

## МОДЕЛЬ КОЛОССАЛЬНОЙ МАГНИТОСТРИКЦИИ В МАРТЕНСИТНОЙ ФАЗЕ СПЛАВОВ Ni–Mn–Ga

**В. Д. Бучельников\***, **В. С. Романов**

*Челябинский государственный университет  
454021, Челябинск, Россия*

**А. Н. Васильев\*\***

*Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова  
119899, Москва, Россия*

**Т. Такаги\*\*\***

*Institute of Fluid Science, Tohoku University  
980-8577, Sendai, Japan*

**В. Г. Шаєров\*\*\*\***

*Институт радиотехники и электроники Российской академии наук  
101999, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 3 мая 2001 г.

Предложена модель, описывающая экспериментально наблюдаемую мартенситную и магнитную доменные структуры ферромагнитных сплавов Гейслера  $Ni_{2+x}Mn_{1-x}Ga$ . На основании модели численно рассчитаны полевые зависимости намагниченности и деформации сплавов и получено выражение для максимально достижимых величин деформаций, наводимых в этих сплавах внешним магнитным полем. Показано, что при малых значениях эффективного модуля упругости и размагничивающего фактора сплавов наводимые магнитным полем деформации могут достигать максимально возможных значений приблизительно в 5%, определяемых искажениями решетки при мартенситном переходе, в полях около 1 кЭ.

PACS: 75.10.-b, 75-50.-y

В последнее время появились работы, посвященные экспериментальному наблюдению структурных и магнитных доменов в мартенситной фазе ферромагнитных сплавов Гейслера  $Ni_{2+x}Mn_{1-x}Ga$ . С помощью микрофотографии [1] и метода магнитной силовой микроскопии [2] исследовались структурные и магнитные домены в монокристаллах  $Ni_{2+x}Mn_{1-x}Ga$  и их поведение во внешнем магнитном поле при различных его ориентациях относительно кристаллографических осей. Экспериментально также измерялись деформации, наводи-

мые магнитным полем в поли- и монокристаллах  $Ni_{2+x}Mn_{1-x}Ga$  [3–5]. Оказалось, что в полях  $\leq 10$  кЭ эти деформации могут достигать рекордных значений в несколько процентов (этот эффект можно назвать эффектом колоссальной магнитострикции). Из экспериментальных результатов также следует, что не только структурные, но и магнитные домены играют важную роль в эффекте колоссальной магнитострикции в сплавах  $Ni_{2+x}Mn_{1-x}Ga$ .

Теоретически влияние магнитного поля на структурные и магнитные домены в  $Ni_{2+x}Mn_{1-x}Ga$  было исследовано в работе [6], однако в ней не рассматривалась конкретная, наблюдаемая в экспериментах доменная структура, а также не была последовательно вычислена энергия ферромагнетика.

\*E-mail: buche@cgu.chel.su

\*\*E-mail: vasil@lt.phys.msu.su

\*\*\*T. Takagi

\*\*\*\*E-mail: shavrov@mail.cplire.ru

В настоящей работе на основе результатов экспериментальных исследований [1, 2], теоретического анализа фазовой диаграммы сплавов  $Ni_{2+x}Mn_{1-x}Ga$  [6] и термодинамической теории доменов [7] рассмотрена модель самосогласованной структуры мартенситных и магнитных доменов, изучено ее поведение в магнитном поле и вычислены деформации, наводимые полем в этих сплавах.

С переходом из высокотемпературной кубической в низкотемпературную тетрагональную модификацию монокристалл  $Ni_{2+x}Mn_{1-x}Ga$  разбивается на три типа мартенситных доменов, каждый из которых отвечает деформации (сжатию или растяжению) кристаллической решетки вдоль направлений типа [100] [8]. В ферромагнитном кристалле структурные домены разбиваются, в свою очередь, на магнитные. Направление намагниченности в каждом магнитном домене совпадает с главной кристаллографической осью структурного домена. Из анализа экспериментальных результатов [1, 2] следует, что в качестве модели мартенситной и магнитной доменных структур в  $Ni_{2+x}Mn_{1-x}Ga$  можно выбрать модель, которая схематически изображена на рис. 1. Древоподобной структурой магнитных доменов, образующейся на границах структурных и магнитных доменов, которая наблюдалась в [2], пренебрегается в силу малости объема этих доменов.

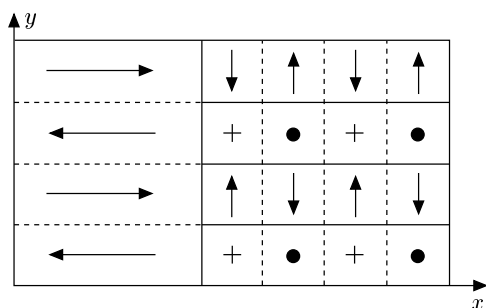


Рис. 1. Модель мартенситной и магнитной доменных структур сплава  $Ni_{2+x}Mn_{1-x}Ga$ . Сплошные линии — доменные границы между структурными доменами, штриховые линии — доменные границы между магнитными доменами. Стрелками обозначены направления векторов намагниченности в магнитных доменах, знаки + и • отвечают направлению намагниченности в магнитных доменах перпендикулярно плоскости образца, оси координат  $x$  и  $y$  совпадают с кристаллографическими осями [100] и [010], ось  $z$  ([001]) направлена перпендикулярно плоскости рисунка

Пусть для определенности в структурном домене первого типа (рис. 1) тетрагональная ось направлена вдоль оси  $x$ . В доменах второго и третьего типов тетрагональные оси направлены вдоль осей соответственно  $y$  и  $z$ . Предположим также, что каждый из структурных доменов разбивается на 180-градусные магнитные домены.

Исследуем влияние внешнего магнитного поля, направленного вдоль оси  $x$ , на представленную на рис. 1 доменную структуру. В отсутствие магнитного поля все структурные домены имеют одну и ту же энергию и, соответственно, объемы, занимаемые каждым типом доменов, равны. Включение магнитного поля приводит к тому, что объем доменов первого типа увеличивается за счет доменов второго и третьего типов, которые из-за симметрии модели ведут себя одинаково по отношению к полю. Объемные доли доменов разных типов при наличии поля запишем в следующем виде:

$$f_1 = \frac{1}{3} + \alpha, \quad f_{2,3} = \frac{2}{3} - \alpha, \quad (1)$$

где  $f_1$  — объемная доля доменов первого типа,  $f_{2,3}$  — объемная доля доменов второго и третьего типов,  $\alpha$  — параметр, учитывающий изменение объемов доменов при наличии магнитного поля.

Как следует из фазовой диаграммы кубического ферромагнетика, в отсутствие магнитного поля при изменении температуры он может перейти в тетрагональные фазы с намагниченностями вдоль осей типа {001} [7]. Например, в фазе с  $m_z = 1$ , т.е.  $M \parallel [001]$  ( $m$  — единичный вектор вдоль вектора намагниченности  $M$ ), тензор спонтанных деформаций имеет вид

$$e_{ik} = \begin{vmatrix} e_{xx} & 0 & 0 \\ 0 & e_{xx} & 0 \\ 0 & 0 & e_{zz} \end{vmatrix}, \quad (2)$$

где

$$e_{xx} = -\frac{B_1}{3(c_{11} + 2c_{12})} - \frac{e_0}{\sqrt{6}},$$

$$e_{zz} = -\frac{B_1}{3(c_{11} + 2c_{12})} + \frac{2e_0}{\sqrt{6}},$$

а переменная  $e_0$  находится из уравнения

$$ae_0 + be_0^2 + ce_0^3 + \frac{2B_2}{\sqrt{6}} = 0,$$

$a$ ,  $b$  и  $c$  — линейные комбинации компонент модулей упругости соответственно второго ( $c_{ik}$ ), третьего и четвертого порядков,  $B_i$  — постоянные магнитоэлектрические. В остальных двух фазах с намагниченностями вдоль осей [100] и [010] тензор спонтанных

деформаций получается из (2) циклической перестановкой индексов. Таким образом, в ферромагнетике могут осуществляться три тетрагональные фазы с одинаковыми энергиями, и, как следствие, в кристалле возможны три типа структурных доменов. Первые слагаемые в выражениях для  $e_{ik}$  описывают изменение деформаций за счет объемной магнитоэлектрики. По сравнению с эффектами, связанными со структурными искажениями решетки, ими можно пренебречь.

Подстановка (2) в формулу полной энергии для кубического ферромагнетика [6] приводит к следующему выражению для энергии каждого типа доменов в собственной кристаллографической системе координат:

$$F = \frac{1}{2}ae_0^2 + \frac{1}{3}be_0^3 + \frac{1}{4}ce_0^4 + Km_z^2 + K_1(m_x^2m_y^2 + m_y^2m_z^2 + m_z^2m_x^2) - \mathbf{H} \cdot \mathbf{M}, \quad (3)$$

где  $K = \sqrt{6}B_2e_0/2$  — наведенная магнитоэлектрикой одноосная анизотропия,  $K_1$  — первая константа кубической анизотропии,  $\mathbf{H}$  — внутреннее магнитное поле. Измерения магнитной анизотропии сплавов  $\text{Ni}_{2+x}\text{Mn}_{1-x}\text{Ga}$  показали [4], что одноосная анизотропия намного больше кубической, поэтому в дальнейших расчетах последняя во внимание не принимается.

Запишем энергию рассматриваемой доменной структуры (рис. 1) в виде

$$F = F_e + F_m + F_Z, \quad (4)$$

где  $F_e$  — энергия упругой подсистемы,  $F_m$  — энергия магнитной подсистемы,  $F_Z$  — энергия Зеемана.

Энергию упругой подсистемы представим в виде

$$F_e = \frac{1}{2}\tilde{C}_{11} (\langle e_{xx} \rangle^2 + \langle e_{yy} \rangle^2 + \langle e_{zz} \rangle^2) + \tilde{C}_{12} (\langle e_{xx} \rangle \langle e_{yy} \rangle + \langle e_{xx} \rangle \langle e_{zz} \rangle + \langle e_{zz} \rangle \langle e_{yy} \rangle), \quad (5)$$

где угловые скобки означают усреднение по объему,  $\tilde{C}_{ijkl}$  — тензор эффективных модулей упругости сплава  $\text{Ni}_{2+x}\text{Mn}_{1-x}\text{Ga}$  с рассматриваемой доменной структурой [8]. Из представленной на рис. 1 модели доменной структуры с учетом (1) следует, что средние значения компонент тензора деформаций сплава могут быть записаны как

$$\langle e_{ij} \rangle = \left( \frac{1}{3} + \alpha \right) e_{ij}^{(1)} + \left( \frac{2}{3} - \alpha \right) \left( \frac{1}{2}e_{ij}^{(2)} + \frac{1}{2}e_{ij}^{(3)} \right), \quad (6)$$

где  $e_{ij}^{(k)}$  — тензор деформаций доменов  $k$ -го типа, определяемый формулой (2). Подстановка этих деформаций в (6) приводит в результате к тому, что

средний по объему образца (рис. 1) тензор деформаций примет вид

$$\langle e_{ij} \rangle = \frac{\sqrt{6}}{4} \begin{pmatrix} 2e_0\alpha & 0 & 0 \\ 0 & -e_0\alpha & 0 \\ 0 & 0 & -e_0\alpha \end{pmatrix}. \quad (7)$$

Отметим, что при записи усредненного тензора деформаций пренебрегалось объемной магнитоэлектрикой. После подстановки (7) в (5) получим следующее выражение для упругой энергии рассматриваемой доменной структуры:

$$F_e = \frac{9}{8}\tilde{C}e_0^2\alpha^2, \quad (8)$$

где  $\tilde{C} = \tilde{C}_{11} - \tilde{C}_{12}$ .

При выбранном направлении внешнего магнитного поля намагниченность в доменах первого типа направлена вдоль или против поля, а в доменах второго и третьего типов — перпендикулярно полю. В связи с этим в доменах первого типа при намагничивании возможны лишь процессы смещения доменных границ, а в доменах второго и третьего типов могут происходить лишь процессы вращения намагниченности. В этом случае энергия анизотропии и энергия Зеемана могут быть записаны как

$$F_m = \left( \frac{2}{3} - \alpha \right) K \cos^2 \psi, \quad F_Z = -H \langle M_x \rangle, \quad (9)$$

где проекция вектора намагниченности на направление магнитного поля имеет вид

$$\langle M_x \rangle = \left( \frac{1}{3} + \alpha \right) M^{(1)} + \left( \frac{2}{3} - \alpha \right) M_0 \cos \psi, \quad (10)$$

а внутреннее магнитное поле  $H = H_0 - 4\pi N \langle M_x \rangle$ ,  $H_0$  — внешнее магнитное поле,  $N$  — размагничивающий фактор,  $\psi$  — угол между направлениями векторов намагниченности и магнитного поля в доменах второго и третьего типов,  $M^{(1)}$  — средняя намагниченность в доменах первого типа. Она может быть представлена формулой

$$M^{(1)} = \begin{cases} H_0 M_0 / H_c, & H_0 < H_c, \\ M_0, & H_0 > H_c, \end{cases} \quad (11)$$

где феноменологический параметр  $H_c$  отвечает полю, в котором завершаются процессы смещения магнитных доменных границ в мартенситных доменах первого типа.

Подставляя (8) и (9) в (4), получим следующее выражение для энергии показанной на рис. 1 доменной структуры:

$$F = \frac{9}{8} \tilde{C} e_0^2 \alpha^2 + \left( \frac{2}{3} - \alpha \right) K \cos^2 \psi - H \left[ \left( \frac{1}{3} + \alpha \right) M^{(1)} + \left( \frac{2}{3} - \alpha \right) M_0 \cos \psi \right]. \quad (12)$$

Равновесные значения параметров  $\alpha$  и  $\psi$  рассматриваемой доменной структуры можно найти, минимизируя выражение (12) по этим переменным. В результате получаются следующие уравнения для определения  $\alpha$  и  $\psi$ :

$$\begin{aligned} & 32\pi N K M_0^2 \cos^3 \psi - 96\pi N K M_0 M^{(1)} \cos^2 \psi + \\ & + \left[ 6\tilde{C} e_0^2 (8\pi N M_0^2 + 3K) + 64\pi N K M^{(1)2} \right] \cos \psi - \\ & - 3\tilde{C} e_0^2 M_0 (3H_0 - 8\pi N M^{(1)}) = 0, \\ \alpha = & -\frac{4}{3} \left[ \left( M^{(1)} - M_0 \cos \psi \right) \times \right. \\ & \times \left( 16\pi N M_0 \cos \psi - 3H_0 + 8\pi N M^{(1)} \right) - \\ & \left. - 3K \cos^2 \psi \right] \times \\ & \times \left[ 9\tilde{C} e_0^2 + 32\pi N \left( M^{(1)} - M_0 \cos \psi \right)^2 \right]^{-1}. \end{aligned} \quad (13)$$

Подставляя решения уравнений (13) в выражения для тензора деформаций (7) и намагниченности (10), можно получить зависимость этих характеристик сплава  $\text{Ni}_{2+x}\text{Mn}_{1-x}\text{Ga}$  от величины внешнего магнитного поля. Результаты численного расчета полевых зависимостей намагниченности, параметра  $\alpha$  и деформации  $\langle e_{xx} \rangle$  при разных значениях эффективного модуля упругости  $\tilde{C}$  и размагничивающего фактора  $N$  представлены на рис. 2 и 3. Для расчета были использованы следующие значения параметров сплава  $\text{Ni}_{2+x}\text{Mn}_{1-x}\text{Ga}$  [3, 4]:

$$x \approx 0, \quad M_0 = 500 \text{ Э}, \quad e_0 = 0.06,$$

$$K = 2 \cdot 10^6 \text{ эрг/см}^3.$$

На рис. 2 данные получены при  $N = 0.02$ ,  $H_c = 2000$  кЭ, а на рис. 3 — при  $N = 0.5$ ,  $H_c = 2500$  кЭ. В расчетах также учитывалось то, что при достижении значения  $\alpha = 2/3$  сплав становится монодоменным, при этом деформация  $\langle e_{xx} \rangle \approx 0.06$ , что определяется соотношением параметров кристаллической

ячейки в тетрагональной фазе,  $c/a = 0.94$ . Дальнейшей деформации сплава под действием магнитного поля не происходит.

В полях  $H_0 \sim H_c$  и  $H_0 \sim H_1 = H_a + 8\pi N \langle M_x \rangle$ , где  $H_a = 2K/M_0$ , на полевых зависимостях  $\langle M_x \rangle$ ,  $\alpha$  и  $\langle e_{xx} \rangle$  имеются изломы. Это объясняется следующим. При  $H_0 < H_c$  рост намагниченности происходит как за счет смещения магнитных доменных границ в структурных доменах первого типа, так и за счет вращения векторов намагниченностей в структурных доменах второго и третьего типов. При  $H_0 = H_c$  магнитные домены в структурных доменах первого типа полностью исчезают, и дальнейший рост намагниченности в полях  $H_c < H_0 < H_1$  обусловлен только вращением намагниченности в структурных доменах второго и третьего типов. В поле  $H_0 = H_1$  векторы  $\mathbf{M}$  в структурных доменах второго и третьего типов полностью переориентируются на направление внешнего поля, при этом намагниченность образца достигает насыщения.

Из рис. 2 и 3 следует, что под действием внешнего поля одновременно с перестройкой магнитных доменов перестраиваются и структурные домены. С увеличением магнитного поля структурные домены первого типа растут. При  $H_0 > H_1$ , когда намагниченность в структурных доменах одинакова, энергии Зеемана в них также сравниваются. Поскольку именно за счет увеличения энергии Зеемана происходит движение структурных доменных границ под действием магнитного поля, то при  $H_0 > H_1$  дальнейший рост структурных доменов первого типа за счет доменов второго и третьего типов становится невозможным.

Предельное значение величины объемной доли  $\alpha$ , которое может быть достигнуто при насыщении намагниченности, составляет

$$\alpha_{max} = \frac{2M_0 H_a}{9\tilde{C} e_0^2}, \quad (14)$$

а соответствующее ей значение деформации  $\langle e_{xx} \rangle$ , вызываемой магнитным полем, выражается формулой

$$\langle e_{xx} \rangle_{max} = \frac{\sqrt{6} M_0 H_a}{9\tilde{C} e_0^2}. \quad (15)$$

Из рис. 2 и 3 видно, что при больших значениях эффективного модуля упругости  $\tilde{C}$  значения  $\alpha_{max}$  и  $\langle e_{xx} \rangle_{max}$  меньше максимальных значений, определяемых изменением решетки. Из (14) и (15) следует, что для достижения максимальных деформаций, индуцируемых магнитным полем в сплавах  $\text{Ni}_{2+x}\text{Mn}_{1-x}\text{Ga}$ , необходимо, чтобы упругая энергия

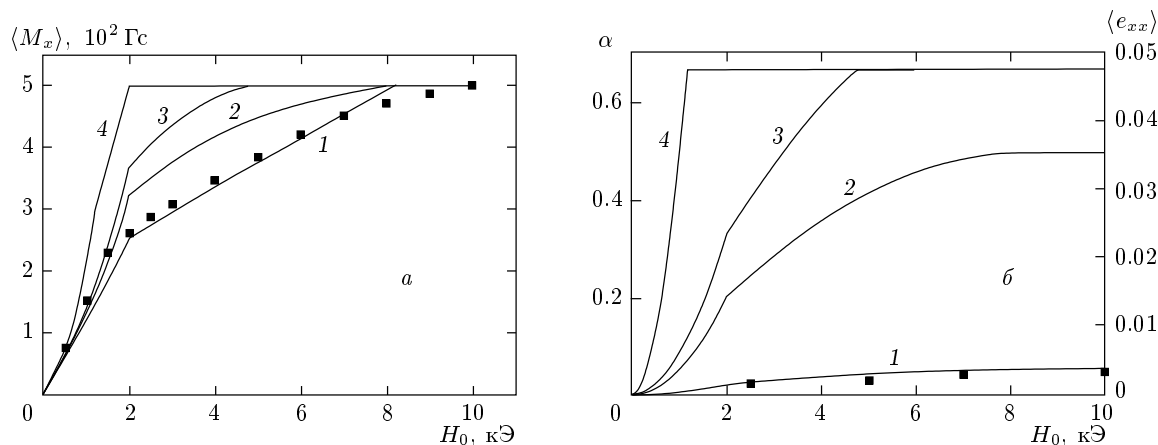


Рис. 2. Полевые зависимости намагниченности (а), объемной доли и наведенных деформаций (б) при  $N = 0.02$ ,  $H_c = 2000$  кЭ для различных значений эффективного модуля упругости  $\tilde{C}$  (в эрг/см<sup>3</sup>): 1 —  $5 \cdot 10^9$ , 2 —  $5 \cdot 10^8$ , 3 —  $3 \cdot 10^8$ , 4 —  $5 \cdot 10^7$ ; точки — экспериментальные результаты работы [3]

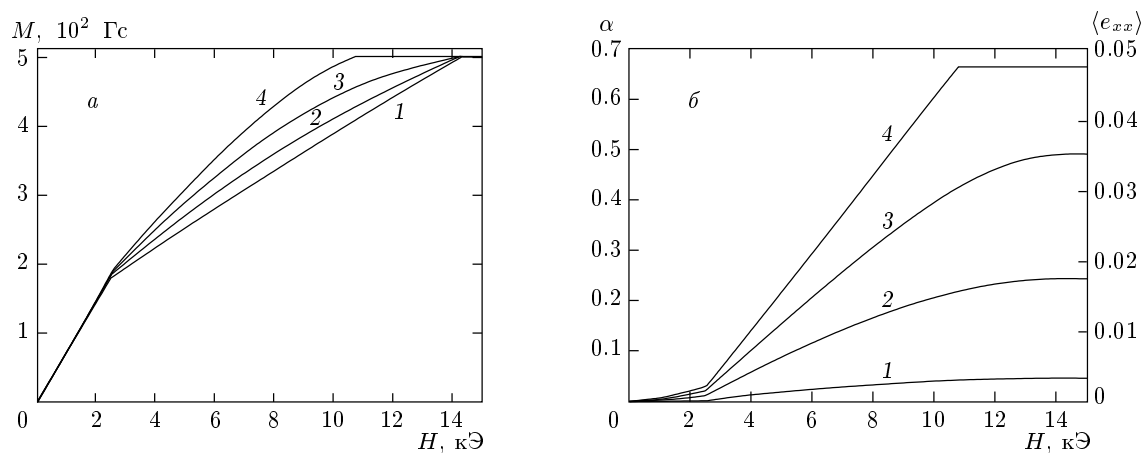


Рис. 3. Полевые зависимости намагниченности (а), объемной доли и наведенных деформаций (б) при  $N = 0.5$ ,  $H_c = 2500$  кЭ для различных значений эффективного модуля упругости  $\tilde{C}$  (в эрг/см<sup>3</sup>): 1 —  $5 \cdot 10^9$ , 2 —  $1 \cdot 10^9$ , 3 —  $5 \cdot 10^8$ , 4 —  $3 \cdot 10^8$

была порядка энергии анизотропии. Это достигается при малых значениях упругого модуля вблизи точки мартенситного превращения.

Отметим, что рис. 2 соответствует случаю намагничивания образца в эксперименте в плоскости пластины, а рис. 3 — перпендикулярно плоскости пластины. Из сравнения рис. 2 и 3 видно, что имеется сильная анизотропия формы эффекта колоссальной магнитострикции сплавов  $\text{Ni}_{2+x}\text{Mn}_{1-x}\text{Ga}$ : максимальная деформация образца при намагничивании в плоскости пластины достигается в значительно меньших магнитных полях, чем при намагничивании перпендикулярно плоскости пластины. Этот результат, а также результаты рассчитанных поле-

вых зависимостей намагниченности и деформации при  $N = 0.02$ ,  $H_c = 2000$  кЭ,  $\tilde{C} = 5 \cdot 10^9$  эрг/см<sup>3</sup> (рис. 2) находятся в хорошем согласии с экспериментальными данными [3–5].

Таким образом, в настоящей работе рассмотрена термодинамическая модель, описывающая структурные и магнитные домены в ферромагнитных сплавах Гейслера  $\text{Ni}_{2+x}\text{Mn}_{1-x}\text{Ga}$ . На основании данной модели рассчитаны полевые зависимости намагниченности и деформации сплавов и получено выражение для максимально достижимых величин деформаций, наводимых в этих сплавах внешним магнитным полем.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (проект 99-02-18247) и Министерства образования РФ (проект Е00-3.4-536).

### ЛИТЕРАТУРА

1. H. D. Chopra, Ch. Ji, and V. V. Kokorin, *Phys. Rev. B* **61**, 14913 (2000).
2. Q. Pan and R. D. James, *J. Appl. Phys.* **87**, 4702 (2000).
3. G. H. Wu, C. H. Yu, L. Q. Meng et al., *Appl. Phys. Lett.* **75**, 2990 (1999).
4. R. Tickle and R. D. James, *J. Magn. Magn. Mat.* **195**, 627 (1999).
5. S. J. Murray, M. Marioni, S. M. Allen et al., *Appl. Phys. Lett.* **77**, 886 (2000).
6. R. C. O'Handley, *J. Appl. Phys.* **83**, 3263 (1998).
7. V. D. Buchelnikov, V. S. Romanov, and A. T. Zayak, *J. Magn. Magn. Mat.* **191**, 203 (1999).
8. А. Л. Ройтбурд, *УФН* **113**, 69 (1974).