

بررسی رفتار دینامیک اسپینی آلیاژهای حافظه‌پذیر فرومغناطیس $\text{Ni}_{47}\text{Mn}_{40}\text{Sn}_{13+x}$

جنتی، سعید؛ کاملی، پرویز؛ قطبی ورزنه، علی؛ رنجبر، مهدی؛ سلامتی، هادی

ایران، اصفهان ۸۴۱۵۶-۸۳۱۱۱، دانشگاه صنعتی اصفهان، دانشکده فیزیک

چکیده

در این مقاله اثر قلع اضافه در آلیاژهای حافظه‌پذیر فرومغناطیس ($\text{Ni}_{47}\text{Mn}_{40}\text{Sn}_{13+x}$ ($x=0, 0.5, 1$)) مورد مطالعه قرار گرفته است. آنالیزهای مختلف از نمونه‌ها گرفته شد و ویژگی‌های ساختاری، مغناطیسی و دینامیک اسپینی آنها مورد بررسی قرار گرفت. با توجه به الگوی پراش پرتو ایکس، افزایش مقدار قلع باعث افزایش پارامتر شبکه می‌شود که به دلیل حضور قلع در بین جایگاه‌های شبکه است. بررسی پذیرفتاری مغناطیسی نمونه‌ها نشان می‌دهد که دمای گذار ساختاری با افزایش مقدار قلع، کاهش می‌یابد و رفتار شیشه اسپینی خوشه‌ای در دماهای پایین‌تر از دمای گذار ساختاری در نمونه‌ها مشاهده شد.

Investigation spin dynamics of $\text{Ni}_{47}\text{Mn}_{40}\text{Sn}_{13+x}$ ferromagnetic shape memory alloy

Jannati, Saeid; Kameli, Parviz; Ghotbi Varzaneh, Ali; Ranjbar, Mehdi; Salamati, Hadi

Department of Physics, Isfahan University of Technology, Isfahan 84156-83111, Iran

Abstract

In this paper the effect of excess Sn in $\text{Ni}_{47}\text{Mn}_{40}\text{Sn}_{13+x}$ ($x=0, 0.5, 1$) ferromagnetic shape memory alloys has been studied. Various analysis carried out on samples and structural, magnetic and spin dynamics properties of samples were investigated. According to X-ray diffraction pattern, with the increasing of Sn Content the lattice parameter increases which is attributed to the occupation of interstitial sites by excess Sn. Magnetic susceptibility of the samples shows that the structural transition temperature decreases with excess of Sn. The cluster spin glass behavior was observed in samples below the structural transition temperature.

PACS No. 75

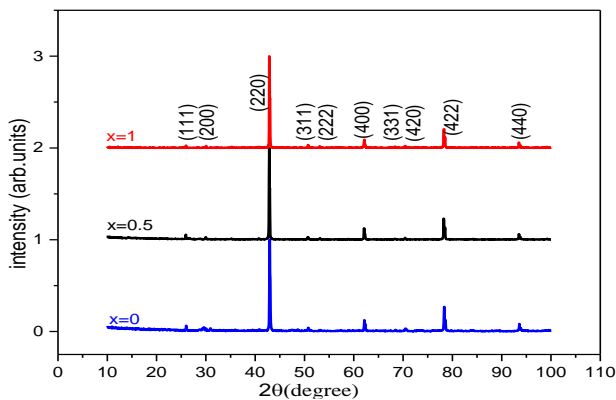
حافظه‌پذیری و مغناطوگرمایی از جمله ویژگی‌های آلیاژهای حافظه‌پذیر فرومغناطیس می‌باشد. ترکیبات حافظه‌پذیر موادی هستند که می‌توانند پس از یک تغییر شکل بزرگ، شکل اولیه خود را بازیابی کنند. اثرات حافظه‌پذیری و مغناطوگرمایی حوالی دمای گذار رخ می‌دهد و به همین دلیل کنترل دمای گذار ساختاری اهمیت زیادی دارد [۲، ۳]. در این پژوهش اثر قلع اضافه در آلیاژ $\text{Ni}_{47}\text{Mn}_{40}\text{Sn}_{13+x}$ و رفتار دینامیک اسپینی آن‌ها مورد بررسی قرار گرفته است.

مقدمه

آلیاژهای هویسلر در سال ۱۹۰۳ توسط فریتز هویسلر کشف شدند. آلیاژهای حافظه‌پذیر فرومغناطیس دسته‌ای از آلیاژهای هویسلر می‌باشند. این ترکیبات به دو دسته نیم‌هویسلر: با فرمول شیمیایی XYZ و تمام‌هویسلر: با فرمول شیمیایی X_2YZ تقسیم می‌شوند که X و Y از فلزات واسطه و Z از گروه ۳، ۴ و ۵ جدول تناوبی است [۱]. مشخصه اساسی این آلیاژها گذار فاز ساختاری می‌باشد که با سرد کردن نمونه گذار از فاز آستنیت (با تقارن بالا) به فاز مارتنزیت (با تقارن کمتر) رخ می‌دهد [۲]. اثر

آزمایش

می یابد [۴]. این رفتار در نمونه‌ها با بوراضافه (B) اضافه نیز مشاهده شده است [۵].



شکل ۱: الگوی پراش پرتو ایکس نمونه‌های $x = 0, 0.5, 1$

جدول ۱: نتایج حاصل از پراش پرتو ایکس و تحلیل ریتولد

| ترکیب | پارامتر شبکه (آنگستروم) | c/a |
|---------------------------|-------------------------|-------|
| $Ni_{47}Mn_{40}Sn_{13}$ | ۵/۹۸۱۶ | ۸/۰۲ |
| $Ni_{47}Mn_{40}Sn_{13.5}$ | ۵/۹۸۹۶ | ۸/۰۰ |
| $Ni_{47}Mn_{40}Sn_{14}$ | ۵/۹۹۲۲ | ۷/۹۸ |

ویژگی‌های مغناطیسی

برای مطالعه اثر قلع اضافه بر ویژگی‌های مغناطیسی نمونه‌ها، پذیرفتاری مغناطیسی در حالت سرد شدن و گرم شدن اندازه‌گیری شد. شکل ۲ مربوط به پذیرفتاری نمونه‌ها و شکل ۲-الف مربوط به پذیرفتاری مغناطیسی نمونه $x=0$ است که در آن T_c دمای کوری فاز آستنیت، M_s دمای شروع فاز مارتنزیت، M_f دمای پایان فاز مارتنزیت، A_s دمای شروع فاز آستنیت و A_f دمای پایان فاز آستنیت می‌باشد. در دماهای بالای T_c نمونه در فاز پارامغناطیس آستنیت است و با کاهش دما از پارامغناطیس آستنیت به فرومغناطیس آستنیت گذار فاز انجام می‌شود. با کاهش بیشتر دما نمونه در M_s وارد فاز آنتی فرومغناطیس مارتنزیت می‌شود و در M_f کاملاً در فاز مارتنزیت قرار می‌گیرد. در ادامه با گرم شدن، نمونه در A_s وارد فاز آستنیت شده و در A_f گذار کامل می‌شود [۶]. لازم به ذکر است که وجود پسماند حرارتی در منحنی‌های پذیرفتاری در ناحیه‌ی گذار ساختاری از ویژگی‌های گذار فازهای مرتبه اول می‌باشد که گذار از فاز آستنیت به مارتنزیت نیز یک گذار فاز ساختاری است.

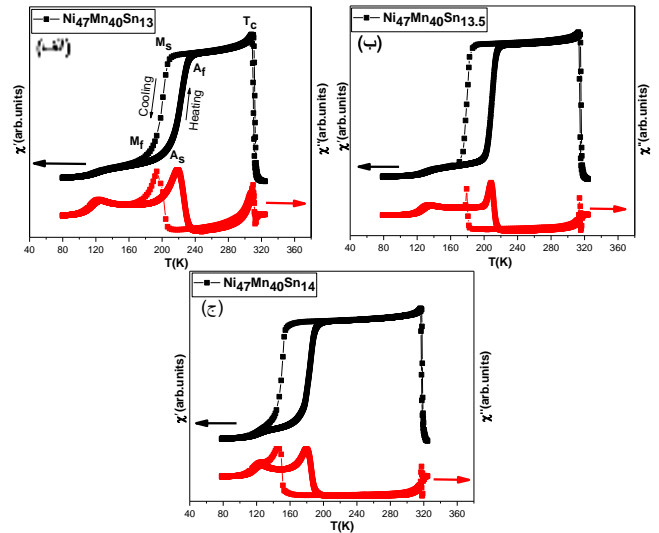
در این تحقیق نمونه‌های $Ni_{47}Mn_{40}Sn_{13+x}$ با $x = 0, 0.5, 1$ به روش آلیاژسازی مکانیکی ساخته شد. با استفاده از آسیاب سیاره‌ای عملیات آسیاب‌کاری بر روی پودر انجام شد. در این پروژه نسبت وزنی گلوله به پودر موجود در کاپ‌ها ۱۰ به ۱، زمان آسیاب‌کاری ۳۰ ساعت، محیط آسیاب کاری آرگون و سرعت آسیاب‌کاری ۵۰۰ دور بر دقیقه انتخاب شد. سپس با استفاده از پرس هیدرولیک نمونه‌های پودری به نمونه‌های حجمی تبدیل شد. سپس نمونه‌ها داخل لوله‌ای از جنس کوارتز تحت خلأ قرار داده شد و برای رسیدن به همگنی و نظم بلوری بهتر در دمای ۹۵۰ درجه سانتی-گراد به مدت ۱۶ ساعت بازپخت شده و جهت حفظ نظم بلوری ایجاد شده، تحت فرایند سرد سازی سریع در مخلوط آب و یخ قرار گرفتند. الگوی پراش پرتو ایکس توسط دستگاه پراش پرتو ایکس شرکت Asenware مدل AW-XDM300 صورت گرفت. پذیرفتاری مغناطیسی AC نمونه‌ها با استفاده از دستگاه پذیرفتاری-سنج مدل ۷۰۰۰ شرکت Lakeshore اندازه‌گیری شد.

نتایج و بحث

ویژگی‌های ساختاری

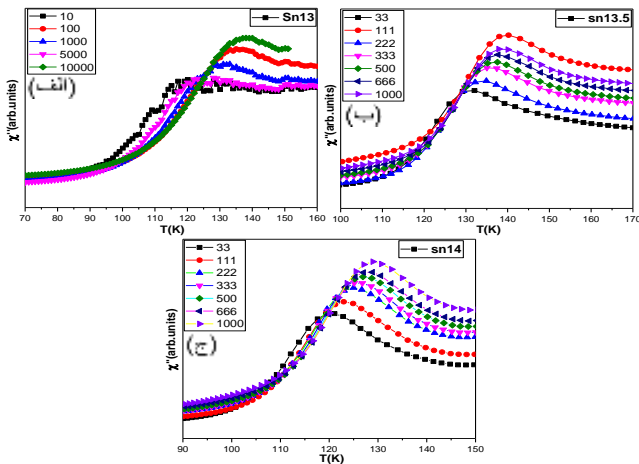
الگوی پراش پرتو ایکس برای بررسی فرایند تشکیل فاز و ویژگی‌های ساختاری از نمونه‌ها گرفته شد. شکل ۱ الگوی پراش پرتو ایکس نمونه‌های $Ni_{47}Mn_{40}Sn_{13+x}$ با $x = 0, 0.5, 1$ را نشان می‌دهد. همان طور که در شکل مشاهده می‌شود همه نمونه‌ها تقریباً تک فاز هستند و اثری از فازهای ثانویه یا فاز مارتنزیت در آنها مشاهده نمی‌شود. برای اطمینان از تک فاز بودن نمونه‌ها و به دست آوردن پارامترهای شبکه، تحلیل ریتولد انجام شد. جدول ۱ نتایج حاصل از پراش پرتو ایکس و تحلیل ریتولد را نشان می‌دهد. همان طور که مشاهده می‌شود با افزایش قلع پارامتر شبکه افزایش یافته است که می‌تواند ناشی از حضور قلع در بین جایگاه‌های شبکه باشد. مطالعات نشان می‌دهند که در نمونه‌های استوکیومتری یک رابطه خطی بین پارامتر شبکه و غلظت قلع وجود دارد به نحوی که با افزایش قلع پارامتر شبکه نیز افزایش

به دمای قفل شدگی/بخزدگی مربوط می‌شود. قله منحنی‌ها با افزایش بسامد به سمت دماهای بالاتر جابه‌جا شده و مقدار پذیرفتاری مغناطیسی افزایش یافته است. با افزایش بسامد اعمالی سرعت تغییر جهت میدان AC اعمالی افزایش یافته و به همین دلیل گشتاورهای مغناطیسی به سختی می‌توانند میدان را دنبال کنند و با آن هم جهت شوند. در نتیجه برای تغییر جهت سریع‌تر، گشتاورها نیاز به انرژی گرمایی بیشتری دارند و باعث بالاتر رفتن دمای قفل شدگی/بخزدگی می‌شود. این رفتار مشخصه سیستم‌های ابرپارامغناطیس و شیشه‌ی اسپینی است.



شکل ۲: تغییرات پذیرفتاری مغناطیسی با دما: الف) $x=0$ ب) $x=0.5$ ج) $x=1$

همان طور که در شکل ۲ مشاهده می‌شود با افزایش مقدار قلع دمای گذار ساختاری کاهش یافته است، در حالی که دمای کوری تقریباً ثابت است. به نظر می‌رسد دمای گذار ساختاری با پارامتر شبکه نسبت عکس و با مقدار e/a نسبت مستقیم دارد [۷]. همانطور که در جدول ۱ مشاهده شد، با افزایش قلع پارامتر شبکه نمونه‌ها افزایش یافته است. پس تغییرات دمای گذار ساختاری را می‌توان به تغییرات پارامتر شبکه نسبت داد. همچنین با کاهش مقدار e/a دمای گذار ساختاری کاهش یافته است. همان طور که از شکل ۲ مشخص است در دماهای پایین‌تر از دمای گذار مارتنزیتی قله‌ای مشاهده می‌شود. وجود این قله معمولاً به رفتار ابرپارامغناطیس/شیشه-اسپینی مربوط می‌شود که در ادامه به بررسی آن پرداخته می‌شود. پذیرفتاری مغناطیسی AC به عنوان تابعی از دما و بسامد به منظور بررسی رفتار دینامیک اسپینی نمونه‌ها، اندازه‌گیری شد. شکل ۳ روند تغییرات قسمت موهومی پذیرفتاری مغناطیسی (χ'') نمونه‌ها را برای بسامدهای مختلف نشان می‌دهد. همان طور که مشاهده می‌شود، نمودارهای پذیرفتاری موهومی در همه نمونه‌ها و در تمامی بسامدها دارای یک قله دمایی است که



شکل ۳: تغییرات قسمت موهومی پذیرفتاری مغناطیسی برای نمونه‌های: الف) $x=0$ ب) $x=0.5$ ج) $x=1$ با دما و فرکانس.

نظریه‌های متفاوتی برای بررسی رفتارهای ابرپارامغناطیس و شیشه اسپینی وجود دارد. در این مقاله از سه مدل نیل-براون، وگل-فالچر و توان دینامیکی بحرانی برای بررسی رفتار دینامیکی و تعیین نوع برهم‌کنش‌ها استفاده می‌شود. شکل ۴ بهترین برازش داده‌های پذیرفتاری مغناطیسی برای این سه مدل را نشان می‌دهد. E_a انرژی سد ناهمسانگردی، ZV نمای بحرانی دینامیکی و τ_0 زمان واهلش گشتاور ذره منفرد است. برای تعیین نوع دقیق برهم‌کنش‌ها فاکتور دیگری به نام فاکتور P مورد بررسی قرار می‌گیرد [۸].

تمامی نمونه‌ها با مدل توان دینامیکی بحرانی توافق بهتری دارد. مقدار فاکتور P به دست آمده برای نمونه‌ها از مرتبه ۰/۰۱ می‌باشد. پس می‌توان این گونه نتیجه گرفت که برهم‌کنش موجود در تمام نمونه‌ها در دماهای پایین‌تر از دمای گذار ساختاری از نوع برهم-کنش شیشه اسپینی خوشه‌ای است.

نتیجه‌گیری

اثر قلع اضافه در ترکیب $Ni_{47}Mn_{40}Sn_{13+x}$ با $x = 0, 0.5, 1$ مورد بررسی قرار گرفت. مطالعه نتایج الگوی پراش پرتو ایکس نشان داد که با افزایش مقدار قلع اضافه پارامتر شبکه افزایش می‌یابد. پذیرفتاری مغناطیسی نمونه‌ها نشان می‌دهد که دمای گذار ساختاری با افزایش مقدار قلع اضافه، کاهش می‌یابد که ناشی از افزایش پارامتر شبکه و کاهش مقدار e/a است. بررسی رفتار دینامیکی نمونه‌ها نشان داد که برهم‌کنش موجود در تمام نمونه‌ها در دماهای پایین‌تر از دمای گذار ساختاری از نوع برهم‌کنش شیشه اسپینی خوشه‌ای است.

مرجع‌ها

[۱] T. Graf, C. Felser, and S. S. Parkin, "Simple rules for the understanding of Heusler compounds," *Progress in solid state chemistry*, vol. 39, pp. 1-50, 2011.

[۲] ع. ق. ورزنه، "ساخت و بررسی ویژگی‌های ساختاری و مغناطیسی آلیاژ حافظه‌پذیر فرو مغناطیس $Ni_{47}Mn_{40}Sn_{13}$ نانو ساختار"، دانشکده فیزیک، دانشگاه صنعتی اصفهان ۱۳۹۲.

[۳] A. G. Varzaneh, P. Kameli, V. Zahedi, F. Karimzadeh, and H. Salamati, "Effect of heat treatment on martensitic transformation of $Ni_{47}Mn_{40}Sn_{13}$ ferromagnetic shape memory alloy prepared by mechanical alloying," *Metals and Materials International*, vol. 21, pp. 758-764, 2015.

[۴] ح. هدایتی، "مطالعه اثر تهی جای قلع بر ویژگی‌های ساختاری، مغناطیسی و الکترونیکی آلیاژ حافظه‌پذیر فرومغناطیس $Ni_{47}Mn_{40}Sn_{13}$ "، دانشکده فیزیک، دانشگاه صنعتی اصفهان ۱۳۹۴.

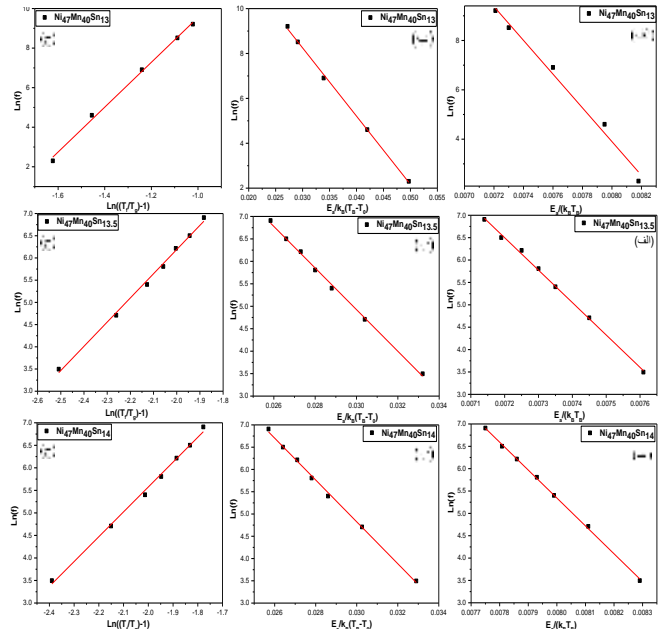
[۵] M. Ramudu, A. S. Kumar, and V. Seshubai, "Influence of boron addition on the microstructure, structural and magnetic properties of Ni 53.5 Mn 26.0 Ga 20.5 alloy," *Intermetallics*, vol. 28, pp. 51-57, 2012.

[۶] E. Pagounis, A. Laptev, M. J. Szczerba, R. Chulist, and M. Laufenberg, "Structural behavior and magnetic properties of a Ni-Mn-Ga single crystal across the martensite/austenite two-phase region," *Acta Materialia*, vol. 89, pp. 32-40, 2015.

[۷] C. Jiang, G. Feng, S. Gong, and H. Xu, "Effect of Ni excess on phase transformation temperatures of NiMnGa alloys," *Materials Science and Engineering: A*, vol. 342, pp. 231-235, 2003.

[۸] D. Zhao, G. Li, S. Wang, L. Ma, C. Zhen, D. Hou, et al., "Tuning exchange bias by Co doping in $Mn_{50}Ni_{41-x}Sn_9Co_x$ melt-spun ribbons," *Journal of Applied Physics*, vol. 116, p. 103910, 2014.

نتایج حاصل از بهترین برازش نمونه‌ها با هر سه مدل و همچنین مقدار به دست آمده برای فاکتور P در جدول ۲ آورده شده است.



شکل ۲: بهترین برازش داده‌ها با سه مدل الف) نیل - براون، ب) وگل - فالچر و ج) توان دینامیکی برای نمونه‌های $x = 0, 0.5, 1$ با دما و فرکانس.

جدول ۲: نتایج به دست آمده از برازش نمونه‌های $x = 0, 0.5, 1$ با استفاده از مدل‌های نیل - براون، وگل - فالچر و توان دینامیکی بحرانی و نتایج بدست

آمده از پارامتر P.

| مدل | پارامتر | $Ni_{47}Mn_{40}Sn_{13}$ | $Ni_{47}Mn_{40}Sn_{13.5}$ | $Ni_{47}Mn_{40}Sn_{14}$ |
|----------------------|---------------|-------------------------|---------------------------|-------------------------|
| نیل-براون | P | ۰/۰۳۷ | ۰/۰۴۶ | ۰/۰۴۳ |
| | T_0 (S) | $1/285 \times 10^{-19}$ | $3/510 \times 10^{-19}$ | $1/006 \times 10^{-19}$ |
| وگل-فالچر | E_a/k_B (k) | $7827/936$ | $7238/068$ | $6238/953$ |
| | T_0 (S) | $6/93 \times 10^{-9}$ | $6/688 \times 10^{-9}$ | $6/12 \times 10^{-9}$ |
| توان دینامیکی بحرانی | E_a/k_B (k) | $291/393$ | $463/261$ | $469/614$ |
| | T_0 (K) | ۱۰۲ | ۱۰۱/۴ | ۹۰/۲ |
| توان دینامیکی بحرانی | T_0 (S) | $3/15 \times 10^{-11}$ | $3/81 \times 10^{-9}$ | $6/13 \times 10^{-8}$ |
| | ZV | ۱۱/۹۹۸ | ۵/۴۴۷ | ۵/۵۱۶ |
| | T_0 (K) | ۱۰۲ | ۱۲۱/۶ | ۱۱۰/۴ |

همان‌طور که مشاهده می‌شود مقدار ZV به دست آمده در بازه‌ی محدوده شیشه اسپینی (۱۲-۸) قرار دارد. با کاهش مقدار ZV برهم‌کنش بین ممان‌های مغناطیسی افزایش می‌یابد [۸]. پس با توجه به مقدار ZV به دست آمده در جدول ۲ با افزایش قلع، برهم-کنش بین ممان‌های مغناطیسی افزایش می‌یابد. مقدار T_0 نیز در