

ТЕМПЕРАТУРНАЯ ЗАВИСИМОСТЬ ЭНЕРГЕТИЧЕСКОЙ МАГНИТНОЙ АНИЗОТРОПИИ МОНОКРИСТАЛЛОВ НИКЕЛЯ

Н. Л. Брюхатов и Л. В. Киренский

Исследована температурная зависимость энергетической константы магнитной анизотропии монокристаллов никеля методом измерения механических моментов, приложенных в магнитном поле к монокристаллу, имеющему форму шара.

Установлено, что температурная зависимость константы анизотропии в очень широком температурном интервале весьма точно передается эмпирической интерполяционной формулой

$$K = K_0 \cdot \exp(-\alpha T^2), \text{ где } K_0 = 40 \cdot 10^4 \left(\frac{\text{э}}{\text{см}^3}\right).$$

$$\alpha = 0,000034 \text{ град}^{-2}$$

Это соотношение удовлетворяет тепловой теореме Нерста, т. е. $(dK/dT)_{T=0} = 0$.

На высокие температуры в области, близкой к точке Кюри, это соотношение распространено быть не может, так как не дает обращения в нуль константы анизотропии в самой точке Кюри, но уже при температуре 400°К дает для K весьма малые значения, практически сводящие его к нулю.

Произведено сравнение результатов опытов с теорией Акулова, построенной с применением классической статистики.

Теоретическое соотношение, данное Акуловым, правильно передает общий характер температурной зависимости K , расходясь в некоторых деталях, а именно, как и следовало ожидать, в области очень низких температур.

1. Введение

Теории кривых намагничивания Акулова [1] и Гейзенберга [2] приводят к формулам, которые являются для каждого кристаллического направления универсальными функциями двух параметров I_s и K . Эти формулы применимы для любых температур, если известно отношение K/I_s . Существует большое количество работ, как экспериментальных, так и теоретических, принципиально важных по поводу зависимости I_s от T . К ним относятся работы Гопкинсона [3], Кюри [4], Вейсса [5], Вейсса и Камерлинг-Оннеса [6], Вейсса и Форрера [7], Гейзенберга [2], Хонда и др. [8].

Вопрос же о температурной зависимости K от T возник лишь в самое последнее время. Первый шаг в этом направлении был сделан теоретической работой Акулова [9], которая вызвала появление ряда экспериментальных исследований.

Так, исследование температурной зависимости магнитной анизотропии для монокристаллов железа были произведены Титовым [10], Пити [11], Киренским [12].

Эти работы показали, что введенный Акуловым принцип эквивалентности для монокристаллов железа оказывается в количественном согласии с опытом.

В дальнейшем Акулов [13] показал, что принцип эквивалентности может быть применим лишь в том случае, когда комплексы спинов могут отклоняться лишь на небольшие углы. Следовательно лишь в этом случае мы будем иметь общую для всех ферромагнитных металлов связь между K и I_s при различных температурах. Однако в общем случае такая одинаковая связь для всех ферромагнитных металлов может и не иметь места.

Таким образом в то время, как теория температурной зависимости I_s , данная Вейссом [5], в соответствии с опытом показывает, что I_s/I_0 является универсальной функцией T/θ , для константы анизотропии этот вопрос до сих пор оставался открытым. С этой точки зрения чрезвычайно больший интерес представляло исследование температурной зависимости магнитной анизотропии второго ферромагнетика, имеющего кубическую решетку, т. е. монокристаллов никеля, и сопоставление результатов с выводами теории.

2. Получение монокристаллов никеля и их исследование

Монокристаллы никеля были получены из чистого, кальбаумовского никеля, из расплава, методом медленного охлаждения. Плавка металла производилась в высокочастотной печи, в специальных тиглях из окиси алюминия ($Al_2O_3 \sim 98\%$), помещавшихся в кварцевую трубу, наполнявшуюся водородом. Кварцевая труба вместе с находившимся в ней тиглем укреплялась на металлическом поплавке, помещенном в цилиндре с водой. При помощи специального крана вода медленно выпускалась из цилиндра, и кварцевая труба с тиглем продвигалась сквозь индукционную катушку высокочастотной печи и сквозь находившуюся под этой катушкой нихромовую печь (рис. 1).

При опускании трубы находившийся в тигле расплавленный металл медленно застывал со дна при выходе из электромагнитного поля индукционной катушки и затем медленно охлаждался в нихромовой печи, в которой было установлено равномерное падение температуры.

Скорость охлаждения металла регулировалась соответственным подбором скорости опускания (около 1 см/час.). Никель кристаллизовался в виде крупных монокристаллов, собранных в один слиток, из которого они затем вырезались. Образец такого слитка, на поверхности которого сделан штифт, представлен на рис. 2.

Травление обнаруживает наличие одного крупного монокристалла. Монокристаллам придавалась при помощи обточки форма шаров с диаметром от 0,5 см до 0,85 см.

Ориентация кристаллических осей определялась в магнитном поле с помощью карданова подвеса (рис. 3).

Укрепленный в кардановом подвесе шар при внесении его в магнитное поле устанавливался в направлении поля одним из направлений легкого намагничивания. На шаре, при помощи специальных острий, двигавшихся по каналам, просверленным в полюсах электромагнита, ставились лаком пометки, отмечавшие места выхода кристаллических осей (диагоналей куба для никеля).

Эти точки на монокристаллическом шаре располагаются по вершинам куба, вписанного в шар. Размеченный таким образом шарик укреплялся при помощи тальковой замазки на конце цилиндрика в соответствующем углублении. При этом исследуемая плоскость ориентировалась перпендикулярно оси цилиндрика.

Ориентация кристаллической плоскости шарика относительно оси этого цилиндрика должна была выполняться с возможно большей точностью; поэтому она производилась не от руки, а при помощи специального небольшого электромагнита (рис. 4). Цилиндр с укрепленным на его конце шариком вставлялся в чашечку магнит-

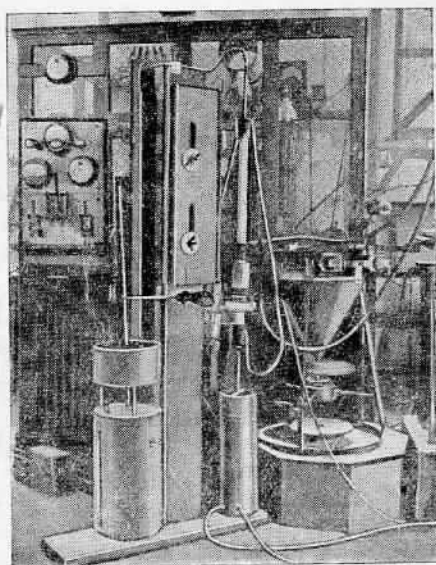


Рис. 1. Высокочастотная печь с установкой для получения монокристаллов.



Рис. 2. Фотография слитка (увеличено в 4 раза).

ного динамометра системы Акулова и Брюхатова [14], приспособленного для производства измерений как в низких, так и в высоких температурах (рис. 5).

Ось цилиндрика приводилась точно в совпадение с осью вращения чашечки динамометра. Форма шара для исследуемых монокристаллов была выбрана потому, что в этом случае можно было применять для определения K метод измерения меха-

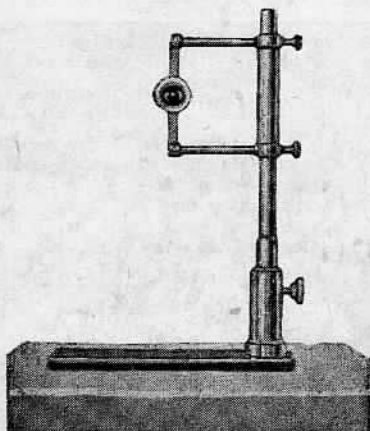
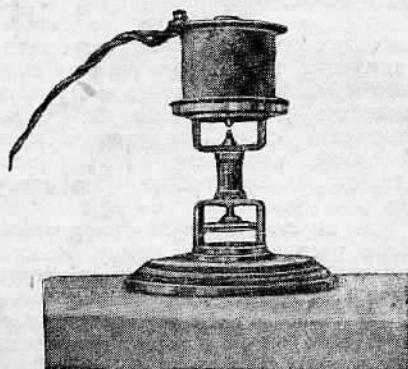


Рис. 3. Карданов подвес.



[Рис. 4. Электромагнитик для установки шарика.

нических моментов, свободный от влияния размагничивающего фактора, в противоположность методу, основанному на снятии кривых намагничивания. Кроме того, в образцах другой формы трудно бывает точно согласовать форму образца с желательными кристаллическими направлениями. Между тем, в случае шарика, при помощи вышеуказанных приспособлений ориентировка кристаллических осей любым образом в магнитном поле могла осуществляться с большой степенью точности.

Измерения производились методом определения механических моментов в области температур от $195,5$ до $+130^\circ\text{C}$.

Особенностью настоящего исследования является то, что образец во время всех измерений находился в жидкости, наполняющей сосуд Дьюара (рис. 5): жидкий азот, жидкий кислород, охлажденный спирт, нагретое масло. Этим гарантировалось равномерное прогревание образца и соответственно точное измерение его температуры.

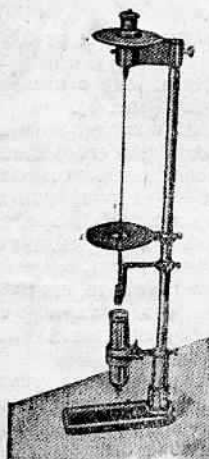


Рис. 5. Магнитный структурный динамометр системы Акулова и Брюхатова.

3. Измерение механических моментов и определение величины константы анизотропии

Величина K определялась известным образом по кривым механических моментов M .

Механические моменты определялись по углам закручивания.

В плоскости (100) кривая моментов выражается формулой

$$M = K \sin 4\varphi \quad (1)$$

где K — константа анизотропии, φ — угол между тетрагональной осью и вектором намагничивания [15].

$$M = \frac{K}{4} (2 \sin^2 2\varphi + 3 \sin 4\varphi). \quad (2)$$

Здесь M , K и φ имеют тот же физический смысл, что и в выражении (1), [15].

Надо заметить, что с помощью магнитного динамометра кривая моментов снимается в функции угла ψ между тетрагональной осью кристалла и направлением

В плоскости (110):

магнитного поля. Механический момент может быть представлен также в следующем виде:

$$M = H J_n = H J_s \sin(\psi - \varphi). \quad (3)$$

где $\psi - \varphi$ угол между вектором намагничивания и направлением поля при заданных температуре и поле,

$$\psi - \varphi = \arcsin \frac{M}{H J_s}, \quad (4)$$

где J_s — интенсивность намагничивания при насыщении для заданной температуры.

Поэтому экспериментальная кривая моментов, взятых в функции угла ψ , должна иметь сдвиг по отношению к теоретической кривой моментов, взятых в функции угла φ , как это было указано Акуловым [16]. Следовательно, для того, чтобы иметь возможность пользоваться для расчета K формулами (1) и (2), необходимо было при помощи соотношения (4) переходить от экспериментальных кривых $M = \Phi(\psi)$ к кривым $M = \theta(\varphi)$ типа (1) и (2).

При вычислении поправок на смещение по формуле (4) для каждой температуры бралось соответствующее значение поля насыщения H_s , при котором соответственно производились самые измерения моментов.

Для определения этого поля в начале измерений были построены кривые зависимости момента M от поля H . Эти кривые для температуры $+16^\circ\text{C}$ и температуры кипения жидкого кислорода представлены на рис. 6 и 7.

Промежуточные значения полей насыщения при промежуточных температурах

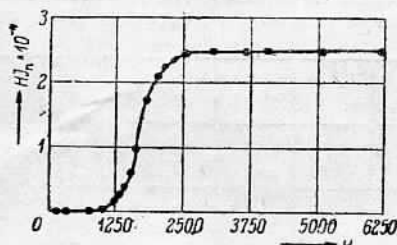


Рис. 6. Зависимость момента от поля H при $+16^\circ\text{C}$ для монокристалла Ni в плоскости (100). $\psi = 69^\circ$.

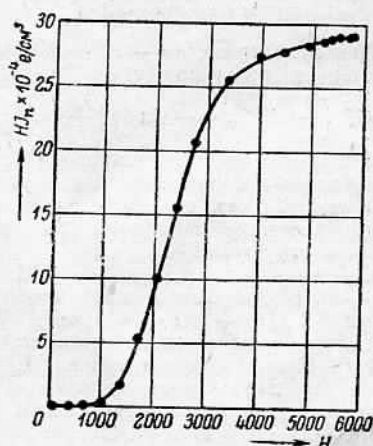


Рис. 7. Зависимость момента от поля H при -183°C для монокристалла Ni в плоскости (100). $\psi = 69^\circ$.

определялись при помощи интерполяции, полагая линейной зависимость между полем насыщения и температурой. Значения J_s брались по данным Хонда, Масумото, Ширакава [8].

Поправка на смещение при температуре жидкого азота имела величину $6^\circ 13'$. Для комнатной же температуры эта поправка была столь незначительна, что для плоскости (100) экспериментальные данные [кривую $M = \Phi(\psi)$] можно было непосредственно сравнивать с теоретической кривой (1).

Для плоскости (100) выражение (1) показывает, что константа анизотропии численно равна механическому моменту при $\varphi = \pi/8$.

Измерение механических моментов производилось при температурах $-195,5^\circ\text{C}$ (температура кипения азота), -183°C (температура кипения кислорода под атмосферным давлением), в интервалах температур от -90° до $+10^\circ\text{C}$ (в этиловом 95% спирте, охлаждавшемся жидким кислородом).

Все исследования, как в низких, так и в высоких температурах, производились в цилиндрическом сосуде Дьюара, помещенном между полюсами электромагнита Румкорфа. Исследования в интервале температур от $+14^\circ$ и выше в направлении к точке Кюри производились в нагретом масле, налитом в дьюаровский сосуд.

Температура во всех случаях измерялась с помощью термометры медь — константан.

4. Результаты измерений и обсуждение результатов

Результаты измерений механических моментов в плоскостях (100) и (110) при $t = +14^\circ\text{C}$ представлены на рис. 8 и 9. Сплошная кривая рис. 8 представляет собой теоретическую кривую $M = K \sin 4\varphi$ при $K = -2,6 \cdot 10^4$. Так как при этой темпера-

туре $\varphi \cong \psi$, то и экспериментальные точки, дающие величину механического момента в функции угла ψ в плоскости (100), достаточно хорошо ложатся на теоретическую кривую.

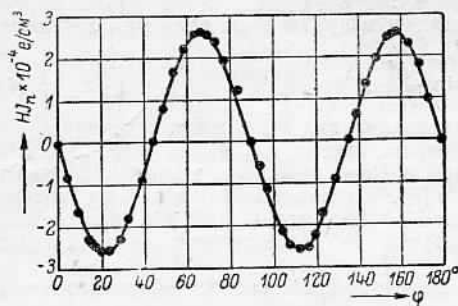


Рис. 8. Кривая моментов для монокристалла Ni в плоскости (100) при $+14^\circ\text{C}$.

При значении $K' = -0,5 \cdot 10^4$, значения механических моментов в плоскости (110) будут определяться формулой

$$M = K \left(\frac{1}{2} \sin 2\varphi + \frac{3}{4} \sin 4\varphi \right) + K' \left\{ \frac{1}{8} \sin 4\varphi (1 - \cos 2\varphi) + \frac{1}{16} \sin 2\varphi (1 - \cos 4\varphi) \right\} \quad (5)$$

Эта зависимость представлена на рис. 9 сплошной кривой и достаточно хорошо согласуется с экспериментальными данными.

В случае низких температур величину константы анизотропии K можно вычислить по величине максимального механического момента в плоскости (100), отнесенного к углу $\varphi = \pi/8$.

Опыт дает, что при $t = -195,5^\circ\text{C}$ $K = -32,3 \cdot 10^4$ (e/cm^3) при $t = -183^\circ\text{C}$ $K = -29,8 \cdot 10^4$ (e/cm^3).

Построенные соответственно этим значениям K теоретические кривые (1) для механических моментов представлены пунктирными кривыми на рис. 10 и 11. Экспериментальные значения моментов изображены на этих чертежах точками. Сплошные кривые получены из теоретических, путем сдвига их, с помощью выражения (4).

Как видно, результаты вычислений очень хорошо совпадают с экспериментальными данными.

Для определения константы анизотропии в интервале температур от -90°C до комнатной и выше, производились измерения механических моментов в плоскости (100) при определенном значении угла ψ . По формуле (4) вычислялось соответствующее φ и далее по формуле (1) определялась константа анизотропии K .

Результаты измерений величины константы анизотропии представлены в табл. 1. Прежде чем перейти к сопоставлению экспериментальных данных с теорией, мы попытались установить на основании экспериментальных данных общую эмпирическую зависимость K от T , для чего были построены значения $\lg K$, в зависимости от T^2 (см. рис. 12). Как видно из чертежа, во всем интервале температур зависимость получается очень близкая к прямой.

Таким образом на основании опыта устанавливается соотношение:

$$\lg K = \lg K_0 - a T^2, \quad (6)$$

т. е., иными словами, температурная зависимость константы анизотропии может быть представлена интерполяционной формулой:

$$K = K_0 \cdot \exp(-a T^2), \quad (7)$$

где $K_0 = 40 \cdot 10^4$ (e/cm^3) и $a = 0,000034$ ($^\circ\text{C}^{-2}$).

В плоскости (110) при $t = +14^\circ\text{C}$ теоретическая кривая (2) при том же значении константы анизотропии $K = -2,6 \cdot 10^4$, представлена на рис. 9 в виде пунктирной кривой. Экспериментальные точки, как видно из чертежа, недостаточно хорошо ложатся на эту теоретическую кривую. Одним из наиболее простых объяснений этого систематического расхождения экспериментальных данных с теоретической кривой, представленной выражением (2), может служить наличие следующих членов разложения энергии в ряд по четным степеням направляющих косинусов вектора спонтанного намагничивания, а именно — члена $K'' S_1^2 - S_2^2 S_3^2$.

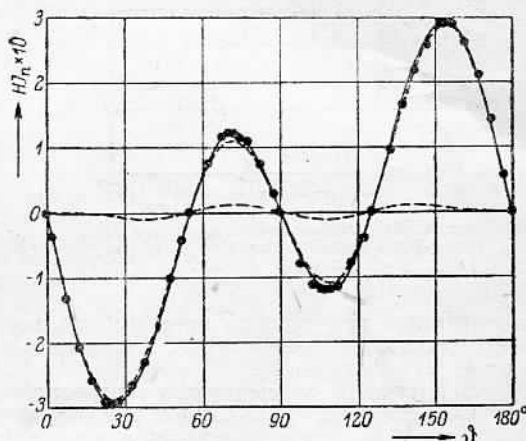


Рис. 9. Кривая моментов для монокристалла Ni в плоскости (110) при $+14^\circ\text{C}$.

Таблица 1

Таблица значений константы анизотропии

$T^{\circ} \text{ K}$	$ K \cdot 10^{-4} (\text{e/cm}^3)$	$T^{\circ} \text{ K}$	$ K \cdot 10^{-4} (\text{e/cm}^3)$	$T^{\circ} \text{ K}$	$ K \cdot 10^{-4} (\text{e/cm}^3)$	$T^{\circ} \text{ K}$	$ K \cdot 10^{-4} (\text{e/cm}^3)$
77,4	32,30	224	7,25	269,5	3,34	300	2,08
90	29,80	227	6,85	272,5	3,22	303	1,94
187	12,25	230	6,55	275	3,10	308	1,82
193	11,80	233	6,23	277	3,02	312	1,625
196	11,00	235	5,90	279	2,89	317	1,505
199	10,70	238	5,73	282	2,77	326	1,261
202	10,20	241	5,56	284	2,71	330	1,151
205	9,75	244	5,33	287	2,53	335	1,030
208	9,32	247	5,07	288	2,56	340	0,912
210,5	8,75	250	4,81	291	2,46	344	0,815
213	8,60	255	4,26	293	2,37	354	0,670
216	8,21	258	4,10	295,5	2,28		
219	7,87	261	3,90	297,5	2,16		
221,5	7,85	267	3,52				

Эта формула является чрезвычайно удобной для вычисления K для монокристаллов никеля в очень широком интервале температур. Однако нельзя переоценивать значение этой формулы с принципиальной стороны, так как она не учитывает того обстоятельства, что в точке Кюри константа анизотропии должна обращаться в нуль.

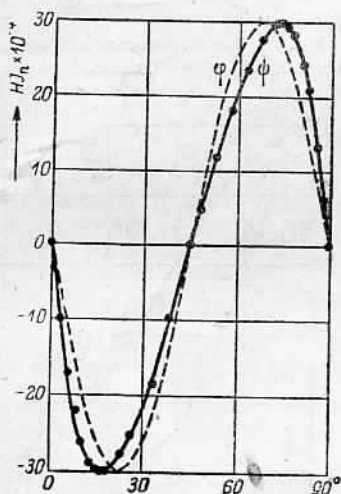


Рис. 10. Кривая моментов для монокристалла Ni в плоскости (100) при -183° C .

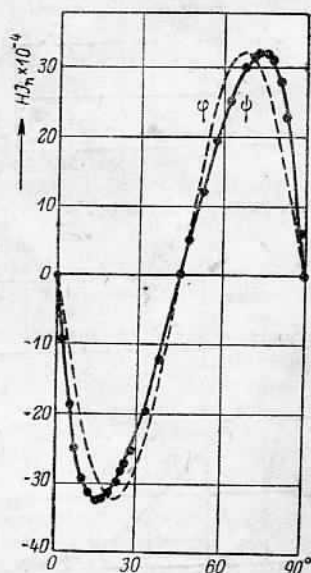


Рис. 11. Кривая моментов для монокристалла Ni в плоскости (100) при $-195,5^{\circ} \text{ C}$.

Кривая, рассчитанная по формуле (7), и экспериментальные значения K представлены на рис. 13.

Рассмотрим основные особенности полученной кривой (7) (рис. 13).

1. Эта кривая удовлетворяет основному условию, выведенному Акуловым из тепловой теоремы Нернста и установленного им принципа эквивалентности, а именно:

$$(dK/dT)_{T=0} = 0. \quad (8)$$

2. Полученная эмпирическая кривая резко отличается от соответственной кривой для железа.

Построенная нами на основании измерений Киренского [12], Пити [11], Хонда и др. [8] кривая температурной зависимости константы магнитной анизотропии монокристаллов железа имеет гораздо меньший наклон и в области очень низких температур идет значительно ниже аналогичной кривой для никеля (рис. 14).

Эта кривая в широком температурном интервале от абсолютного нуля до 600° K и выше также удовлетворяет соотношению (7) $\rightarrow K = K_0 \exp(-aT^2)$, но при соответственно других значениях K_0 и a : $K_0 = 26,3 \cdot 10^4 \text{ e/cm}^3$; $a = 0,000003 \text{ град}^{-2}$.

Объяснение такого резкого расхождения в ходе этих кривых следует искать в различии величины комплексов спинов, на которые, по предположению Акулова, расщепляются области спонтанного намагничивания в кристаллах никеля и железа.

В то время как для железа эти комплексы крупные и углы их отклонения соответственно невелики, у никеля, наоборот, комплексы спинов должны быть значительно меньше и иметь соответственно большие углы отклонения.

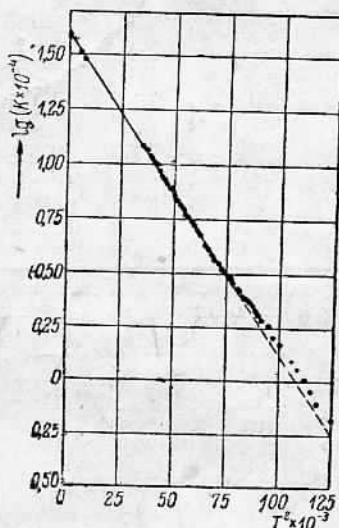


Рис. 12. Зависимость $\lg K$ от T^2 .

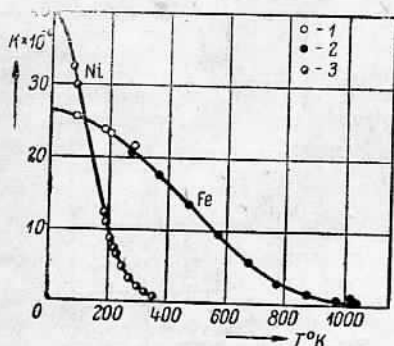


Рис. 14. Экспериментальные кривые для Fe и Ni. 1 — данные Киренского; 2 — данные Хонда, Масумото и Ширакава; 3 — данные авторов.

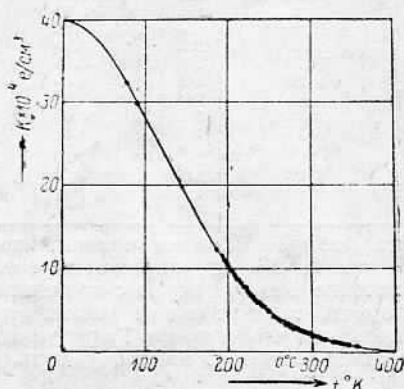


Рис. 13. Экспериментальная кривая $K = K_0 e^{-a/T^2}$ для Ni.

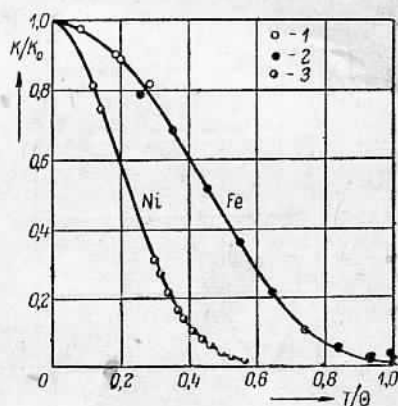


Рис. 15. Кривые $K/K_0 = f(T/\theta)$ для Ni и Fe. 1 — данные Киренского; 2 — данные Хонда, Масумото, Ширакава; 3 — данные авторов.

3. В отличие от кривой $I_8/I_0 = \varphi(T/\theta)$, универсальность которой для всех ферромагнитных металлов была доказана Вейссом [5], кривая $K/K_0 = f(T/\theta)$ не является универсальной. На рис. 15 сопоставлены кривые $K/K_0 = f(T/\theta)$ для железа и для никеля.

Как видно из рисунка эти кривые совершенно не совпадают друг с другом.

4. Результаты опыта показывают, что для никеля при $T = 400^\circ\text{K}$, т. е. задолго до точки Кюри, K практически обращается в нуль.

Меняет ли K знак вблизи точки Кюри, установить не удалось в силу того, что величина K в этом интервале слишком мала.

Но во всяком случае можно утверждать, что таких значительных величин K с измененным знаком в интервале между 450°K и точкой Кюри (631°K), как это должно было бы быть, если исходить из кривых намагничивания монокристаллов никеля при высоких температурах по данным Хонда и других [6], не наблюдалось.

Для сравнения результатов опыта с теорией Акулова мы воспользовались формулой, даваемой этой теорией

$$\frac{K}{K_0} = 1 - \frac{10}{3} \frac{T}{\theta} + \frac{35}{9} \left(\frac{J_0}{J_s}\right)^2 \left[1 - \frac{T}{\theta}\right] \left[\frac{T}{\theta}\right]^2. \quad (9)$$

Ее применение вообще может иметь лишь приближенный характер в силу того, что при ее выводе была принята классическая статистика. Поэтому наиболее заметных отклонений от экспериментальных данных следует ожидать вблизи абсолютного нуля.

Результаты сравнения представлены на рис. 16, где сплошной линией представлена экспериментальная кривая, пунктиром — теоретическая.

Мы видим, что общий характер зависимости K от T , если не говорить о деталях, и ее особенность — весьма быстрое спадание до 280°K , а также стремление к нулю при подходе к температурам порядка 400°K передается теоретической кривой достаточно хорошо. В точке Кюри по формуле (9), в согласии с опытом, K тоже обращается в нуль.

Вблизи абсолютного нуля теоретическая и экспериментальная кривые, как и следовало ожидать, не совпадают. При этом для теоретического выражения (9) не выполняется условие (8) $\rightarrow (dK/dT)_{T=0} = 0$, что является результатом применения в теории классической статистики.

Необходимо однако иметь в виду, что применение принципа эквивалентности [9], [13], установленного Акуловым для малых углов отклонения комплексов спинов, позволяет совсем избежать статистических расчетов, и тогда, как показали измерения для Fe [10], [12], выводы теории совпадают с опытом. У никеля, как показывают наши наблюдения, углы отклонения комплексов спинов имеют повидимому большую величину.

Поэтому в случае Ni область применения принципа эквивалентности должна быть сильно ограничена. Характер расхождения вблизи абсолютного нуля между базирующейся на классической статистике теоретической формулой (9) и экспериментом сильно напоминает известное явление криомагнитной аномалии для парамагнетиков [17].

В то время, как согласно закону Кюри и теории Ланжевена — Вейсса [17] величина, обратная магнитной восприимчивости, имеет прямолинейный ход в зависимости от температуры, на опыте оказывается, что вблизи от абсолютного нуля имеет место резкое отклонение от прямолинейного хода.

Все эти факты представляют большой принципиальный интерес и значение для дальнейшего развития теории магнитной анизотропии и теории кривых намагничивания.

В заключение выражаем глубокую благодарность проф. Н. С. Акулову за его советы и то внимание, с которым он относился к нашей работе.

Литература

1. N. Akulov, ZS. f. Phys., **67**, 794, 1931; **99**, 78, 1931.
2. W. Heisenberg, ZS. f. Phys., **49**, 610, 1928.
3. J. Hopkinson, Phil. Trans. Roy. Soc. [A], **443**, 1889; Proc. Roy. Soc. **144**, 317, 1888.
4. P. Curie, Oeuvres, Paris, 1908.
5. P. Weiss, J. de Phys., **IV**, 661, 1907; Ann. de Phys., **9**, 134, 1914.
6. P. Weiss et Kamerlingh-Onnes, Ann. de Phys., **9**, 555, 1910.
7. P. Weiss et R. Forrer, Ann. de Phys., **12**, 279, 1929.
8. K. Honda, H. Masumoto and J. Shira-kawa, Sc. Rep. Tôh. Imp. Univ. **XXIV**, 391, 1935.
9. N. Akulov, ZS. f. Phys., **100**, 197, 1936.
10. Е. Титов, Ж. Э. Т. Ф., **6**, 675, 1936, вып. 7; E. Titoff, Sow. Phys., **10**, 337, 1936.
11. R. Pietu, Phys. Rev., **50**, 1173, 1936.
12. Л. Киренский, ЖЭТФ, **7**, 879, 1937, вып. 7.
13. N. Akulov, C. R. Acad. de Sc. l'USSR, **XV**, 445, 1937, No. 8.
14. Н. Акулов и Н. Брюхатов, ЖЭТФ, **3**, 59, 1933, вып. 1; N. Akulov and N. Bruckhatov, Ann. d. Phys., **12**, 741, 1932.
15. N. Akulov, ZS. f. Phys., **57**, 249, 1929.
16. Н. Акулов, Ученые Записки МГУ, вып. II, 1934, стр. 137.
17. P. Weiss et Foex, La magnétisme, Paris, 1926.

Москва, НИИФ — МГУ.
Магнитная лаборатория.

Поступило в Редакцию
25 октября 1937 г.

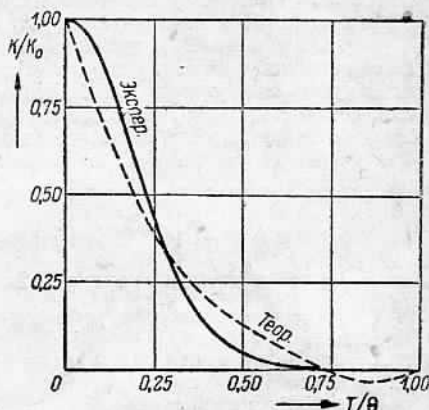


Рис. 16. Кривые $K/K_0 = f(T/\theta)$ (теоретическая и экспериментальная) для Ni.