

Neutronen-Depolarisationsmessungen an Dy in der Umgebung des ferromagnetischen Umwandlungspunktes

H. RAUCH, E. SEIDL und A. ZEILINGER

Atominstitut der Österreichischen Hochschulen, Wien, Austria

Eingegangen am 14. Mai 1971

A Neutron Depolarization Experiment on Dy near the Ferromagnetic Transition Point

The antiferro-ferromagnetic transition of poly- and single crystalline Dy-samples is investigated by means of the neutron depolarization action of the ferromagnetic domains. As the polycrystalline samples show a strong broadening of the transition temperature and very small magnetic domains, the measurements with the single crystal yield an exact determination of the transition point as a function of temperature and magnetic field. A marked time dependence of the ferromagnetic domain structure was observed near the transition point, which demonstrates a strong magnetic after-effect and a kind of a magnetic superviscosity.

Der antiferro-ferromagnetische Umwandlungsmechanismus wurde durch die Messung der Neutronendepolarisationswirkung von poly- und einkristallinen Dy-Proben untersucht. Während bei den polykristallinen Proben eine starke Verschmierung der Umwandlungstemperatur bei sehr kleinen Bereichsgrößen beobachtet wurde, führten die Messungen mit dem Einkristall zu einer genauen Bestimmung des jeweiligen Umwandlungspunktes als Funktion der Temperatur und des Magnetfeldes. Im Umwandlungsbereich wurde eine markante Zeitabhängigkeit der ferromagnetischen Bereichsstruktur festgestellt, welche eine starke magnetische Nachwirkung in dieser Substanz demonstriert.

1. Einleitung

Die Änderung des Polarisationsgrades von Neutronen beim Durchgang durch ferromagnetische Bereiche wurde von Halpern u. Holstein [1] theoretisch untersucht. Der Übergang des Spins zwischen zwei in verschiedener Richtung magnetisierten Bereichen erfolgt nichtadiabatisch, wodurch der Depolarisationsfaktor D_m , d. h. das Verhältnis der Neutronenpolarisation nach der Probe P , zu der vor der Probe P_0 , geschrieben werden kann als:

$$D_m = \frac{P}{P_0} = \left\langle \prod_{i=1}^N \left(1 - 2 \sin^2 \vartheta_i \sin^2 \frac{g B_i \delta_i}{2v} \right) \right\rangle_{av}. \quad (1)$$

Das Produkt ist über alle N Bereiche mit der magnetischen Induktion B_i , welche das Neutron entlang des Weges δ_i durchquert, zu bilden. v bedeutet die Neutronengeschwindigkeit, g das gyromagnetische Verhältnis, $\langle \rangle_{av}$ die Mittelung über zahlreiche Neutronenbahnen und ϑ_i den Winkel zwischen der magnetischen Induktion B_i und einer eventuell vorhandenen Magnetisierungsrichtung der Probe.

Falls keine makroskopische Magnetisierung der Probe vorliegt, die Stärke der magnetischen Induktion in allen Bereichen gleich der Sättigungsinduktion B_s ist und falls die Bereiche kleiner als $\delta_0 = \frac{2\pi v}{gB}$ sind, d. h. der Neutronenspin in einem einzelnen Bereich nur einen kleinen Bruchteil einer vollen Larmor-Präzession durchführt, geht Gl. (1) über in:

$$D_m = \frac{P}{P_0} \cong e^{-\frac{g^2 B_s^2 \delta D}{3v^2}}. \quad (2)$$

δ bedeutet die mittlere Bereichsgröße und D die Probendicke. Falls durch ein äußeres Magnetfeld eine Magnetisierung der Probe verursacht wird, so ist Gl. (2) zu modifizieren

$$D_m = \frac{P}{P_0} \cong e^{-\frac{g^2 (B_s^2 - B^2) \delta D}{2v^2}}, \quad (3)$$

wobei $B_{||}$ die zum angelegten Feld parallele magnetische Induktion darstellt. Aus diesen beiden Spezialfällen erkennt man, daß der Polarisationsgrad der Neutronen nach der Probe mit zunehmender Bereichs-

größe abnimmt, mit zunehmender Magnetisierung der Probe jedoch zunimmt. Aus Neutronen-Depolarisationsmessungen kann in der Umgebung der Umwandlungspunkte die mittlere Bereichsgröße genau bestimmt werden, wobei man für eine qualitative Aussage Gl. (1) benutzen wird.

Die magnetischen Eigenschaften von Dy-Einkristallen wurden von Behrendt u. a. [2] sehr eingehend untersucht. Unterhalb 85 K ist Dy ferromagnetisch mit der $[11\bar{2}0]$ -Achse als Richtung der leichtesten Magnetisierung, zwischen 85 K und 179 K ist Dy antiferromagnetisch mit einer Spiralstruktur, wobei die magnetischen Momente infolge der starken Anisotropie immer in der Basisebene des hexagonalen Gitters liegen. Beim Anlegen eines äußeren Feldes erfolgt bei einer gewissen Feldstärke $H_c \cong 125$ (T-85) [2] ein Umklappen der antiferromagnetischen Spiralstruktur in die ferromagnetische Struktur, was einem Übergang erster Ordnung mit einer Änderung der Gitterabstände entspricht [3, 4]. Die Magnetostriktion wurde von Clark u. a. [4] und die elastischen Konstanten von Rosen u. a. [5] im Bereich der Umwandlungstemperaturen gemessen. Eine theoretische Deutung der Magnetisierungseigenschaften der extrem anisotropen Seltenen Erden brachten vor allem die Arbeiten von Enz [6] und Elliott [7]. Für den ferromagnetischen Übergang stellt die starke Magnetostriktion in der Basisebene die treibende Kraft dar. Die starke Druckabhängigkeit der Umwandlungspunkte wurde von Milton u. a. [8] untersucht.

Über umfangreiche Neutronen-Depolarisationsmessungen an vielkristallinen Dy-Proben wurde bereits früher berichtet [9, 10]. Es ergaben sich dabei kleine ferromagnetische Nahordnungsbereiche, welche beim Anlegen eines äußeren Magnetfeldes rasch wuchsen. Die Ergebnisse von verschiedenen Meßvorgängen legten die Annahme einer Art innerer Koerzitivfeldstärke nahe, welche die Verschlebung der magnetischen Wände stark behindert. Außerdem zeigte sich eine starke Verschmierung des Curie-Überganges, wodurch Reste von Bereichen mit resultierendem magnetischen Moment noch weit oberhalb T_c nachgewiesen werden konnten. Die Kleinheit der ferro-

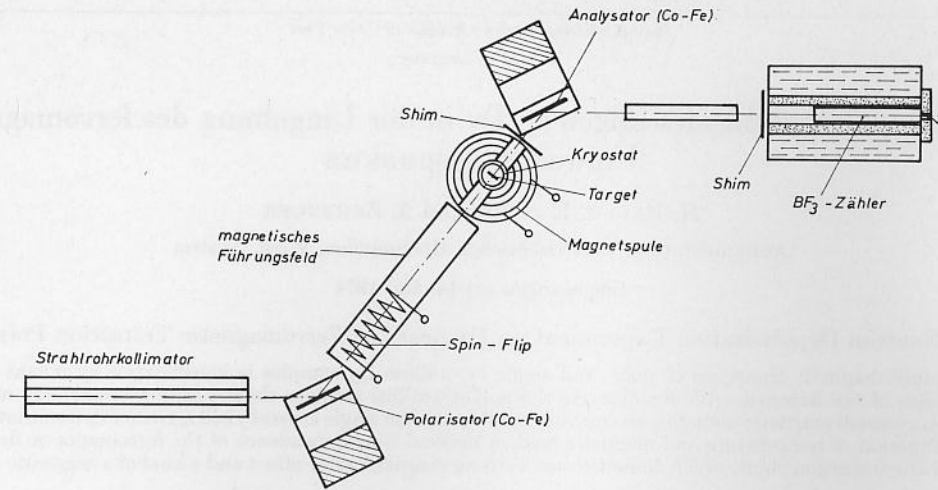


Abb. 1. Skizze der experimentellen Anordnung

magnetischen Nahordnungsbereiche und die bis zu relativ hohen Feldstärken vorhandene isotrope Richtungsverteilung der B_i erleichtert bei polykristallinem Material die Interpretation der Ergebnisse.

2. Experimentelle Durchführung

Abb. 1 zeigt eine Skizze der experimentellen Anordnung, welche in [9, 10] ausführlich beschrieben ist. Verwendet wurden monochromatische ($\lambda = 1,4 \text{ \AA}$) polarisierte Neutronen, deren Polarisation mit Hilfe

von Co-Fe-Einkristallen erzeugt und analysiert wurde. Der Depolarisationsfaktor D_m wurde mit der kombinierten Shim-Spin-Flip-Methode [10] bestimmt. Der Dy-Einkristall hatte eine Größe von $9 \times 15 \text{ mm}^2$, eine Dicke von 0,41 mm, eine Reinheit von 99,9% und war parallel zur Basisebene geschnitten, wodurch infolge der starken achsialen Anisotropie die magnetischen Momente und damit auch B immer senkrecht zur Neutronenflugrichtung waren. Die Probe war in einem Verdampferkryostat eingebaut, womit zwischen 4,2 K und Raumtemperatur jeder Wert auf $\pm 0,1 \text{ K}$ eingeregelt werden konnte. Mit einer geeigneten Magnetspule konnte an die Probe ein homogenes Feld bis zu 2 kOe angelegt werden, ohne dadurch die Neutronenpolarisation zu verändern. Die Messungen wurden bei einer Reaktorleistung von 250 kW durchgeführt wobei vor der Probe eine Blende von $6 \times 11 \text{ mm}^2$ angebracht war.

3. Ergebnisse

Einen Vergleich der Ergebnisse für die vielkristalline und die einkristalline Probe zeigt Abb. 2 für eine Temperatur von 4,2 K. Man erkennt daraus, daß beim Einkristall im Feld 0 kleinere D_m -Werte, d. h. größere Bereichsgrößen auftreten, was der Erwartung entspricht. Das Ansteigen von D_m bei höheren Feldstärken wird durch die makroskopische Magnetisierung der Probe verursacht [Gl. (3)]. Beim Vielkristall bleibt eine durch das Anlegen eines äußeren Feldes erzeugte Bereichsstruktur beim Abschalten des Feldes vollkommen erhalten, sie ist eingefroren. Da man kleinere D_m -Werte – größere Bereichsgrößen – auch bei der vielkristallinen Probe erhält sobald man die Probe im Feld abkühlt (strichlierte Kurve), kann geschlossen werden, daß die Bereichsstruktur in dieser Substanz in einem weitgehend metastabilen Zustand vorliegt.

Bei 90 K (Abb. 3) liegt bei geringen Feldern der antiferromagnetische Spiralstrukturbereich vor, oberhalb $H_c = 725 \text{ Oe}$ die ferromagnetische Anordnung. Aus der Abbildung erkennt man, daß der Übergang auch beim Einkristall durchaus stetig erfolgt, obgleich er wesentlich schärfer als beim Vielkristall ausgeprägt ist. Der Übergang erfolgt bei Magnetisierung in Richtung der leichten Achse bei niedrigeren

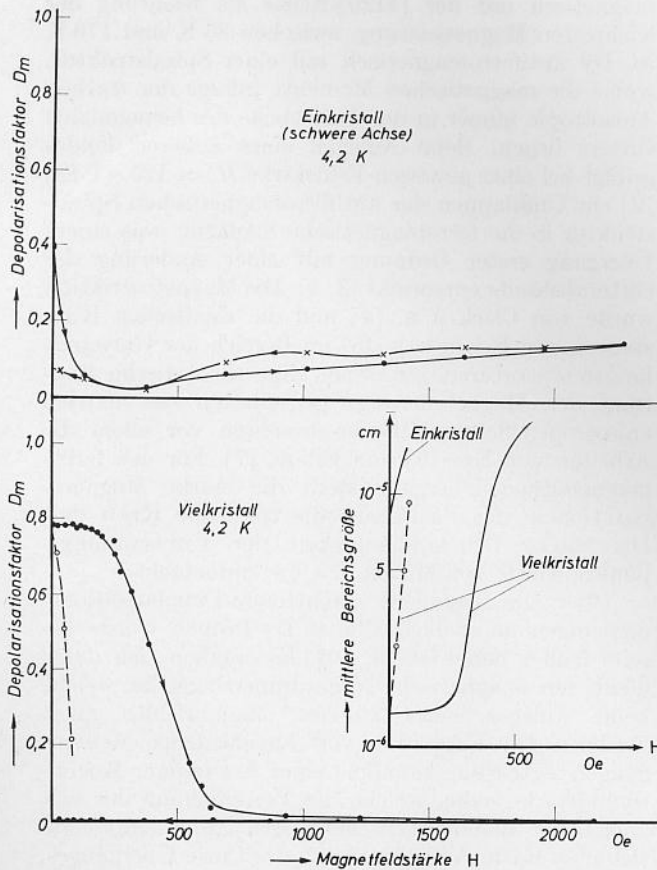


Abb. 2. Depolarisationsmessungen am Einkristall (oben) und Vielkristall (unten) bei 4,2 K und mittlere Bereichsgröße als Funktion des angelegten Magnetfeldes

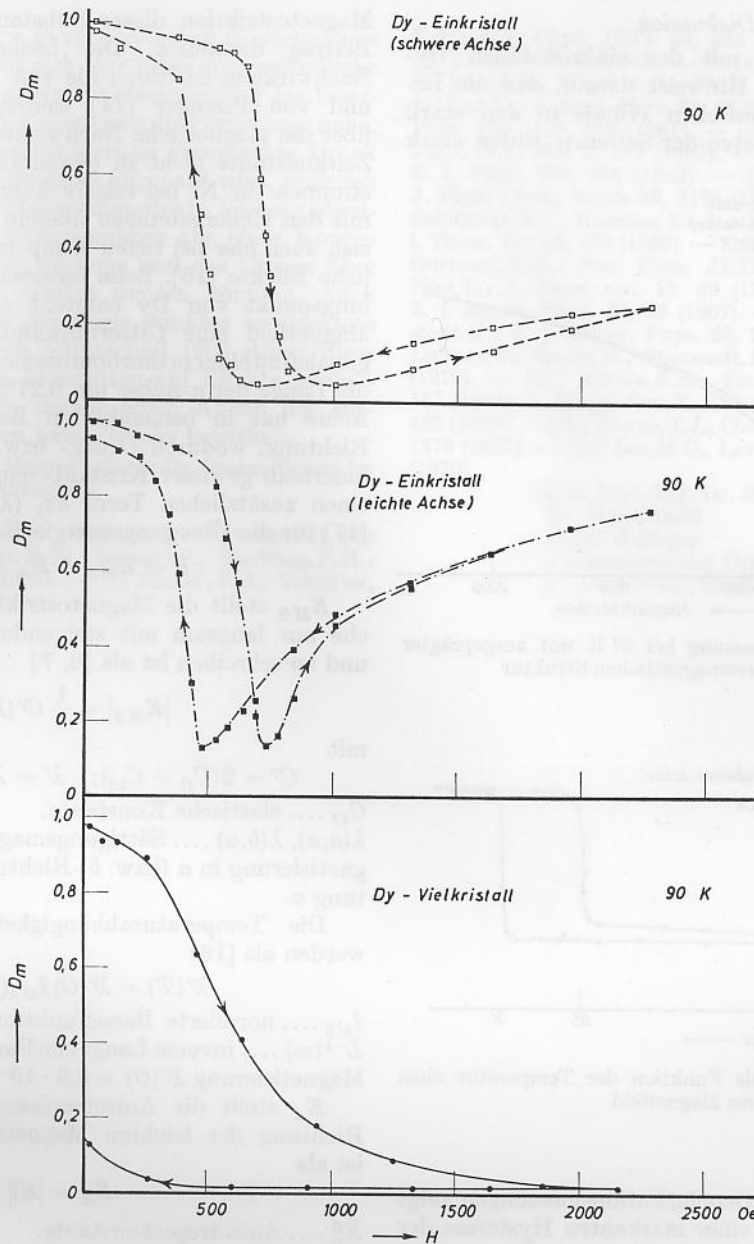


Abb. 3. Depolarisationsmessungen bei 90 K mit Magnetfeld in schwerer bzw. leichter Achse

H_c -Werten als bei Magnetisierung in Richtung der in der Basisebene liegenden schweren Achse. Der Anstieg von D_m infolge der Magnetisierung der Probe ist für die leichte Achse ausgeprägter. Die beobachtete Bereichshysterese ist beim Vielkristall wesentlich größer, jedoch auch beim Einkristall deutlich zu beobachten. Sehr deutlich erkennt man die beobachtete Bereichshysterese auch aus Abb. 4. Hier bleibt auch die einkristalline Probe nach dem Abschalten des Feldes in einem Zustand der eher als ferromagnetisch zu bezeichnen ist.

Eine Hysterese wird auch bei der Messung als Funktion der Temperatur bei konstantem Magnetfeld beobachtet – Abb. 5. Aus der Lage des maximalen Kurvenanstiegs kann die jeweilige Umwandlungstemperatur bei Temperaturerhöhung bzw. Erniedrigung sehr genau bestimmt werden [11]. Die Hysterese ist beim Vielkristall wesentlich ausgeprägter und die Schärfe des Übergangs ist geringer.

Bemerkenswert ist, daß bei den Meßwerten im Umwandlungsbereich eine charakteristische Zeitabhängigkeit beobachtet werden konnte. Die in den Abbildungen eingetragenen Depolarisationswerte entsprechen den Meßwerten nach einer Zeit > 30 min.

Die stabile Bereichsstruktur stellt sich erst mit sehr großer Zeitkonstante ein, wofür Abb. 6 für Magnetfelderhöhung und für Magnetfelderniedrigung charakteristische Verläufe zeigt. Als magnetischer Nachwirkungseffekt zeigt sich eine Art Superviskosität wie sie mit ähnlich großen Zeitkonstanten von Belov u. a. [12] bei Magnetisierungsmessungen an ferromagnetischen Seltenen Erden ebenfalls beobachtet wurde. Bei der vielkristallinen Probe wurde keine Zeitabhängigkeit der D_m -Werte festgestellt. Die Zeitkonstante dürfte hier so groß sein, daß die Meßwerte stabil erscheinen, was ebenfalls auf eine extreme Behinderung der Wandbeweglichkeit und damit auf eine metastabile Bereichsstruktur hindeutet.

4. Diskussion

Die Meßergebnisse mit der einkristallinen Dy-Probe ergaben weitere Hinweise darauf, daß die Beweglichkeit der magnetischen Wände in den stark anisotropen Ferromagneten der Seltenen Erden stark

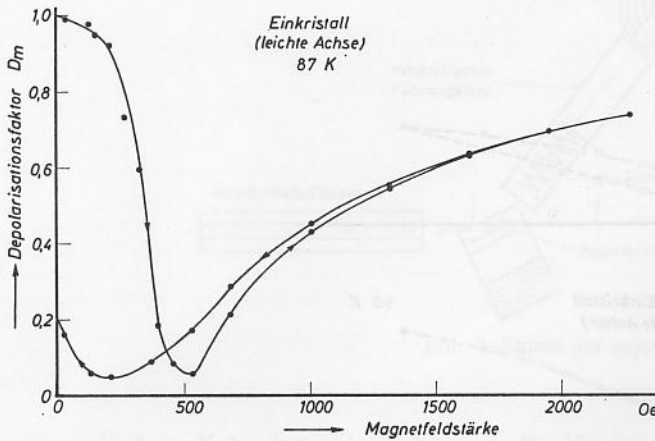


Abb. 4. Depolarisationsmessung bei 87 K mit ausgeprägter Remanenz der ferromagnetischen Struktur

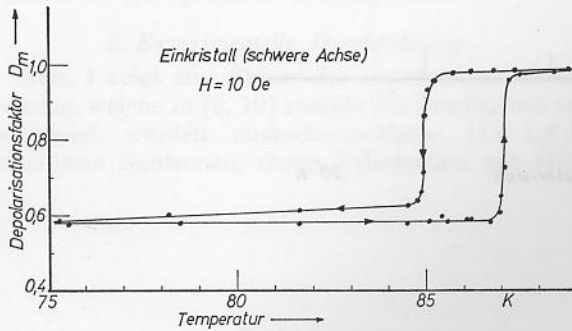


Abb. 5. Depolarisation als Funktion der Temperatur ohne äußeres Magnetfeld

behindert ist. Bei den Depolarisationsmessungen zeigt sich das im Auftreten einer markanten Hysterese der Bereichsstruktur und durch die beobachtete Zeitabhängigkeit bei der Ausbildung der Bereiche nahe der Umwandlungstemperatur. Bei einer Deutung dieser extremen magnetischen Nachwirkung dürfte die starke

Magnetostraktion dieser Substanzen einen wichtigen Beitrag darstellen. Die beobachtete magnetische Nachwirkung ist durch die von Néel [13] entwickelte und von Pfrenger [14] weitergeführte Vorstellung über die magnetische Nachwirkung mit einer einzigen Zeitkonstante nicht zu beschreiben. Diese Ergebnisse stimmen für Ni bei relativ hohen Temperaturen gut mit den Meßergebnissen überein [15], jedoch ergeben sich auch hier bei tiefen Temperaturen bereits zusätzliche Effekte [16]. Beim ferromagnetischen Umwandlungspunkt von Dy entsteht auch ohne angelegtes Magnetfeld eine Gitterumwandlung von der hexagonalen zu einer orthorhombischen Struktur wobei sich die Länge der *a*-Achse um 0,27% ändert [3, 4]. Diese Achse hat in benachbarten Bereichen verschiedene Richtung, wodurch Druck- bzw. Zugspannungen (τ_i) innerhalb gewisser Kristallbereiche entstehen, welche einen zusätzlichen Term $\lambda \tau_i$ (λ ... Magnetostraktion) [17] für die Übergangsenergie *E* liefern.

$$E = E_{MS} + E_A + \tau_i \lambda . \tag{4}$$

E_{MS} stellt die Magnetostraktionsenergie dar, welche nur langsam mit steigender Temperatur abfällt und zu schreiben ist als [6, 7]

$$|E_{MS}| = \frac{1}{8} C \gamma (\lambda^\gamma)^2 , \tag{5}$$

mit

$$C \gamma = 2(C_{11} - C_{12}) ; \quad \lambda^\gamma = \lambda(a, a) - \lambda(b, a) .$$

C_{ij} ... elastische Konstante.

$\lambda(a, a), \lambda(b, a)$... Sättigungsmagnetostraktion bei Magnetisierung in *a* (bzw. *b*)-Richtung gemessen in Richtung *a*.

Die Temperaturabhängigkeit kann geschrieben werden als [18]

$$\lambda^\gamma(T) = \lambda^\gamma(0) I_{5/2}(L^{-1}(m)) , \tag{6}$$

$I_{5/2}$... normierte Besselfunktion der Ordnung 5/2, $L^{-1}(m)$... inverse Langevin-Funktion der reduzierten Magnetisierung $\lambda^\gamma(0) = 8,5 \cdot 10^{-3}$ [4].

E_A stellt die Anisotropieenergie, welche für die Richtung der leichten Magnetisierung zu schreiben ist als

$$E_A = |K_6^0| , \tag{7}$$

K_6^0 ... Anisotropiekonstante.

Die Temperaturabhängigkeit beträgt

$$K_6^0(T) = K_6^0(0) I_{13/2}(L^{-1}(m)) , \tag{8}$$

($K_6^0(0) = -7,6 \cdot 10^6$ erg/cm³ [19]).

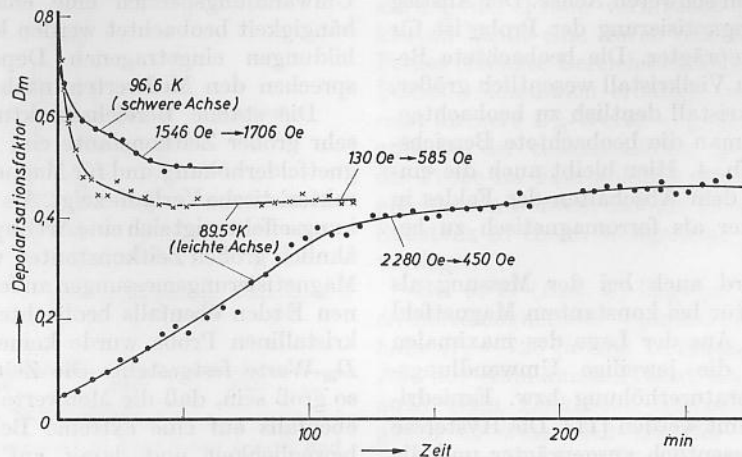


Abb. 6. Charakteristische Zeitabhängigkeit der Depolarisationswerte im Übergangsbereich

Ist nun der Druck τ_i in verschiedenen Bereichen unterschiedlich, so ergibt sich eine lokal unterschiedliche Curie-Temperatur, was einer Verschmierung des Überganges entspricht [17]. Es liegt nun die Vermutung nahe, daß der durch die Gitteränderung verursachte Druck als Funktion der Zeit langsam abgebaut wird, wodurch die beobachteten Nachwirkungseffekte (Superviskosität) an den Umwandlungspunkten aus einer Kopplung des magnetischen Systems und des Gitters über die Magnetostraktion erklärt werden könnten. Auch die in der Umgebung des Curie-Punktes beobachtete starke Absorption von Ultraschall [20] stützt diese Erklärung, falls diese Absorption auf Effekte zurückgeführt werden kann, welche einen Abbau der entstandenen Spannungen bzw. Drücke bewirken.

Die Autoren danken Herrn Professor Dr. Gustav Ortner für zahlreiche nützliche Diskussionen.

Literatur: [1] Halpern, O., Holstein, T.: Phys. Rev. **59**, 960 (1941). — [2] Behrendt, D.R., Legvold, S., Spedding, F.H.: Phys. Rev. **109**, 1544 (1958). — [3] Finkel', V.A., Vorob'ev,

V.V.: Sov. Phys. JETP **24**, 524 (1967). — [4] Clark, A.E., de Savage, B.F., Bozorth, R.: Phys. Rev. **138**, A 216 (1965). — [5] Rosen, M., Klimker, H.: Phys. Rev. B **1**, 3748 (1970). — [6] Enz, U.: J. Appl. Phys. **32**, 22 S (1961). — [7] Elliott, R.J.: Phys. Rev. **124**, 346 (1961). — [8] Milton, J.E., Scott, T.A.: Phys. Rev. **160**, 2, 387 (1967). — [9] Rauch, H., Löffler, E.: Z. f. Phys. **210**, 265 (1968). — [10] Löffler, E., Rauch, H.: J. Phys. Chem. Solids **30**, 2175 (1969). — [11] Drabkin, G.I., Zabidarov, E.I., Kasman, Ya.A., Okorokov, A.I.: Zhur. Eksp. i. Theor. Fiz. **56**, 478 (1969). — [12] Belov, K.P., Nikitin, S.A., Gurtovoi, K.G.: Sov. Phys. JETP **28**, 84 (1969). — [13] Néel, L.: J. Phys. rad. **11**, 49 (1950). — [14] Pfrenger, E.: Z. f. angew. Phys. **23**, 25 (1967). — [15] Pfrenger, E., Stierstadt, K.: Z. f. angew. Phys. **23**, 20 (1967). — [16] Essl, D., Linhart, T., Mayer, H., Stierstadt, K.: Phys. Lett. **33** A, 407 (1970). — [17] Nikitin, S.A.: Fiz. metal metalloved **15**, 2, 187 (1963). — [18] Callen, E., Callen, H.B.: Phys. Rev. **139** A 455 (1965). — [19] Rhyne, J.J., Clark, A.E.: J. Appl. Phys. **38**, 1379 (1967). — [20] Lee, M.C., Levy, M.: Phys. Lett. **32** A, 88 (1970).

Doz. Dipl.-Ing. Dr. Helmut Rauch

Dr. Erwin Seidl

Anton Zeilinger

Atominstiut der Österreichischen Hochschulen

A - 1020 Wien, Österreich