

## ФИЗИКА МАГНИТНЫХ ЯВЛЕНИЙ

УДК 537.61

### **СПОНТАННЫЕ СПИН-ОРИЕНТАЦИОННЫЕ ПЕРЕХОДЫ В СПЛАВАХ $Dy_{1-x}Nd_xCo_{4,5}Cu_{0,5}$**

**О. Б. Дегтева, А. Г. Пастушенков, А. Ю. Соколов**

Тверской государственный университет  
*кафедра магнетизма*

Спин-переориентационные переходы, обусловленные изменением типа магнитокристаллической анизотропии «легкая плоскость» – «легкая ось» были обнаружены в сплавах  $Dy_{1-x}Nd_xCo_{4,5}Cu_{0,5}$  с помощью трёх независимых методов: термического магнитного анализа, магнетокалорического эффекта и температурных зависимостей намагниченности. Установлено, что температуры спиновой переориентации вектора  $I_S$  увеличиваются при уменьшении содержания Nd. Получено удовлетворительное согласие между значениями этих температур, определенными указанными методами.

**Ключевые слова:** магнитокристаллическая анизотропия, спиновая переориентация, редкоземельные интерметаллические соединения

### **SPONTANEOUS SPIN-REORIENTATION TRANSITIONS IN $Dy_{1-x}Nd_xCo_{4,5}Cu_{0,5}$ ALLOYS**

**O. B. Dyogteva, A. G. Pastushenkov, A. Yu. Sokolov**

Tver State University  
*Chair of Magnetism*

Spin-reorientation transitions (SPR) caused by the «easy plane» – «easy axis» change of the magnetocrystalline anisotropy type were found to exist in  $Dy_{1-x}Nd_xCo_{4,5}Cu_{0,5}$  alloys making use of three independent methods of thermal magnetic analysis, magnetocaloric effect and magnetization temperature dependence. It is established that the temperatures of  $I_S$  spin reorientation increase with the decrease of Nd content. The temperature values obtained by the above methods are in satisfactory agreement.

**Keywords:** magnetocrystalline anisotropy, spin reorientation, rare earth intermetallic compounds

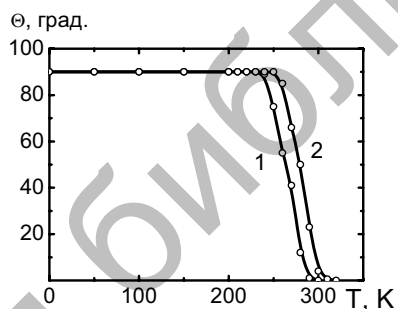
**Введение.** Хорошо известно, что многокомпонентные сплавы  $(R',R'')Co_5$  с тяжелыми и легкими РЗМ применяются для изготовления постоянных магнитов с повышенной температурной стабильностью магнитной индукции в широком рабочем интервале температур,

поэтому изучение их магнитных свойств актуально для практического применения.

Магнитные свойства и особенности микроструктуры сплавов  $Dy_{1-x}Nd_xCo_{4,5}Cu_{0,5}$  практически не изучены. В литературе нет однозначного ответа на вопрос, каким типом магнитокристаллической анизотропии они обладают при комнатной температуре. Нет данных о значениях их констант анизотропии. Известно, что в сплавах  $NdCo_5$  и  $DyCo_5$  при понижении температуры происходит переориентация вектора намагниченности от гексагональной оси  $c$  к базисной плоскости через промежуточную угловую фазу.

Интерметаллические соединения  $(R3M)Co_5$  являются коллинеарными магнетиками и имеют гексагональную кристаллическую структуру типа  $CaCu_5$ . Их магнитная структура образована двумя подрешётками: ионами  $R3M$  ( $R$ -подрешётка) и ионами  $3d$ -металла ( $Co$ -подрешётка).

На рис. 1 приведены зависимости угла  $\theta$  между вектором  $I_s$  и осью  $c$  от температуры для сплавов  $DyCo_{5,2}$  и  $NdCo_5$  [1]. Интервал температур, в котором  $\theta = 90^\circ$ , соответствует области существования анизотропии типа «лёгкая плоскость», область монотонного уменьшения угла  $\theta$  до  $0^\circ$  – анизотропии «лёгкий конус», а температурная область, в которой  $\theta = 0^\circ$  – анизотропии «лёгкая ось». Основные данные о параметрах элементарных ячеек  $a$  и  $c$ , плотности и значениях температур Кюри этих бинарных сплавов приведены в таблице 1.



Р и с . 1. Температурные зависимости угла  $\theta$  между направлением вектора  $I_s$  и осью  $c$  в области спин-ориентационных переходов для сплавов  $NdCo_5$  (1) и  $DyCo_{5,2}$  (2)

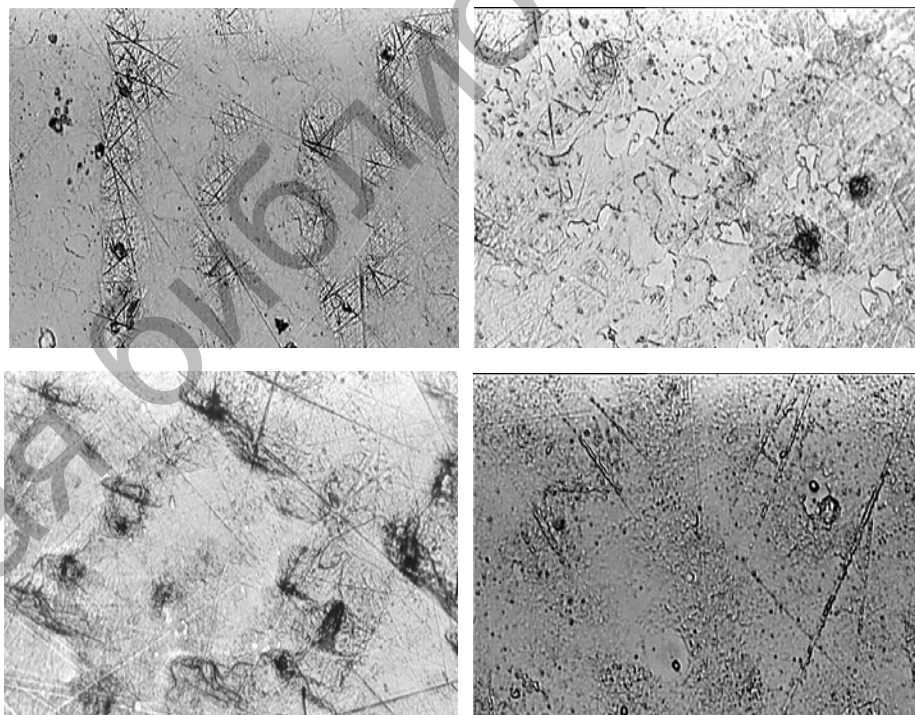
Т а б л и ц а 1. Параметры ячеек, плотность и температура Кюри сплавов  $DyCo_{5,2}$  и  $NdCo_5$

	$a$ , нм	$c$ , нм	$\rho$ , $10^3$ кг/м <sup>3</sup>	$T_c$ , К
$DyCo_{5,2}$	0,5015	0,3982	8,39	910
$NdCo_5$	0,4910	0,3996	9,15	966

Интерметаллиды  $Du_{1-x}Nd_xCo_{4,5}Cu_{0,5}$  получают на основе сплава  $DuCo_5$  путем замещения части атомов  $Du$  на атомы неодима в редкоземельной подрешетке и части атомов  $Co$  на атомы меди с сохранением типа кристаллической решетки. Поэтому можно предположить, что особенности магнитокристаллической анизотропии бинарных соединений  $NdCo_5$  и  $DuCo_5$  должны проявляться и в интерметаллидах  $Du_{1-x}Nd_xCo_{4,5}Cu_{0,5}$ .

Цель данной работы заключалась в обнаружении и изучении спонтанных спин-переориентационных переходов в сплавах  $Du_{1-x}Nd_xCo_{4,5}Cu_{0,5}$  ( $x = 0.2; 0.4; 0.6; 0.8$ ), закономерностей изменения магнитных свойств и температур спиновой переориентации в зависимости от содержания неодима в диапазоне температур от  $-170^{\circ}C$  до  $+170^{\circ}C$ .

**Методика эксперимента.** Образцы для исследований были получены из крупных зерен гомогенизированных сплавов  $Du_{1-x}Nd_xCo_{4,5}Cu_{0,5}$  и имели сферическую форму. Чтобы убедиться, что образцы находятся в однофазном состоянии, была исследована микроструктура сплавов (рис. 2). Наблюдение и фотосъемка микроструктуры осуществлялись на микроскопе Neophot-30.



Р и с . 2. Поверхностная микроструктура соединений  $Du_{1-x}Nd_xCo_{4,5}Cu_{0,5}$  при  $x = 0,8$  (а);  $0,6$  (б);  $0,4$  (в);  $0,2$  (г). Поле зрения  $240 \times 180$  мкм

Для выявления микроструктуры образцов применялся метод химического травления с использованием травителя следующего состава:  $\text{FeCl}_3$  – 5 вес.%, концентрированная  $\text{HCl}$  – 10 вес.%, этиловый спирт – 85 вес.%. На микрофотографиях рис. 2 видны области, которые не имеют четко очерченных границ и ярко выраженного оптического контраста. Существование таких областей было ранее обнаружено в квазибинарных сплавах типа  $\text{R}(\text{Co},\text{Cu})_5$  и установлено, что их наличие не влияет на поведение намагниченности в целом [2]. Поэтому можно заключить, что данные области представляют собой концентрационные микронеоднородности, а сплавы находятся в однофазном состоянии.

**Полученные результаты и их обсуждение.** Для магнитных измерений были подготовлены серии псевдомонокристаллов сплавов каждого состава. Для них методом вибрационного магнитометра были измерены кривые намагничивания в легком и трудном направлениях (рис. 3).

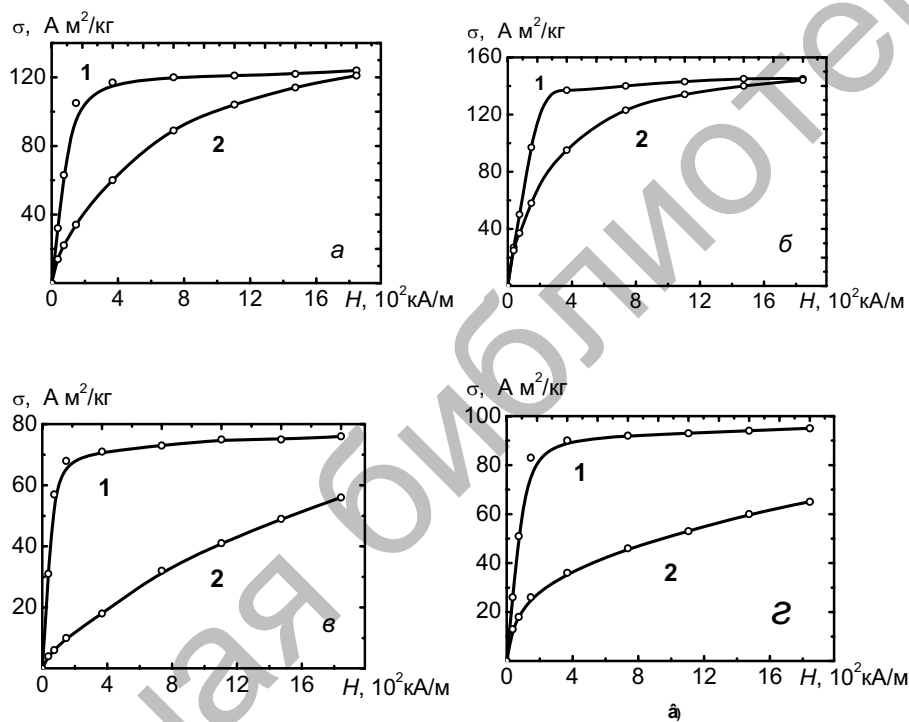


Рис. 3. Кривые намагничивания псевдомонокристаллов сплавов  $\text{Dy}_{1-x}\text{Nd}_x\text{Co}_{4.5}\text{Cu}_{0.5}$  при  $x = 0,8$  (а);  $0,6$  (б);  $0,4$  (в);  $0,2$  (г), измеренные вдоль лёгкой (1) и трудной (2) осей намагничивания

Далее были определены значения удельной намагниченности  $\sigma_s$  для каждого состава и установлено, что они увеличиваются при росте содержания неодима (рис. 4).

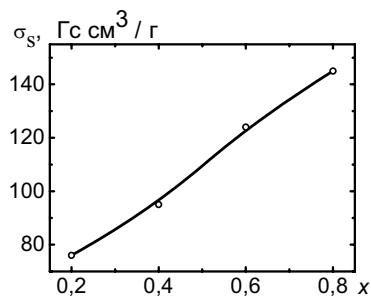


Рис. 4. Зависимость  $\sigma_s$  от содержания неодима в сплавах  $Dy_{1-x}Nd_xCo_{4.5}Cu_{0.5}$

Эти результаты можно объяснить на основе модели магнитной структуры, состоящей из трех магнитных подрешеток: подрешетки кобальта, подрешетки диспрозия и подрешетки неодима. Магнитный момент подрешетки Co ( $M_{Co}$ ) постоянен по абсолютной величине, так как концентрация кобальта в изучаемых соединениях не меняется. Кроме того, кобальтовая подрешетка в данной группе соединений в основном определяет значения намагниченности насыщения, температуры Кюри. Магнитный момент подрешетки Dy ( $M_{Dy}$ ) антипараллелен  $M_{Co}$ , так как соединения  $Dy(Co,Cu)_{5.2}$  являются ферримагнетиками. Магнитный момент подрешетки Nd ( $M_{Nd}$ ) при комнатной температуре незначителен и направлен параллельно магнитному моменту кобальтовой подрешетки, поскольку соединения  $NdCo_5$  являются ферромагнетиками (рис. 5).

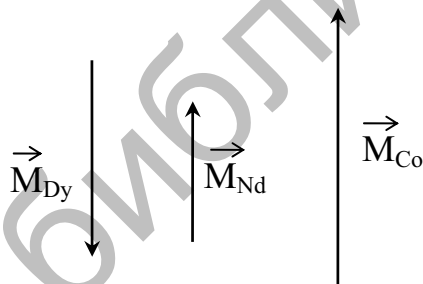


Рис. 5. Магнитные моменты подрешеток Dy, Nd, Co

В соответствии с описываемой моделью полный магнитный момент соединений  $Dy_{1-x}Nd_xCo_{4.5}Cu_{0.5}$ , приходящийся на одну формульную единицу, можно вычислить по формуле

$$M = 4,5\mu_{Co} + x\mu_{Nd} - (1-x)\mu_{Dy},$$

где  $\mu_{Co}$ ,  $\mu_{Nd}$ ,  $\mu_{Dy}$  – магнитные моменты атомов Co, Nd, Dy, соответственно.

По мере замещения части атомов Dy в соединениях на атомы Nd магнитный момент подрешетки диспрозия уменьшается, а подрешетки неодима – растет.

Мы предположили, что указанные сплавы при комнатной температуре имеют тип анизотропии, промежуточный между «ЛО» и «ЛП». Для корректного проведения измерений температурных зависимостей намагниченности необходимо было жестко зафиксировать ориентацию вектора  $I_s$ . Для этого при низких температурах (-5 ... 0°C) в области существования анизотропии «ЛП» проводилась текстурирование образцов, вращавшихся во внешнем магнитном поле, приложенном вдоль направления одной из легких осей  $a$  в базисной плоскости [3]. В результате положение вектора  $I_s$  вдоль поля фиксировалось, при этом ось  $c$  образца ориентирована перпендикулярно плоскости оправки.

Измерение температурных зависимостей намагниченности проводилось методом вибрационного магнитометра. Температуру фиксировали с помощью термопары хромель-алюмель. Переориентация вектора  $I_s$  при увеличении температуры сопровождается постепенным изменением типа магнитокристаллической анизотропии «ЛП»  $\Rightarrow$  «ЛО». В области существования угловой магнитной фазы появляются две проекции вектора  $I_s$  на направление осей  $a$  и  $c$  (рис. 6).

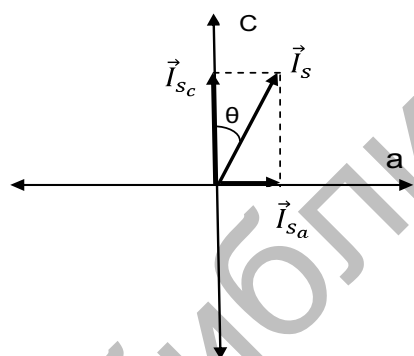


Рис. 6. Переориентация вектора  $I_s$

Были измерены зависимости относительных вкладов  $\sigma_a(T)$  и  $\sigma_c(T)$  в полную намагниченность сплавов  $Du_{1-x}Nd_xCo_{4,5}Cu_{0,5}$  (рис.7). Области спиновой переориентации вектора  $I_s$  являются достаточно широкими для всех составов. По точкам пересечения кривых  $\sigma_a(T)$  и  $\sigma_c(T)$  были определены температуры спин-ориентационных переходов, которые приведены в таблице 2.

Было обнаружено, что при увеличении содержания неодима в сплавах качественно меняется вид зависимостей  $\sigma_a(T)$  (рис. 8) от ферромагнитного до ферромагнитного. Увеличение намагниченности для сплавов с низким содержанием неодима (кривые 1, 2) при низких температурах можно объяснить тем, что магнитный момент подрешетки диспрозия убывает быстрее, чем магнитный момент подрешетки

кобальта, а разница между этими магнитными моментами растет. В качестве альтернативного способа определения температур спин-ориентационных переходов в сплавах  $Du_{1-x}Nd_xCo_{4,5}Cu_{0,5}$  были проведены исследования магнетокалорического эффекта (МКЭ).

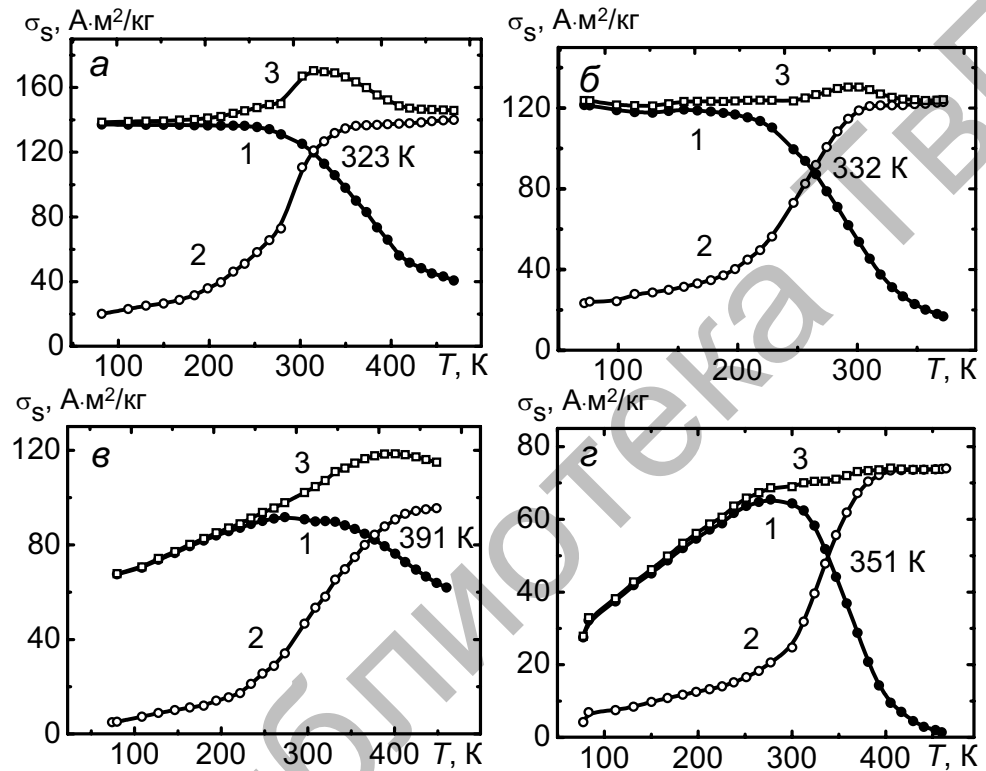


Рис. 7. Температурные зависимости проекций вектора  $I_s$  сплавов  $Du_{1-x}Nd_xCo_{4,5}Cu_{0,5}$  на легкое направление в базисной плоскости (1) и на ось  $c$  (2) в поле  $H = 5$  кЭ при различном содержании Nd:  $x = 0,8$  (а);  $x = 0,6$  (б);  $x = 0,4$  (в);  $x = 0,2$  (г). Кривая (3) – расчётные значения полной намагниченности образца

Таблица 2. температуры СПП сплавов  $Du_{1-x}Nd_xCo_{4,5}Cu_{0,5}$

Состав	Температура СПП
$x = 0,8$	50°C (323 K)
$x = 0,6$	59°C (332 K)
$x = 0,4$	118°C (391 K)
$x = 0,2$	78°C (351 K)

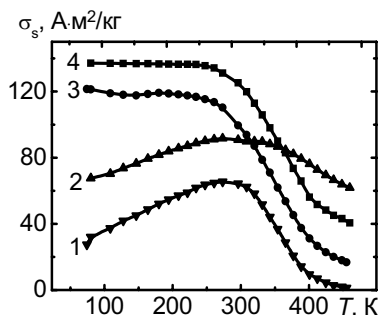


Рис. 8. Температурные зависимости проекции вектора  $I_s$  на легкое направление в базисной плоскости сплавов  $Dy_{1-x}Nd_xCo_{4.5}Cu_{0.5}$ : (1)  $x = 0,2$ ; (2)  $x = 0,4$ ; (3)  $x = 0,6$ ; (4)  $x = 0,8$

На рис. 9 приведены зависимости  $\Delta T(T)$  для сплавов с  $x = 0,4$  и  $x = 0,2$ . По положению минимума на кривых  $\Delta T(T)$  определяли температуру перехода ЛП  $\Rightarrow$  ЛК  $T_{SR1}$ . Для сплава  $Dy_{0,6}Nd_{0,4}Co_{4,5}Cu_{0,5}$   $T_{SR1} \approx 82^\circ C$  (355 K), а для сплава  $Dy_{0,8}Nd_{0,2}Co_{4,5}Cu_{0,5}$   $T_{SR1} \approx 58^\circ C$  (331 K). Эти значения не совпадают с температурами СПП, определенными первым способом, что, по-видимому, связано с тем, что в широких интервалах температур спиновой переориентации имеют место две стадии фазового перехода ЛП  $\Rightarrow$  ЛК и ЛК  $\Rightarrow$  ЛО (рис. 10).

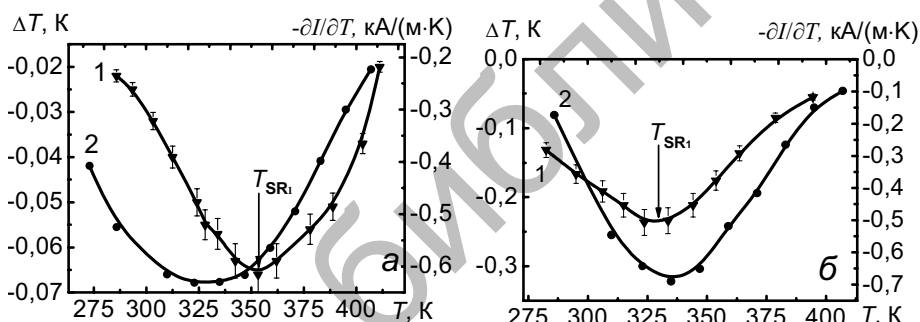


Рис. 9. Зависимости  $\Delta T(T)$  (1) и рассчитанной по кривой  $\sigma_c(T)$  производной удельной намагниченности (2) сплавов  $Dy_{0,6}Nd_{0,4}Co_{4,5}Cu_{0,5}$  (а) и  $Dy_{0,8}Nd_{0,2}Co_{4,5}Cu_{0,5}$  (б)

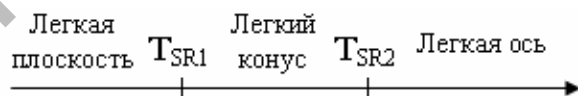


Рис. 10. Схема стадий спин-ориентационного перехода



В процессе исследований был использован третий независимый метод для определения температур спиновой переориентации – метод термического магнитного анализа (ТМА), основанный на эффекте Гопкинсона. Соответствующие зависимости  $\mu_n(T)$ , полученные при нагреве и охлаждении сплавов  $Du_{1-x}Nd_xCo_{4,5}Cu_{0,5}$ , представлены на рис. 11.

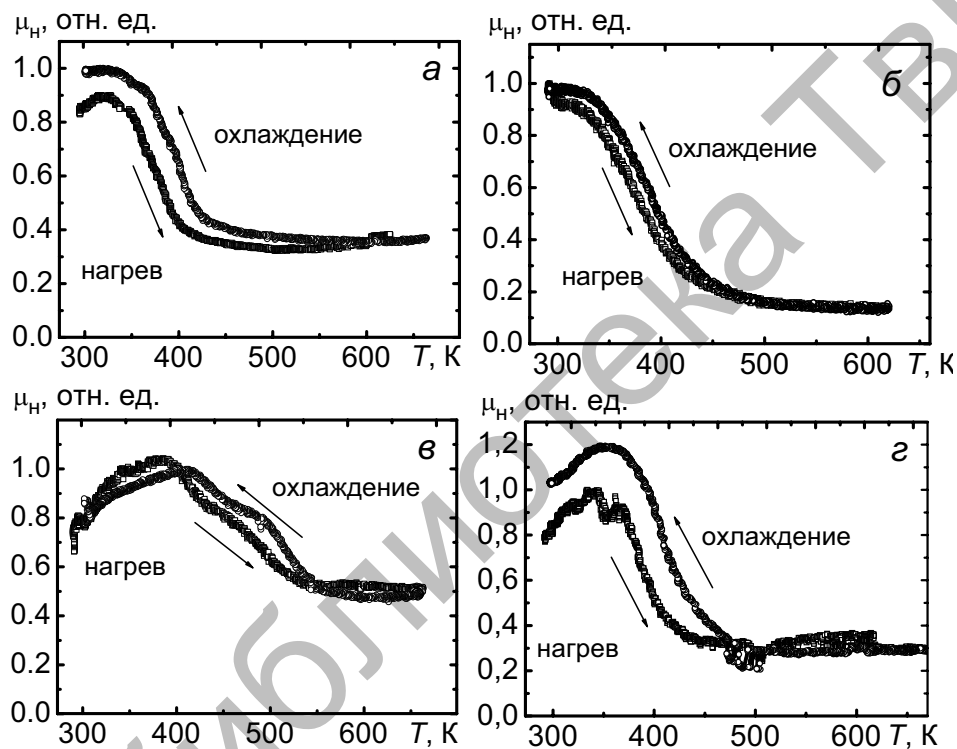


Рис. 11. Температурная зависимость начальной магнитной проницаемости соединений  $Du_{1-x}Nd_xCo_{4,5}Cu_{0,5}$  при  $x = 0,8$  (а);  $0,6$  (б);  $0,4$  (в);  $0,2$  (г)

**Заключение.** С помощью трёх независимых методов термического магнитного анализа, магнетокалорического эффекта и температурных зависимостей намагниченности экспериментально обнаружены и изучены спонтанные спин-переориентационные переходы в сплавах  $Du_{1-x}Nd_xCo_{4,5}Cu_{0,5}$  ( $x = 0,2; 0,4; 0,6; 0,8$ ). Установлено, что температуры спиновой переориентации вектора  $I_s$  увеличиваются при уменьшении содержания Nd.

**Список литературы**

1. Белов К.П., Звездин А.К. и др. Ориентационные переходы в редкоземельных магнетиках. М.: Наука, 1979. С. 146-164.
2. Estevez-Rams E., Fidler J. Microstructural study of high coercivity Sm(Co,Cu)<sub>5</sub> alloy // J. Magn. Magn. Mater. 1999. V.195. P.595-600.
3. Дегтева О.Б., Супонев Н.П., Пастушенков А.Г., Хохолков А.Г. Изучение доменной структуры системы сплавов DyCo<sub>5-x</sub>Cu<sub>x</sub> с анизотропией «легкая плоскость» и особенностей поведения магнитной проницаемости в области спонтанных спин-ориентационных переходов. М.: ГИАБ. 2005. С. 369–382.

Работа выполнена в рамках реализации ФЦП "Научные и научно-педагогические кадры инновационной России" на 2009-2013 годы.

*Об авторах:*

ДЁГТЕВА Ольга Борисовна - кандидат физ.-мат наук, доцент кафедры магнетизма ТвГУ;

ПАСТУШЕНКОВ Александр Григорьевич - кандидат физ.-мат наук, доцент кафедры магнетизма ТвГУ;

СОКОЛОВ Андрей Юрьевич - студент кафедры магнетизма ТвГУ.