

УДК 537.662.4:669.018.5

## ТЕМПЕРАТУРНАЯ ЗАВИСИМОСТЬ МАГНИТНОЙ ВОСПРИИМЧИВОСТИ ИНТЕРМЕТАЛЛИЧЕСКИХ СОЕДИНЕНИЙ $\text{Ho}_x \text{Y}_{1-x} \text{Fe}_2$ ( $x = 0.1 \div 1$ )

**Ю. И. Авксентьев, С. Д. Антипов, Г. Е. Горюнов, И. Р. Каменских,  
Д. В. Садков, П. Н. Стеценко**

*(кафедра общей физики для естественных факультетов)*

E-mail: stetsen@plms.phys.msu.su

**В работе представлены результаты экспериментальных исследований температурной зависимости восприимчивости квазибинарных соединений  $\text{Ho}_x \text{Y}_{1-x} \text{Fe}_2$  ( $x = 0.1 \div 1$ ) со структурой кубической фазы Лавеса (С15) в интервале температур  $1.5 \div 120$  К. Обнаружено аномальное поведение дифференциальной магнитной восприимчивости для образцов, содержащих атомы Ho. Температура максимума восприимчивости при  $x = 0.28$  соответствует минимальной величине магнитного момента на формульную единицу. Обсуждается физическая природа возникновения таких аномалий.**

### Введение

Интерметаллические соединения редкоземельных металлов с  $3d$  и  $4d$  переходными металлами на протяжении последнего десятилетия являются объектом многочисленных исследований, актуальность которых сохраняется и в настоящее время [1]. В значительной степени она обусловлена стремлением создать магнитные материалы, обладающие высокими значениями намагниченности за счет редкоземельной компоненты и достаточно высокими значениями температуры Кюри за счет  $3d$ -компоненты.

Большое внимание в этих исследованиях уделяется изучению интерметаллических соединений со структурой кубических фаз Лавеса  $\text{RM}_2$ , обладающих кристаллической решеткой С15 (типа  $\text{MgCu}_2$ ). К сожалению, получение высоких значений намагниченности в этих интерметаллидах ограничивается тем, что для тяжелых редкоземельных металлов магнитный момент подрешетки  $3d$ -металла ориентирован антипараллельно магнитному моменту подрешетки редкоземельных металлов, образуя ферримагнитную структуру соединения.

Один из возможных методов значительного повышения магнитного момента соединений  $\text{RM}_2$  был предложен в работе [2], где посредством введения Rh в  $3d$ -подрешетку была реализована антиферромагнитная структура в подрешетке Fe–Rh соединения  $\text{Tb}(\text{Fe}_{1-x}\text{Rh}_x)_2$ . Тем самым была достигнута компенсация ее магнитного момента и значительное (до 50%) увеличение суммарного магнитного момента соединения.

Известно, что бинарное соединение  $\text{YFe}_2$  является ферромагнетиком, а  $\text{HoFe}_2$  — ферримагнетиком с величинами температур Кюри больше  $500^\circ\text{C}$  [3]. С целью выяснения природы магнитного состояния интерметаллического соединения  $\text{YFe}_2$  при замещении в его редкоземельной подрешетке

немагнитных ионов Y магнитными Ho были впервые проведены исследования квазибинарных соединений  $\text{Ho}_x \text{Y}_{1-x} \text{Fe}_2$ .

Поскольку в соединении  $\text{HoFe}_2$  при низких температурах наблюдался спин-переориентационный переход [4–6], в настоящей работе были проведены измерения изотерм намагниченности при температурах  $4.2$  К в полях до  $45$  кЭ и температурной зависимости магнитной восприимчивости в слабом переменном магнитном поле в диапазоне температур  $1.5$ – $110$  К. Проводились также рентгенографические исследования образцов интерметаллических соединений  $\text{Ho}_x \text{Y}_{1-x} \text{Fe}_2$ .

### Образцы и методика измерений

Образцы для измерений изготавливались из следующих исходных материалов: Ho — чистотой 99.7%, Fe — чистотой 99.97% и Y — чистотой 99.98%. Соединения получались плавлением в дуговой печи с нерасходуемым электродом в атмосфере очищенного Ag при неоднократном переплаве. После плавления образцы подвергались гомогенизирующему отжигу на протяжении  $150$  ч при температуре  $900^\circ\text{C}$  в вакууме не выше  $10^{-4}$  Торр при наличии геттера из пористой фольги Ti.

Рентгеноструктурный фазовый анализ полученных соединений проводился при комнатной температуре на дифрактометре «ДРОН-2» на излучении  $\text{Cu-K}\alpha$ . Было установлено, что все образцы являются однофазными и обладают кубической кристаллической решеткой типа С15.

Рассчитанные по экспериментальным дифрактограммам величины параметров решетки хорошо согласуются с данными, приведенными в работе [3]. На рис. 1 представлена зависимость параметра решетки интерметаллических соединений  $\text{Ho}_x \text{Y}_{1-x} \text{Fe}_2$  от содержания в них атомов Ho. Наблюдается монотонное убывание параметра решетки с увеличением концентрации Ho. Были определены также плотности

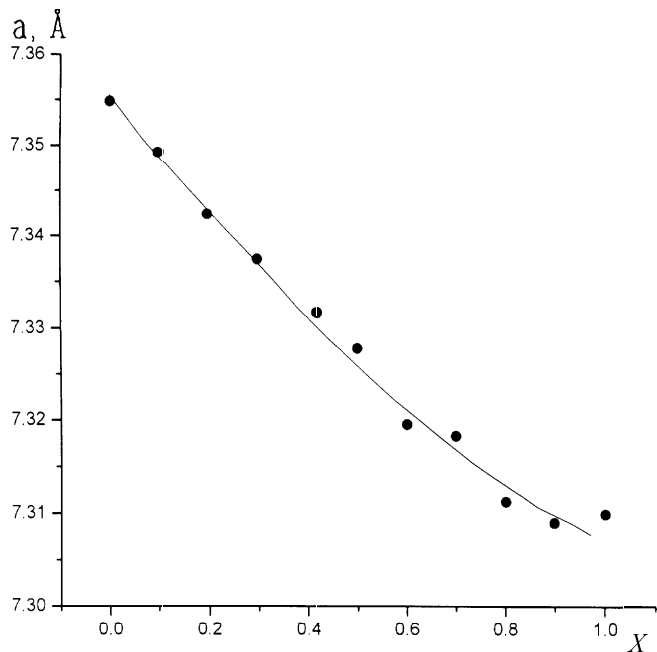


Рис. 1. Концентрационная зависимость параметра решетки соединений  $No_x Y_{1-x} Fe_2$

образцов методом гидростатического взвешивания. Полученные значения плотностей для бинарных соединений  $YFe_2$   $\rho = 6.51 \text{ г/см}^3$  и  $No_x Y_{1-x} Fe_2$   $\rho = 9.42 \text{ г/см}^3$  также хорошо согласуются с данными работы [3]. Оказалось, что для исследуемых образцов плотность линейно возрастает с увеличением содержания атомов No, что также свидетельствует об их однофазности.

Измерения полевой зависимости намагниченности проводились при температуре 4.2 К в полях до 45 кЭ с помощью индукционного магнитометра путем экстракции образца из измерительных катушек. Относительная ошибка измерений не превышала 3%.

Для измерения температурной зависимости динамической магнитной восприимчивости в переменном

магнитном поле 3.5 Э частотой 70 Гц в диапазоне температур 1.5–110 К была создана автоматическая установка на базе моста взаимной индукции MIB-70 фирмы Oxford Instruments. Для автоматизации процесса измерения и обработки экспериментальных данных были разработаны и изготовлены блоки сопряжения персонального компьютера с серийными приборами, работающими в кооперативном режиме, а также программы для математического обеспечения их работы.

Был сконструирован низкотемпературный криостат и система варьирования и стабилизации температуры в диапазоне температур 1.5–110 К. В качестве датчиков температуры были использованы угольные термометры фирм Spear и Allen Bradley. Измерение сопротивления этих термометров осуществлялось с помощью двойного автоматического моста переменного тока А7 фирмы Automatic System Labor. Градуировка термометров сопротивления осуществлялась по давлению насыщенных паров гелия. Суммарная ошибка при измерениях магнитной восприимчивости не превышала 5%.

### Результаты измерений и их обсуждение

На рис. 2 представлены кривые намагничивания интерметаллидов системы  $No_x Y_{1-x} Fe_2$ , измеренные при температуре 4.2 К в полях до 45 кЭ. Кривые не имеют заметно выраженных аномалий, и несмотря на относительно высокую начальную восприимчивость техническое насыщение достигается в полях 10–20 кЭ при значительном парапроцессе.

Значения намагниченности насыщения  $I_s$  определялись по закону приближения к насыщению в сильных магнитных полях:

$$I(H) = I_s - \frac{b}{H^2} - \frac{c}{H^3}.$$

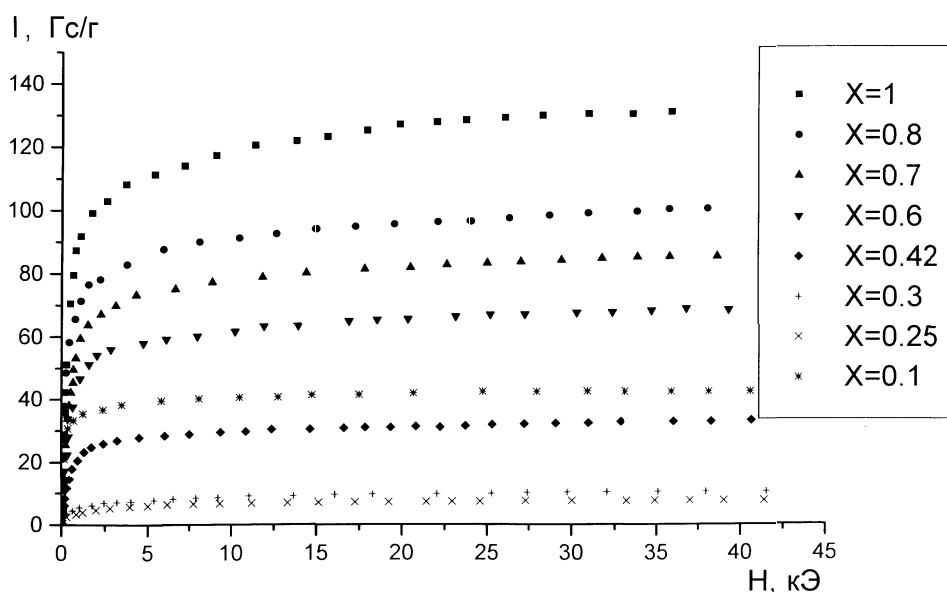


Рис. 2. Полевая зависимость намагниченности соединений  $No_x Y_{1-x} Fe_2$  при температуре 4.2 К

Обработка экспериментальных данных магнитных измерений методом наименьших квадратов позволила рассчитать значения величин магнитных моментов на формульную единицу соединений —  $\mu$ . Для бинарных соединений эти значения хорошо совпали с литературными данными:

YFe<sub>2</sub>:  $\mu = 2.90 \pm 0.06 \mu_B$  в настоящей работе,  
 $\mu = 2.90 \mu_B$  по данным работ [7, 8],

HoFe<sub>2</sub>:  $\mu = 6.47 \pm 0.12 \mu_B$  в настоящей работе,  
 $\mu = 6.0 \mu_B$  по [8],  
 $\mu = 6.7 \mu_B$  по [9],  
 $\mu = 6.4 \mu_B$  по [10].

Зависимость  $\mu$  для интерметаллических соединений Ho<sub>x</sub>Y<sub>1-x</sub>Fe<sub>2</sub> от концентрации Ho представлена на рис. 3. Как видно из рисунка, при концентрации Ho  $x = 0.28$  на этой зависимости наблюдается глубокий минимум. В соответствии с тем, что магнитные моменты подрешеток Ho–Y и Fe в данных соединениях направлены антипараллельно друг другу, этот минимум, по-видимому, обусловлен магнитной компенсацией этих подрешеток. Для ряда квазибинарных соединений R<sub>x</sub>Y<sub>1-x</sub>Fe<sub>2</sub>, где R = {Tb, Dy, Er, Gd}, концентрационная зависимость суммарного магнитного момента имеет аналогичный вид [7, 11, 12]. Было установлено, что в бинарном HoFe<sub>2</sub> существует температурная точка магнитной компенсации при  $T = 240$  К [12]. Так как в данной работе максимальная температура при измерениях составляла 110 К, то влияние температуры компенсации для HoFe<sub>2</sub> не могло быть обнаружено, однако в диапазоне концентраций  $0.28 \leq x < 1.0$  магнитная компенсация, по-видимому, будет иметь место при более низких температурах, и ее проявления возможны и при температурах ниже 110 К.

Известно, что локальные магнитные моменты

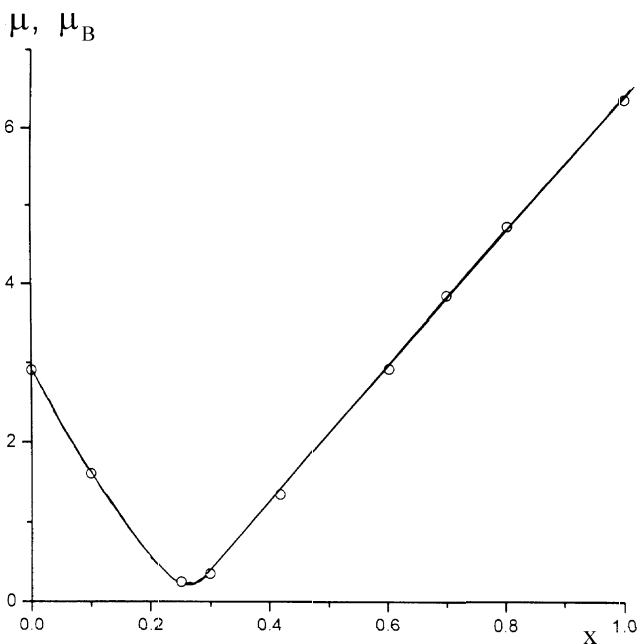


Рис. 3. Зависимость магнитного момента на формульную единицу соединений Ho<sub>x</sub>Y<sub>1-x</sub>Fe<sub>2</sub> от концентрации Ho

ионов Fe: для YFe<sub>2</sub> —  $\mu_{Fe} = 1.44 \mu_B$  [13, 14]; для HoFe<sub>2</sub> —  $\mu_{Fe} = 1.7 \mu_B$  [4] и  $\mu_{Fe} = 1.88 \mu_B$  [15]. Естественно, можно предположить, что для промежуточных соединений Ho<sub>x</sub>Y<sub>1-x</sub>Fe<sub>2</sub> значение  $\mu_{Fe}$  будет изменяться линейно в зависимости от концентрации Ho. В этом предположении по суммарному значению момента соединения и значению атомного момента Fe можно оценить величину атомного момента Ho. Величина  $\mu_{Ho}$  возрастает от  $(9.8 \pm 1.6) \mu_B$  для HoFe<sub>2</sub> до  $(14 \pm 2) \mu_B$  для Ho<sub>0.1</sub>Y<sub>0.9</sub>Fe<sub>2</sub>. Это, возможно, обусловлено двумя факторами: увеличением вклада от орбитального момента, связанным с ростом параметра решетки у соединений с малой концентрацией ионов Ho и эффектом обменного индуцирования спиновой плотности делокализованных электронов.

С помощью описанной выше автоматизированной установки была измерена температурная зависимость дифференциальной магнитной восприимчивости исследуемой системы образцов в интервале температур 1.5–110 К.

Полученные результаты представлены на рис. 4 и рис. 5. Образец бинарного соединения YFe<sub>2</sub>, не содержащего ионов Ho, обладает нормальной температурной зависимостью восприимчивости, характерной для ферромагнетика ниже точки Кюри, — монотонным ростом с увеличением температуры (рис. 4). Для всех остальных образцов с концентрацией Ho, отличной от нуля, на температурной зависимости восприимчивости наблюдается четкая аномалия (рис. 5): в области температур 1.5–40 К наблюдается максимум восприимчивости. Температура, соответствующая максимуму восприимчивости, зависит от состава соединений (рис. 6). Характерной особенностью этой зависимости является то, что температура максимума восприимчивости проходит через минимальное значение при том же содержании Ho:  $x = 0.28$ , что и величина магнитного момента на формульную единицу. Таким образом, концентрационные зависимости этих величин имеют сходный характер.

При анализе физической природы наблюдаемых аномалий магнитной восприимчивости соединений Ho<sub>x</sub>Y<sub>1-x</sub>Fe<sub>2</sub> необходимо отметить, что в бинарном соединении HoFe<sub>2</sub> при температуре 16 К наблюдался спин-переориентационный фазовый переход [4, 5, 6] от угловой фазы типа [uv0], в которой намагниченность лежит в плоскости (001), в фазу типа [uuv], где намагниченность расположена в плоскости (110).

В соединениях YFe<sub>2</sub> при небольших замещениях ионов Y на ионы Ho также наблюдались спин-переориентационные переходы [16]. В этой работе переходы изучались методами ядерного спинового эха. Измерялись спектры спинового эха на ядрах V<sup>51</sup>, которые вводились в качестве зонда в YFe<sub>2</sub>. Для соединения Y(Fe<sub>0.99</sub>V<sub>0.01</sub>)<sub>2</sub> осью легкого намагничивания являлась ось типа [111], однако уже

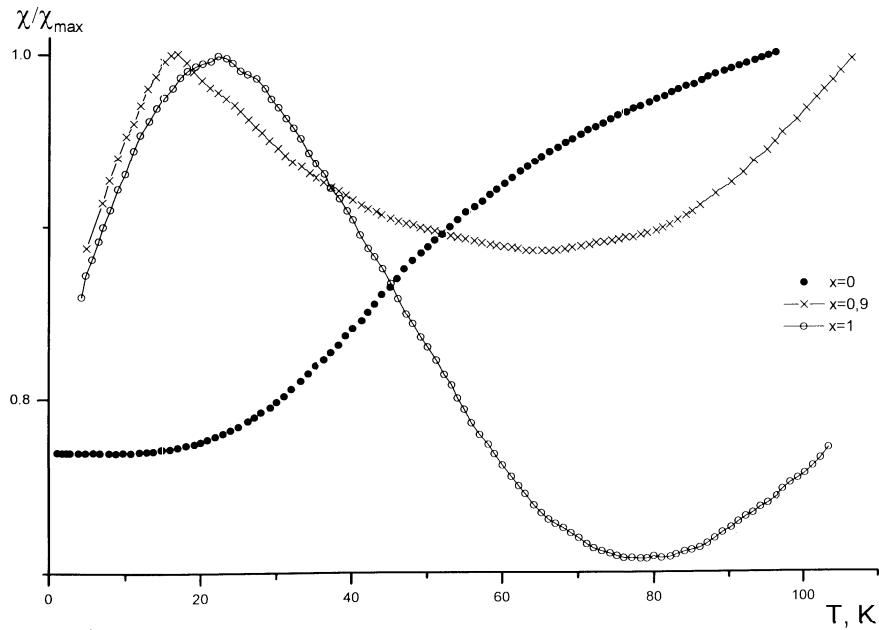


Рис. 4. Температурная зависимость дифференциальной магнитной восприимчивости соединений  $YFe_2$ ,  $HoFe_2$ ,  $Ho_{0.9}Y_{0.1}Fe_2$

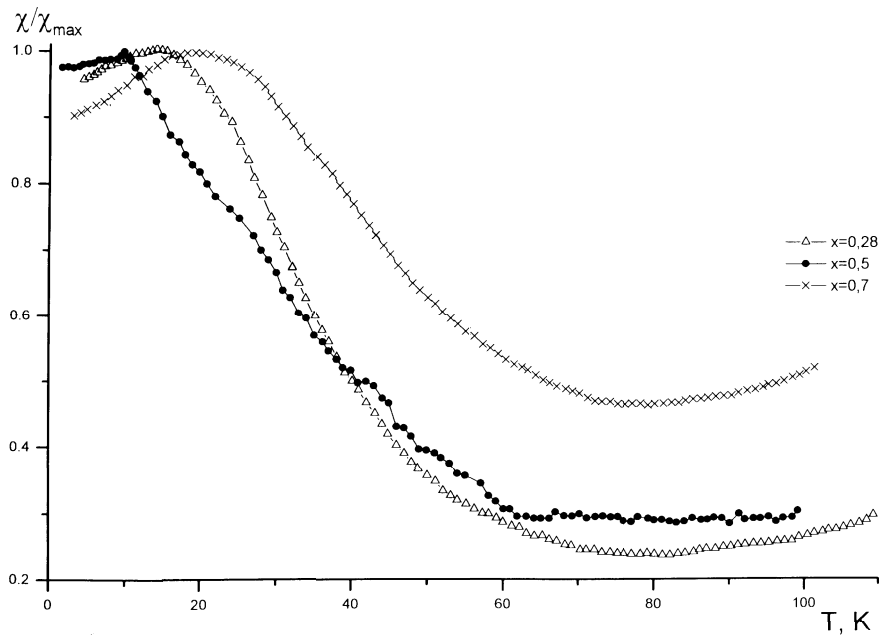


Рис. 5. Температурная зависимость дифференциальной магнитной восприимчивости соединений  $Ho_xY_{1-x}Fe_2$  ( $x = 0.28; 0.5; 0.7$ )

небольшие добавки Ho привели к тому, что в соединении  $Y_{0.97}Ho_{0.03}(Fe_{0.99}V_{0.01})_2$  ось легкого намагничивания приобрела ориентацию вдоль оси [100].

В наших исследованиях температура максимума магнитной восприимчивости бинарного соединения  $HoFe_2$  оказалась также равной 16 К. Это однозначно указывает на то, что наблюдаемая аномалия поведения магнитной восприимчивости обусловлена спин-переориентационным переходом. При относительно небольших добавках ионов Y природа аномалии остается, по-видимому, той же, а изменение величины  $T_{max}$  определяется характером спин-пе-

реориентационных переходов, обусловленных поведением констант магнитной анизотропии. Как видно из рис. 5, с ростом содержания ионов Y характер аномалии меняется: максимум становится асимметричным, уровень его левого крыла повышается и максимум практически вырождается в ступеньку. Это свидетельствует о том, что в указанном интервале концентраций ионов Ho ( $0.28 \leq x \leq 0.7$ ) в формировании аномалии восприимчивости существенную роль играют процессы компенсации редкоземельной и железной магнитных подрешеток. При дальнейшем увеличении содержания ионов Y ( $x < 0.28$ )

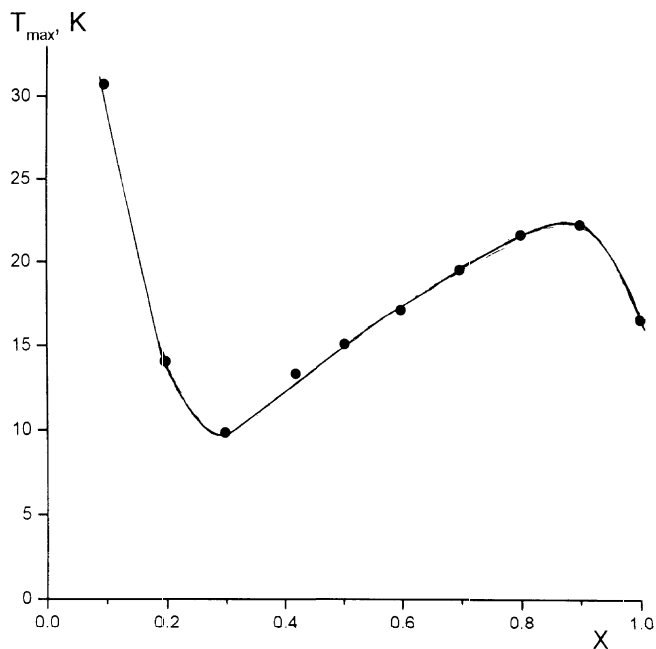


Рис. 6. Зависимость температуры максимума магнитной восприимчивости соединений  $\text{Ho}_x \text{Y}_{1-x} \text{Fe}_2$  от концентрации Ho

аномалия снова приобретает характер симметричного максимума и доминирующим фактором снова являются процессы спиновой переориентации, так как при этих концентрациях компонент Ho и Y магнитная компенсация редкоземельной и железной подрешеток отсутствует.

### Заключение

В квазибинарных соединениях  $\text{Ho}_x \text{Y}_{1-x} \text{Fe}_2$  ( $x = 0 \div 1$ ) с кристаллической структурой фаз Лавеса (C15) были измерены кривые намагниченности при температуре 4.2 К в полях до 45 кЭ и температурные зависимости магнитной восприимчивости в слабом переменном магнитном поле в диапазоне температур 1.5–110 К.

Определены величины магнитных моментов на формульную единицу соединений и их зависимость от содержания ионов Ho. Обнаружено наличие

глубокого минимума при концентрации ионов Ho  $x = 0.28$ , обусловленного магнитной компенсацией редкоземельной и железной подрешеток.

На температурной зависимости магнитной восприимчивости  $\text{Ho}_x \text{Y}_{1-x} \text{Fe}_2$  ( $x > 0.1$ ) в области температур 1.5–40 К наблюдается максимум восприимчивости, обусловленный либо наличием спин-переориентационного перехода вблизи  $x = 0.28$ , либо процессами компенсации магнитных подрешеток при  $0.28 < x < 0.7$ . Температура, соответствующая этому максимуму, зависит от содержания ионов Ho и имеет минимальное значение также при  $x = 0.28$ .

### Литература

1. Hauser R., Grossinger R., Rotter M. et al. // Proc. Joint Europ. Magn. Symp. Grenoble, 2001. P. 232.
2. Стеценко П.Н., Антипов С.Д., Мостафа М.А. // Письма в ЖЭТФ. 1979. **29**. С. 684.
3. Физика и химия редкоземельных элементов / Ред. К.Г. Шнайдер. М., 1982.
4. Dublon G., Atzmony U., Dariel M., Shaked H. // Phys. Rev. 1975. **B12**. P. 4628.
5. Dublon G. // J. Phys. Chem. Sol. 1976. **37**. P. 513.
6. Atzmony U., Dariel M. // Phys. Rev. 1976. **B13**. P. 4006.
7. Buschow K.J.H., Van Stapele R.P. // J. Appl. Phys. 1970. **41**. P. 4066.
8. Baranov N.N., Deryagin A.V. // Ukr. Fiz. Zh. 1980. **25**. P. 1635.
9. Carmichael C.M., Paul G.L., Taylor K.N.R. // J. Magn. Magn. Mater. 1980. **15–18**. P. 1483.
10. Strnat K., Hoffer G., Ray A.E. // IEEE Trans. Mag. MAG-2. 1966. P. 489.
11. Burzo E. // Phys. Rev. 1972. **B6**. P. 2882.
12. Buschow K.J.H. // Rep. Progr. Phys. 1977. **40**. P. 1179.
13. Никитин С.А., Талалаева Е.В., Черникова Л.А., Андреевко А.С. // ФММ. 1975. **40**. С. 967.
14. Pszczola J., Krop K. // J. Magn. Magn. Mater. 1986. **59**. P. 95.
15. Dumelow T. // Hyperfine Interactions. 1987. **34**. P. 411.

Поступила в редакцию  
14.06.02