

ЭФФЕКТ ТРЕНИРОВКИ ЭЛЕКТРОСОПРОТИВЛЕНИЯ В ОБМЕННО-СМЕЩЕННОМ КОБАЛЬТИТЕ $GdBaCo_2O_{5.5}$

*Н. И. Солин**, *С. В. Наумов*

*Институт физики металлов им. М. Н. Михеева Уральского отделения Российской академии наук
620108, Екатеринбург, Россия*

Поступила в редакцию 12 августа 2020 г.,
после переработки 26 августа 2020 г.
Принята к публикации 27 августа 2020 г.

Исследуется природа эффекта тренировки в соединениях с обменным смещением, заключающегося в уменьшении поля обменного смещения H_{EB} при циклическом изменении магнитного поля. Показано, что в кобальтите $GdBaCo_2O_{5+\delta}$ ($\delta \approx 0.5$) эффекты тренировки электросопротивления — изменения электросопротивления при циклическом изменении магнитного поля, $\rho_{cycl}(N)$, и вращении образца, $\rho_{rot}(N)$, где N — номер цикла, — являются аналогом эффекта тренировки H_{EB} . Электросопротивление, как и H_{EB} , резко изменяется после первого цикла ($N > 1(2)$) и медленнее при последующих циклах, что связано с уменьшением намагниченности ферромагнитных частиц. Результаты объясняются влиянием двух механизмов: в первом намагниченность уменьшается быстро, во втором — медленно. Предполагается, что неравновесное состояние и эффект тренировки взаимосвязаны и обусловлены существованием однодоменных ферромагнитных частиц разного объема V и зависимостью времени релаксации их намагниченности от объема однодоменных (суперпарамагнитных) частиц, $\tau \propto \exp(K_{an}V/kT)$, где K_{an} — плотность энергии магнитной анизотропии. Природа резкого изменения H_{EB} и электросопротивления после первых циклов обусловлена близостью энергии $K_{an}V$ мелких однодоменных частиц к тепловой энергии kT . В этой модели обменное смещение исчезнет при бесконечном циклическом перемагничивании, $H_{EB} = 0$.

DOI: 10.31857/S0044451021020000

1. ВВЕДЕНИЕ

Одним из удивительных и необычных явлений в физике магнитных материалов является эффект обменного смещения, или однонаправленной анизотропии. Необычность проявляется в том, что физические свойства зависят не только от величины, но и от знака напряженности магнитного поля. Эффект может быть описан как однонаправленная анизотропия, которая нарушает симметрию обращения времени. Однонаправленная анизотропия зарождается в гетерогенной среде, содержащей мелкие ферромагнитные (FM) частицы в антиферромагнитной (AFM) матрице при охлаждении в магнитном поле H_{cool} при температуре выше температуры Нееля T_N , причем FM-частицы должны иметь более высокую температуру магнитного упорядочения, $T_C > T_N$ [1–8]. Хотя были предприняты зна-

чительные усилия [3–7, 9–13], чтобы понять необычные явления, связанные с эффектом обменного смещения, лежащий в основе его механизм все еще находится в стадии интенсивных дискуссий. Выяснение фундаментальной роли обменного смещения в устройствах спинового клапана и в туннельных устройствах вызвало взрывной рост исследований в системах FM/AFM [7].

Обменное смещение впервые наблюдали Майклджен и Бин в 50-х годах прошлого века по смещению петли гистерезиса намагниченности в мелких FM-частицах кобальта с AFM-оболочкой из оксида кобальта, осажденных в диамагнитную ртуть [1, 2]. Полученные результаты авторы объяснили обменным взаимодействием, возникающим на поверхности раздела между однодоменной FM-частицей Co и AFM-оболочкой CoO. Хотя в этой модели требуется обменное поле на два порядка больше, чем экспериментальное, и природа эффекта пока теоретически не обоснована, само явление обменного смещения широко используется в устройствах спинового кла-

* E-mail: solin@imp.uran.ru

пана и туннельных системах, в современных системах записи и хранения информации (см. ссылки в работах [3, 8]).

Одной из нерешенных проблем для соединений с обменным смещением является природа эффекта тренировки [4, 7]. Этот эффект проявляется в уменьшении поля обменного смещения H_{EB} и установлении его равновесного значения при бесконечном циклическом изменении магнитного поля [4–8]. Существуют два типа тренировочного эффекта: один между первым и вторым циклами, а другой — с большим числом циклов N [4]. Изменение H_{EB} после первого цикла происходит очень резко, а последующие циклы производят более медленные изменения H_{EB} . Для второго типа тренировочного эффекта уменьшение $H_{EB}(N)$ описывается эмпирическим выражением $\Delta H_{EB} \propto N^{-1/2}$ при $N > 1$ или $N > 2$, предложенным в работе [14]. Первый цикл не соответствует степенному соотношению, природа его, как и самого эмпирического выражения, до сих пор не известна [4, 6–8].

Широко распространено мнение, что тренировочный эффект связан с нестабильностью AFM-слоя или интерфейса FM/AFM, созданного в процессе охлаждения в магнитном поле [7, 9, 10, 13]. В модели спиновой релаксации получена рекурсивная формула, связывающая сдвиг первой петли с остальными через некоторые постоянные [10]. Считается, что тренировочный эффект связан с перестройкой спиновой структуры AFM к состоянию равновесия и отражает переориентацию доменов AFM на границе раздела AFM/FM и не имеет отношения к нестабильности FM-структуры [9, 10]. Предполагается, что симметрия анизотропии антиферромагнетика имеет решающее значение для понимания эффектов тренировки первого типа [11]. Ожидается, что эффект тренировки увеличивается в поликристаллах, он мал или отсутствует в монокристаллах (см. ссылки в работе [4]).

Мы предполагали [15], что неравновесное состояние и связанные с ним эффекты тренировки являются естественными явлениями, так как замороженное в магнитном поле состояние структуры FM/AFM отделено от термодинамического равновесного состояния потенциальным барьером [16]. В случае нестационарного состояния циклические изменения магнитного поля проявляются как эффект старения или тренировки H_{EB} . Установлено, что в кобальтите $GdBaCo_2O_{5+\delta}$ эффект тренировки H_{EB} вызван уменьшением намагниченности FM-частиц при циклическом изменении магнитного поля. В зависимости от времени намагниченность $M(t)$ умень-

шается резко после первого цикла и медленно при последующих циклах N [15].

Результаты анализировались под влиянием двух механизмов. В первом намагниченность уменьшается быстро в зависимости от времени, $M(\text{fast}) \propto [1 - \exp(-t/\tau)]$ при $\tau \approx 600$ с, во втором — медленно, $M(\text{slow}) \propto t$, что может соответствовать экспоненциальной зависимости $1 - \exp(-t/\tau)$ при $t/\tau \ll 1$. Была установлена пропорциональность между уменьшениями намагниченности $M(t)$ FM-частиц и поля обменного смещения $H_{EB}(t)$. Временные зависимости $H_{EB}(t)$ описываются теми же выражениями, что и намагниченность. Результаты объяснены на основе феноменологической модели Майклджона и Бина [1–3], где предсказана линейная зависимость обменного смещения FM-намагниченности гетероструктуры FM/AFM.

Предполагалось, что среда неоднородна и имеются мелкие (однодоменные) и крупные (многодоменные) FM-частицы. Размагничиванием крупных FM-частиц при циклическом изменении магнитного поля объяснялось резкое уменьшение $M(t)$ и $H_{EB}(t)$ и отклонение $H_{EB}(N)$ от известного степенного соотношения $H_{EB} \propto N^{-1/2}$ при $N > 1$.

Данная работа является продолжением исследований природы обменного смещения в слоистых кобальтитах [15, 17]. Известна связь между электросопротивлением и обменным смещением в слоистом кобальтите $EuBaCo_2O_{5.5}$ [17]. В связи с проблемой эффекта тренировки H_{EB} определенную ясность могли бы внести исследования влияния обменного смещения на электросопротивление при циклических изменениях магнитного состояния. Были изучены электросопротивления при циклическом изменении магнитного поля, ρ_{cycl} , и при циклическом вращении образца, ρ_{rot} (отклонении магнитного поля от направления охлаждения), в обменно-смещенном поликристалле $GdBaCo_2O_{5+\delta}$ с $\delta \approx 0.5$.

Установлена аналогия между эффектом тренировки ΔH_{EB} и эффектом тренировки электросопротивления при циклическом изменении магнитного поля, $\Delta \rho_{cycl}$, и при вращении образца, $\Delta \rho_{rot}$. Значения $\Delta \rho_{cycl}$ и $\Delta \rho_{rot}$ резко увеличиваются после первых циклов за характерные времена $\tau \sim 500$ с и медленнее при последующих циклах ($t > 3 \cdot 10^3$ с). Поведение электросопротивления, как и поля обменного смещения, хорошо описываются эмпирическим выражением $\Delta \rho_{cycl}, \Delta \rho_{rot}(t) \propto N^{-1/2}$ при $N > 1$ (2). Их поведение в зависимости от времени соответствует уменьшению намагниченности FM-кластеров, $\Delta \rho_{cycl} \sim \Delta \rho_{rot} \sim \Delta M_{FM}(t)$. Временные зависимости $\rho(t)$ описываются теми же выражениями,

что и намагниченность: $\rho(\text{fast}) \propto [1 - \exp(-t/\tau)]$ при $\tau \approx 500$ с, $\rho(\text{slow}) \propto t$. После длительных изменений магнитного поля ($N \geq 5$, $t > 10^4$ с) изменение электросопротивления оставалось постоянным как при $H = 0$, так и при $H = \text{const}$ за время измерений около 4 ч.

Показано, что многодоменные ФМ-частицы не ответственны за природу тренировочного эффекта первого типа. Неравновесное состояние и эффекты тренировки взаимосвязаны и объясняются существованием в образце однодоменных ФМ-частиц разного объема, в которых в зависимости от объема и энергии однодоменных частиц время релаксации τ_{st} намагниченности однодоменных частиц в стационарное состояние может меняться от долей секунды до десятка лет [18]. Оценки времен релаксации согласуются с экспериментом при разумных значениях плотности энергии магнитной анизотропии K_{an} . Анизотропия поперечного $\text{AMR}^\perp(\theta)$ и продольного $\text{AMR}^\parallel(\theta)$ магнитосопротивления определяется энергией однонаправленной (обменной) анизотропии $E \propto -K \cos \theta$ [1, 2]:

$$\text{AMR}(\theta) \propto 1 \pm \cos \theta,$$

где θ — угол отклонения магнитного поля от направления поля обменного смещения, знаки «+» или «-» соответствуют продольному или поперечному магнитосопротивлению.

2. ОБРАЗЦЫ И МЕТОДИКИ ИССЛЕДОВАНИЙ

Слоистые кобальтиты привлекают большое внимание из-за их необычных магнитных, электрических свойств и фазовых переходов. В них обнаружен ряд последовательных переходов: металл-изолятор, парамагнитный (PM), ФМ- и АФМ-переходы. Они имеют слоистую кристаллическую структуру перовскита, состоящую из слоев, расположенных вдоль c -оси, в которой слои RO (R — редкоземельный ион) и BaO перемежаются слоями CoO_2 [19, 20]. Вследствие слоистости они являются сильноанизотропными [20]. В зависимости от содержания кислорода ($0 \leq \delta \leq 1$) валентное состояние кобальта в $\text{RCo}_2\text{O}_{5+\delta}$ меняется от Co^{2+} до Co^{4+} . В $\text{RCo}_2\text{O}_{5.5}$ присутствуют только ионы Co^{3+} , которые расположены в кристаллической решетке из равного числа октаэдров CoO_6 и квадратных пирамид CoO_5 [19, 20].

Поликристаллические образцы $\text{GdBaCo}_2\text{O}_{5+\delta}$ были синтезированы методом Печини [21]. В качестве исходных компонентов были использованы

Gd_2O_3 , BaCO_3 , Co. Реагенты были предварительно прокалены (Gd_2O_3 , 900°C), высушены (BaCO_3 , 500°C) и восстановлены в токе водорода (Co, 600°C). Определение содержания кислорода δ проводилось методом восстановления образца в атмосфере водорода. Приготовленный образец был однофазным с $\delta = 0.52 \pm 0.02$, имел орторомбическую структуру (пространственная группа $Pmmm$, № 47) с параметрами элементарной ячейки $a = 3.874(3)$ Å, $b = 7.821(6)$ Å, $c = 7.531(3)$ Å [15]. Определены основные физические параметры обменного смещения поликристалла $\text{GdBaCo}_2\text{O}_{5.52}$: температура блокировки, ниже которой возникает обменное смещение, $T_B \approx 200$ К, температура Кюри $T_C = 277 \pm 2$ К, которая выше температуры АФМ-упорядочения $T_N = 230 \pm 10$ К. Оценены размеры и плотность ФМ-кластеров: образец при $T < T_N$ представляет АФМ-среду с вкраплениями ФМ-кластеров с размерами $d = 3\text{--}4$ нм с расстояниями между ними около 20 нм [22].

Исследования электросопротивления проведены стандартным четырехконтактным методом на образце в виде параллелепипеда размерами $5 \times 1.4 \times 1.2$ мм³, ток направлен вдоль длинной оси образца и перпендикулярно направлению магнитного поля. Магнитные исследования проведены в центре коллективного пользования ИФМ УрО РАН с использованием магнитометра MPMS-5XL (QUANTUM DESIGN).

3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

На рис. 1 приведены временные зависимости электросопротивления поликристалла $\text{GdBaCo}_2\text{O}_{5.52}$ при циклическом изменении магнитного поля. Исследования проведены по схеме, примененной при исследовании эффекта тренировки поля обменного смещения H_{EB} в работе [15]. Образец охлаждался в магнитном поле $H = 15$ кЭ от $T = 300$ К до $T = 77$ К и вначале выдерживался в таком состоянии в течение $t \approx 4 \cdot 10^3$ с. Электросопротивление не остается постоянным в магнитном поле $H = \text{const}$. После резкого увеличения за время $t \sim 10^3$ с электросопротивление монотонно увеличивается примерно на 1% за время около $4 \cdot 10^3$ с (символы 1 на левой вставке к рис. 1а и на рис. 1б).

Аналогичные результаты были обнаружены при исследовании намагниченности $\text{GdBaCo}_2\text{O}_{5.52}$ [15]: (правая вставка на рис. 1а). Временная зависимость намагниченности $M(t)$ при $H = \text{const} = 15$ кЭ была

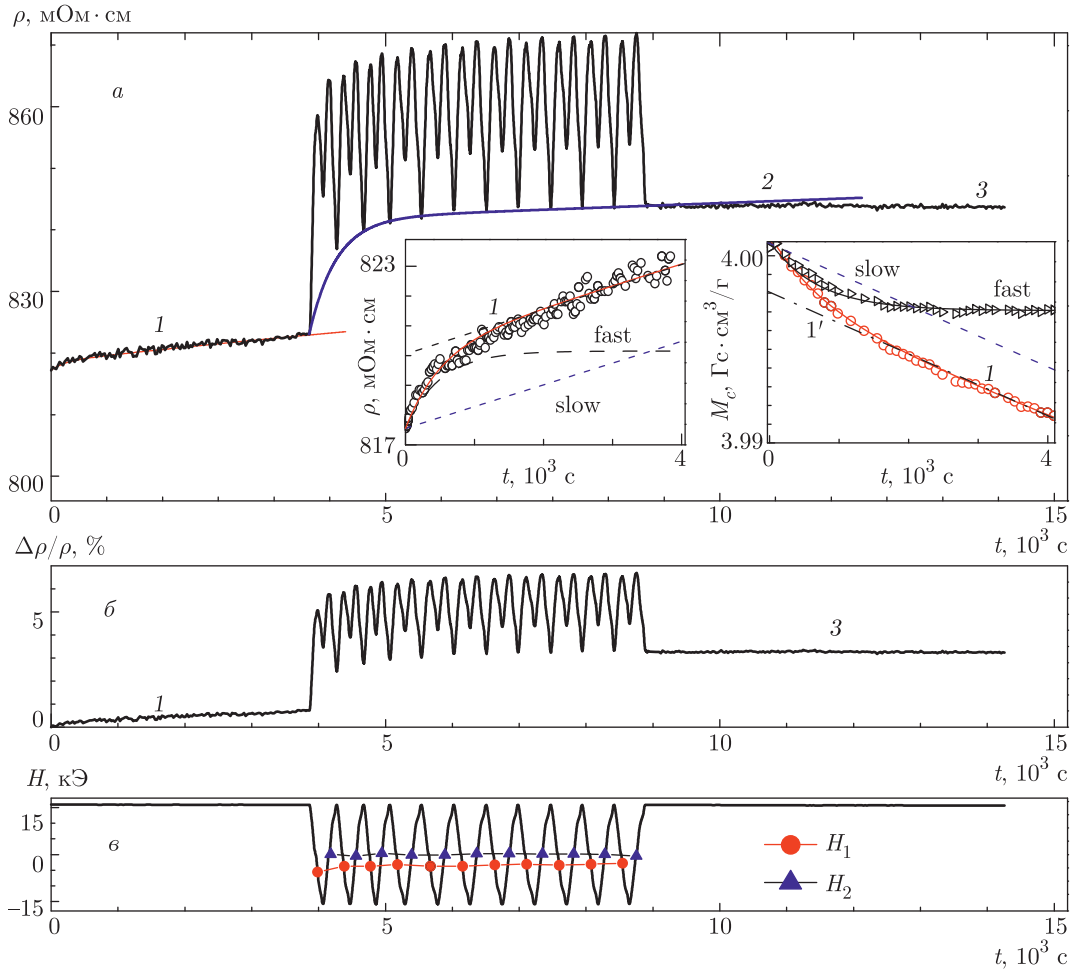


Рис. 1. (В цвете онлайн) Временные зависимости: *a* — электросопротивления $\rho(t)$; *б* — относительного изменения электросопротивления $\Delta\rho/\rho(t) = [\rho(t) - \rho(t = 0)]/\rho(t = 0)$; *в* — напряженности магнитного поля $H(t)$. Левая вставка на рис. 1*a*: временная зависимость электросопротивления при $H = 15$ кЭ (*1*); быстро (*fast*) и медленно (*slow*) меняющиеся части электросопротивления; символы — эксперимент; линии — расчет. Правая вставка на рис. 1*a*: временная зависимость намагниченности M_c при $H = 15$ кЭ (*1*); быстро (*fast*), медленно (*slow*) меняющиеся части намагниченности M_c ; символы — эксперимент, линии — расчет. Поликристалл $GdBaCo_2O_{5.52}$ охлажден от $T = 300$ К до $T = 77$ К при $H = 15$ кЭ. На рис. 1*в* символами показаны значения H_1 и H_2 из рис. 2 (см. текст)

объяснена влиянием двух механизмов: в первом намагниченность $M_c(\text{fast})$ быстро уменьшается за время порядка 10^3 с (символы *1*), во втором — намагниченность далее уменьшается линейно в зависимости от времени (штрихпунктирная линия *1'*). После вычитания линейной части $M(t)$ можно выделить вклады намагниченности, меняющиеся быстро (*fast*) и медленно (*slow*) от времени. Экспериментальные данные для $M(t)$ при $H = \text{const}$ (символы *1*) хорошо описываются (сплошные линии) выражением

$$M_c(\text{fast}) \approx m_c(\text{fast})[1 - \exp(-t/\tau_1)], \quad (1)$$

$$M_c(\text{slow}) \propto m_c(\text{slow})t$$

при $\tau_1 \approx 600$ с, где $m_c(\text{fast}) = -3.7$ мГс·см³/Г, $m_c(\text{slow}) \approx -1.5 \cdot 10^3$ мГс·см³/Г·с — соответственно амплитуда и скорость изменения намагниченности от времени при $H = \text{const}$. Вклад $M_c(\text{slow}) \propto t$ может соответствовать экспоненциальной зависимости $1 - \exp(-t/\tau)$ при $t/\tau \ll 1$ [15].

Видно, что в целом вид зависимостей электросопротивления $\rho(t)$ и намагниченности $M(t)$ совпадает: уменьшение намагниченности приводит к увеличению электросопротивления. Временную зависимость электросопротивления $\rho(t)$ при $H_c = 15$ кЭ = const также можно представить как суперпозицию двух механизмов, вклад которых быстро,

$\rho_c(\text{fast})$, и медленно, $\rho_c(\text{slow})$, изменяется в зависимости от времени. Экспериментальные результаты для $\rho(t)$ при $H = \text{const}$ можно довольно хорошо описать (символы 1 — эксперимент, линии — расчет на левой вставке к рис. 1а) выражением

$$\begin{aligned} \rho_c(\text{fast}) &\approx R_c(\text{fast})[1 - \exp(-t/\tau_2)], \\ \rho_c(\text{slow}) &\propto R_c(\text{slow})t \end{aligned} \quad (2)$$

при $\tau_2 \approx 500$ с, $R_c(\text{fast}) = 2.6$ мОм·см, $R_c(\text{slow}) \approx 7.3 \cdot 10^{-4}$ мОм·см/с, где $R_c(\text{fast})$ и $R_c(\text{slow})$ — соответственно амплитуда и скорость изменения электросопротивления от времени при $H = 15$ кЭ. Из вставок к рис. 1 можно оценить, что изменение намагниченностей $M_c(\text{fast})$ и $M_c(\text{slow})$ на 1 мГс·см³/Г вызывает изменения электросопротивлений $\rho_c(\text{fast})$ и $\rho_c(\text{slow})$ соответственно на 1 и 0.5 мОм·см.

Далее проведены измерения электрического сопротивления при 11 циклах изменения магнитного поля от $+15$ кЭ до -15 кЭ (время одного цикла $t_{\text{cycl}} \approx 460$ с). Видно (рис. 1а), что электросопротивление резко (почти на 4%) увеличивается после первого цикла (рис. 1б), значения его не возвращаются в первоначальное состояние и увеличиваются после каждого цикла. Минимальные значения электросопротивления, $\rho_{\text{min}1}(t)$, достигаются в поле, при котором образец был охлажден, $H = 15$ кЭ. Значение электросопротивления $\rho_{\text{min}1}(t, H = 15$ кЭ) резко возрастает после первого цикла, а после четвертого цикла происходит практически линейный рост $\rho_{\text{min}1}(t)$ в зависимости от времени (см. кривую 2 рис. 1а). За время 11 циклов изменения магнитного поля электросопротивление $\rho_{\text{min}1}(t)$ увеличилось примерно на 2.5%. Оно остается постоянным (в пределах точности измерений около 0.05%) после прекращения циклических изменений магнитного поля за время измерений $t \approx 5 \cdot 10^3$ с при $H = \text{const} = 15$ кЭ (символы 3 на рис. 1а и 1б).

Отметим, что после 11 циклов изменений магнитного поля на ± 15 кЭ сопротивление $\rho(t)$ также оставалось постоянным в течение времени измерений $t_{\text{meas}} \approx 1.2 \cdot 10^4$ с и при $H = 0$ (данные не показаны). «Анизотропия» электросопротивления $\Delta\rho_{\text{an}}^{\text{cycl}}(N) = \rho_{\text{max}} - \rho_{\text{min}}$, где ρ_{max} и ρ_{min} — минимальное и максимальное значения электросопротивления для каждого цикла, резко уменьшается (от 42 до 28 мОм·см) за первые 3–5 циклов. При $N > 5$ ($t > 3 \cdot 10^3$ с) она остается постоянной.

На рис. 2 приведены зависимости электросопротивления от напряженности магнитного поля для первых двух ($N = 1$ и $N = 2$) и последнего ($N = 11$) циклов. Петля гистерезиса электросопротив-

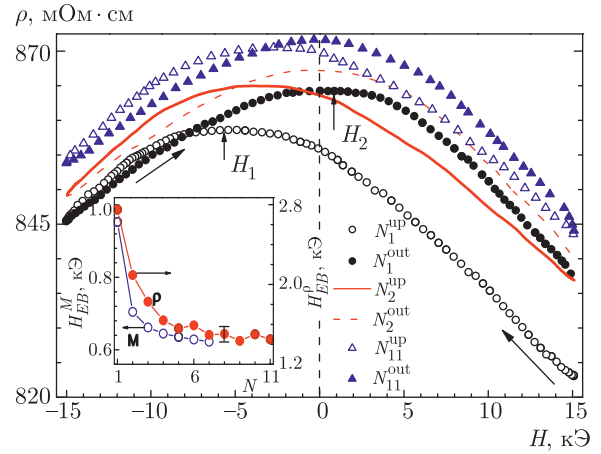


Рис. 2. (В цвете онлайн) Влияние циклического изменения магнитного поля на электросопротивление поликристалла $\text{GdBaCo}_2\text{O}_{5.52}$, охлажденного в магнитном поле 15 кЭ от 300 до 77 К. Приведены результаты для $N = 1, 2, 11$ для восходящей (от 15 до -15 кЭ) и исходящей (от -15 до 15 кЭ) ветвей электросопротивления. Вставка: поля обменного смещения в зависимости от номера цикла, определенные из измерений намагниченности (H_{EB}^ρ) и электросопротивления (H_{EB}^M)

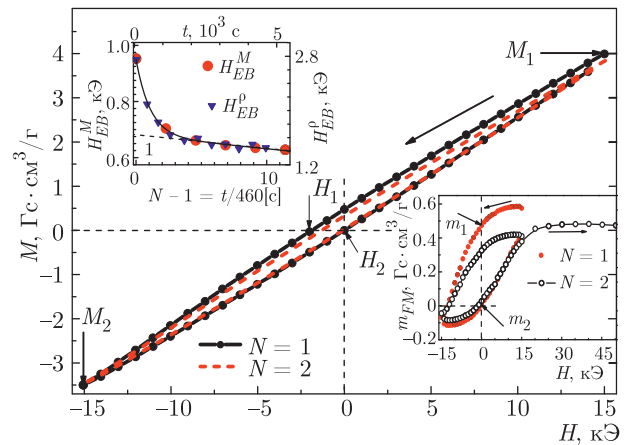


Рис. 3. (В цвете онлайн) Эффект тренировки намагниченности поликристалла $\text{GdBaCo}_2\text{O}_{5.52}$ для двух циклов изменения магнитного поля от $+15$ до -15 кЭ. Верхняя вставка — зависимости H_{EB}^M и H_{EB}^ρ от номера цикла N ; символы — эксперимент, сплошная линия — расчет из выражения (4). Нижняя вставка — полевая зависимость намагниченности FM-частиц для двух циклов намагничивания при вычете AFM- и PM-вкладов

ления $\rho(H)$, как и петля гистерезиса намагниченности (рис. 3), смещена относительно $H = 0$ и имеет асимметричный вид кривой «бабочки» с максимумами $\rho(H)$ при H_1 и H_2 . Особенностью поведения электросопротивления в магнитном поле яв-

ляется однонаправленность: значение электросопротивления зависит не только от величины, но и от знака напряженности магнитного поля. В направлении магнитного поля, при котором образец был охлажден, значение электросопротивления меньше, чем при противоположном направлении магнитного поля.

Циклические изменения магнитного поля приводят к необычному поведению электросопротивления $\rho(H)$: оно с существенным запаздыванием по времени следует значениям напряженности магнитного поля. На первой восходящей ветви (N_1^{up}) электросопротивление увеличивается от минимального значения ρ_{min1} при $H = 15$ кЭ до максимального значения ρ_{max1} при $H_1 \approx -5.8$ кЭ, далее уменьшается до минимального значения $\rho_{min2} > \rho_{min1}$ при $H = -15$ кЭ. На исходящей (N_1^{out}) ветви $\rho(H)$ достигает максимального значения $\rho_{max2} > \rho_{max1}$ при $H_2 \approx 0.5$ кЭ и минимального значения, существенно отличающегося от исходного значения ρ_{min1} при $H = -15$ кЭ (рис. 2). На второй ветви и до $N = 11$ последующих циклов значения ρ_{max1} , ρ_{max2} , ρ_{min1} , ρ_{min2} плавно увеличиваются после каждого цикла намагничивания, а значения H_1 и H_2 уменьшаются до $H_1 \approx -2.6$ кЭ и $H_2 \approx 0$ при $N = 11$. Изменения H_1 и H_2 при циклическом изменении магнитного поля показаны символами на рис. 1в.

Обменное смещение обычно характеризуется обменным полем H_{EB} [3–8]:

$$H_{EB} = (H_1 + H_2)/2, \quad (3)$$

где H_1 и H_2 соответствуют значениям магнитного поля, при которых намагниченность петли гистерезиса меняет знак при уменьшении и увеличении напряженности магнитного поля (рис. 3). Полагаем, что поведение электросопротивления $\rho(H)$ охлажденного в поле $H = 15$ кЭ поликристалла $GdBaCo_2O_{5.52}$ определяется намагниченностью образца $M(H)$ и достигает максимальных значений при минимальных значениях намагниченности, $M = 0$. В этом предположении значения H_1 и H_2 на рис. 2 являются аналогами определения H_{EB} из измерений электросопротивления. На вставке к рис. 2 приведены значения поля обменного смещения H_{EB} , определенные из магнитных [22] (H_{EB}^M) и электрических (H_{EB}^p) измерений в зависимости от номера цикла. Видно, что значения H_{EB} , определенные из магнитных и электрических измерений, различаются почти в 2–3 раза. Такое же различие между H_{EB}^p и H_{EB}^M обнаружено в кобальтатах $Nd_{0.84}Sr_{0.16}CoO_3$ и $La_{0.88}Sr_{0.12}CoO_3$ [23, 24]. Двукратное различие между H_{EB}^p и H_{EB}^M отмечено в

пленочной структуре Co/CoO [25]. В некоторых работах большое различие не обнаружено [26, 27].

Полагаем, что объяснение этого казуса лежит в природе намагниченности слоистых кобальтитов и методике определения H_{EB} . При низких температурах намагниченность слоистых кобальтитов определяется в основном (более 90%) РМ-вкладом редкоземельного иона R^{3+} и АФМ-вкладом ионов Co [20, 28], а намагниченность ФМ-частиц, вызывающая обменное смещение, мала [15]. В выражении (3) для определения H_{EB} предполагается противоположная ситуация: намагниченность ФМ-частиц должна быть значительно больше намагниченности матрицы [3–8]. Вследствие этого значения H_1 и H_2 на рис. 3 не соответствуют значениям магнитного поля, при которых намагниченность ФМ-частиц меняет знак. Малой намагниченностью ФМ-частиц по сравнению с намагниченностью матрицы объясняется различие между значениями H_{EB}^p и H_{EB}^M (см. вставку на рис. 2).

В большинстве работ по другим кобальтатам (см. ссылки в работе [8]) при определении значения H_{EB} из магнитных измерений не учитывается АФМ-вклад ионов Co . Можно предположить, что из электрических измерений определяются истинные значения H_{EB} , так как намагниченность матрицы кобальтитов не влияет на положения H_1 и H_2 . Для исключения влияния намагниченности матрицы обменное смещение рекомендуется характеризовать асимметрией намагниченности: $m_{EB} = (m_1 + m_2)/2$, где m_1 и m_2 значения намагниченности при $H = 0$, как показано на нижней вставке к рис. 3 [29].

Зная временные зависимости $H_1(t_1)$ и $H_2(t_2)$, см. рис. 2 и 3, можно с помощью выражения (3) разделить временные зависимости $H_{EB}^p[t = (t_1 + t_2)/2]$ и $H_{EB}^M[t = (t_1 + t_2)/2]$ из измерений электросопротивления и намагниченности. Результаты для временных зависимостей H_{EB}^p и H_{EB}^M от номера цикла N , приведенные на вставке к рис. 2 и на верхней вставке к рис. 3, изображены символами. Время на нижней оси приведено в единицах длительности цикла измерения электросопротивления для сопоставления времени с номером цикла $N = t/\tau_{cycle}$, $\tau_{cycle} = 460$ с. Видно, что как H_{EB}^M , так и H_{EB}^p сначала резко убывают и при $t > 3 \cdot 10^3$ с обе величины уменьшаются линейно в зависимости от времени (штриховая линия 1). В пределах точности измерений временные зависимости H_{EB}^M и H_{EB}^p практически совмещены (длительность цикла измерений H_{EB}^M была равна $\tau_{cycle} = 1050$ с [15]). Этот результат показывает, что за изменения H_{EB} ответственно не число циклов, а суммарное время действия цик-

лов. Вычитая линейные части $H_{EB}(t)$, мы выделим вклады, меняющиеся быстро, $H_{EB}(\text{fast})$, и медленно, $H_{EB}(\text{slow})$, — зависящие от времени части полей обменного смещения. Экспериментальные результаты для $H_{EB}^\rho(t)$ (сплошная линия на верхней вставке к рис. 3) удовлетворительно описываются выражениями

$$\begin{aligned} H_{EB}^\rho(\text{fast}) &\approx h_{EB}(\text{fast})[1 - \exp(-t/\tau_2)], \\ H_{EB}^\rho(\text{slow}) &\propto h_{EB}(\text{slow})t \end{aligned} \quad (4)$$

при $\tau_2 \approx 500$ с, $h_{EB}(\text{fast}) = -1.12$ кЭ, $h_{EB}(\text{slow}) \approx -4.23 \cdot 10^{-5}$ кЭ/с, где $h_{EB}(\text{fast})$ и $h_{EB}(\text{slow})$ — соответственно амплитуда и скорость изменения H_{EB}^ρ от времени [15].

На рис. 3 приведен эффект тренировки намагниченности поликристалла $\text{GdBaCo}_2\text{O}_{5.52}$ для двух циклов изменения магнитного поля от +15 до -15 кЭ из семи проведенных [15]. Видно большое сходство между петлями гистерезиса электросопротивления $\rho(H)$ на рис. 2 и намагниченности $M(H)$ на рис. 3. Петля гистерезиса $M(H)$ несимметрична относительно $H = 0$ и $M = 0$: она сдвинута вверх по намагниченности и влево по напряженности магнитного поля. Намагниченность уменьшается и не возвращается в исходное состояние, однако изменения ее малы (см. значения M_1 и M_2 на рис. 3) по сравнению с изменениями электросопротивления (см. рис. 2). Причина та же: намагниченность ФМ-кластеров мала относительно вклада АФМ-ионов Со и РМ-ионов Gd^{3+} [15]. На нижней вставке к рис. 3 показана полевая зависимость намагниченности ФМ-кластеров, m_{FM} , при вычете АФМ-вклада ионов Co^{3+} и РМ-подсистемы ионов Gd^{3+} [15]. Видно, что после первого цикла намагниченность m_{FM} при $H = 15$ кЭ не возвращается в исходное состояние, она уменьшается на 0.2 Гс · см³/г (более 30 %) по сравнению с намагниченностью первого цикла и практически не зависит от H до 50 кЭ. Намагниченность при $H = -15$ кЭ также уменьшается, но гораздо меньше. Этот эксперимент показывает, что намагниченность ФМ-кластеров уменьшается при циклическом перемагничивании. Временные зависимости намагниченности ФМ-кластеров были определены [15] из измерений средней намагниченности (рис. 3):

$$\begin{aligned} M_{mid}(t) &= \\ &= [M_1(H = +15 \text{ кЭ}) - M_2(H = -15 \text{ кЭ})]/2. \end{aligned} \quad (5)$$

На рис. 4 приведена (символы — эксперимент, сплошная линия — расчет из (6)) временная зависимость намагниченности $M_{mid}(t)$ для семи циклов

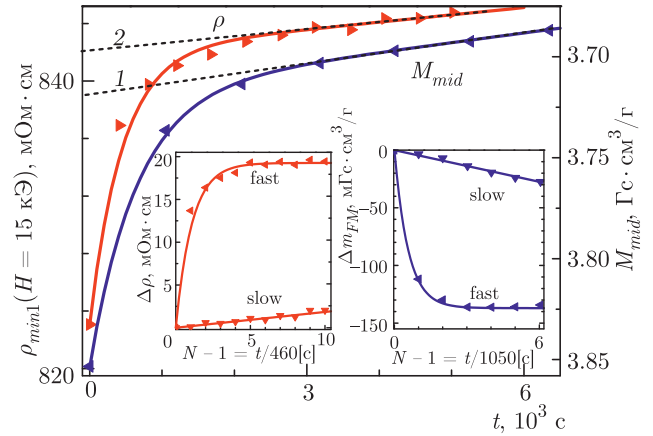


Рис. 4. (В цвете онлайн) Временные зависимости намагниченности M_{mid} и электросопротивления ρ при циклическом изменении магнитного поля от +15 до -15 кЭ. Символы — экспериментальные значения $M(t)$ и $\rho(t)$ при $H = 15$ кЭ, линии — расчет (см. текст). Вставки — медленно (slow) и быстро (fast) зависящие от времени части электросопротивления $\Delta\rho$ и намагниченности ФМ-кластеров, Δm_{FM} . Поликристалл $\text{GdBaCo}_2\text{O}_{5.52}$, охлажден в магнитном поле 15 кЭ от $T = 300$ К до $T = 77$ К

намагничивания [15]. Значение $M_{mid}(t)$ после первого цикла резко убывает, далее почти линейно уменьшается со временем. Поведение $M_{mid}(t)$ обусловлено изменениями намагниченности ФМ-кластеров $m_{FM}(t)$ на фоне АФМ-вклада ионов Со и РМ-подсистемы Gd^{3+} . Нет никаких оснований полагать, что АФМ- или РМ-подсистема Gd^{3+} зависит от циклических намагничиваний. После вычитания линейной части $M_{mid}(t)$ (штриховая линия 1 на рис. 4) в работе [15] выделены вклады в намагниченность ФМ-частиц, меняющиеся быстро (fast) и медленно (slow) в зависимости от времени. Эти вклады удовлетворительно описываются (символы — эксперимент, линии — расчет на правой вставке к рис. 4) выражениями

$$\begin{aligned} M_{cycl}(\text{fast}) &\equiv m_{FM}(\text{fast}) = \\ &= m_{cycl}(\text{fast})[1 - \exp(-t/\tau_1)], \end{aligned} \quad (6)$$

$$M_{cycl}(\text{slow}) \equiv m_{FM}(\text{slow}) \propto m_{cycl}(\text{slow})t$$

при $\tau_1 \approx 575 \pm 25$ с, $m_{cycl}(\text{fast}) = -137$ МГс · см³/г, где $m_{cycl}(\text{fast})$ и $m_{cycl}(\text{slow})$ — соответственно амплитуда и скорость изменения намагниченности ФМ-кластеров от времени [15].

На рис. 4 приведена временная зависимость электросопротивления ρ_{min1} ($H = 15$ кЭ) для 11 циклов перемагничивания (символы — эксперимент, сплошная линия — расчет из выраже-

ния (7)) по данным рис. 1. Видно, что зависимости $M_{mid}(t)$ и $\rho(t)$ имеют одинаковый характер. За время $t \approx (2-3) \cdot 10^3$ с намагниченность резко уменьшается, а электросопротивление резко увеличивается, далее $M_{mid}(t)$ и $\rho(t)$ медленно меняются в зависимости от времени (штриховые линии 1 и 2). Временную зависимость электросопротивления $\rho(t)$ при циклическом перемагничивании также можно представить как суперпозицию двух механизмов, вклад которых быстро (fast), медленно (slow) и линейно изменяется в зависимости от времени. Вычитая линейную часть $\rho(t)$ (штриховая линия 2 на рис. 4), можно выделить вклады электросопротивления, меняющиеся быстро, $\rho_{cycl}(fast)$, и медленно, $\rho_{cycl}(slow)$, в зависимости от времени. На вставке к рис. 4 эти вклады показаны символами. Экспериментальные результаты для $\rho(t)$ удовлетворительно описываются (сплошные линии 2 на рис. 1а и на левой вставке к рис. 4) выражениями

$$\begin{aligned} \rho_{cycl}(fast) &\approx R_{cycl}(fast)[1 - \exp(-t/\tau_2)], \\ \rho_{cycl}(slow) &\propto R_{cycl}(slow)t \end{aligned} \quad (7)$$

при $\tau_2 \approx 500$ с, $R_{cycl}(fast) = 18.9$ мОм·см, $R_{cycl}(slow) \approx 3.1 \cdot 10^{-4}$ мОм·см/с, где $R_{cycl}(fast)$ и $R_{cycl}(slow)$ — соответственно амплитуда и скорость изменения электросопротивления от времени.

Видно также, за изменения $M(t)$ и $\rho(t)$, по-видимому, ответственно не число циклов, а суммарное время действия циклов. За время $t \approx 3 \cdot 10^3$ с происходят основные изменения намагниченности за 2–3 цикла ($\tau_{cycl} = 1050$ с), в то время как для достижения таких же изменений электросопротивления нужно проделать 5–6 циклических изменений магнитного поля ($\tau_{cycl} = 460$ с). Для сопоставления значений $\Delta\rho$ и Δm_{FM} с номером цикла N время на вставках приведено в единицах длительности цикла.

Быстро меняющиеся от времени вклады в намагниченность, $M_{cycl}(fast)$, и в электросопротивление, $\rho_{cycl}(fast)$, описываются выражениями (2), (6) и (7) с немного различающимися (около 15%) временами затухания τ . Результаты можно объяснить тем, что электросопротивление не прямо пропорционально зависит от намагниченности, а определяется некоторой функциональной зависимостью от намагниченности. Из сравнения выражений (2) и (6) видно, что при циклическом перемагничивании амплитуда быстро меняющейся части электросопротивления увеличивается примерно в 7 раз по сравнению с той же амплитудой при $H = const$, $R_{cycl}(fast)/R_{cycl}(fast) \approx 7$, а амплитуда медленно меняющейся части электросопротивления даже умень-

шается, $R_{cycl}(slow)/R_{cycl}(slow) \approx 0.5$. Из вставок на рис. 4 можно оценить, что уменьшение намагниченности Δm_{FM} на 10 мГс·см³/г вызывает увеличение электросопротивлений $\rho_{cycl}(fast)$ и $\rho_{cycl}(slow)$ примерно на соответственно 1.4 и 0.8 мОм. Эти оценки подтверждают, что за быстрое (fast) и медленное (slow) изменения свойств поликристалла $GdBaCo_2O_{5.52}$ ответственны разные механизмы.

Следующим этапом было изучение влияния на электросопротивление отклонения магнитного поля от направления, в котором образец был охлажден, т. е. от направления поля обменного смещения. Ток был направлен вдоль длинной оси и перпендикулярно направлению магнитного поля, т. е. исследовалось поперечное магнитосопротивление. Исследования проведены по аналогичной схеме. Образец сначала охлаждался в магнитном поле $H = 15$ кЭ от $T = 300$ К до $T = 77$ К и выдерживался в таком состоянии в течение $t \approx 6 \cdot 10^3$ с. После этого измерения электросопротивления проведены при повороте образца на $\theta = 30^\circ$ примерно через 50 с. После достижения $\theta = 360^\circ$ вращение образца совершалось в противоположном направлении. Проведено 13 циклов ($t_{cycl} = 590-600$ с) таких измерений за время около 8000 с.

Временная зависимость электросопротивления $\rho_{rot}(t)$ при 77 К и $\theta = 0$ и $H = const = 15$ кЭ (символы 1 на рис. 5) такая же, как и на рис. 1: после резкого начального роста электросопротивление далее монотонно увеличивается за время измерений $t \approx 6 \cdot 10^3$ с (символы и линия 1) и описывается также выражением (2). Удивительно (см. рис. 5), что качественно эффект тренировки вращения при $H = 15$ кЭ = const очень похож на эффект тренировки электросопротивления при циклическом перемагничивании (см. рис. 1). Видно (рис. 5а), что электросопротивление также резко (примерно на 3%) растет после первого цикла (рис. 5б), значения его увеличиваются и не возвращаются в первоначальное состояние после каждого цикла. Минимальные значения электросопротивления $\rho_{min}(t)$ достигаются в направлении поля, при котором образец был охлажден, $\theta = 0$ (360°). Максимальное значение ρ_{max} электросопротивления принимает при $\theta \approx 180^\circ$ после 5–6 полных оборотов вращения образца. Значения ρ_{min} и ρ_{max} резко возрастают после первого цикла, а после четвертого цикла происходит практически линейный рост ρ_{min} в зависимости от времени (см. кривую 2 на рис. 5а). Электросопротивление ρ_{min} увеличивается на 5% от своего начального состояния после прекращения вращения образца, и оно остается неизменным за время измерения до

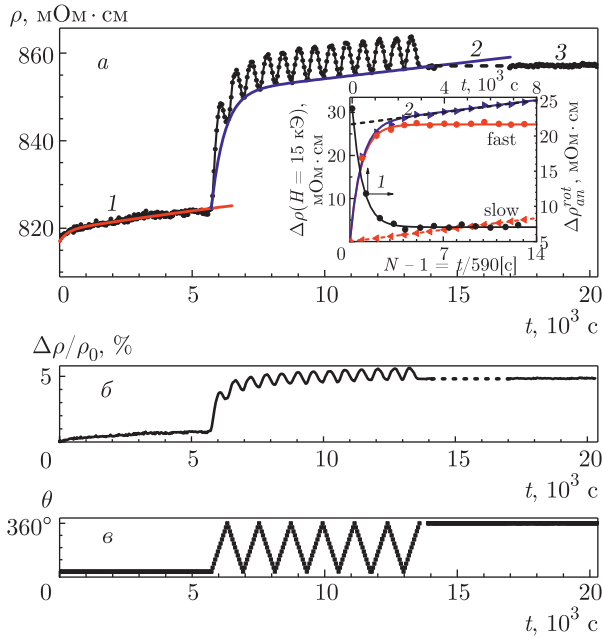


Рис. 5. (В цвете онлайн) Эффект тренировки электросопротивления для 13 циклов вращения образца. *а)* Зависимость электросопротивления от времени; вставка (левая и нижняя оси) — медленно (slow) и быстро (fast) зависящие от времени части электросопротивления $\Delta\rho(H = 15 \text{ кЭ}, \theta = 0(360^\circ))$ от номера N цикла вращения, символы 2 — эксперимент, линии — расчет из выражения (8), а также (правая и верхняя оси) — временная зависимость анизотропии вращения $\Delta\rho_{an}^{rot}(t) = \rho_{max} - \rho_{min}$, символы — эксперимент, линия 1 — расчет из выражения (9). *б)* Относительное изменение электросопротивления $\Delta\rho(t) = \rho(t) - \rho(t = 0)$. *в)* Временная зависимость угла отклонения магнитного поля от направления охлаждения. Поликристалл $\text{GdBaCo}_2\text{O}_{5.52}$, охлажден в магнитном поле 15 кЭ от $T = 300 \text{ К}$ до $T = 77 \text{ К}$

$t \geq 6 \cdot 10^3 \text{ с}$ (штриховая линия и символы 3 на рис. 5а) в пределах точности измерений $\pm 0.05 \%$.

На вставке к рис. 5а символами 2 приведена временная зависимость изменения электросопротивления $\Delta\rho$ при $H = 15 \text{ кЭ}$ и $\theta = 0(360^\circ)$ при циклическом вращении. Время приведено в единицах длительности цикла для сопоставления времени с номером цикла $N = t/\tau_{cycl}$. Электросопротивление $\Delta\rho(t)$ резко растет за первые три цикла. При $N > 5-6$ ($t > 3 \cdot 10^3 \text{ с}$) происходит медленное, линейное от времени, увеличение значений $\Delta\rho$. Временную зависимость электросопротивления $\Delta\rho$ при циклическом вращении образца также можно представить как суперпозицию двух механизмов, вклад которых быстро (fast) и медленно (slow) изменяется в зависимости от времени. Вычитая линейную часть $\Delta\rho(t)$ (штри-

ховая линия), мы выделили вклады электросопротивления, меняющиеся быстро, $\rho_{cycl}(\text{fast})$, и медленно $\rho_{cycl}(\text{slow})$, в зависимости от времени. На вставке к рис. 5а символами показаны эти вклады в $\Delta\rho$ при циклическом вращении образца и $\theta = 0(360^\circ)$. Экспериментальные результаты для $\rho(t)$ довольно хорошо описываются (сплошная линия 2 на рис. 5 и сплошные линии на вставке к рис. 5) выражениями

$$\begin{aligned} \rho_{rot}(\text{fast}) &\approx R_{rot}(\text{fast})[1 - \exp(-t/\tau_2)], \\ \rho_{rot}(\text{slow}) &\approx R_{rot}(\text{slow})t \end{aligned} \quad (8)$$

при $\tau_2 \approx 500 \text{ с}$, $R_{rot}(\text{fast}) = 27.4 \text{ мОм} \cdot \text{см}$, $R_{rot}(\text{slow}) \approx 6.47 \cdot 10^{-4} \text{ мОм} \cdot \text{см}/\text{с}$, где $R_{rot}(\text{fast})$ и $R_{rot}(\text{slow})$ — соответственно амплитуда и скорость изменения электросопротивления от времени при циклическом вращении образца. Вклады $R_{rot}(\text{slow}) \propto t$ в (8), как и $R_{cycl}(\text{slow})t$ в (7), могут соответствовать экспоненциальной зависимости $1 - \exp(-t/\tau)$ при $t/\tau \ll 1$.

Из выражений (2) и (8) следует, что скорости изменения электросопротивления от времени при вращении образца при постоянных значениях $H = \text{const} = 15 \text{ кЭ}$ примерно одинаковы, $R_{rot}(\text{slow}) \approx R_{cycl}(\text{slow})$. Та же самая скорость (см. выражение (7)) при циклическом перемагничивании примерно в 2 раза меньше. Амплитуда изменения электросопротивления при циклическом перемагничивании $R_{cycl}(\text{fast})$ в 1.5 раза меньше, чем амплитуда $R_{rot}(\text{fast})$ при вращении образца. Можно предположить, что эти особенности связаны с изменениями намагниченности FM-частиц при циклическом перемагничивании (возможно, связанные с потерями на гистерезис).

На вставке к рис. 5 символами 1 приведена временная зависимость «анизотропии» вращения электросопротивления $\Delta\rho_{an}^{rot}(t) = \rho_{max} - \rho_{min}$, где ρ_{min} и ρ_{max} — минимальное и максимальное значения электросопротивления на каждом цикле вращения. Анизотропия резко уменьшается за первые 3–4 цикла вращения и принимает постоянное значение $\Delta\rho_{an}^{rot}(t) \approx 7.0 \pm 0.2 \text{ мОм} \cdot \text{см}/\text{с}$ при $N > 5-6$ ($t > 5 \cdot 10^3 \text{ с}$) в пределах точности наших измерений. Зависимость анизотропии вращения магнитосопротивления от времени (и от номера цикла) хорошо описывается выражением (время приведено в единицах длительности цикла для сопоставления времени с номером цикла $N = t/\tau_{cycl}$)

$$\Delta\rho_{an}^{rot}(t, N) = 23.9 - 16.9[1 - \exp(-t/\tau_2)] \quad (9)$$

при $\tau_2 \approx 500 \text{ с}$ (сплошная линия 1 на вставке к рис. 5).

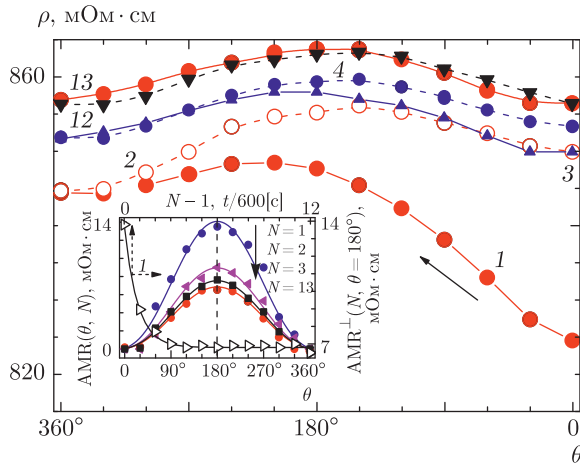


Рис. 6. (В цвете онлайн) Угловая зависимость электропроводности $\rho(\theta, H = 15 \text{ Э})$, где θ — угол отклонения магнитного поля от направления поля охлаждения (символы — эксперимент, линии — для наглядности) при циклическом вращении образца для $N = 1-4$ и $N = 12, 13$. Вставка: угловая зависимость анизотропии магнитосопротивления при $H = 15 \text{ кЭ}$ для $N = 1-3, 13$, символы — эксперимент, линии — расчет из (10), а также временная зависимость анизотропии поперечного магнитосопротивления $\text{AMR}^\perp(\theta)$ при $\theta = 180^\circ$, символы — эксперимент, линии — расчет из (12). Поликристалл $\text{GdBaCo}_2\text{O}_{5.52}$ охлажден в магнитном поле 15 кЭ от $T = 300 \text{ К}$ до $T = 77 \text{ К}$

На рис. 6 приведена угловая зависимость электропроводности $\rho(\theta, 15 \text{ кЭ})$ при отклонении образца от направления поля, в котором он был охлажден, для $N = 1-4$, и $N = 12, 13$ по данным рис. 5. Как и следовало ожидать, на анизотропию магнитосопротивления накладывается зависимость электропроводности от времени (см. рис. 5). Видно, что при каждом повороте на 360° электропроводность увеличивается, значения его не возвращаются в исходное состояние, а наибольшие изменения его происходят после первых двух циклов: $N = 1, 2$. После вычитания из $\rho(\theta)$ (рис. 6) зависящего от времени электропроводности $\Delta\rho(t)$ при $H = 15 \text{ кЭ}$ и $\theta = 0$ (360°) (кривая 2 на вставке к рис. 5) выделена угловая зависимость анизотропии поперечного магнитосопротивления $\text{AMR}^\perp(\theta)$ в зависимости от номера цикла. На вставке к рис. 6 (левая ось) символами приведены угловые зависимости $\text{AMR}^\perp(\theta)$ для первых трех ($N = 1-3$) и последнего ($N = 13$) циклов. Видно резкое уменьшение $\text{AMR}^\perp(N)$ после первого цикла и слабое изменение этой величины при $N > 3$. Угловая зависимость $\text{AMR}^\perp(\theta)$ удовлетворительно описывается (сплошные линии на вставке к рис. 6) энергией обменной анизотропии $E \propto -K \cos \theta$ [1, 2]:

$$\begin{aligned} \text{AMR}^\perp(\theta) &= \text{AMR}^\perp(N, \theta = 180^\circ)(1 - \cos \theta) = \\ &= 2\text{AMR}^\perp(N, \theta = 180^\circ) \sin^2(\theta/2), \end{aligned} \quad (10)$$

где $\text{AMR}^\perp(N, \theta = 180^\circ)$ — поперечная анизотропия магнитосопротивления при $\theta = 180^\circ$ и значении N , θ — угол отклонения магнитного поля от направления поля обменного смещения.

В данной работе изучено поперечное магнитосопротивление, когда направления тока и магнитного поля были взаимно перпендикулярны. В этом случае величина $\text{AMR}^\perp(\theta)$ имеет минимальное значение при $\theta = 0$, максимальное — при $\theta = 180^\circ$. В работе [25] приведены экспериментальные данные угловой зависимости продольного магнитосопротивления (ток и поле направлены в плоскости пленки) для слоистой структуры Co/CoO . Данные работы [25] для продольной анизотропии магнитосопротивления хорошо описываются выражением

$$\begin{aligned} \text{AMR}^\parallel(\theta) &= [\text{AMR}^\parallel(\theta = 0)](1 + \cos \theta) = \\ &= 2[\text{AMR}^\parallel(\theta = 0)] \cos^2(\theta/2). \end{aligned} \quad (11)$$

В этом случае продольная анизотропия магнитосопротивления $\text{AMR}^\parallel_{an}(\theta)$ имеет минимальное значение при $\theta = 180^\circ$, а максимальное — при $\theta = 0$.

Анизотропия поперечного магнитосопротивления $\text{AMR}^\perp(\theta = 180^\circ)$ убывает (символы 1 на вставке к рис. 6) с увеличением циклических изменений и при $N > 5$ ($t > 3 \cdot 10^3 \text{ с}$) в пределах точности наших измерений остается постоянной. Временная зависимость $\text{AMR}^\perp(t, \theta = 180^\circ)$ удовлетворительно описывается выражением

$$\text{AMR}^\perp(t, \theta = 180^\circ) = 13.8 - 7.0[1 - \exp(-t/\tau_2)] \quad (12)$$

при $\tau_2 \approx 500 \text{ с}$ (символы — эксперимент, линия 1 — расчет, см. вставку к рис. 6). Время приведено в единицах длительности цикла для сопоставления времени с номером цикла $N = t/\tau_{cycl}$.

«Анизотропия» электропроводности

$$\Delta\rho_{an}^{cycl}(N) = \rho_{max} - \rho_{min}$$

резко уменьшается за время $t \approx 3 \cdot 10^3 \text{ с}$ ($N \leq 5$) как при циклическом изменении магнитного поля (см. рис. 1), так и при вращении образца, $\Delta\rho_{an}^{rot}(t, N)$ (см. выражение (9) и вставку на рис. 5). Далее они остаются постоянными. Такое поведение анизотропий как продольного магнитосопротивления $\text{AMR}^\perp(t)$, так и электропроводности, $\Delta\rho_{an}^{cycl}(t, N)$ и $\Delta\rho_{an}^{rot}(t, N)$, показывает, что намагниченность ФМ-частицы уменьшается за время $t \approx 3 \cdot 10^3 \text{ с}$ ($N \leq 5$);

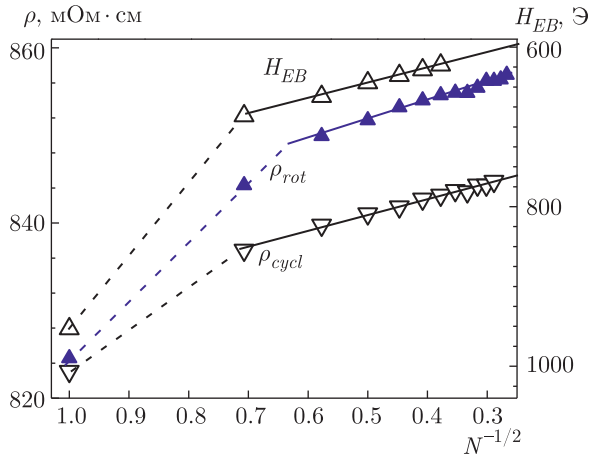


Рис. 7. Эффекты тренировки поля обменного смещения H_{EB} [15] и электросопротивления при циклическом намагничивании и вращении. Поликристалл $\text{GdBaCo}_2\text{O}_{5.52}$ охлажден от 300 до 77 К при $H = 15$ кЭ

далее при циклических изменениях магнитного состояния в течение времени $t \approx 5 \cdot 10^3$ с намагниченность не меняется ($N \leq 13$).

После 11 циклов изменений магнитного поля ± 15 кЭ сопротивление поликристалла $\text{GdBaCo}_2\text{O}_{5.52}$ (см. рис. 1) оставалось постоянным в течение времени измерений $t_{meas} \approx 1.2 \cdot 10^4$ с при $H = 0$. Такое поведение $\rho(t)$ показывает, что время релаксации ФМ-частиц во много раз больше времени измерений: $\tau \gg t_{meas} \approx 1.2 \cdot 10^4$ с.

Обычно связь между H_{EB} и N при эффекте тренировки задается известным эмпирическим выражением при $N > 1$ или $N > 2$ [14]:

$$H_{EB}(N) = H_{EB}^{eq} + K_H/N^{1/2}, \quad (13)$$

где H_{EB}^{eq} — равновесное значение H_{EB} при бесконечном цикле намагничивания, K_H — некоторая постоянная величина. Для установления аналогии между эффектами тренировки электросопротивления и поля обменного смещения H_{EB} временные зависимости электросопротивления при циклическом изменении магнитного поля (см. рис. 4) и вращении образца (см. рис. 5) изображены на рис. 7 степенным соотношением (13). Видно, что эффекты тренировки поля обменного смещения H_{EB} [15] и электросопротивления имеют одинаковый характер: они резко изменяются после первого цикла, а при последующих циклах описываются известным эмпирическим выражением [14]

$$\rho_{cycl}(N), \rho_{rot}(N) \propto N^{-1/2}$$

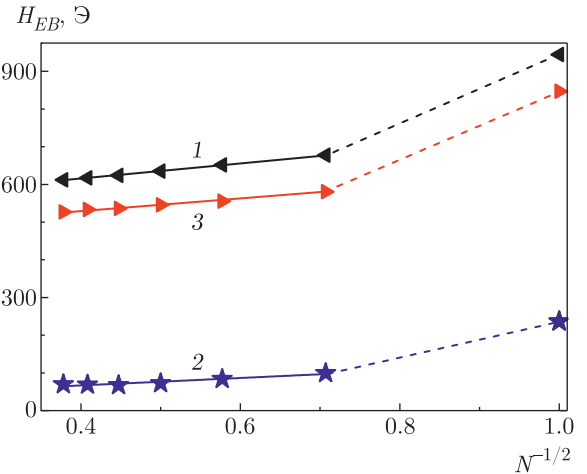


Рис. 8. Эффекты тренировки поля обменного смещения H_{EB} неразмагниченного (1), размагниченного при $T = 270$ К $> T_N$ (2) и намагниченного в поле 50 кЭ (3) поликристалла $\text{GdBaCo}_2\text{O}_{5.52}$ (см. текст)

при $N > 1$ или $N > 2$. Одинаковый характер поведения $\rho(N)$ и $H_{EB}(N)$ показывает, что они являются аналогами H_{EB} , а причиной эффекта тренировки электросопротивления и H_{EB} являются одни и те же механизмы.

В работе [15] предполагалось, что среда неоднородна и в ней имеются мелкие (однодоменные) и крупные (многодоменные) ФМ-частицы. Природа первого типа эффекта тренировки (резкое уменьшение $M(t) \propto H_{EB}(t)$ после первого цикла и отклонение $H_{EB}(N)$ от известного эмпирического соотношения $H_{EB}(N) \propto N^{-1/2}$) объяснялось превращением крупных ФМ-частиц в многодоменное состояние и размагничиванием их при циклическом изменении магнитного поля. Для проверки этого предположения проведены измерения эффекта тренировки поля обменного смещения H_{EB} поликристалла $\text{GdBaCo}_2\text{O}_{5.52}$ в магнитном поле ± 15 кЭ без процесса и с процессом размагничивания. В первом случае образец, как обычно, охлаждался при $H = 15$ кЭ от 300 до 77 К (символы 1 на рис. 8). Во втором случае при $T_N < T = 270$ К $< T_C$ образец размагничивался циклическим уменьшением напряженности и изменением знака магнитного поля в течение примерно 30 мин от 15 кЭ до $H \approx 0$ и $M \approx 0$ (символы 2 на рис. 8). Видно, что в размагниченном образце величины H_{EB} уменьшаются почти на порядок. Далее размагниченный образец был намагничен (при 77 К) в магнитном поле 50 кЭ и измерялся эффект тренировки H_{EB} (символы 3 на рис. 8). Значения H_{EB} увеличились, но были меньше примерно на 100 Э от

значений H_{EB} исходного неразмагниченного образца. Видно, что эффекты тренировки H_{EB} описываются эмпирическим выражением (13).

Предполагаем, что при охлаждении в поле 15 кЭ образуются FM-частицы разных размеров — мелкие однодоменные и крупные многодоменные — и все они вызывают обменное смещение (символы 1 на рис. 8). При охлаждении ниже T_N при $H = 0$ крупные размагниченные FM-частицы с $M = 0$ не создают обменного смещения. Однодоменные FM-частицы при $H \approx 0$ выстраиваются в противоположных направлениях, создают H_{EB} разного знака и также не создают сдвига петли гистерезиса ниже T_N , что объясняет малые значения H_{EB} (символы 2 на рис. 8). Циклическое перемагничивание в поле 15 кЭ, по-видимому, не может их разъединить. Только в магнитном поле 50 кЭ они разъединяются. Предполагаем, что уменьшение H_{EB} до 100 Э связано с размагничиванием крупных многодоменных FM-частиц, и очевидно, что они не ответственны за резкое уменьшение H_{EB} после первого цикла.

В большинстве теорий по обменному смещению считается, что эффект тренировки обусловлен нестабильностью AFM-подсистемы [5–10, 13]. Известное выражение для двухслойных FM–AFM-структур [3, 9, 10],

$$H_{EB} = -J \frac{S_{AF} S_{FM}}{t_{FM} M_{FM}}, \quad (14)$$

описывает зависимость поля смещения от обменной связи J между намагниченностями FM-слоя (S_{FM}) и интерфейса AFM/FM (S_{AF}), t_{FM} и M_{FM} — соответственно толщина и намагниченность насыщения FM-слоя. Поскольку FM-слой гетероструктуры AFM/FM насыщается после каждой петли, обычно предполагается, что последовательное уменьшение магнитного момента интерфейса может происходить только из-за AFM-составляющей. Хотя этот феноменологический подход не затрагивает микроскопического происхождения намагниченности интерфейса, такая запись обменного смещения предполагает, что тренировочный эффект может происходить только от обучения S_{AF} [9].

Авторы работ [1, 2] для объяснения своей модели рассматривали изолированную однодоменную сферическую FM-частицу в AFM-оболочке. В этом отношении наш эксперимент соответствует этой модели: AFM-среда, FM-частицы размером 3–4 нм на удалении 20 нм [22]. Обменное взаимодействие между атомами, расположенными по разные стороны границы фаз, при охлаждении в магнитном поле ниже T_N вызывает корреляцию спинов FM-частиц

и AFM-матрицы вдоль направления магнитного поля. Происходит закрепление (пиннинг) намагниченности в интерфейсе FM/AFM, которое действует как некоторое эффективное поле, что вызывает смещение петли гистерезиса [2]. Обменное поле смещения в этой модели рассматривается как баланс между зеемановской энергией FM-частиц и поверхностной энергией обменного взаимодействия интерфейса [29]:

$$N_V g \mu_B H_{EB} = -\frac{N_i J_i m_i}{g \mu_B}, \quad (15)$$

где N_V и N_i — число спинов внутри соответственно объема FM-слоя и неупорядоченной AFM-оболочки, J_i — постоянная обмена, m_i — намагниченность интерфейса, μ_B — магнетон Бора, g — гиромагнитный фактор. Выражение (14) для двухслойных структур FM–AFM легко восстанавливается путем внесения соответствующих замен в выражении (15), например, $N_i/N_V \rightarrow a/t_{FM}$, где a — параметр решетки [29]. Из выражения (15) очевидно, что эффект тренировки может происходить вследствие нестабильности как FM-, так и AFM-подсистемы. Видно также, что уменьшение числа спинов N_V внутри объема FM-слоя уменьшает H_{EB} .

Неель указывал, что в малых невзаимодействующих однодоменных частицах время релаксации намагниченности зависит от их объема и необходимо учитывать спонтанные вращения намагниченности из-за тепловых флуктуаций, которые вызывают своего рода магнитное броуновское движение [18]. Однодоменные частицы в целом очень похожи на парамагнитный атом, имеющий большой магнитный момент. Чтобы показать сходство и различие, Бин назвал их «суперпарамагнетиками» [30]. После выключения магнитного поля остаточная намагниченность $M(t)$ однодоменных частиц уменьшается со временем по экспоненциальному закону [18]:

$$M(t) = M(0) \exp(-t/\tau), \quad (16)$$

где $M(0)$ — начальное значение намагниченности. Время магнитной релаксации τ однодоменных частиц, как установил также Неель, следует закону Аррениуса и увеличивается с понижением температуры [18]:

$$\tau = \tau_0 \exp(K_{an} V / kT), \quad (17)$$

где предэкспоненциальный множитель $\tau_0 \approx 10^{-9}$ с — время спонтанных изменений намагниченности из-за тепловых флуктуаций [30], V — объем частицы и K_{an} — плотность энергии магнитной анизотропии. Время релаксации сильно зависит от объема частицы. В зависимости от

отношения K_{an}/kT время магнитной релаксации однодоменной частицы может меняться от нескольких секунд до нескольких лет [18].

В первых работах 1956–57 гг. авторы открытия обменного смещения в структуре Co/CoO для объяснения своей модели рассматривали однодоменную частицу как источник создания маленького постоянного магнетика [1, 2]. Впоследствии были обнаружены обменное смещение во многих соединениях и сплавах, не похожих на структуру Co/CoO [3, 31]. Майклджен в обзорной статье 1962 г. [32] уже не подчеркивал однодоменность ФМ-частиц. В работах [3–13] и в других известных нам работах в настоящее время нигде не используется однодоменность ФМ-частиц. Полагаем, что причина связана с временным масштабом измерительного процесса [33]. В большинстве работ по обменному смещению обычно осуществляется регистрация поля H_{EB} после первого цикла его изменения с температурой или от поля охлаждения и т. п. [3–13]. В таких работах однодоменность ФМ-частиц (т. е. временной масштаб измерительного процесса и релаксация намагниченности ФМ-частицы в течение определенного времени) не важна. Обнаружение обменного смещения во многих соединениях и сплавах при обычных временах измерений $t_{meas} \sim 10^2\text{--}10^3$ с показывает, что время релаксации намагниченности ФМ-частиц $\tau \geq t_{meas}$. При достаточно быстрых измерениях, когда переходы между минимумами энергии не успевают произойти, на кривой перемагничивания может наблюдаться гистерезис [33], и возможна регистрация обменного смещения в короткоживущих суперпарамагнитных частицах. Однодоменность и времена релаксации важны, когда изучаются длительные процессы, например, при исследованиях эффекта тренировки.

После нескольких ($N \sim 4\text{--}5$, или $t > 3 \cdot 10^3$ с) циклических изменений магнитного состояния образца анизотропии электросопротивления $\Delta\rho_{an}^{rot}(t, N)$ и магнитосопротивления $AMR^\perp(t, N)$ (см. вставки на рис. 5 и 6), а также анизотропия электросопротивления $\Delta\rho_{an}^{cycl}(t, N)$ (см. рис. 1) уменьшаются и принимают постоянные значения. При этом $\rho(t) = \text{const}$ при $H = 0$ за время измерений $t_{meas} \sim 10^4$ с. Предполагаем, что при циклических изменениях магнитного состояния происходит размагничивание ФМ-частиц малого объема. Кобальтит $GdBaCo_2O_{5.52}$ переходит из одного неравновесного состояния ($\tau \sim 500$ с) в другое (стационарное или неравновесное) состояние с $\tau \gg t_{meas} \sim 10^4$ с.

Впервые в слоистых кобальтитах смещенная петля гистерезиса намагниченности и однонаправ-

ленная анизотропия электросопротивления были обнаружены в поликристаллах и монокристаллах $EuBaCo_2O_{5.5}$ [17]. Предполагалось, что неравновесное состояние и обменное смещение являются случайными явлениями. Однако в приготовленных на воздухе образцах $RBaCo_2O_{5.5+\delta}$, где $R = Gd, Tb$, эффект однонаправленной анизотропии не был обнаружен [17]. Позже было установлено, что обменное смещение возникает при отжиге $GdBaCo_2O_{5+\delta}$ в кислороде в дырочном ($\delta > 0.5$) кобальтите при наличии около 3–4% ионов Co^{4+} в основной матрице из ионов Co^{3+} и исчезает при отжиге в атмосфере аргона в электронном ($\delta < 0.5$) кобальтите [22]. Известно, что в кобальтитах $R_{1-x}Me_xCoO_3$, где Me — двухвалентный металл, двойной обмен между ионами Co^{3+} и Co^{4+} ведет к образованию ФМ-кластеров и что эти случайно легированные оксиды создают ансамбль ФМ-областей. Предполагалось, что и в слоистых кобальтитах обменное смещение также обусловлено фазовым расслоением на ФМ-кластеры в АФМ-матрице из-за двойного обмена между ионами Co^{3+} и Co^{4+} [22]. Влияние избытка кислорода на фазовое расслоение в слоистых кобальтитах отмечалось и ранее [20]. Из исследований влияния поля охлаждения H_{cool} на обменное смещение H_{EB} и из намагниченности ФМ-частиц m_{FM} после первого цикла (нижняя вставка на рис. 3) в работе [22] был оценен магнитный момент ФМ-частиц $\mu_{FM} \approx (1\text{--}2) \cdot 10^3 \mu_B$, их размер $d_{FM} \approx 3\text{--}4$ нм и расстояние между ними примерно 20 нм. Неявно предполагалось, что все частицы имеют одинаковый размер. По-видимому, существует целый набор разного размера ФМ-частиц, и они по-разному влияют на обменное смещение.

Предполагаем, что результаты эффекта тренировки связаны с существованием в исследованном поликристалле $GdBaCo_2O_{5.52}$ однодоменных частиц, время размагничивания которых изменяется в больших пределах от $\tau \sim 500$ с до $\tau \gg 10^4$ с. Нам неизвестны значения кристаллографической анизотропии $GdBaCo_2O_{5.52}$. Вследствие своей слоистости, это соединение обладает высокой анизотропией, и можно предположить, что значения $K_{an} \sim 10^6\text{--}10^7$ эрг/см³ являются разумными. Оценки по выражениям (16), (17) показывают, что время релаксации намагниченности при размерах ФМ-частицы от 2 до 10 нм может меняться от нескольких секунд до лет в широком интервале $K_{an} \sim 10^6\text{--}10^7$ эрг/см³. Неравновесное состояние слоистых кобальтитов, зависимость их намагниченности, электросопротивления от времени [15, 17, 22] связаны с влиянием мелких ФМ-частиц. Крупные

ФМ-частицы с $\tau \gg 10^4$ с ответственны за медленные изменения намагниченности, электросопротивления, H_{EB} и других параметров.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Для изолированной однодоменной сферической ФМ-частицы в АФМ-окружении эффект тренировки может происходить вследствие неустойчивости как ФМ-, так и АФМ-подсистемы. За изменением поля обменного смещения H_{EB} в эффекте тренировки ответственно не число циклов, а суммарное время действия циклов. Эффект тренировки электросопротивления при циклическом изменении магнитного поля, $\rho_{cycl}(N)$, и вращении образца, $\rho_{rot}(N)$, в обменно-смещенном кобальтите $GdBaCo_2O_{5.52}$ является аналогом эффекта тренировки поля обменного смещения $H_{EB}(N)$. Эти эффекты описываются известным эмпирическим выражением

$$H_{EB}(N) \propto \Delta\rho_{cycl}(N) \propto \Delta\rho_{rot}(N) \propto N^{-1/2},$$

$$N > 1(2).$$

Поведение этих величин обусловлено уменьшением намагниченности ФМ-частиц. Результаты объясняются влиянием двух механизмов. В первом намагниченность уменьшается быстро, во втором — медленно.

Предполагается, что среда неоднородна, что имеются крупные (многодоменные) и однодоменные ФМ-частицы разного размера. Крупные (многодоменные) ФМ-частицы не ответственны за эффект тренировки первого типа (резкое уменьшение поля обменного смещения после первого цикла). Природа первого типа тренировочного эффекта объясняется близостью энергии мелких однодоменных частиц $K_{an}V$ к тепловой энергии kT , где K_{an} — плотность энергии магнитной анизотропии.

Благодарности. Авторы благодарны А. В. Колеву за проведение магнитных измерений.

Финансирование. Работа выполнена в рамках государственного задания Федерального агентства научных организаций России (тема «Спин» № АААА-А18-118020290104-2) и при частичной поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект № 20-02-00461).

ЛИТЕРАТУРА

1. W. H. Meiklejohn and C. P. Bean, Phys. Rev. **102**, 1413 (1956).

2. W. H. Meiklejohn and C. P. Bean, Phys. Rev. **105**, 904 (1957).
3. A. E. Berkowitz and K. Takano, J. Magn. Magn. Mater. **200**, 552 (1999).
4. J. Nogues and I. K. Schuller, J. Magn. Magn. Mater. **192**, 203 (1999).
5. R. L. Stamps, J. Phys. D **33**, R247 (2000).
6. M. Kiwi, J. Magn. Magn. Mater. **234**, 584 (2001).
7. F. Radu and H. Zabel, Springer Tracts Mod. Phys. **227**, 97 (2008).
8. K. Giri and T. K. Nath, J. Nanosci. and Nanotechn. **14**, 1209 (2014).
9. C. Binek, Phys. Rev. B **70**, 014421 (2004).
10. A. Hochstrat, Ch. Binek, and W. Kleemann, Phys. Rev. B **65**, 092409 (2002).
11. A. Hoffmann, Phys. Rev. Lett. **93**, 097203 (2004).
12. P. Miltényi, M. Gierlings, J. Keller et al., Phys. Rev. Lett. **84**, 4224 (2000).
13. A. P. Malozemoff, Phys. Rev. B **37**, 7673 (1988); J. Appl. Phys. **63**, 3874 (1988).
14. D. Paccard, C. Schlenker, O. Massenet et al., Phys. Stat. Solidi (b) **16**, 301 (1966).
15. Н. И. Солин, С. В. Наумов, С. В. Телегин, ЖЭТФ **155**, 321 (2019).
16. К. Б. Власов, Н. В. Волкенштейн, С. В. Вонсовский и др., Изв. АН СССР, сер. физ. **28**, 423 (1964).
17. Н. И. Солин, С. В. Наумов, С. В. Телегин и др., Письма в ЖЭТФ **104**, 44 (2016).
18. L. Neel, Rev. Mod. Phys. **25**, 293 (1953); Ann. Geophys. **5**, 99 (1949).
19. A. Maignan, C. Martin, D. Pelloquin et al., J. Sol. St. Chem. **142**, 247 (1999).
20. A. A. Taskin, A. N. Lavrov, and Yoichi Ando, Phys. Rev. B **71**, 134414 (2005).
21. M. P. Pechini, US Patent No. 3330697 (1967).
22. Н. И. Солин, С. В. Наумов, С. В. Телегин и др., ЖЭТФ **152**, 1286 (2017).
23. M. Patra, S. Majumdar, and S. Giri, J. Phys.: Condens. Matter **21**, 486003 (2009).
24. M. Patra, S. Majumdar, and S. Giri, Eur. Phys. Lett. **87**, 58002 (2009).

25. B. H. Miller and E. Dan Dahlberg, *Appl. Phys. Lett.* **69**, 393216 (1996).
26. C. Leighton, M. Song, J. Nogués et al., *J. Appl. Phys.* **88**, 344 (2000).
27. H. Fulara, S. Chaudhary, and S. C. Kashyap, *Appl. Phys. Lett.* **101**, 142408 (2012).
28. Н. И. Солин, С. В. Наумов, В. А. Казанцев, *ЖЭТФ* **157**, 824 (2020).
29. D. Niebieskikwiat and M. B. Salamon, *Phys. Rev. B* **72**, 174422 (2005).
30. C. P. Bean, *J. Appl. Phys.* **26**, 1381 (1955).
31. J. S. Kouvel, *J. Phys. Chem. Sol.* **16**, 107 (1960).
32. W. H. Meiklejohn, *J. Appl. Phys.* **33**, 1328 (1962).
33. А. К. Звездин, К. А. Звездин, *Природа* №9, 8 (2001).