами (δ_1 и δ_2), квадрупольными расщеплениями (Q_1 и Q_2), ширинами линий (Γ_1 и Γ_2) и заселенностями секстетов A_1 и A_2 (A_1/A_2). В обычном, традиционном представлении электрическое воздействие никак не должно сказаться на этих параметрах, однако эксперимент показал обратное. На рис. 1 представлены зависимости от времени параметров A_1/A_2 , H_1 и H_2 , Q_1 и Q_2 за период ~ 40 дней. Начальные точки соответствуют исходному состоянию образца. Отчетливо видно, что зависимость от времени параметра A_1/A_2 (а также Q_2 и H_2) есть и она носит осциллирующий характер. В начальный период времени (до 2 недель) период колебаний A_1/A_2 составляет ~ 5 дней, затем он уменьшается до 2–3 дней, и далее колебания приобретают не вполне регулярный, стохастический характер. Измерения невозмущенного образца, а также образца, подвергнутого медленному ($\sim 10 \text{ min}$) уменьшению электрического поля, показали

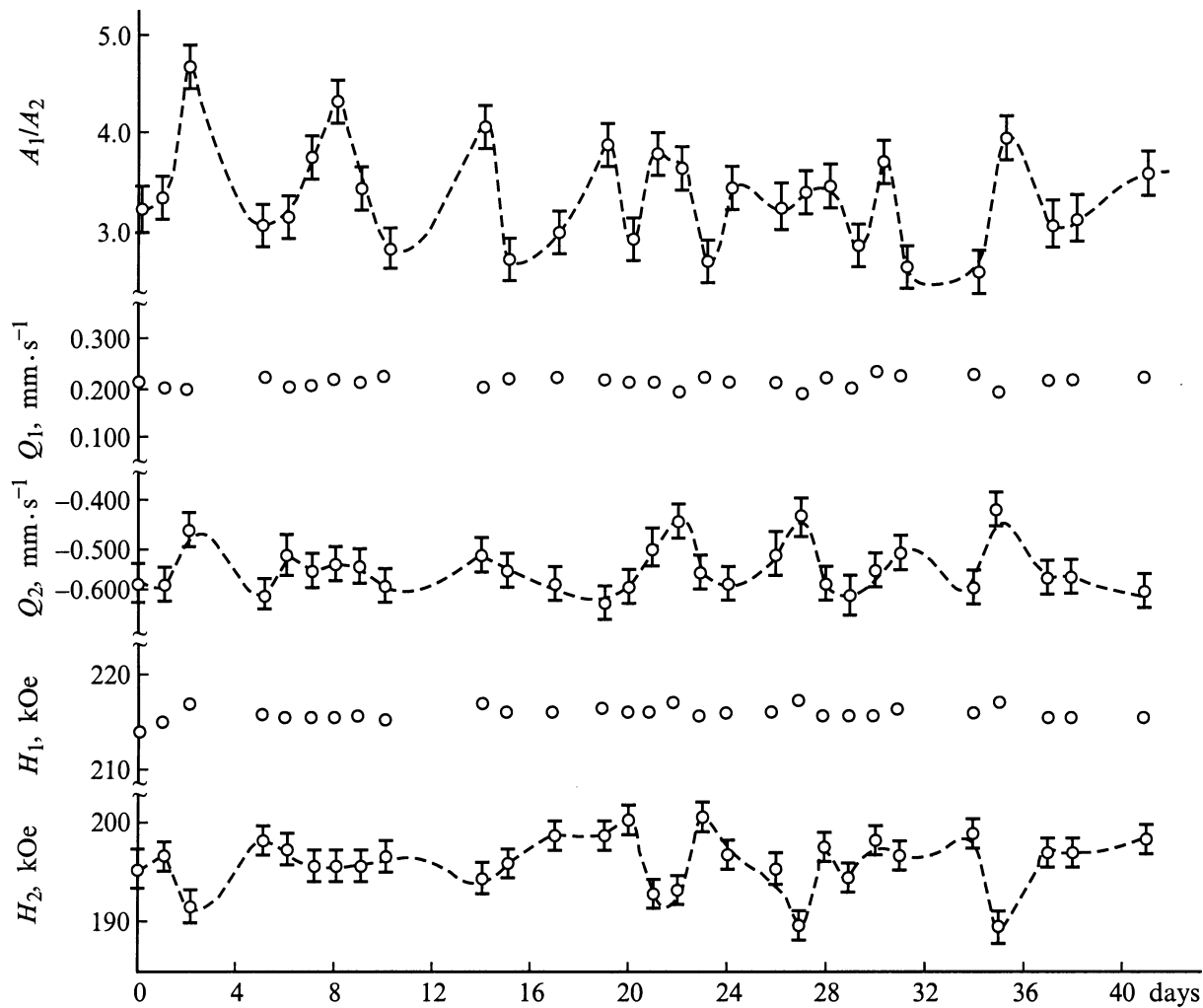


Рис. 1. Временные зависимости параметров мессбауэровских спектров $Tb_{0.8}Y_{0.2}Fe_2$: A_1/A_2 — относительной заселенности секстетов, Q_1 и Q_2 — квадрупольных расщеплений, H_1 и H_2 — магнитных сверхтонких полей.

отсутствие изменений в параметрах сверхтонких взаимодействий. Рентгеновские измерения показали, что кубическая структура $Tb_{0.8}Y_{0.2}Fe_2$ при $T = 293$ К ромбоэдрически искажена и угол ромбоэдра составляет $\alpha = 89.88^\circ$.

2. Обсуждение результатов

Колебания на рис. 1 являются отражением впервые наблюдаемого процесса автоколебаний атомной магнитной структуры вещества. То, что они выявлены именно в данном магнетике, связано с уникальным сочетанием его структурных и магнитных свойств. Фрагмент структуры $TbFe_2$ (фаза Лавеса) представлен на рис. 2. Атомы Tb образуют алмазную решетку, на элементарную ячейку которой приходится четыре единообразно выстроенных по типу рис. 2 тетраэдра атомов Fe. Ось легкого намагничивания [111]. Угол ϑ между направлением магнитного момента атома Fe и осью градиента электрического поля принимает два значения: $\vartheta = 0^\circ$ и $72^\circ 32'$, что и создает магнитное различие атомов Fe в результате эффекта

комбинированного магнитного дипольного и электрического квадрупольного взаимодействий, а также эффекта анизотропного сверхтонкого взаимодействия. Из рис. 2 очевидно, что в нормальном состоянии $A_1/A_2 = 3$, что и наблюдается исходно (рис. 1). Легко понять, как возникают отклонения от нормального состояния. Для этого должен измениться угол ϑ хотя бы одного из атомов Fe на рис. 2. Например, перескок типа $70^\circ 32' \rightarrow 0^\circ$ дает $A_1/A_2 = 2 : 2 = 1$, а типа $0^\circ \rightarrow 70^\circ 32'$ — $A_1/A_2 = 4 : 0$, т. е. ликвидацию магнитной неэквивалентности. Если дефекты структуры последнего типа возникнут хотя бы в одной ячейке из трех, то это дает среднее значение $A_1/A_2 = 5$, что близко к эксперименту (рис. 1). Отсутствие единообразия в повороте моментов, выделенность отдельных атомов Fe создается, по-видимому, их соседством с немагнитными атомами Y, концентрация которых по отношению к Fe равна 1 : 10.

Электрическое воздействие на исследуемый металлический образец длилось $\sim 10^{-6}$ с. Это эквивалентно воздействию электрической волны с частотой порядка

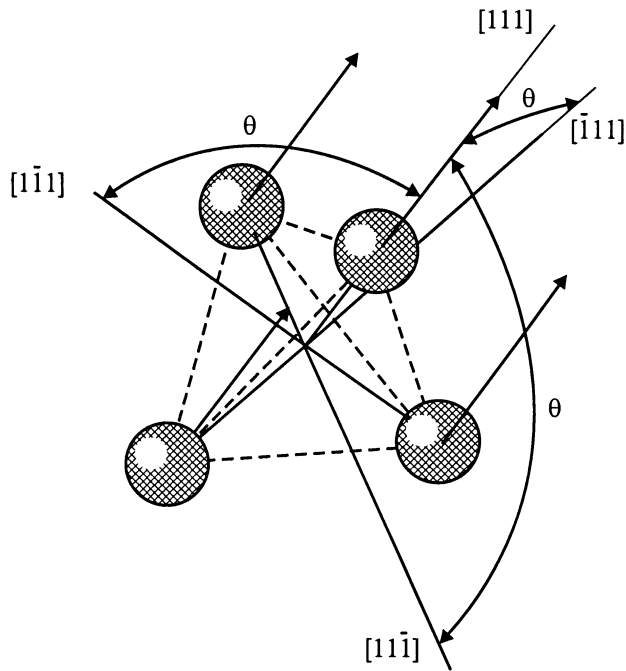


Рис. 2. Расположение атомов Fe в структуре TbFe₂. Стрелки — магнитные моменты Fe.

нескольких мегагерц за то же время. Толщина скин-слоя здесь составляет ~ 0.1 мм, т.е. поле вполне проникает в частицы поглотителя, размер которых ~ 0.01 мм. Магнитное поле токов смещения составляет в данном эксперименте $\sim 10^{-3}$ Ое и никакого влияния на магнитную структуру не оказывает. С учетом результатов опыта по плавному уменьшению поля в конденсаторе можно считать, таким образом, что наблюдаемые физические явления обусловлены мгновенным уменьшением до нуля электрического поля E^0 , т.е. производной dE^0/dt , достигающей до 10^8 кВ · см⁻¹ · с⁻¹.

Импульс электрического поля вызывает смещение ионов решетки. Энергия этого смещения, энергия магнитоупругого взаимодействия и энергия образования ромбоэдра должны быть примерно одного порядка, так как в основе их лежит электростатическое взаимодействие, формирующее магнитную анизотропию. Энергию образования ромбоэдра легко подсчитать как работу по смещению ионов, которую необходимо выполнить для деформации граней куба на угол, равный $\Delta\alpha \sim 0.12^\circ$. Она составляет ~ 0.01 эВ/ион. Точности использованного рентгеноструктурного анализа (0.001 \AA) оказалось недостаточно для фиксации факта возможного изменения параметра решетки, однако изменения в параметре $\Delta\alpha$ вполне допустимы. На реальность процесса смещения ионов указывает также то, что параметр измеренного сдвига δ_1 изменился после действия поля на ~ 0.06 мм · с⁻¹, а параметр Q_2 — на ~ 0.15 мм · с⁻¹, т.е. весьма значительно. Это означает, что в решетку была введена энергия смещения ионов, которая превращается в энергию магнитного возмущения $\Delta E \sim 0.01$ эВ/ион.

Рассмотрим теперь процесс колебаний в целом. Энергия ΔE создает в некоторой части элементарных ячеек еще одно направление ориентации моментов типа $[111]$, отличное от имеющегося в данной ячейке, например $[\bar{1}\bar{1}\bar{1}]$. Это возможно, если ось $[\bar{1}\bar{1}\bar{1}]$ и направление деформации совпадают. В результате часть моментов совершает перескок типа $0^\circ \rightarrow 70^\circ 32'$, что приводит к росту A_1/A_2 , как это описано выше. На рис. 3 представлена энергетическая схема, на основе которой будет проводиться дальнейшее обсуждение результатов. Она состоит из схемы двух взаимосвязанных потенциальных ям I и II, условно связанных с направлениями $[\bar{1}\bar{1}\bar{1}]$ и $[111]$ соответственно. Яма I "мельче" ямы II, по видимому, по крайней мере в 3 раза. Именно такое соотношение глубин соответствует наблюдаемым максимальным значениям параметра A_1/A_2 (рис. 1). Глубина E_2 ямы II составляет ~ 0.01 эВ/ион, как можно оценить из интенсивности обменного взаимодействия для TbFe₂, имеющего точку Кюри 682 К.

Введем некий средний угол $\vartheta_{av}(t)$, который характеризует степень перескока моментов на ось $[\bar{1}\bar{1}\bar{1}]$ как функции времени, в виде

$$\vartheta_{av}(t) = 70^\circ 32' \cdot N_{[\bar{1}\bar{1}\bar{1}]}(t) / [N_{[\bar{1}\bar{1}\bar{1}]}(t) + N_{[111]}(t)], \quad (1)$$

где $N_{[\bar{1}\bar{1}\bar{1}]}(t)$ и $N_{[111]}(t)$ — число моментов в ямах I и II соответственно. Истинный угол ϑ принимает только два дискретных значения, а ϑ , характеризующий изменения магнитной структуры образца в целом, изменяется плавно. Рост $N_{[\bar{1}\bar{1}\bar{1}]}(t)$ означает увеличение $\vartheta_{av}(t)$ и энергии, с ним связанной, которую можно выразить в виде $\xi\vartheta_{av}(t)$, где ξ — нормировочный коэффициент пропорциональности. С другой стороны, изменение ориентации отдельного момента вызывает изменение магнитного потока и создает добавочную энергию, пропорциональную скорости этого изменения. В терминах ϑ_{av} эту добавку можно выразить как $\tau d\vartheta_{av}/dt$, где τ — время релаксации системы моментов. Источником изменения ϑ является

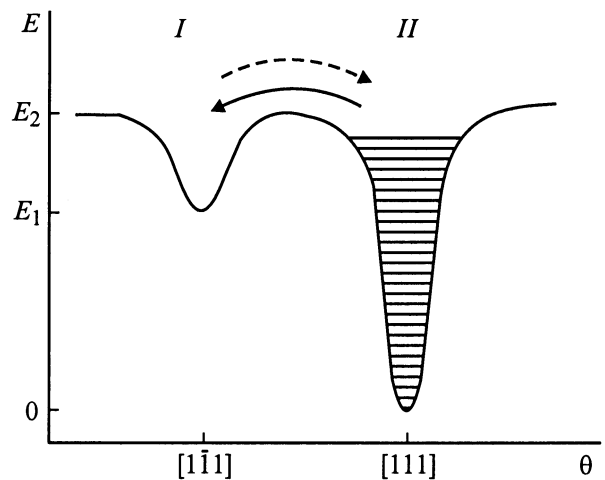


Рис. 3. Энергетическая схема процесса автоколебаний моментов атомов Fe.

энергия E_2 моментов в яме II и энергия магнитного возмущения ΔE . Отсюда уравнение энергетического баланса движения моментов можно записать в виде

$$\xi(\tau d\vartheta_{av}/dt + \vartheta_{av}) = E, \quad (2)$$

$$E = E_2 + \Delta E.$$

Уравнение (2) для начальной стадии изменения ϑ_{av} имеет решение в виде

$$\vartheta_{av}(t) = E/\xi[1 - \exp(-t/\tau)]. \quad (3)$$

Из (3) можно оценить, что время Δt_1 переброса моментов в яму I по порядку величины не превышает

$$\Delta t_1 \sim \tau \ln[(E - E_1)/(E - E_2)]. \quad (4)$$

Величина ΔE не является постоянной. В момент заполнения ямы I по верху она резко меняет знак, и в силу примерного равенства абсолютных значений E_2 и ΔE уравнение (2) принимает существенно иной вид

$$\tau d\vartheta_{av}/dt + \vartheta_{av} = 0. \quad (5)$$

Физически это означает, что яма I более заполнена, чем яма II, что вызывает обратный процесс переброса моментов с характерным временем

$$\Delta t_2 = \tau \ln E_2/E_1. \quad (6)$$

Таким образом, период всего процесса Δt есть

$$\Delta t = \Delta t_1 + \Delta t_2. \quad (7)$$

Заполнение ямы II означает возвращение в исходное состояние, где $\Delta E > 0$ и имеют силу уравнения (2) и (3). Поэтому процесс повторяется и начинается новый цикл колебательного процесса. Изменение знака ΔE обусловлено тем, что эта величина заключает в себе изменение энергии кристаллического поля при повороте моментов, который происходит через область оси трудного намагничивания [100], где константа магнитной анизотропии K_1 имеет противоположный исходному состоянию знак. Вид дифференциальных уравнений (2) и (5) свидетельствует о том, что колебания носят релаксационный характер. По природе своей — это колебания, источником которых является энергия исходной деформации решетки, постепенно расходуемая на магнитоупругие временные процессы.

Оценим теперь параметр Δt . Из результатов работы (3) известно, что характерное время аperiodической релаксации моментов в рассматриваемой системе составляет $\tau \sim 7$ дней. Отсюда, согласно (4), $\Delta t_1 \approx 2$ дня, а согласно (6), $\Delta t_2 \approx 2.8$ дня, т.е. $\Delta t \approx 4.8$ дня. Это значение весьма близко к экспериментально наблюдаемой периодичности начального участка зависимости A_1/A_2 от времени, которая равна ~ 5 дням (рис. 1). Параметр Δt весьма критичен к величине E_1 , т.е. к глубине ямы I. Возрастание E_1 приводит, согласно (4)

и (6), к уменьшению Δt . Этот эффект проявляется при временах свыше двух недель (рис. 1), когда амплитуда колебаний A_1/A_2 затухает со временем, что эквивалентно уменьшению глубины ямы I. Кроме того, параметр Δt очень чувствителен к величине ΔE . Если ΔE очень мало (слабое возмущение), то, согласно (4), $\Delta t_1 \rightarrow \infty$, т.е. возникает аperiodический процесс. Такие случаи действительно наблюдались в серии предварительных экспериментов с электрическим полем [4].

Если рассматривать микроскопический механизм перескока моментов, то он представляется как кластерный, причем размер кластера для наблюдаемых времен релаксации должен составлять ~ 20 моментов Fe [3]. Отсюда можно объяснить стохастичность колебаний при больших временах (> 25 дней), когда происходит, по-видимому, рассеяние по кристаллу центров возмущения. Это затрудняет образование больших кластеров, а мелкие, как известно [3], распадаются за очень широкий спектр времени, начиная от минут до нескольких дней.

Рассмотрим теперь поведение параметров H_1 , H_2 , Q_1 и Q_2 (рис. 1). Временная стабильность параметров H_1 и Q_1 связана с тем, что они соответствуют той большей части атомов Fe, которые не соседствуют с атомами Y и устойчивы к возмущению. С другой стороны, параметры H_2 и Q_2 связаны с той частью атомов Fe, моменты которых испытывают перескоки по крайней мере в одной элементарной ячейке из трех. Этот процесс вызывает легкое возмущение локальной магнитной и атомной структуры и, следовательно, параметров H_2 и Q_2 , и притом в антифазе друг к другу, как и положено в случае комбинированного сверхтонкого взаимодействия.

Список литературы

- [1] К.П. Белов. Редкоземельные магнетики, Наука, М. (1980).
- [2] S.K. Godovikov, Yu.D. Perfiliev, Yu.F. Popov, A.I. Egorov. Book of abstracts. Int. Conf. Applications of Mossbauer Effect. Rio de Janeiro (1997). P.MO.T8.PO4.
- [3] С.К. Годовиков, Ю.Д. Перфильев, Ю.Ф. Попов, А.И. Фиров. ФТТ **40**, 508 (1998).
- [4] С.К. Годовиков, Ю.Д. Перфильев, В.П. Петухов. Программа и тезисы докладов. Всероссийская конф. "Применение ядерно-физических методов в магнетизме и материаловедении". Ижевск (1998). С. 39.