

Вестник МОСКОВСКОГО УНИВЕРСИТЕТА

№ 2 — 1968

УДК 538.245:621.318.1

К. Т. МАКАРОВ

ИЗМЕНЕНИЕ АНИЗОТРОПИИ МАГНИТНОЙ ВЯЗКОСТИ МОНОКРИСТАЛЛОВ МАГНИЙМАРГАНЦЕВЫХ ФЕРРИТОВ В ИНТЕРВАЛЕ ТЕМПЕРАТУР ОТ -196°C ДО ТОЧКИ КЮРИ

Проведено экспериментальное исследование температурной зависимости магнитной вязкости монокристаллов магниймарганцевых ферритов в диапазоне от -196°C до точки Кюри. Дается объяснение температурной зависимости анизотропии магнитной вязкости.

Настоящая работа посвящена изучению изменения анизотропии магнитной вязкости монокристаллических Mg—Mn ферритов двух составов в широком интервале температур от -196°C до точки Кюри.

Магниймарганцевые ферриты выбраны нами в качестве объекта исследования потому, что они обладают рядом интересных и ценных свойств, в частности, весьма высокой прямоугольностью петли гистерезиса, что особенно важно при применении их в качестве элементов памяти в счетно-решающих устройствах.

Монокристаллы ферритов были выращены по методу Вернейля в Институте кристаллографии АН СССР.

Для проведения измерений из ориентированных рентгенографически монокристаллов с помощью ультразвука были вырезаны рамочные образцы, стороны которых совпадали с кристаллографическими направлениями $[111]$ и $[100]$. На этих образцах по методике, описанной в работах [1, 2], нами исследовались анизотропия магнитной вязкости данных ферритов при комнатной температуре [3] и влияние на нее термообработки в отсутствие магнитного поля — отжига [4].

Для изучения изменения анизотропии вязкости при изменении температуры образцов последние подвергались нагреву в печи или охлаждению в парах жидкого азота. При фиксированных значениях температуры, контролируемой медь-константановой термопарой, снимались кривые зависимости магнитной вязкости τ и максимальной скорости изменения индукции $\left(\frac{dB}{dt}\right)_{\max}$ монокристаллических образцов ферритов от величины намагничивающего поля H .

По моменту исчезновения импульса перемагничивания и его вторичному появлению на экране осциллографа соответственно при возвра-

станции и убывании температуры образцов была сделана попытка определить точки Кюри изучаемых ферритов [5].

На ферротестере типа «Орион» снимались петли гистерезиса образцов при всех фиксированных значениях температуры измерений. Из полученных петель определялись значения коэрцитивной силы H_c , остаточной индукции B_r , максимальной индукции B_m , а также коэффициента прямоугольности B_r/B_m .

В таблице приведены состав и температуры Кюри исследуемых ферритов.

Феррит	Состав феррита (мол. %)	Номера образцов	Кристаллографическое направление	Температура Кюри (°С)
Магниймарганцевый I	24 MgO	1	[111]	295
	32 MnO 44 Fe ₂ O ₃	2	[100]	
Магниймарганцевый II	10 MgO	3	[111]	251
	40 MnO 50 Fe ₂ O	5	[100]	

Нумерация образцов та же, что и в [3].

Из таблицы видно, что температура Кюри магниймарганцевого феррита с увеличением содержания марганца понижается. Ранее такие же результаты для марганцевых и магниймарганцевых ферритов были получены в работе [6], авторы которой полагают, что понижение температуры Кюри с ростом концентрации марганца обусловлено уменьшением обменного взаимодействия между *A*- и *B*-подрешетками при избытке ионов Mn в *B*-подрешетке шпинели.

Характер изменения анизотропии магнитной вязкости при изменении температуры оказался качественно одинаковым для монокристаллов обоих составов изучаемых ферритов. Поэтому мы ограничимся рассмотрением поведения анизотропии вязкости в функции температуры на примере магниймарганцевого феррита I (см. табл.).

Кривые зависимости магнитной вязкости от намагничивающего поля для образцов 1 и 2 из этого феррита, снятые при температурах —196, —20, +20 и +100°С, показаны на рис. 1.

Из графиков видно, что максимумы вязкости образцов при возрастании температуры смещаются в сторону уменьшения поля. Отношение $\tau_{[111]}/\tau_{[100]}$, характеризующее анизотропию вязкости [3], имеющую наибольшую величину в области коэрцитивной силы (средние поля), также убывает, т. е. с ростом температуры величина анизотропии вязкости феррита уменьшается.

В области сильных полей, больших коэрцитивной силы, наблюдается незначительная анизотропия вязкости как при нагреве, так и при охлаждении феррита, т. е. последняя в сильных полях слабо зависит от температуры.

Интересно отметить также, что наибольшее изменение под влиянием температуры претерпевает магнитная вязкость образца 1 (в области коэрцитивной силы), стороны которого параллельны направлениям легкого намагничивания в кристалле, т. е. осям типа [111]. Вязкость образца 2 (направления типа [100]) изменяется в меньшей степени.

На рис. 2, а для образцов 1 и 2 приведены кривые зависимости максимальной магнитной вязкости τ_{\max} от температуры. Здесь можно различить 4 области изменения максимальной вязкости при понижении температуры: 1) быстрое возрастание при $+20^\circ \leq t < T_c$, где t — температура образца, T_c — температура Кюри данного феррита; 2) резкое убывание τ_{\max} при $-20^\circ \leq t < +20^\circ\text{C}$; 3) относительное постоянство вязкости в промежутке $-80^\circ - -60^\circ \leq t \leq -20^\circ\text{C}$; 4) очень большой рост максимальной вязкости образца 1 и сравнительно небольшое возрастание вязкости образца 2 при $-196^\circ \leq t < -80^\circ - -60^\circ\text{C}$.

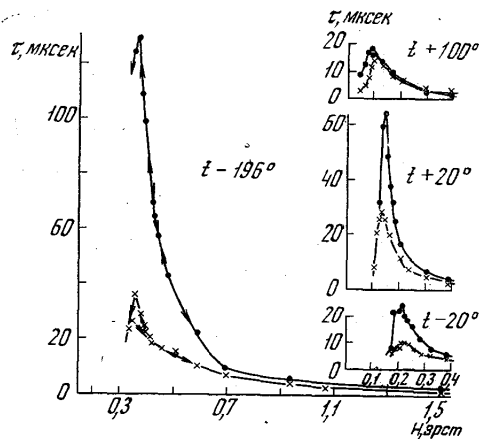


Рис. 1. Кривые $\tau = f(H)$ для магниймарганцевого феррита I. ● — образец 1 (рамка [111]), × — образец 2 (рамка [100])

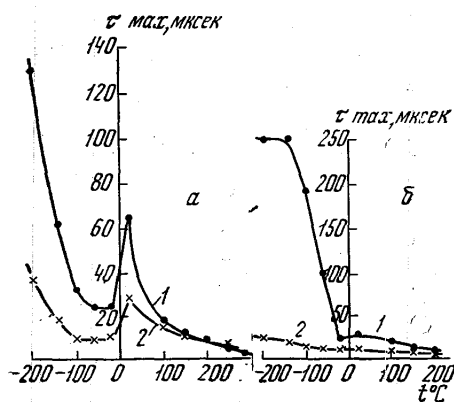


Рис. 2. Зависимость $\tau_{\max} = f(t^\circ\text{C})$ для ферритов: а — Mg—Mn I, б — Mg—Mn II (1 — образцы 1 и 3 (●), 2 — образцы 2 и 5 (×))

Подобное поведение τ_{\max} при изменении температуры наблюдалось в ряде поликристаллических ферритов со структурой шпинели [7, 8], а также в феррите — гранате иттрия [9].

Из графиков рис. 2, а видно также, что анизотропия вязкости в области коэрцитивной силы (т. е. отношение $\tau_{[111]}^{\max} / \tau_{[100]}^{\max}$) увеличивается с уменьшением температуры феррита.

Кривые зависимости $\tau_{\max} = f(t^\circ\text{C})$ для образцов из магниймарганцевого феррита II показаны на рис. 2, б. На этих графиках различимы три области изменения τ_{\max} при уменьшении температуры: 1) слабое увеличение максимальной вязкости обоих образцов при $+20^\circ \leq t < T_c$; 2) незначительное уменьшение их вязкости при $-20^\circ \leq t < +20^\circ\text{C}$; 3) особенно резкое возрастание τ_{\max} образца 3 и небольшой рост вязкости образца 5 при $-196^\circ \leq t < -20^\circ\text{C}$.

Анизотропия вязкости этого феррита в области средних полей, сравнимых с коэрцитивной силой, начинает очень сильно расти от температуры -20°C и ниже.

В процессе измерений магнитной вязкости при охлаждении изучаемых монокристаллических образцов наблюдалось явление, которое ранее было обнаружено в поликристаллических магниймарганцевых ферритах [7]. Когда температура образца при его охлаждении становится равной или ниже некоторой $t_{кр}$, последний начинает перемагничиваться с задержкой, т. е. импульс перемагничивания при плановом нарастании намагничивающего поля от нуля до максимального значения H_m появляется на экране осциллографа внезапно, скачком. При этом H равно некоторому полю H_2 . С дальнейшим ростом поля до H_m импульс

изменяется равномерно, без скачков. Если, далее, уменьшать поле от H_m до 0, то перемагничивание образца продолжается и при $H < H_2$; процесс перемагничивания прерывается скачком при значении H , меньшем некоторого другого поля H_1 , причем $H_1 < H_2$.

Из анализа кривых рис. 1, снятых при температуре -196°C , видно, что при возрастании поля от 0 до H_m перемагничивание, например образца 1, начинается при $H = H_2 = 0,42 \text{ эрст}$, и с последующим уменьшением поля от максимального значения прекращается при $H < H_1 = 0,35 \text{ эрст}$.

Если температура образца выше $t_{\text{кр}}$, то перемагничивание происходит без эффекта «задержки», т. е. скачкообразного появления и исчезновения импульса перемагничивания не наблюдается.

Для Mg—Mn феррита I критическая температура $t_{\text{кр}}$, по нашим измерениям, -124 — -128°C , а для феррита II — приблизительно -20°C .

С повышением температуры коэрцитивная сила и поле старта монокристалла феррита уменьшаются [10], что приводит к наблюдаемому смещению максимумов магнитной вязкости в сторону малых полей.

При возрастании температуры от $+20^\circ\text{C}$ уменьшается также максимальная дифференциальная восприимчивость феррита, что вызывает наблюдаемое уменьшение максимальной вязкости обоих образцов [111] и [100] (см. рис. 1). Проверка показывает, что при этом изменении τ_{max} пропорционально изменению $(\chi_d)_{\text{max}}$. Значения магнитного поля, при которых соответственно наблюдаются максимумы магнитной вязкости и дифференциальной восприимчивости, весьма близки одно к другому. Следовательно, при температурах выше $+20^\circ\text{C}$ для рассматриваемых ферритов I и II выполняется первое правило магнитной вязкости [11] в виде $\tau \approx A \cdot \chi_d$ [5].

Поведение кривых зависимости τ_{max} от температуры (см. рис. 2, а) можно объяснить, если предположить в феррите I наличие в качестве примеси ионов Fe^{2+} [9].

Из графиков видно, что для обоих образцов областью существования магнитной вязкости первого типа является интервал температур приблизительно от -20°C до T_c . При температуре около $+20^\circ\text{C}$ максимальная вязкость этого типа достигает наибольшего значения. Магнитная вязкость второго типа имеет место в интервале температур примерно от -60° и вплоть до -196°C . В промежутке от -20° до -60°C магнитная вязкость почти не зависит от температуры.

Быстрый рост магнитной вязкости первого типа ниже $\sim +100^\circ\text{C}$ для феррита I говорит о том, что в механизм вязкости включается новый процесс — диффузия электронов между ионами Fe^{2+} и Fe^{3+} .

При температурах выше $+100^\circ\text{C}$ диффузия не вносит заметного вклада в магнитную вязкость, поскольку, как известно, время релаксации электронов при этих температурах мало. Быстрое возрастание времени релаксации электронов с понижением температуры приводит к резкому росту магнитной вязкости феррита. При этом магнитная вязкость образца [111] увеличивается быстрее, чем вязкость образца [100] (рис. 2, а). Последнее вызвано тем, что диффузия электронов, по-видимому, в большей степени тормозит во времени процессы смещения доменных границ (преимущественный способ перемагничивания образца [111]), чем процессы вращения векторов намагниченности (образец [100]). Этим можно объяснить наблюдаемое резкое увеличение анизотропии магнитной вязкости данного феррита при уменьшении температуры последнего до $+20^\circ\text{C}$.

О том, что в данном температурном интервале (от $+20^\circ\text{C}$ до T_c) имеет место электронная диффузия, свидетельствуют величины энергии

активации, вычисленные нами из измерений магнитной вязкости и находящиеся в пределах 0,14—0,31 эв для образца [111] и 0,09—0,56 эв для образца [100]. Для образцов из феррита II получается соответственно 0,03—0,21 эв и 0,04—0,16 эв.

Причина наблюдаемого резкого уменьшения магнитной вязкости первого типа приблизительно ниже +20°C заключается в том, что ниже этой температуры, по-видимому, начинает появляться упорядоченное распределение ионов Fe²⁺ и Fe³⁺ (при температурах выше ~+20°C ионы Fe²⁺ распределены в кристаллической решетке хаотически). При наличии анизотропно упорядоченного распределения ионов Fe²⁺ и Fe³⁺

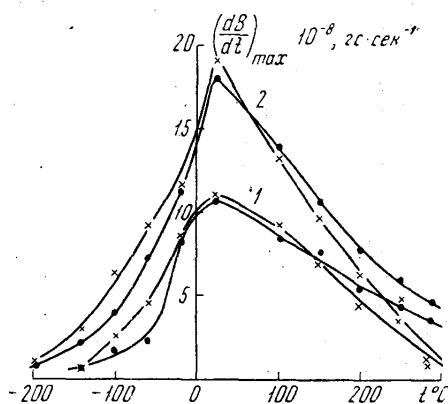


Рис. 3. Кривые $\left(\frac{dB}{dt}\right)_{\max} = f(t^{\circ}\text{C})$ для Mg—Mn феррита I. 1 — $H=0,30$ эрст; 2 — $H=0,38$ эрст (— образец 1, ×—образец 2)

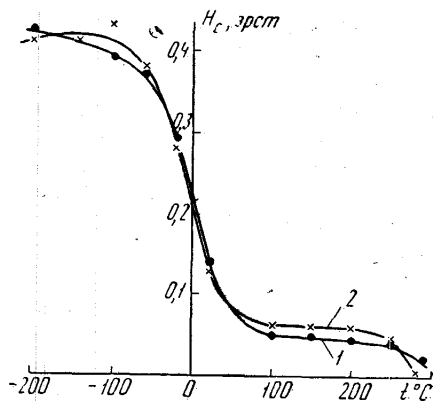


Рис. 4. Температурная зависимость коэрцитивной силы H_c для Mg—Mn феррита I. (1 — образец I; 2 — образец 2)

намагниченность в каждом домене стабилизируется в определенном направлении [12]. Это, в свою очередь, приводит к стабилизации доменных границ. В пользу такого предположения говорит поведение кривых зависимости максимальной скорости изменения индукции от температуры (рис. 3). Уменьшение $\left(\frac{dB}{dt}\right)_{\max}$ при повышении температуры от +20°C до T_c обусловлено, вероятно, воздействием тепловых флуктуаций на индукцию насыщения данного феррита. С понижением температуры от +20°C и вплоть до -196°C максимальная скорость изменения индукции в обоих образцах уменьшается, что, по-видимому, и является следствием процесса стабилизации доменных границ.

Другим фактором, свидетельствующим о развитии процесса стабилизации, является резкое возрастание коэрцитивной силы обоих образцов при понижении температуры от +20°C (рис. 4), означающее, как известно, появление центров сопротивления смещению границ доменов. Такой же быстрый рост H_c наблюдался в магнетите приблизительно ниже -123°C [13].

Отличие от нуля и независимость магнитной вязкости обоих образцов от температуры от -20° до -60°C объясняется тем, что в этом температурном промежутке присутствуют, возможно, оба типа вязкости одновременно (участки кривых между -20° и -60°C можно, по-видимому, рассматривать как суммы кривых вязкостей первого и второго типов).

При температурах ниже -60°C существует магнитная вязкость только второго типа. Можно предположить, что ее появление обусловлено воздействием магнитной одноосной анизотропии, возникающей вследствие анизотропно упорядоченного распределения ионов Fe^{2+} и Fe^{3+} .

Хорошо известно [14], что появление магнитной одноосной анизотропии сопровождается ростом прямоугольности петли гистерезиса, что наблюдается и на наших образцах из Mg-Mn феррита I (рис. 5, а).

Улучшение прямоугольности петель гистерезиса обусловлено ростом остаточной индукции образцов при их охлаждении до низкой темпера-

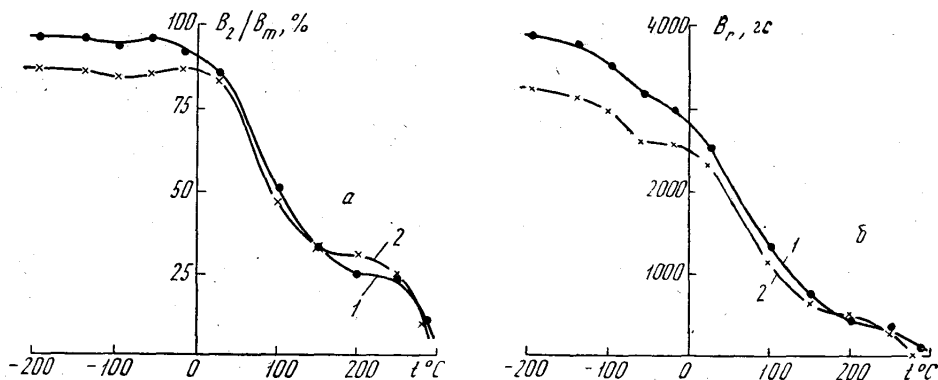


Рис. 5. Зависимость от температуры коэффициента прямоугольности петли гистерезиса и остаточной индукции образцов из Mg-Mn феррита I: а — $B_r/B_m = f(t^{\circ}\text{C})$; б — $B_r = f(t^{\circ}\text{C})$. 1 — образец 1; 2 — образец 2

туры, причем наблюдается бóльший рост B_r в образце [111], чем в образце [100] (рис. 5, б). Это происходит, по-видимому, потому, что процесс стабилизации доменных границ идет гораздо интенсивнее в образце [111], чем в образце [100], поскольку первый перемагничивается главным образом путем необратимого смещения доменных границ, а второй — путем вращения векторов намагниченности доменов. В результате наблюдается рост анизотропии магнитной вязкости феррита I при понижении температуры от $+20^{\circ}$ до -196°C .

Смещение доменных границ в образце феррита, находящемся при температуре $t_{\text{кр}}$ и ниже, тормозится силами, возникающими вследствие стабилизации границ. Поэтому образование новых и рост существующих зародышей перемагничивания становится затруднительным. Когда внешнее поле, приложенное к образцу, достигает величины H_2 , происходит лавинообразное возникновение и быстрый рост большого числа соответственно новых и уже имеющихся в разных местах образца зародышей перемагничивания. Макроскопически образец перемагничивается с «задержкой».

Перемагничивание образца, продолжающееся при $H_1 < H_2$, объясняется тем, что, как известно [10], для преодоления движущимися доменными границами высоких потенциальных барьеров, возникших при стабилизации, которые, вероятно, уменьшаются в процессе перемагничивания, требуются меньшие затраты энергии, чем на образование зародышей.

Прекращение перемагничивания феррита при $H < H_1$ обусловлено тем, что дальнейший рост зародышей перемагничивания при таком значении внешнего поля становится энергетически менее выгодным.

Скачкообразный характер начала перемагничивания образца при $H=H_2$ и прекращение перемагничивания при $H<H_1$ вызван, возможно, тем, что вследствие стабилизации доменных границ, спектр значений энергии, необходимой для перемагничивания всего объема образца, суживается. Внешним проявлением этого является увеличение прямоугольности петли гистерезиса.

Поле H_2 можно, по-видимому, отождествить с полем старта H_s , а поле H_1 — с критическим полем H_0 [10].

Интересно отметить, что разность полей H_s-H_0 (в нашем случае H_2-H_1), рассматриваемая в [15] как мера энергии, необходимой для начала роста зародыша перемагничивания, для образца [111] при температурах -140° и -196°C (см. рис. 1) имеет одно и то же значение 0,07 эрст, а для образца [100] при этих же температурах $\approx 0,05$ эрст. Это свидетельствует о том, что возникновение и рост зародышей перемагничивания в образце [111] более затруднено, чем в образце [100]. Следовательно, образец [111] подвержен процессу стабилизации доменных границ в большей степени, чем образец [100].

Существование в данных ферритах критической температуры $t_{кр}$ связано, вероятно, с низкотемпературным фазовым превращением [16]. Как известно [17], в марганцевом феррите такое превращение начинается уже при комнатной температуре. Исследованный в настоящей работе феррит II (см. табл.) приближается по своему составу к стехиометрическому MnFe_2O_4 (50% мол. MnO и 50% мол. Fe_2O_3). Этим можно объяснить то, что $t_{кр}$ феррита II находится в окрестности -20°C .

Незначительное возрастание максимальной магнитной вязкости в образцах из магниймарганцевого феррита II при понижении температуры последних до $+20^\circ\text{C}$ (см. рис. 2, б) объясняется, возможно, тем, что в данном феррите II по сравнению с ферритом I содержится меньшее количество примесных ионов Fe^{2+} .

Автор выражает глубокую благодарность проф. Р. В. Телеснину за постоянное руководство работой и за обсуждение результатов.

ЛИТЕРАТУРА

1. Телеснин Р. В., Курицына Е. Ф. Сб. «Ферриты». Минск, Изд-во АН БССР, 1960, стр. 320.
2. Овчинникова А. М. «Вестн. Моск. ун-та», сер. физ., астроном., № 2, 31, 1960.
3. Телеснин Р. В., Макаров К. Т. «Физика металлов и металловед.», 20, вып. 3, 349, 1965.
4. Телеснин Р. В., Макаров К. Т. «Вестн. Моск. ун-та», сер. физ., астроном., № 6, 18, 1967.
5. Ефимова А. М. Диссертация. МГУ, 1962.
6. Белов К. П., Белов В. Ф., Залесский А. В., Попова А. А. Сб. «Ферриты». Минск, Изд-во АН БССР, 1960, стр. 83.
7. Шамаев Ю. М., Немцов М. В. «Вопросы радиоэлектроники», сер. III, вып. 9, 115, 1962.
8. Мирясов Н. З., Нгуен Тья У. «Вестн. Моск. ун-та», сер. физ. астроном., № 1, 66, 1966.
9. Телеснин Р. В., Ефимова А. М. Сб. «Физические и физико-химические свойства ферритов». Минск, Изд-во АН БССР, 1966, стр. 216.
10. Вонсовский С. В., Шур Я. С. Ферромагнетизм. М., Гостехиздат, 1948.
11. Телеснин Р. В. ДАН СССР, 75, 659, 1950.
12. Néel L. J. Appl. Phys., 30, suppl., 3, 1959.
13. Vonstrom D. B., Morrish A. H., Watt L. A. K. J. Appl. Phys., 32, suppl., 272, 1961.
14. Epstein D. J., Frackiewicz B., Hunt R. P. J. Appl. Phys., 32, suppl., 270, 1961.
15. Сикстус К. «Успехи физич. наук», 22, 63, 1939.
16. Белов К. П. Магнитные превращения. М., Физматгиз, 1959, стр. 220.
17. Okamura T., Simoizaka J. Phys. Rev., 83, 664, 1951.

Поступила в редакцию
20. 12 1966 г.

Кафедра
общей физики
для физфака