PACS: 77.80.Bh, 84.30.Ng

Ю.И. Непочатых[1], В.Н. Варюхин[1], В.В. Коледов[2], В.Г. Шавров[2]

ИНДУЦИРОВАНИЕ АВТОКОЛЕБАНИЙ НАМАГНИЧЕННОСТИ В ПОЛИКРИСТАЛЛИЧЕСКОМ ГАДОЛИНИИ

[1]Донецкий физико-технический институт им. А.А. Галкина
[2]Институт радиотехники и электроники им. В.А. Котельникова РАН, Москва

Статья поступила в редакцию 23 октября 2024 года

С целью сужения ширины петли гистерезиса при миллисекундных магнитных колебаниях исследованы образцы поликристаллического гадолиния в комбинации постоянного поля с напряженностью до 3 kOe и переменных полей с частотой до 14 MHz. В области внешних параметров, где выявлен инверсный ход зависимости магнитной проницаемости от температуры, проведены более детальные эксперименты. В полях подмагничивания, меньших 100 Oe, вблизи температуры Кюри обнаружена порождаемая процессами в гадолинии низкочастотная автомодуляция действующего на образец малого высокочастотного сигнала. Ее возбуждение объясняется возможностью возникновения скачкообразных автоколебаний намагниченности гадолиния в определенных значениях полей и других параметров, обеспечивающих нужное для этого сужение петли гистерезиса.

Ключевые слова: гадолиний, магнитные фазовые переходы, магнитокалорический эффект, автоколебания

Введение

Динамика магнитокалорического эффекта (МКЭ) вызывает растущий интерес [1,2] ввиду широких перспектив его практического применения. В ферромагнетиках, в том числе в материалах с большими значениями МКЭ, с ростом температуры вблизи точки Кюри вопреки уменьшению намагниченности наблюдается повышение магнитной проницаемости, обусловленное ослаблением воздействия магнитной анизотропии и магнитострикции, снижением противодействия смещению доменных границ и повороту намагниченности под влиянием внешнего поля. Вследствие этого можно предполагать формирование условий сужения петель гистерезиса в переменных магнитных полях.

Для уменьшения негативного влияния магнитной вязкости при намагничивании на частотах до 10 kHz применяется подмагничивание с частотой более 100 kHz, с которым в технике магнитной записи становится достижимым необходимое уменьшение ширины петли гистерезиса. Таким же образом может быть использован пробный высокочастотный (ВЧ) сигнал авто-

дина, применяемый для измерений магнитных характеристик [3]. Цель данной работы – поиск возможных параметров исследуемых образцов и техники внешнего воздействия на них вблизи температуры максимума МКЭ для максимального уменьшения ширины частной петли гистерезиса в гадолинии и снижения вредного тепловыделения, связанного с шириной петли.

1. Образцы и методика измерений

Образцы поликристаллического гадолиния чистотой не хуже 99.9% были вырезаны из пластины толщиной 0.4 mm. Образец № 1 имел размеры 4 × 34 mm, образец № 2 – размеры 0.5 × 4 mm. Использовали в основном измерительную установку с автодином. К ее плоской спиральной катушке индуктивности [3,4], создающей ВЧ-поле 0.01–0.02 Oe, был прижат образец № 2. Измерения проводили в выбранных стабильных полях H с низкочастотной (НЧ) модуляцией:

$$\delta H = H_{\mathrm{LF}} \sin(\omega t + \varphi),$$

где H_{LF} – амплитуда 1–2 Oe поля модуляции, φ – ее фаза, ω – частота.

Для построения зависимостей от температуры при плавном нагреве или охлаждении образца регистрировали одновременно изменения частоты автодина, предустановленной в диапазоне 4–14 MHz, и результатов влияния НЧ-модуляции поля на параметры амплитуды A ВЧ-сигнала автодина, измеряемые при его детектировании. Через интервалы в десятые доли секунды фиксировали параметры изменения $\delta A(H, \delta H, T)$:

1) значения средних за полупериод π/ω величин компонент α и β, синхронных с НЧ-модуляцией, сдвинутых в приемнике по фазе φ на 90°, а также значения вычисленного модуля

$$A_{\mathrm{LFS}} = |\delta A| = \sqrt{\alpha^2 + \beta^2}$$

и сдвига его фазы $\varphi = \mathrm{arctg}(\alpha/\beta)$ относительно предустановленного $\varphi_0 = 0$;

2) значения глубины A_{LF} модуляции амплитуды автодина в диапазоне от 200 Hz до 3 kHz, выделенные диодным детектором, позволяющие по разности $A_{\mathrm{LF}} - A_{\mathrm{LFS}}$ выявить и НЧ-магнитные колебания в образце, не связанные с внешней модуляцией поля.

Образец № 1 исследовали на этой же установке в цилиндрической ВЧ-катушке индуктивности, а также с помощью измерительного трансформатора в отдельных измерениях для прямого получения зависимости НЧ-проницаемости от температуры с синхронным детектированием компонент его выходного напряжения, описанным выше. Многопараметровые измерения применены для расширения средств обнаружения возможных эффектов и объяснения их результатов.

Постоянное поле электромагнита и переменные поля в процессе измерений были направлены вдоль длинных осей образцов. Температуру измеряли прижатой к образцу медь-константановой термопарой с точностью около ±1 K. Изменения температуры гадолиния ограничивали в диапазоне 260–315 K.

2. Эксперимент

На рис. 1 для указанных величин полей приведены зависимости от температуры значений модуля НЧ-магнитной проницаемости $|\mu_{LF}(T)|$, вычисленных из компонент α и β выходного напряжения, синхронных с частотой 33 kHz питания измерительного трансформатора. Только в поле 27 Oe показаны изменения фазы $\varphi = \mathrm{arctg}(\alpha/\beta)$. В других полях фаза не изменялась на уровне чувствительности измерения, поэтому соответствующие им горизонтальные прямые не показаны.

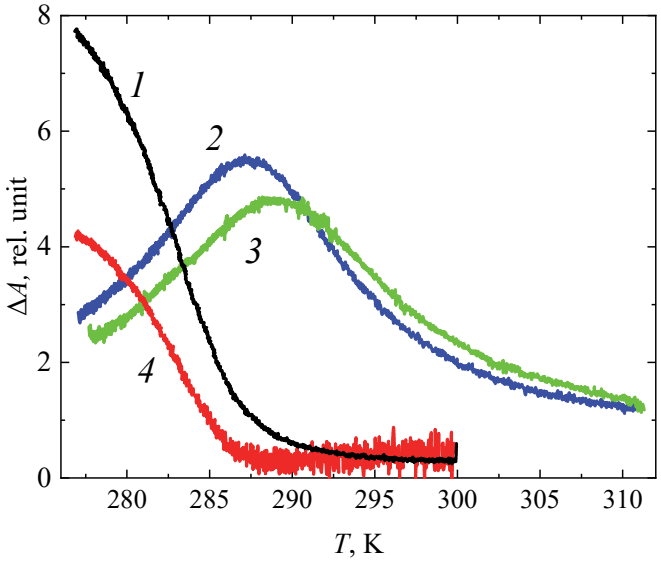

Рис. 1. Температурные зависимости модуля НЧ-магнитной проницаемости $|\mu_{LF}|$ при охлаждении образца № 1 в постоянных полях (*1* – 27 Oe, *2* – 1.2 kOe, *3* – 1.9 kOe) и его фазы в поле 27 Oe (*4*)

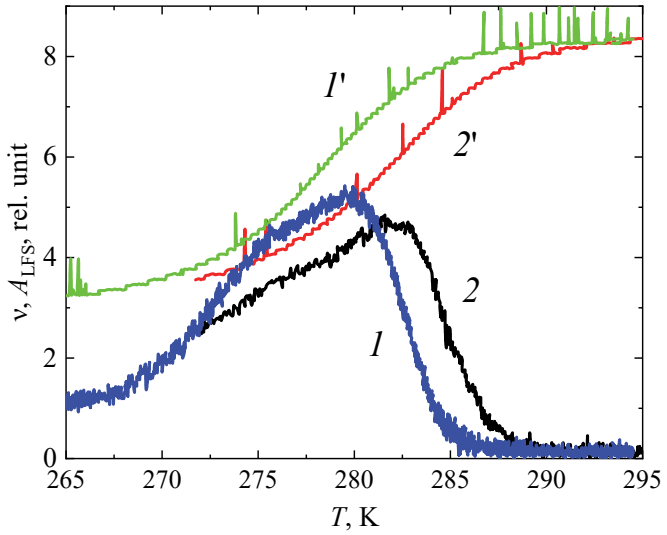

Рис. 2. Температурные зависимости частоты $\nu(T)$ автодина в диапазоне 6.0–6.1 MHz (кривые *1′* и *2′*) и модуля отклика его амплитуды на модуляцию 330 Hz поля (кривые *1* и *2*) при охлаждении образца № 1 в постоянных полях, Oe: *1*, *1′* – 27; *2*, *2′* – 100

Ход кривых *1* и *2* на рис. 2 отражает зависимость модуля производной амплитуды автодина $|\delta A / \delta H|$ от температуры. Результаты, представленные на рис. 1 и 2 (с некоторыми важными для нас дополнительными особенностями), соответствуют известным данным [1,5]. При увеличении внешнего поля они демонстрируют повышение температуры перехода из ферромагнитного в парамагнитное состояние, а также рост намагниченности при тех же значениях температуры.

Изменение магнитной проницаемости рассчитано по значениям частоты автодина [4] (рис. 3) по формуле, определенной в наших экспериментах в виде

$$\mu(T) = B\left[\nu^{-2}(T) - \nu^{-2}(T_{\max})\right],$$

где B – постоянная измерительной ячейки установки, $\nu(T)$ – измеряемая зависимость частоты от температуры, $\nu(T_{\max})$ – частота автодина при максимальном значении температуры.

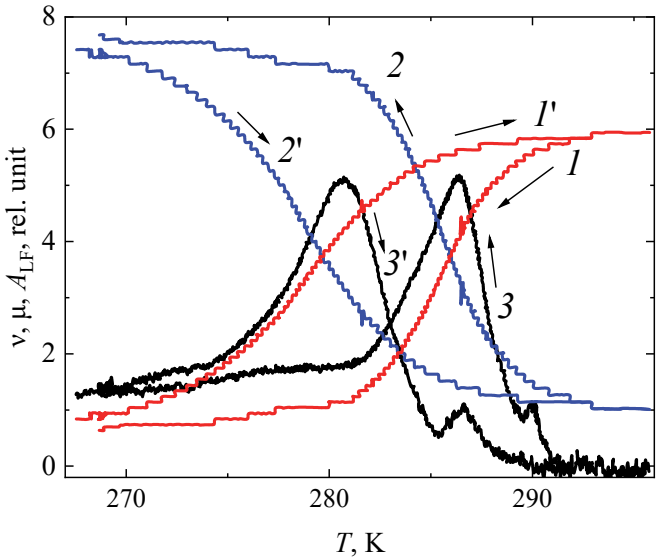

Рис. 3. Температурные зависимости частоты ν автодина (кривые *1* и *1′*), магнитной проницаемости μ (*2* и *2′*), рассчитанной по значениям ν, и глубины НЧ-модуляции амплитуды автодина A_{LF} (*3* и *3′*) в постоянном внешнем поле 6 Oe при охлаждении и нагреве образца № 2 гадолиния

Вычисленные значения $\mu(T)$ изменяются обратным образом от хода кривых *1′* и *2′* на рис. 2, показывая плавный спад по температуре вместо плавного роста $\nu(T)$, что позволяет для анализа зависимости $\mu(T)$ просто использовать $\nu(T)$. На рис. 3 проявляется аномалия всех зависимостей: крутые изменения кривых опережают подобные изменения по значениям температуры при инверсии нагрева–охлаждения. Зафиксированная в диапазоне 6–100 Oe аномалия хода кривых во всех парах кривых, полученных в наших экспериментах, максимальна в поле 30 ± 15 Oe. В широком диапазоне других значений поля 200–3000 Oe крутые изменения в каждой паре кривых запаздывают по значениям температуры (в отличие от рис. 3 наблюдается обычный гистерезис).

На рис. 3 обнаруживаются новые, по сравнению с рис. 2, пики НЧ-колебаний (меньшие по высоте на паре кривых *3* и *3′*) в области перехода гадолиния из ферро- в парамагнитное состояние. Только эти пики остаются в поле 27 Oe (пара кривых *3* и *4* на рис. 4) при уменьшенной до нуля внешней НЧ-модуляции поля с последующим обнулением синхронного отклика A_{LFS}. Данные пики отражают возникающую при соответствующих значениях полей и температуры самопроизвольную НЧ-модуляцию (автомодуляцию) амплитуды ВЧ-автодина. Появление автомодуляции при прохождении области температур ее возбуждения отображается на экране осциллографа картиной A_{LF} (рис. 5) в виде импульсов скачкообразного вида вместо линии минимального шума при других температурах.

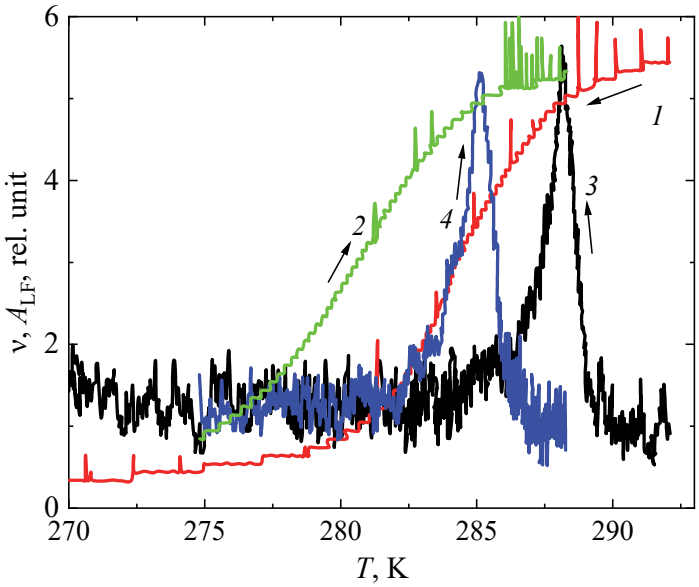

Рис. 4. Температурные зависимости частоты автодина (кривые *1*, *2*) и глубины НЧ-модуляции его амплитуды (кривые *3*, *4*) в постоянном внешнем поле 27 Oe при нагреве и охлаждении образца № 2

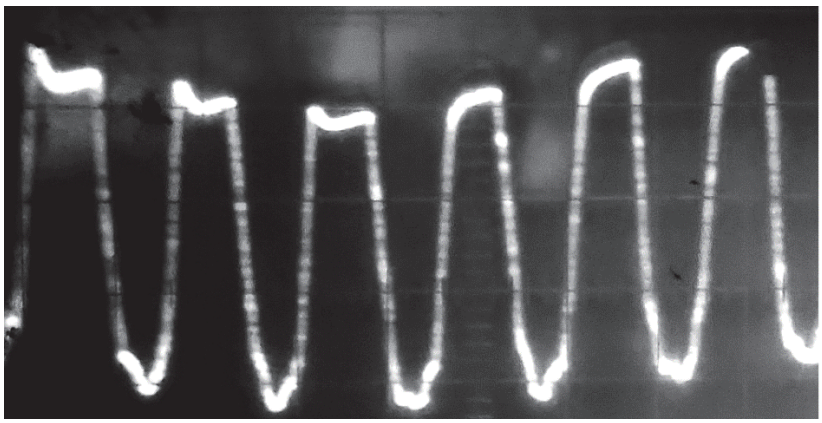

Рис. 5. Осциллограмма автоколебаний амплитуды автодина с образцом гадолиния во внешнем поле 27 Oe при температуре 287 K в процессе нагрева

Частота импульсов стабилизируется, и с нею синхронизируется развертка осциллографа только около значений температуры пиков кривых *3* и *4* на рис. 4, воспроизводящих изменение амплитуды этих импульсов. Частота импульсов в диапазоне 800–1500 Hz и их форма плавно изменяются при повышении–понижении температуры в области максимумов кривых *3* и *4*.

3. Обсуждение

Эффекты инверсного поведения зависимости восприимчивости от температуры, подобные приведенным в наших исследованиях, наблюдались в обогащенных железом пленках железоиттриевого граната (ЖИГ) [6]. В пленке ЖИГ также обнаружено [3] появление НЧ-колебаний намагниченности под действием только слабого (~ 0.01 Oe) ВЧ-поля в области перехода намагниченности в состояние насыщения при внешнем квазистатическом поле, направленном вдоль трудной оси намагничивания. Был сделан вывод о связи автоколебаний с наличием участка скачкообразного хода зависимости намагниченности от поля в области ориентационного фазового перехода [3,7,8].

Поскольку и в нашей работе с гадолинием автоколебания намагниченности возникают при аналогичных внешних действиях, можно сделать вывод о возможности формирования условий их генерации аналогично связанных с наличием участка скачкообразного хода зависимости намагниченности от поля и достаточно узкой для этого петли гистерезиса в пульсирующем поле. Возникновение модуляционной неустойчивости колебаний связано с наличием в гадолинии активной среды [9]. Она обеспечивается: установленными внешними действиями, усиленными близостью фазового перехода, продуцирующего минимальную магнитную вязкость; нелинейными зависимостями характеристик гадолиния от внешнего поля; магнитной проницаемостью, близкой к максимальной, с наиболее крутым ее изменением по температуре в определенном нами диапазоне малых значений внешнего поля. Последнее, как ранее показано в [5], демонстрируют на рис. 1 большие изменения кривой *1* модуля проницаемости и кривой *4* сдвига его фазы.

Заключение

Задача нахождения всех вероятных параметров материала и внешних воздействий на него для сужения его петли гистерезиса всегда актуальна. Ведущие к этому подобранные нами действия, индуцирующие появление автоколебаний намагниченности, чувствительны к изменению их параметров. Результат обнаруживается пока только при высокой разрешающей способности измерений с автодином на образце малого размера, обеспечивающем относительно более энергичное проникновение в его сечение ВЧ-поля при противодействии скин-эффекта. При определенных значениях внешнего поля, температуры и других параметров малое ВЧ-поле примененного оборудования обеспечило значительное влияние на поведение намагниченности. Своим тонко регистрируемым изменением это ВЧ-поле также воспроизводило процесс трансформации намагниченности. Магнитные автоколебания в зоне больших значений МКЭ в гадолинии, в сравнении с аналогич-

ным эффектом в ЖИГ, интересны для дальнейших исследований в перспективе установления влияния индуцированных колебаний намагниченности на температуру образца.

Полученная информация об инверсном ходе зависимостей магнитной проницаемости гадолиния от температуры и возможности возбуждения регулярных скачков намагниченности может быть использована для определения условий сужения петли гистерезиса в пульсирующем поле и минимизации нежелательного выделения энергии в устройствах, использующих МКЭ.

1. *J. Döntgen, J. Rudolph, T. Gottschall, O. Gutfleisch, D. Hägele*, Energy Technol. **6**, 1470 (2018).
2. *A.G. Gamzatov, A.B. Batdalov, Sh.K. Khizriev, A.M. Aliev, A.G. Varzaneh, P. Kameli*, J. Mater. Sci. **58** (20), 8503 (2023).
3. *Ю.И. Непочатых, В.В. Коледов, В.Г. Шавров*, Магнитные фазовые переходы: сборник трудов XIII международного семинара 17 сентября 2019 г., Махачкала (2019), с. 52.
4. *А.А. Безлепкин, С.П. Кунцевич, В.И. Костюков*, ФТТ **57**, 2151 (2015).
5. *S.Yu. Dan'kov, A.M. Tishin, V.K. Pecharsky, K.A. Gschneidner, Jr.*, Phys. Rev. **B57**, 3478 (1998).
6. *N.I. Mezin, Yu.I. Nepochatykh, N.Yu. Starostyuk, S.V. Yampolskii*, J. Magn. Magn. Mater. **476**, 447 (2019).
7. *Д.И. Семенцов, А.М. Шутый*, УФН **177**, 831 (2007).
8. *В.Г. Шавров, В.И. Щеглов*, Ферромагнитный резонанс в условиях ориентационного перехода, Физматлит, Москва (2018).
9. *А.П. Кузнецов, С.П. Кузнецов, Н.М. Рыскин*, Нелинейные колебания, Физматлит, Москва (2002).

Yu.I. Nepochatykh, V.N. Varyukhin, V.V. Koledov, V.G. Shavrov

EXCITATION OF SELF-OSCILLATIONS OF MAGNETIZATION IN POLYCRYSTALLINE GADOLINIUM

In order to narrow the hysteresis loop width at millisecond magnetic oscillations, the samples of polycrystalline gadolinium were studied in the constant field with an intensity of up to 3 kOe combined with alternating fields with a frequency of up to 14 MHz. Detailed experiments were carried out in the area of external parameters, where an inverse behavior of the magnetic permeability dependence on temperature was revealed. In magnetization fields of less than 100 Oe near the Curie temperature, low-frequency self-modulation of a small high-frequency signal acting on the sample was detected, that was generated by processes in gadolinium. Its excitation was explained by the possibility of occurrence of jump-like self-oscillations of gadolinium magnetization at certain values of fields and other parameters providing the necessary narrowing of the hysteresis loop.

Keywords: gadolinium, magnetic phase transitions, magnetocaloric effect, self-oscillations

Fig. 1. Temperature dependences of the change in the modulus of low-frequency magnetic permeability $|\mu_{LF}|$ in constant fields (*1* – 27 Oe, *2* – 1.2 kOe, *3* – 1.9 kOe) and its phase in a field of 27 Oe (4) during cooling of sample № 1

Fig. 2. Temperature dependences of the change in the autodyne frequency ν*(T)* in the range of 6.0÷6.1 MHz (curves *1′* and *2′*) and the modulus of its amplitude response to the modulation of the 330 Hz field (curves *1* and *2*) during cooling of sample № 1 in constant fields of *1* – 27 Oe and *2* – 100 Oe

Fig. 3. Temperature dependences of the autodyne frequency ν (pair of curves 1 and *1′*), calculated magnetic permeability μ (curves 2 and *2′*), and the depth of low-frequency modulation of the autodyne amplitude A_{LF} (*3* and *3′*) in a constant external field of 6 Oe during cooling and heating of gadolinium sample № 2

Fig. 4. Temperature dependences of changes in the autodyne frequency (pair of curves *1* and *2*) and the depth of low-frequency modulation of its amplitude (pair *3* and *4*) in a constant external field of 27 Oe during heating and cooling of sample № 2

Fig. 5. Oscillogram of self-oscillations of the autodyne amplitude with a gadolinium sample in an external field of 27 Oe at a temperature of 287 K during heating