

можно сделать вывод об антипараллельной поляризации  $s$ - и  $d$ -электронов в полосе проводимости, а так как  $s$ -электроны создают положительные поля, то  $d$ -поляризация вблизи ядер иттрия должна быть отрицательной, что согласуется с выводами Кэмпбелла [12].

Очевидно, что величина этой поляризации зависит от числа соседей иттрия или железа, однако произвести количественную оценку вклада в общее сверхтонкое поле за счет раскомпенсации замкнутых  $s$ -оболочек под действием  $d$ -поляризованных электронов довольно трудно, так как неизвестны номер соответствующей  $d$ -орбитали и топология электронной структуры интерметаллических соединений.

В заключение представляется интересным оценить влияние выбора модели на полученные результаты. Известно, что приближенный характер РККИ-модели определяется выбором аналитического представления интеграла  $s$ - $f(d)$ -обмена и формы поверхности Ферми. В нашем случае используется не само представление  $s$ - $f(d)$ -взаимодействия, а лишь его относительное изменение. В равной мере это относится и к конкретной форме поверхности Ферми — относительное изменение ограниченного ею объема остается постоянным для любых поверхностей второго порядка. Поэтому сделанные в работе выводы в значительной мере свободны от степени приближения.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- [1] Никитин С. А. и др. ЖЭТФ, 1975, 68, с. 577. [2] Никитин С. А., Васильковский В. А., Ковтун Н. М., Куприянов А. К. ЖЭТФ, 1975, 69, с. 2212. [3] Куприянов А. К., Никитин С. А. Вестн. Моск. ун-та. Физ. Астрон., 1981, 22, № 1, с. 57. [4] Васильковский В. А. и др. ЖЭТФ, 1973, 65, с. 693. [5] Васильковский В. А. и др. ЖЭТФ, 1981, 80, с. 364. [6] Jakkola S. Phys. Lett., 1974, 50A, p. 35. [7] Janak J. F. Phys. Rev., 1979, 20B, p. 2206. [8] Bushow K. H. J., Brouda M., Biesterbos J. W. M., Dirks A. G. Physica, 1977, 91B, p. 261. [9] Oppelt A., Merkel A., Bushow K. Phys. Stat. Sol(a), 1976, 37, p. K205. [10] Schilling J. S. Adv: Phys., 1979, 28, p. 657. [11] Монро Н. Phys. Rev. B, 1978, 17, p. 4660. [12] Campbell I. A. J. Phys. F, 1972, 2, p. 47.

Поступила в редакцию  
04.03.85

ВЕСТИ. МОСК. УН-ТА. СЕР. 3. ФИЗИКА. АСТРОНОМИЯ, 1986, Т. 27, № 3

УДК 538.638:669.85/86

#### МАГНИТОУПРУГИЙ ВКЛАД В МАГНИТОКАЛОРИЧЕСКИЙ ЭФФЕКТ ПРИ ПЕРЕХОДЕ АНТИФЕРРОМАГНЕТИЗМ — ФЕРРОМАГНЕТИЗМ В СПЛАВАХ ТЕРБИИ — ДИСПРОЗИИ

С. А. Никитин, Т. И. Иванова, П. И. Леонтьев, Е. В. Талалаева

(кафедра общей физики для естественных факультетов)

Для выяснения природы магнетизма в тяжелых редкоземельных металлах и их сплавах необходимо комплексное исследование различных физических свойств, испытывающих особенности в области магнитных фазовых переходов [1]. Особый интерес представляет определение энергетических вкладов в термодинамический потенциал и энтропию, что позволяет установить роль различных взаимодействий в возникновении магнитных фазовых переходов антиферромагнетизм — ферромагнетизм.

В настоящей работе исследованы магнитострикционные свойства и магнитокалорический эффект (МКЭ) в поликристаллических образцах

сплавов тербий—диспрозий в области магнитных фазовых переходов с целью определения магнитоупругого вклада в энтропию и МКЭ. В литературе до сих пор отсутствуют сведения о магнитных фазовых переходах в сплавах Tb—Dy, а также о влиянии таких переходов на магнитострикцию и МКЭ. В работе [2] приводятся значения температуры Кюри лишь для двух сплавов системы Tb—Dy. Поэтому в настоящей работе была поставлена также задача построения магнитных фазовых диаграмм для сплавов Tb—Dy.

Измерения магнитострикции выполнены тензометрическим методом. Методика измерения МКЭ подробно описана в работе [3]. Сплавы были изготовлены методом дуговой плавки на медном водоохлаждаемом изоду в печи с нерасходуемым вольфрамовым электродом. Гомогенизирующий отжиг проводился в вакууме при температуре 850°C в течение 20 ч. Вес слитков отличался от первоначального не более чем на 0,1%.

Температурная и полевая зависимость МКЭ и магнитострикции сплавов Tb—Dy исследовались при температурах 80—300 К в магнитных полях с индукцией  $B$  до 1,3 Тл. Измерения показали, что для температурной зависимости МКЭ при  $B < 1,3$  Тл характерно наличие двух максимумов (рис. 1). Для выяснения физической природы этих максимумов необходимо учесть следующее. Как известно [1], в тяжелых редкоземельных металлах и их сплавах наблюдаются сложные спиральные магнитные структуры ферро- и антиферромагнитного типа. В частности, в тербии и диспрозии существует антиферромагнитная геликоидальная структура в интервале температур от  $\Theta_1$  до  $\Theta_2$  в магнитных полях с магнитной индукцией, меньшей некоторого критического значения  $B_{кр}$ . В точке  $\Theta_1$  происходит переход ферромагнетизм—геликоидальный антиферромагнетизм, а в точке  $\Theta_2$  — геликоидальный антиферромагнетизм — парамагнетизм. При  $B > B_{кр}$  в тербии и диспрозии происходит разрушение геликоидальной антиферромагнитной структуры и установление ферромагнитного упорядочения. Следует отметить, что в поликристаллах разрушение геликоидальной фазы и переход в ферромагнитную происходят в некотором интервале магнитных полей при  $B > B_{кр}$ .

Температура  $\Theta_2$  в Tb и Dy может быть определена по максимуму МКЭ при переходе из парамагнитного состояния в антиферромагнитное. Температура  $\Theta_1$  соответствует наиболее резкое возрастание МКЭ при повышении температуры образца в области перехода ферромагнетизм — антиферромагнетизм [4, 5]. По аналогии с Tb и Dy температурную зависимость МКЭ в сплавах Tb—Dy следует интерпретировать следующим образом. Резкое возрастание МКЭ при нагревании образца сплава Tb<sub>0,25</sub>Dy<sub>0,75</sub> вблизи температуры  $\Theta_1 = 124$  К соответствует фазовому переходу из ферромагнитного состояния в антиферромагнитное с геликоидальной магнитной структурой. Высокотемпературный максимум обусловлен интенсивным парапроцессом в области перехода антиферромагнетизм — парамагнетизм при температуре  $\Theta_2 = 195$  К.

Обращает на себя внимание то, что максимальный МКЭ в интервале температур  $\Theta_1$ — $\Theta_2$ , обусловленный разрушением антиферромагнитной геликоидальной структуры при  $B > B_{кр}$ , сравним по величине с максимальным МКЭ за счет парапроцесса при температуре  $\Theta_2$ . Этот факт представляется неожиданным, так как в классических ферромагнетиках наибольший вклад в МКЭ связан с парапроцессом и изменением обменной энергии при истинном намагничивании, в то время как процессы вращения и смещения дают гораздо меньшие по величине вклады [6].

Таким образом, возникает задача определения характера энергетического вклада в МКЭ при  $B = B_{кр}$ . Из экспериментальных данных следует, что в полях с индукцией, меньшей критической, МКЭ невелик. При увеличении магнитной индукции значительно выше  $B_{кр}$  на кривых температурной зависимости МКЭ один из максимумов исчезает, что связано с разрушением антиферромагнитного геликоида. Этот эффект наблюдался в сплавах с большим содержанием тербия (более 60 ат. %), для которых величина  $B_{кр}$  мала.

Как показал эксперимент, при  $B > B_{кр}$  в сильных магнитных полях наблюдается линейный рост МКЭ с полем. Этот факт позволяет определить  $B_{кр}$  как точку пересечения линейного участка кривой зависи-

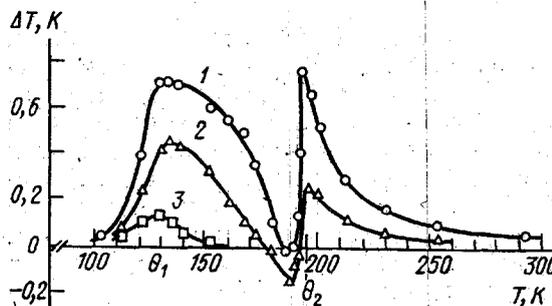


Рис. 1. Температурная зависимость магнитокалорического эффекта (МКЭ) в сплаве  $Tb_{0,25}Dy_{0,75}$  при различных значениях магнитной индукции внешнего магнитного поля:  $B=1,3$  (1),  $0,8$  (2) и  $0,3$  Тл (3)

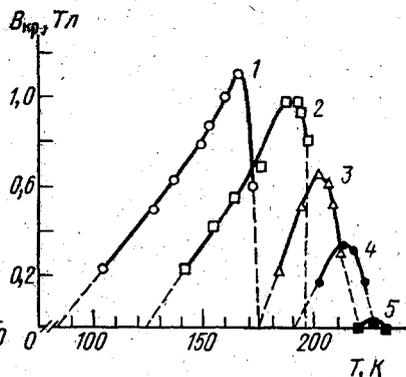


Рис. 2. Температурная зависимость критических значений магнитной индукции  $B_{кр}$  в поликристаллических образцах сплавов  $Tb_{1-x}Dy_x$ :  $x=1$  (1),  $0,75$  (2),  $0,5$  (3),  $0,25$  (4) и  $0$  (5)

мости МКЭ от магнитной индукции с осью абсцисс. Найденные таким образом значения  $B_{кр}$  при различных температурах позволяют построить магнитную фазовую диаграмму в системе координат  $B-T$  для различных сплавов  $Tb-Dy$  (рис. 2). Отметим, что  $B_{кр}$  уменьшается и стремится к нулю при  $T \rightarrow \theta_1$  и  $T \rightarrow \theta_2$ .

Как видно из рис. 2, область существования антиферромагнитной фазы увеличивается, а максимальное значение  $B_{кр}$  возрастает по мере увеличения содержания диспрозия в сплавах. Это можно объяснить увеличением энергетического барьера, разделяющего ферро- и антиферромагнитные структуры при замещении тербия диспрозием в сплавах.

Как было установлено ранее, для  $Dy$  и сплавов  $Tb-Y$  [4, 5] температура, при которой  $\partial B_{кр}/\partial T = 0$ , является критической точкой: в ней линии фазового перехода 1-го рода на фазовой плоскости  $B-T$  переходят в линии фазового перехода 2-го рода. Вблизи этих точек при  $B > B_{кр}$  изменение энтропии равно нулю, что следует и из наших измерений МКЭ. В самом деле, например, для сплава  $Tb_{0,75}Dy_{0,25}$   $\partial B_{кр}/\partial T = 0$  и  $\Delta T = 0$  при  $T = 212$  К, а следовательно, для этой температуры изменение энтропии

$$\Delta S = C_p \Delta T / T = 0, \quad (1)$$

где  $C_p$  — теплоемкость образца при постоянном давлении,  $\Delta T$  — величина МКЭ,  $T$  — температура.

Для сопоставления величины МКЭ с изменением магнитоупругой энергии было проведено экспериментальное исследование полевой и температурной зависимости магнитоупругости и теплового расширения. Как видно из рис. 3, на графике температурной зависимости магнитоупругости наблюдается хорошо выраженный максимум, который соответствует переходу ферромагнетизм—антиферромагнетизм (точка  $\Theta_1$ ). При  $T > \Theta_1$  магнитоупругость довольно быстро падает. При охлаждении образца ниже температуры  $\Theta_2$  на тепловое расширение накладывается спонтанная магнитоупругость, что приводит к аномалии на кривой теплового расширения  $\Delta l/l$  (см. кривую 2 на рис. 3). Магнитоупругая энергия кристаллической решетки  $\Phi_{\text{му}}$  в ферромагнитной и геликоидальной антиферромагнит-

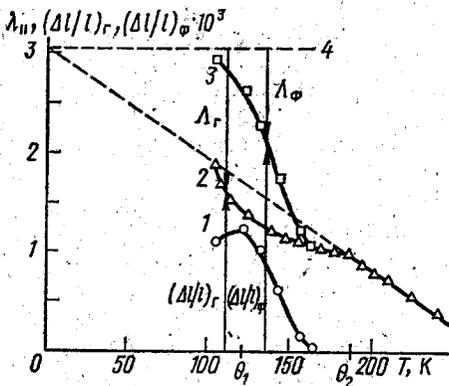


Рис. 3. Температурная зависимость продольной магнитоупругости  $\lambda_{||}$  при  $B = 1$  Тл (1), теплового расширения при  $B = 0$  и относительного удлинения образца  $(\Delta l/l)_r$  в геликоидальной антиферромагнитной фазе (2), относительного удлинения образца  $(\Delta l/l)_\phi$  в ферромагнитной фазе (3) в сплаве  $\text{Tb}_{0,25}\text{Dy}_{0,75}$

ной фазах различна [7], причем величины этой энергии для разных фаз соответственно равны  $\Phi_{\text{Фму}} = -E\Lambda_\phi^2/2$  и  $\Phi_{\text{Гму}} = -E\Lambda_\gamma^2/2$ , где  $E$  — модуль Юнга, а  $\Lambda_\phi$  и  $\Lambda_\gamma$  — относительные изменения размеров образца в ферромагнитной и геликоидальной фазах по сравнению с размерами образца при  $T = 0$  К в отсутствие внешнего магнитного поля и магнитного упорядочения. Так как энтропия

$$S = -(\partial\Phi/\partial T)_{p,H},$$

то изменение энтропии при переходе из антиферромагнитного состояния в ферромагнитное при  $B = B_{\text{кр}}$  равно

$$\Delta S = \frac{E}{2} \frac{\partial}{\partial T} (\Lambda_\phi^2 - \Lambda_\gamma^2). \quad (2)$$

Экспериментально измерялось относительное удлинение образца  $\Delta l/l$  при тепловом расширении по сравнению с размерами образца при  $T = 300$  К. При  $B = 0$  величина  $\Delta l/l$  в интервале температур  $\Theta_1 - \Theta_2$  соответствует относительному удлинению образца в геликоидальной антиферромагнитной фазе. Далее она будет обозначаться как  $(\Delta l/l)_r$ . Для того чтобы экспериментально определить относительное удлинение образца при тепловом расширении в ферромагнитной фазе  $(\Delta l/l)_\phi$ , необходимо сложить кривую теплового расширения  $(\Delta l/l)_r$  (кривая 2 на рис. 3) и кривую продольной магнитоупругости  $\lambda_{||}$  (кривая 1 на рис. 3), которая учитывает изменение размеров образца при переходе из антиферромагнитного состояния в ферромагнитное, когда  $B > B_{\text{кр}}$ . Таким образом,

$$(\Delta l/l)_\phi = (\Delta l/l)_r + \lambda_{||}.$$

В результате получается кривая 3, которая учитывает обычное тепловое расширение и эффект магнитного упорядочения в ферромагнитной фазе, индуцированной магнитным полем.

Относительное изменение размеров образца  $\Delta l/l$  при 0 К можно определить путем экстраполяции линейного участка кривой теплового расширения в парамагнитной области к  $T=0$ . Если затем через точку пересечения построенной таким образом прямой с осью ординат провести прямую, параллельную оси абсцисс (пунктирная прямая 4 на рис. 3), то разность между кривой  $(\Delta l/l)_\phi$  (кривая 3 на рис. 3) и прямой 4 будет равна значению относительной деформации  $\Lambda_\phi$  в ферромагнитной фазе по сравнению с размерами образца при  $T=0$  К. Значение относительной деформации  $\Lambda_r$  в антиферромагнитной фазе по сравнению с размерами образца при  $T=0$  К для данной температуры определится как разность между кривой теплового расширения  $(\Delta l/l)_r$  (кривая 2 на рис. 3) и прямой 4. Полученные таким образом значения  $\Lambda_\phi$  и  $\Lambda_r$  позволяют определить изменение энтропии образца при переходе из геликоидальной антиферромагнитной фазы в ферромагнитную для любой температуры по формуле (2).

Количественная оценка изменения энтропии  $\Delta S$  по формулам (1) и (2) приводит к величинам одного и того же порядка. Например, для единицы объема сплава  $Tb_{0,25}Dy_{0,75}$  расчет по формуле (2) дает  $\Delta S = 3,53 \cdot 10^3$  Дж/(м<sup>3</sup>·К). При расчете использовались значения модуля Юнга  $E = 7,46 \cdot 10^{10}$  Н/м<sup>2</sup> [8] и  $\Lambda_\phi$  и  $\Lambda_r$ , найденные указанным выше способом из экспериментальных кривых рис. 3. Расчет по формуле (1) дает  $\Delta S = 6,93 \cdot 10^3$  Дж/(м<sup>3</sup>·К). При расчете использовалось значение  $C_p = 2,21 \cdot 10^6$  Дж/(м<sup>3</sup>·К) [1] и экспериментальное значение  $\Delta T = 0,48$  К при  $T = 150$  К и  $B = 1$  Тл.

Таким образом, результаты настоящего исследования показывают, что большой МКЭ в сплавах Tb—Dy, наблюдающийся при фазовом переходе геликоидальный антиферромагнетизм — ферромагнетизм, обусловлен сильным изменением магнитоупругой энергии. Это изменение велико в сплавах Tb—Dy вследствие того, что магнитоэстропционные деформации в ферромагнитной и геликоидальной фазах отличаются друг от друга на величину гигантской магнитоэстропции.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- [1] Белов К. П. и др. Редкоземельные ферро- и антиферромагнетики. М.: Наука, 1965. [2] Vozorth R. M., Gambino R. J. Phys. Rev., 1966, 147, p. 487. [3] Белов К. П., Талалаева Е. В., Черникова Л. А., Ивановский В. И. Письма в ЖЭТФ, 1968, 7, с. 423. [4] Никитин С. А., Андреевко А. С., Пронин В. Н. ФТТ, 1979, 21, с. 2808. [5] Никитин С. А., Андреевко А. С., Чуприков Г. Е., Посядо В. П. ЖЭТФ, 1977, 73, с. 228. [6] Белов К. П. Упругие, тепловые и электрические явления в ферромагнетиках. М.: Гостехиздат, 1957. [7] Никитин С. А. ЖЭТФ, 1984, 86, с. 1734. [8] Шубин В. В., Катаев Г. И., Иванова Т. И. ФММ, 1985, 59, с. 746.

Поступила в редакцию  
05.03.85