УДК 537.311.3:537.6:54.16 DOI: https://doi.org/10.59251/2181-1296.2023.v4.139.1.2110

ЭЛЕКТРИЧЕСКИЕ, ГАЛЬВАНОМАГНИТНЫЕ И МАГНИТНЫЕ СВОЙСТВ В АМОРФНЫХ СПЛАВАХ НА ОСНОВЕ ПЕРЕХОДНЫХ МЕТАЛЛОВ

О.Кувандиков, И.Субханкулов, Р.М.Ражабов, Ш.А.Хомитов, Г.С.Бакаев
Самаркандский государственный университет имине Шароф Рашидова институт Инженерной физики
E-mail: sherxomitov@gmail.com

Аннотация. В настоящей работе изучены физические свойства, такие как температурные зависимости удельного электросопротивления ρ, коэффициента термо-ЭДС S, аномального коэффициента Холла R_S, намагниченности насыщения I_S и кривой дифференциального термического анализа (ДТА) сплавов $Co_{59,64}Fe_{5,78}Ni_{23,8}Si_{8,23}B_{2,5}$ и $Co_{71,67}Fe_{5,7}Ni_{11,9}Si_{8,23}B_{2,5}$. Для объяснения характера изменения физических свойств дополнительно изучались структурные превращения, протекающие в сплаве при его нагреве с постоянной скоростью и при изотермическом отжиге.

Ключевые слова: сопротивление, термический коэффициент сопротивления (ТКС), коэффициент термо-ЭДС, аномальный коэффициент Холла, насыщение намагниченности, кривая дифференциального термического анализа (ДТА), кристаллизация, точка Кюри.

O‘tkinchi metallar asosidagi amorf qotishmalarning elektr, galvanomagnit va magnit xossalari

Annotatsiya. Bu ishda temir guruhi elementlari asosidagi $Co_{59,64}Fe_{5,78}Ni_{23,8}Si_{8,23}B_{2,5}$ va $Co_{71,67}Fe_{5,7}Ni_{11,9}Si_{8,23}B_{2,5}$ amorf qotishmalarning elektr qarshiligining haroratga bog'liqligi ρ, termo-EYuK koeffitsienti S, anomal Xoll koeffitsienti R_S , to'yinish magnitlanishi I_S hamda differentsial termal tahlil egri chizig'i (DTT) kabi xususiyatlari o'rganildi. O’rganilgan qotishmalarning fizik xususiyatlaridagi o'zgarishining mohiyatini tushuntirish uchun, qotishma doimiy tezlikda qizdirilganda va izotermik tavlanish paytida sodir bo'ladigan strukturaviy o'zgarishlarni qo'shimcha ravishda o'rganib chiqildi.

Kalit so‘zlar: elektr qarshiligi, qarshilikning terperatura koeffitsienti (QTK), termo-EYuK koeffitsienti, anomal Xoll koeffitsienti, to’yinish magnitlanishi, differentsial termik tahlil (DTT) egri chizig'i, kristallanish, Kyuri nuqtasi.

Electrical, galvanomagnetic and magnetic properties in amorphous alloys based on transition metals

Abstract. In this work, we studied the structural features of a number of alloys based on metals of the iron group in an amorphous state in order to establish differences in their structures with changing temperature and composition of the alloys. We also studied physical such properties as the temperature dependences of the electrical resistivity ρ, the coefficient of thermo-EMF S, the anomalous Hall coefficient R_S, the saturation magnetization I_S, and the differential thermal analysis curve (DTA) of $Co_{59,64}Fe_{5,78}Ni_{23,8}Si_{8,23}B_{2,5}$ and $Co_{71,67}Fe_{5,7}Ni_{11,9}Si_{8,23}B_{2,5}$ alloys. To explain the nature of the change in physical properties, we additionally studied structural transformations that occur in the alloy when it is heated at a constant rate and during isothermal annealing.

Keywords: electrical resistivity, thermo-EMF coefficient, anomalous Hall coefficient, saturation of magnetization, differential thermal analysis (DTA) curve, crystallization, Curie point.

В работе приводятся результаты комплексного исследования электрических, термоэлектрических, гальваномагнитных и магнитных характеристик в широком интервале температур и концентраций для выявления процесса кристаллизации высококобальтовых аморфных сплавов системы $Co_{59,64}Fe_{5,78}Ni_{23,8}Si_{8,23}B_{2,5}$ и $Co_{71,67}Fe_{5,7}Ni_{11,9}Si_{8,23}B_{2,5}$, а также влияния кристаллизации на электрические, гальваномагнитные и магнитные свойства.

Показана взаимосвязь аномального коэффициента Холла с намагниченности насыщения и удельным электросопротивлением.

Удельное электросопротивление и коэффициент термо-ЭДС измерялись контактным методом. Для исследования эффекта Холла аморфных сплавов и исходных кристаллических

сплавов использовался метод переменного тока и переменного магнитного поля разных частот (70 Гц и 50 Гц, соответственно), намагниченности насыщения измерено на вибрационном магнитометре[1,2].

ФИЗИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА АМОРФНЫХ СПЛАВОВ

Температурные зависимости удельного электросопротивления ρ, коэффициента термо-ЭДС *S*, коэффициента Холла R_S, намагниченности насыщения I_S и кривой ДТА сплава $Co_{59,64}Fe_{5,78}Ni_{23,8}Si_{8,23}B_{2,5}$ приведены на рис.1.

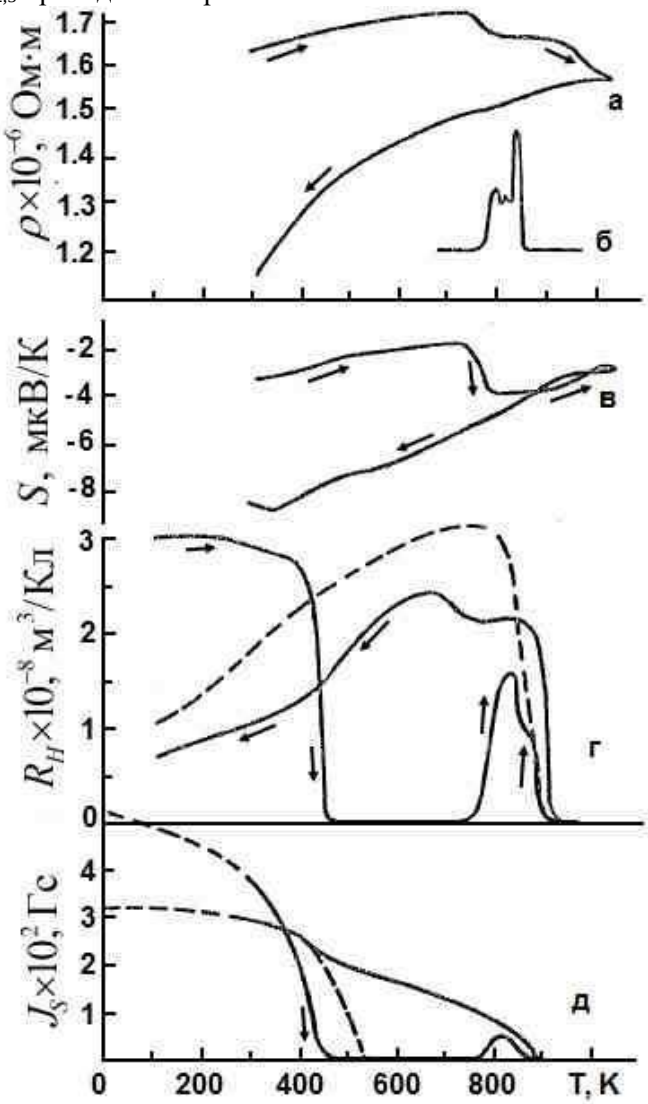

Рис. 1. *Температурные зависимости удельного электросопротивления ρ (а), ДТА (б), коэффициента термо-ЭДС S (в), коэффициента Холла R_H (г), намагниченности насыщения I_S (г) сплава $Co_{59,64}Fe_{5,78}Ni_{23,8}Si_{8,23}B_{2,5}$*

Характерной особенностью сплава $Co_{59,64}Fe_{5,78}Ni_{23,8}Si_{8,23}B_{2,5}$ является высокое удельное электросопротивление, малый термический коэффициент сопротивления (ТКС), который в интервале 300-630 К составляет $\frac{\partial\rho}{\partial T} = 2{,}27\cdot10^{-10}$ Ом·м/К. В интервале 630-740 К ρ практически не меняется. При Т=750 К знак ТКС меняется, а в интервале температур 800-900 К значение ρ остается постоянным и равно $\rho=1{,}65\cdot10^{-6}$ Ом·м. В интервале 900-1050 К наблюдается еще большее уменьшение ρ от $\rho=1{,}65\cdot10^{-6}$ Ом·м до минимального значения $\rho=1{,}56\cdot10^{-6}$ Ом·м при Т=1050 К.

Охлаждение закристаллизованного образца приводит к уменьшению ρ по линейно-параболическому закону в интервале температур 1050-450К, а в интервале 450-300 К – по

линейному закону с ТКС $\frac{\partial\rho}{\partial T}=12{,}6\cdot10^{-10}$ Ом·м/К. Методом ДТА была определена температура кристаллизации. При непрерывном нагреве со скоростью 20 К/мин обнаружены три области тепловыделения, которые соответствуют 800-820-840 К для сплава $Co_{59,64}Fe_{5,78}Ni_{23,8}Si_{8,23}B_{2,5}$. Коэффициент термо-ЭДС *S* аморфного состояния принимает значения от 2,0 мкВ/К до 4,0 мкВ/К, а закристаллизованного образца - от 3,0 мкВ/К до 9,0 мкВ/К. *S(T)* закристаллизованного образца проходит через минимум при *T*=350 К.

Коэффициент Холла R_S в интервале 100-250 К не зависит от температуры, имеет положительный знак и равен $3{,}0\cdot10^{-8}$ м^3/Кл. Дальнейший рост температуры приводит к монотонному уменьшению значения R_S, которое при 450 К падает до нуля. Затем увеличение температуры не меняет нулевого значения R_S вплоть до 750 К. Дальнейшее повышение температуры приводит сначала к росту R_S до значения $1{,}6\cdot10^{-8}$ м^3/Кл при Т=830 К, а затем снова к ступенчатому уменьшению до нуля при 1000 К. Охлаждение закристаллизованного образца вначале приводит к росту R_S с максимальными значениями при 840 К и 670 К, равными $2{,}2\cdot10^{-8}$ м^3/Кл и $2{,}45\cdot10^{-8}$ м^3/К, соответственно, а затем к уменьшению до $R_S=0.7\cdot10^{-8}$ м^3/Кл при *T*=100 К. При температуре, равной *T*=430 К, наклон кривой $R_S=f(T)$ меняется, т.е. в интервале 650-430 К $\frac{\partial R_S}{\partial T}=5.0\cdot10^{-11}$ м^3/Кл·К, а в интервале 430-100 К $\frac{\partial R_S}{\partial T}=1.8\cdot10^{-11}$ м^3/Кл·К (рис.1).

Зависимость $R_S=f(T)$ отдельно взятого исходного кристаллического образца (пунктирная линия) близка к $R_S=f(T)$ закристаллизованного образца, но с той лишь разницей, что она является более гладкой.

Температурная зависимость намагниченности насыщения $I_S=f(T)$ сплава $Co_{59,64}Fe_{5,78}Ni_{23,8}Si_{8,23}B_{2,5}$ также имеет аномальный характер. Для аморфного состояния величина I_S уменьшается от 398 Гс при 300 К до нуля при 480 К. При дальнейшем нагреве образца величина I_S растет, достигая максимального значения 55 Гс при 300 К. При этом на кривой $I_S=f(T)$ при 910 и 440 К наблюдаются перегибы.

Анализ кривых $R_S=f(T)$ и $I_S=f(T)$ показывает, что температура Кюри T_C аморфной и закристаллизованной фаз составляет 450 и 910 К, соответственно. Результаты исследований сплава $Co_{71,67}Fe_{5,7}Ni_{11,9}Si_{8,23}B_{2,5}$ (с меньшим содержанием Ni) приведены в следующей таблице:

Таблица 1.

Состав образца, состояние	**ρ·10^{-6} Ом·м**	**I_S, Гс**	**Тс, К, аморф**	**Тс, кристалл**
$Co_{59,64}Fe_{5,78}Ni_{23,8}Si_{8,23}B_{2,5}$	1,6	3,6	450	910
$Co_{71,67}Fe_{5,7}Ni_{11,9}Si_{8,23}B_{2,5}$	1,05	4,9	570	1000

Из таблицы видно, что уменьшение Ni и увеличение Co в сплаве уменьшает абсолютное значение ρ, увеличивает намагниченность и точки Кюри аморфной и кристаллической фазы.

Действительно, магнитные моменты, приходящиеся на атом Fe, Co и Ni соответственно равны 2,6; 1,6; и 0,6 $\mu_Б$, то при замещение Fe или Co атомами Ni, с уменьшением концентрации Ni в аморфных сплавах на основе Co- Fe удельное электросопротивление уменьшается, намагниченность и точка Кюри аморфных и кристаллических фаз увеличивается.

Известно, что в ферромагнетиках сопротивление Холла представляет собой сумму нормальной, пропорциональной магнитной индукции *B*, и аномальной, пропорциональной намагниченности I_S, частей.

При этом Холловское сопротивление имеет вид:

$$\rho_H=\frac{U_H d}{J}=R_0B+4\pi I_S R_S \qquad (1)$$

где *J* – ток через образец, *d* – толщина образца.

В области $T/T_C<1$ были измерены намагниченность и коэффициент Холла, за $B = 4\pi I_S$, отсюда $R_S = \frac{\rho_H}{4\pi I_S}$, где ρ_H - холловское сопротивление. Таким образом, используя температурные зависимости намагниченности насыщения $I_S(T)$ в области температур $T<T_C$, рассчитывалась температурная зависимость аномального коэффициента Холла $R_S(T)$.

Взаимосвязь между физическими свойствами

В работах [3,4] получено, что при рассеянии электронов проводимости на магнитных неоднородностях, в том числе и спиновых волнах, температурные зависимости R_S пропорциональны магнитному вкладу в полное сопротивление. В работах [5,6] показано, что температурная зависимость аномального коэффициента Холла не только зависит от рассеяния на спиновых волнах, но и от рассеяния электронов на фононах. Поэтому было проведено сравнение температурной зависимости R_S от I_S^2 и ρ. На рис 4. приведена зависимость аномального коэффициента Холла R_S от квадрата самопроизвольной намагниченности (верхний график) и связь между температурно-зависящей частью аномального коэффициента Холла $\Delta R_S/R_S$ и температурно-зависящей частью удельного электросопротивления $\Delta\rho/\rho$ (нижний график) сплава $Co_{59,64}Fe_{5,78}Ni_{23,8}Si_{8,23}B_{2,5}$ в аморфном и кристаллическом состояниях.

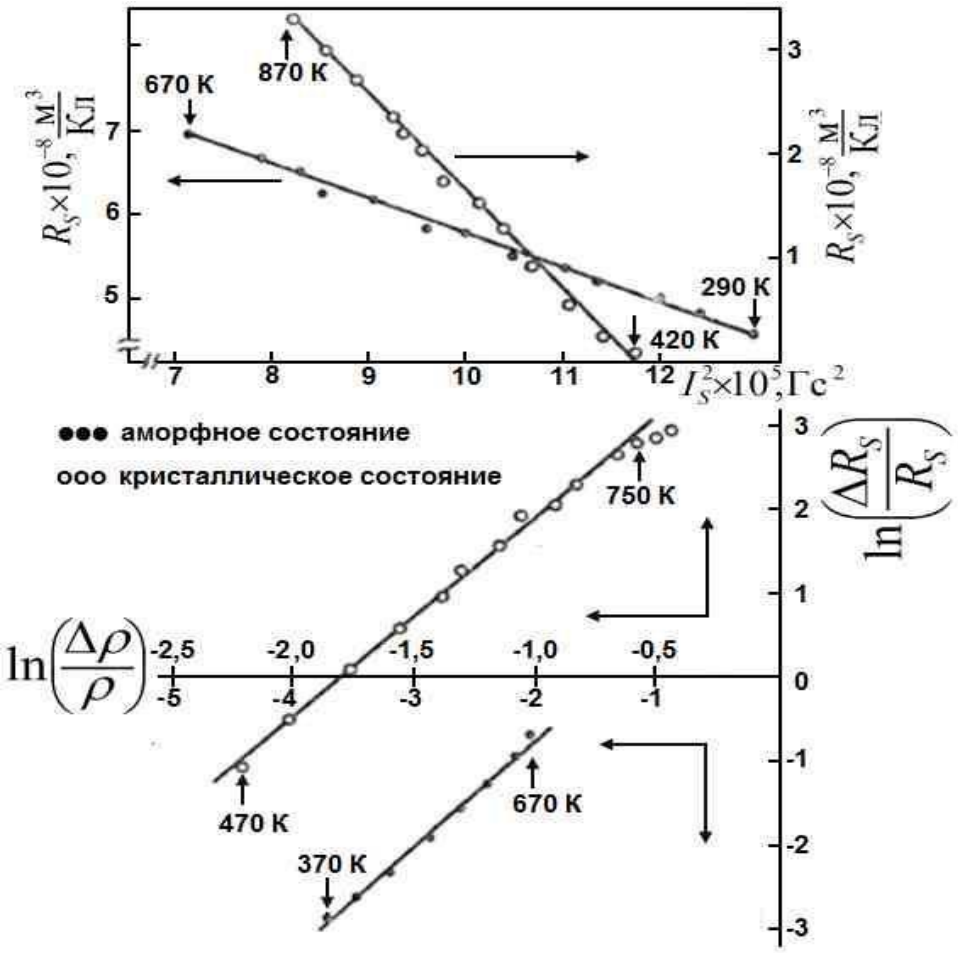

Рис 2. *Зависимость спонтанного коэффициента Холла R_S от квадрата самопроизвольной намагниченности I_S^2 (верхний график) и связь между аномальным коэффициентом Холла R_S и удельным электросопротивлением ρ (нижний график) сплава $Co_{59,64}Fe_{5,78}Ni_{23,8}Si_{8,23}B_{2,5}$ в аморфном (●●●) и кристаллическом (○○○) состояниях.*

Из графика следует, что в определённом интервале температур имеется линейная зависимость между R_S и квадратом самопроизвольной намагниченности, которая может быть представлена в виде:

$$\Delta R_S = R_S(T) - R_S(T_H) = \alpha\left[I_S^2(T_H) - I_S^2(T)\right] \quad (2)$$

где $R_S(T)$ – аномальный коэффициент Холла для сплава при определенной температуре ($T<T_C$) с соответственной намагниченностью $I_S(T)$. $R_S(T_H)$ - аномальный коэффициент Холла того же сплава при начальной (комнатной) температуре с намагниченностью $I_S(T_H)$. Уравнение (2) характеризует ферромагнитную долю аномального коэффициента Холла в определенном интервале температур, зависящую от намагниченности насыщения. В таблице 2 представлены рассчитанные с помощью уравнения (2) значения α (угол зависимости $R_S(T)$ и $I_S^2(T)$ для аморфного и кристаллического состояния).

Таблица 2.

Состав образца	**Аморфное состояние**		**Кристаллическое состояние**	
	Интервал температуры *T*, К	**α, 10^{-13} м^3/Кл·К**	**Интервал температуры *T*, К**	**α, 10^{-13} м^3/Кл·К**
$Co_{59,64}Fe_{5,78}Ni_{23,8}Si_{8,23}B_{2,5}$	100-300	2,09	100-500	15,02
$Co_{71,67}Fe_{5,7}Ni_{11,9}Si_{8,23}B_{2,5}$	100-300	9,00	100-600	16,5

Из таблицы 2 и рис.2. видно, что зависимость R_S от I_S^2 имеет линейный характер, но в аморфном состоянии R_S от I_S^2 зависит слабее, чем в кристаллическом состоянии.

Между аномальным коэффициентом Холла R_S и фононной частью удельного электросопротивления $\frac{\Delta\rho}{\rho}$ имеется линейная связь, которую можно представить в виде

$$\frac{\Delta R_S}{R_S} = \frac{R_S(T) - R_S(T_H)}{R_S(T_H)} = \beta\left(\frac{\Delta\rho}{\rho}\right)^n \quad (3)$$

Для исследованных сплавов зависимость $\ln\left(\frac{\Delta R_S}{R_S}\right)$ от $\ln\left(\frac{\Delta\rho}{\rho}\right)$ в аморфном состоянии более слабая, чем в кристаллическом состоянии, т.е. коэффициент β аморфной фазы меньше чем кристаллической фазы.

Коэффициенты n и β уравнение (3) и температурный интервал изученных сплавов в аморфном и кристаллическом состояниях приведены в таблице 3.

Таблица 3

Состав образцов	**Фаза**	**Интервал температуры, *K***	***n***	**β**
$Co_{59,69}Fe_{5,78}Ni_{23,8}Si_{8,23}B_{2,5}$	Аморфная Кристаллическая	150-300 200-400	1,1 1,09	10,82 27,55
$Co_{71,67}Fe_{5,7}Ni_{11,9}Si_{8,23}B_{2,5}$	Аморфная Кристаллическая	150-450 100-450	1,06 0,96	6,7 13,37

В определенном интервале температуры, где наблюдаются линейные зависимости в формуле (3) степени $n\approx1$, а β для аморфной фазы меньше чем для кристаллической. Это свидетельствует о том, что в кинетических свойствах аморфных сплавах фононы и спиновые волны играют менее важную роль, в транспортных свойствах, по сравнению с соответствующими кристаллическими сплавами. Величина аномального коэффициента Холла обычно значительно больше в металлах и сплавах, находящихся в аморфном состоянии, чем в кристаллическом. Вероятно, это является прямым следствием высокого электросопротивления в аморфном состоянии.

В работах [4,7,8] показано, что для кристаллических сплавов при ассиметричном рассеянии поляризованных по спину d –подобных электронов температурная зависимость R_S описывается соотношением:

$$R_S = a\rho + b\rho^2 \qquad (4)$$

где ρ - полное сопротивление, а в работе [11] получено, что это же соотношение имеет место и для аморфных сплавов, причем, как правило, для высокорезистивных аморфных сплавов первый член в (4) меньше второго.

Мы впервые проверили правильность выполнения теории аномального эффекта Холла аморфных ферромагнетиков [9].

Например, на рис.3 приведена зависимость $\frac{R_S}{\rho}$ от ρ для $Co_{71,67}Fe_{5,7}Ni_{11,9}Si_{8,23}B_{2,5}$ в аморфном и кристаллическом состояниях. Видно, что зависимость (4) действительно хорошо выполняется в интервале температур $T<T_C$.

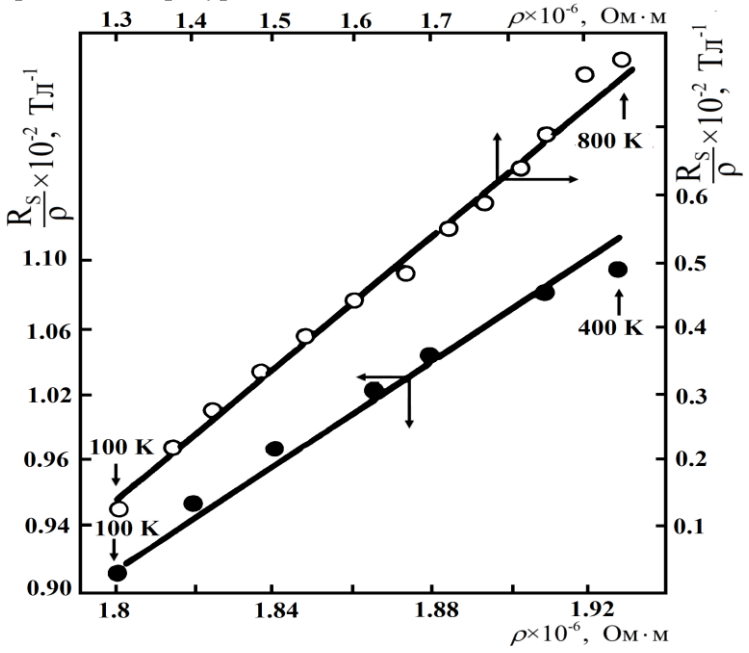

Рис 3. *Зависимость R_S / ρ от удельного электросопротивления ρ сплава $Co_{71,67}Fe_{5,7}Ni_{11,9}Si_{8,23}B_{2,5}$ (●●●) – аморфные, (○○○) – кристаллическое состояние.*

В таблице 4 приведены интервалы температур, в которых выполняется (4), и численные значения коэффициентов *a* и *b* уравнения.

Таблица 4.

Коэффициенты *a* и *b*, вычисленные из уравнения (4) для исследованных сплавов в аморфном и кристаллическом состояниях.

Состав образца	**Фаза**	**Интервал температур Т, К**	**$a\times10^{-2}$ м²/Ом×Кл**	**$b\times10^{-2}$ м/Ом²×Кл**
$Co_{59,69}Fe_{5,78}Ni_{23,8}Si_{8,23}B_{2,5}$	Аморф Кристалл	100-200 100-400 500-750	-0,014 -0,11 -0,95	4,67 13,17 75,67
$Co_{71,67}Fe_{5,7}Ni_{11,9}Si_{8,23}B_{2,5}$	Аморф Кристалл	100-400 100-800	-0,089 -0,049	6,39 4,024

Показано также, что соотношение R_S и ρ продолжает сохраняться при различных отжигах как аморфных образцов, так и их кристаллических аналогов.

Таким образом, полученные в данной работе экспериментальные результаты хорошо объясняются в рамках теорий, развитых в работах [7,8].

ВЫВОДЫ

1) Проведено комплексное исследование температурных зависимостей удельного электросопротивления, коэффициента термо-ЭДС, аномального коэффициента Холла, намагниченности насыщения аморфных сплавов на основе металлов группы железа с металлоидами в аморфном и кристаллическом состояниях.
2) Для исследованных сплавов в аморфном и кристаллическом состояниях установлены соотношения, связывающие аномальный коэффициент Холла *R*s с намагниченностью насыщения *I*s и температурно-зависящей частью удельного электросопротивления $\Delta\rho/\rho$ в виде

$$\Delta R_s = \alpha[I_s^2(T_H) - I_s^2(T)] \text{ и } \frac{\Delta R_s}{R_s} = \beta(\frac{\Delta\rho}{\rho})^n$$

которые выполняются в широком интервале температур. Причем, коэффициенты α и β для аморфного состояния сплава меньше, чем для кристаллического, что свидетельствует о том, что в кинетических свойствах аморфного состояния фононный вклад и спиновые волны играют относительно менее важную роль. Аномальный эффект Холла значительно сильнее проявляется в сплавах, находящихся в аморфном состоянии, чем в кристаллическом, что является прямым следствием высокого электросопротивления в аморфном состоянии.

3) Показано, что для высококобальтовых сплавов при T < Tc выполняется зависимость $R_s=a\rho+b\rho^2$ (ρ- удельное сопротивление), где первый член меньше второго, что подтверждает теорию аномального эффекта Холла аморфных сплавов Ведяева, Грановского

4) Исследованы кинетика и механизм магнитных и структурных превращений в аморфных сплавах на основе металлов группы железа с металлоидами. Установлено, что происходящие в сплавах в определенном интервале температур структурные превращения приводят к изменениям физических свойств. Показано, что зависимости $\rho=f(T)$, $S=f(T)$, $R_H=f(T)$, $I_s=f(T)$ обусловлены процессами кристаллизации сплавов и изменениями в структуре ближнего порядка.

Литература

1. Субханкулов И. Аморфные ферромагнитные сплавы. Монография. LAP Lambert Academic Publishing, 2020. 117 с.
2. Subhonqulov I., Amonov B., Bakaev G‘., Xomitov Sh.A. “Yuqori temperaturalarda amorf qotishmalarning magnitlanishi va uni o‘lchash usuli” SamDU ilmiy axborotnomasi 2017-yil 1-son. 177-181 b.
3. Михайловский Ю.О., Меттус Д.Е., Казаков А.П., Прудников В.Н., Калинин Ю.Е., Ситников А.С., Гербер А., Бартов Д., Грановский А.Б. Аномальный эффект Холла в нанокомпозитах $(Cu_{41}Fe_{39}B_{20})x\ (Al\text{-}O)_{100\text{-}x}$. Письма в ЖЭТФ, том 97, вып. 8, с. 544-548 © 2013 г.
4. Nagaosa N., Sinova J.Onoda et al. Rev. Mod. Phys. 82, 1539 (2010).
5. Грановский Б., Прудников В.Н., Казаков А.П. и др. ЖЭТФ 142(5), 916 (2012).
6. Luttengen J.M. Theory of the Hall Effect in Ferromagnetic Substances.- Phys.Rev.vol.112,№3,1958, p.739-751.
7. Кондорский Е.И., Ведяев А.В., Грановский А.Б. К теории остаточного аномального эффекта Холла неупорядоченных сплавов. I – ФММ, 1975, 40, вып.3, с,455-464.
8. Кондорский Е.И., Ведяев А.В., Грановский А.Б. К теории остаточного аномального эффекта Холла неупорядоченных сплавов. II – ФММ, 1975, 40, вып.5, с.903-909.
9. Ведяев А.В., Грановский А.Б. Теория аномального эффекта Холла аморфных ферромагнетиков. – ФММ, 1984, т.58, вып.6, с.1084-1092.
10. Kuvandikov O.K., Subxankulov I., Imamnazarov D.H., Khomitov Sh.A. “The nature of exchange interaction in amorphous alloys based on metals of the iron group with metalloids” Металлофизика и новейшие технологии.(Scopus) Украина. Киев 2022, vol. 44, No. 7, pp. 823–829. https://doi.org/10.15407/mfint.44.07.0823.