

УДК 669.866.018:448.7

О ТОЧКАХ МАГНИТНОЙ КОМПЕНСАЦИИ В КВАЗИБИНАРНОЙ СИСТЕМЕ $\text{Yb}(\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x)_2$

А. С. Илюшин, И. А. Никанорова, А. В. Цвященко^{*)}, А. С. Виноградова,
М. В. Фомичева, И. В. Спажакин

(кафедра физики твердого тела)

E-mail: iliya@newmail.ru

В результате изучения магнитных свойств сплавов квазибинарной системы $\text{Yb}(\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x)_2$ установлено, что для составов $0 \leq x \leq 0.4$ на кривых температурной зависимости намагниченности имеются точки компенсации, положение которых на температурной шкале немонотонно зависит от состава сплава. Показано, что простую двухподрешеточную модель можно использовать при интерпретации магнитных свойств лишь для интерметаллида YbFe_2 и для квазибинарных сплавов $\text{Yb}(\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x)_2$ с малым $x \sim 0.1$ содержанием марганца. При более высоких концентрациях марганца простая ферримагнитная модель оказывается непригодной для интерпретации экспериментальных результатов.

Интерметаллические соединения редкоземельных металлов с $3d$ -переходными стехиометрии RT_2 , кристаллизующиеся в структурных типах фаз Лавеса C14 и C15, образуют обширный класс магнитоупорядочивающихся веществ с уникальными физическими свойствами [1–3]. К сожалению, далеко не все редкоземельные фазы Лавеса удается получить традиционными методиками синтеза, так как использование металлургических процессов, протекающих при атмосферном давлении, не позволяет реализовать структурные типы C14 и C15 в сплавах с Yb, Nd, Pr и рядом других редкоземельных элементов.

Развитие новых технологий, основанных на совместных воздействиях на вещество высокого давления и высоких температур, позволяет получать полиморфные модификации фаз с нужными атомно-кристаллическими структурами [4–5].

Для интерметаллических соединений RT_2 часто характерно весьма сложное поведение магнитных свойств, приводящее к формированию новых атомно-кристаллических и магнитных структур. Иными становятся и магнитные взаимодействия между R- и T-подрешетками. Изотипные замещения атомов в R- или в T-подрешетке сопровождаются изменениями величин ионных магнитных моментов, что существенно влияет на одну из основных магнитных характеристик этих соединений — намагниченность насыщения.

В настоящей работе было предпринято исследование температурной зависимости намагниченности фаз высокого давления в квазибинарной системе $\text{Yb}(\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x)_2$. Для этого был осуществлен синтез сплавов, проведен рентгеновский фазовый анализ, определены их атомно-кристаллические структуры и измерены кристалло-структурные параметры.

Образцы сплавов квазибинарной системы $\text{Yb}(\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x)_2$ синтезировались при давлении

8 ГПа в камере высокого давления типа «Тороид» в Институте физики высокого давления РАН по методике, описанной в работе [6]. Были приготовлены сплавы следующих составов (по x): 0; 0.1; 0.15; 0.2; 0.3; 0.4; 0.5; 0.55; 0.60; 0.65; 0.70; 0.75; 0.80; 0.85; 0.90; 1.0. Рентгеноструктурные исследования выполнялись на дифрактометре ДРОН-1.5 при комнатной температуре на фильтрованном K_α излучении от железного анода.

Для измерения намагниченности использовался магнетометр вибрационного типа фирмы «Princeton Applied Research» [7] (чувствительность не менее $5 \cdot 10^{-5}$ э.м.е.). Намагниченность во внешних полях до 0.5 Т измерялась с помощью магнетометра модели 155, изготовленного на основе лабораторного электромагнита, снабженного гелиевым криостатом.

Температурные измерения проводились в интервале 4.2–300 К. Температура определялась с помощью термпары «медь» — «медь-железо».

Рентгеновский фазовый анализ синтезированных образцов системы $\text{Yb}(\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x)_2$ показал, что сплавы составов $0 \leq x \leq 0.4$ рентгеновски однофазны и изотипны кубической фазе Лавеса типа MgCu_2 (C15), в области составов $0.5 \leq x \leq 0.55$ — сплавы двухфазны и состоят из смеси кубической и гексагональной фаз Лавеса C14 и C15, а в области концентраций $0.6 \leq x \leq 1$ сплавы изотипны гексагональной фазе Лавеса типа MgZn_2 (C14). На рис. 1 приведен график концентрационной зависимости объема $V_{f.u.}$, приходящегося на формульную единицу сплавов системы $\text{Yb}(\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x)_2$. Из рисунка видно, что с ростом концентрации марганца в системе от $x = 0$ до $x = 0.4V_{f.u.}$ монотонно, но нелинейно возрастает от 47.71 \AA^3 до 48.57 \AA^3 , а в интервале $0.5 \leq x \leq 0.55$ — практически не меняется и остается равным приблизительно 48.6 \AA^3 . Дальнейшее увеличение концентрации марганца

^{*)} Институт физики высоких давлений РАН, г. Троицк.

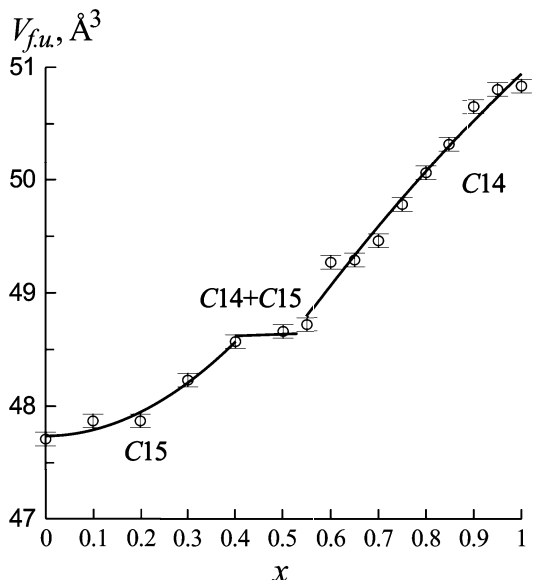


Рис. 1. Зависимость объема $V_{f.u.}$, приходящегося на формульную единицу, от состава сплавов системы $Yb(Fe_{1-x}Mn_x)_2$

от $x = 0.7$ до $x = 1.0$ вновь сопровождается монотонным, но нелинейным увеличением $V_{f.u.}$ от 49.27 до 50.83 \AA^3 .

Известно, что в соединении $YbMn_2$ ион марганца не имеет магнитного момента. Поэтому в системе $Yb(Fe_{1-x}Mn_x)_2$ в сплавах промежуточных составов при замещении магнитных ионов железа ионами марганца последние играют роль немагнитного разбавителя и суммарная намагниченность $3d$ -подрешетки должна уменьшаться. Если предположить, что температурная зависимость намагниченности подрешетки Yb при изменении концентрации Mn меняется мало, то, изучая зависимости намагниченности от температуры и внешнего поля для сплавов промежуточных составов, можно получить данные о магнитном поведении ионов Mn .

В данной работе нами были получены зависимости намагниченности от температуры и внешнего магнитного поля для сплавов системы $Yb(Fe_{1-x}Mn_x)_2$ в области концентраций, где формируются фазы, изотипные кубической фазе Лавеса типа C15.

На рис. 2 представлены кривые зависимостей намагниченности от внешнего поля, измеренные при комнатной температуре на сплавах составов $x = 0.1$; 0.15; 0.2; 0.3; и 0.4. Все они демонстрируют типичный ход кривых с насыщением, причем почти для всех составов с ростом концентрации марганца намагниченность уменьшается за исключением аномалии для состава $x = 0.2$. Это наглядно демонстрирует график концентрационной зависимости величины магнитного момента M , приходящегося на формульную единицу сплава, измеренного при комнатной температуре во внешнем магнитном поле напряженностью 0.5 Т (рис. 3). Видно, что в ходе кривой $M(x)$ имеется аномалия типа положительной λ -точки при $x = 0.2$.

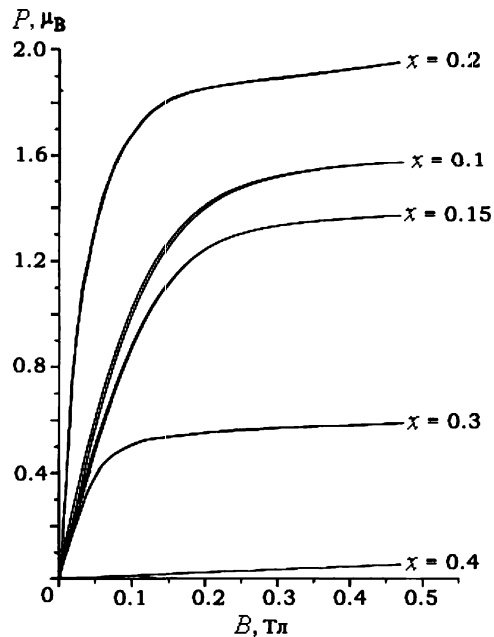


Рис. 2. Зависимость намагниченности P сплавов системы $Yb(Fe_{1-x}Mn_x)_2$ от внешнего поля B при комнатной температуре

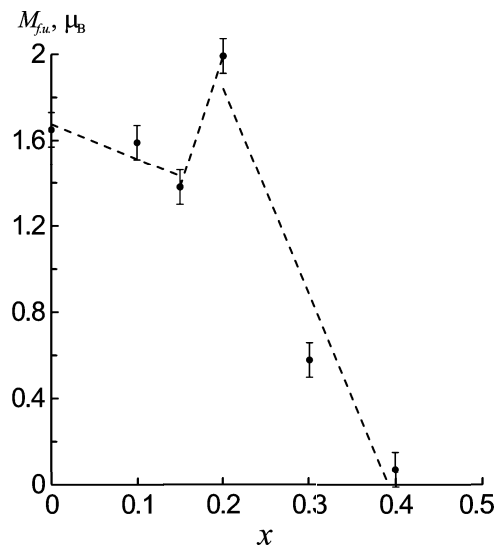


Рис. 3. Концентрационная зависимость магнитного момента $M_{f.u.}$, приходящегося на формульную единицу сплавов системы $Yb(Fe_{1-x}Mn_x)_2$, во внешнем поле напряженностью 0.5 Т

Более существенные аномалии демонстрируют кривые температурных зависимостей намагниченности для сплавов составов $0 \leq x \leq 0.4$. Так, для интерметаллида $YbFe_2$ при охлаждении образца от температуры 300 К до 36 К магнитный момент, приходящийся на формульную единицу, монотонно, но достаточно резко уменьшается от 1.65 μ_B практически до нуля (рис. 4). Дальнейшее охлаждение сопровождается возрастанием M почти до 0.42 μ_B при 4.2 К (следует отметить, что при последующем нагревании точка «зануления» магнитного момента смещается в сторону более высоких температур и реализуется при температуре 33 К). Аналогичные измерения, выполненные на сплавах промежуточных

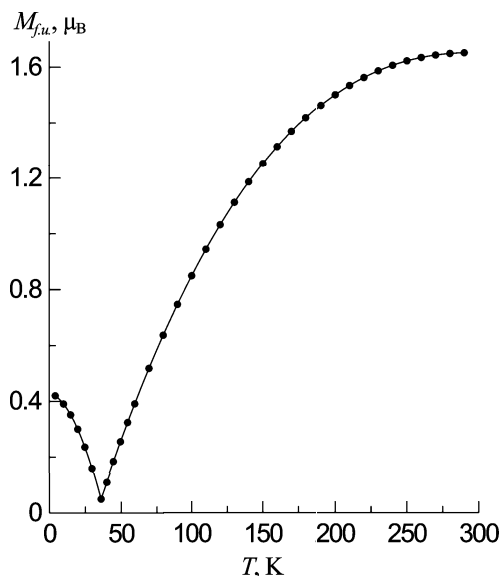


Рис. 4. Температурная зависимость магнитного момента $M_{f.u.}$, приходящегося на формульную единицу сплава $YbFe_2$

составов с ($x = 0.1; 0.15; 0.2; 0.3$ и 0.4), дают кривые с аналогичными температурными зависимостями и точками компенсации. Однако положение самих точек компенсации на температурной шкале сложным образом зависит от состава сплавов.

Анализ экспериментальных данных магнитных измерений показал, что само наличие точек компенсации свидетельствует о ферромагнитном упорядочении подрешеток Yb и 3d-металла. Уменьшение суммарной намагниченности сплавов с ростом концентрации Mn позволяет считать, что ионы Mn в сплавах системы $Yb(Fe_{1-x}Mn_x)_2$ в области концентраций $0 \leq x \leq 0.4$ преимущественно выступают в роли немагнитной примеси, разбавляющей магнитную 3d-подрешетку.

Нейтроннографические исследования $YbFe_2$, проведенные в работе [8] на поликристаллических образцах при температурах 5, 80, 300 и 630 К, подтвердили ферромагнитную модель упорядочения и позволили определить величину магнитных моментов ионов Yb и Fe. Соответствующие данные из работы [9] приведены в таблице.

Магнитные моменты Yb и Fe в соединении $YbFe_2$ при различных температурах и профильный фактор расходимости R

M_i, μ_B	T, K		
	5	80	300
M_{Yb}	3.6	2.2	1.3
M_{Fe}	1.5	1.5	1.5
$M = M_{Yb} - 2M_{Fe}$	0.6	0.8	1.7
$R, \%$	7.2	6.3	6.4

Из этих данных видно, что в температурном интервале от 5 до 300 К магнитный момент ионов железа постоянен и равен $1.5\mu_B$, тогда как магнит-

ный момент ионов иттербия монотонно уменьшается от 3.6 до $1.3\mu_B$. При 5 К величина магнитного момента ионов иттербия близка к его значению для свободного трехвалентного иона:

$$\mu_{Yb^{3+}} = g_i J \mu_B.$$

В области низких температур при 5 К магнитный момент интерметаллида $YbFe_2$, определенный по нейтронографическим данным, оказался равным $0.6\mu_B$, а соответствующая величина, рассчитанная по полевым зависимостям намагниченности при 4.2 К, составила $0.7\mu_B$. Эти значения хорошо согласуются между собой, что также свидетельствует в пользу ферромагнитной модели упорядочения для R- и 3d-подрешеток.

Оценки величин магнитных моментов $M_{f.u.}$, приходящихся на формульную единицу сплавов системы $Yb(Fe_{1-x}Mn_x)_2$ при 300 К, были проведены с использованием данных, полученных в [10], и предположения, что ионы Mn являются немагнитным разбавителем в подрешетке Fe. Сопоставление этих оценок с данными эксперимента показало достаточно хорошее согласие общего хода кривых концентрационных зависимостей величин магнитных моментов. Однако график, построенный на основе сделанных оценок, не имел каких-либо аномалий, в то время как на экспериментальной кривой такая аномалия наблюдается при $x = 0.2$.

В описанном выше приближении были также оценены значения точек компенсации и проведено их сравнение с экспериментом. Здесь согласие можно увидеть лишь в начальной части графика ($0 \leq x \leq 0.15$), а затем расхождение двух кривых с ростом концентрации марганца усиливается. При этом следует обратить внимание на то, что если график оценочной концентрационной зависимости $T_{comp}(x)$ имеет вид параболы, то для экспериментальной кривой $T_{comp}(x)$ скорее характерна зависимость типа положительной λ -кривой.

Из проведенного анализа следует, что при изотипном замещении в 3d-подрешетке ионов Fe ионами Mn, последние не могут рассматриваться только как немагнитный разбавитель. Вся совокупность экспериментальных данных указывает на то, что в 3d-подрешетке возникают сложные магнитные взаимодействия, которые в свою очередь приводят к формированию в сплавах квазибинарной системы $Yb(Fe_{1-x}Mn_x)_2$ магнитной структуры не ферромагнитного, а более сложного типа. Результаты мессбауэровских исследований сплавов свидетельствуют о том, что при введении ионов Mn в 3d-подрешетку в ней формируются области с различными локальными окружениями ионов Fe, в результате чего возникают различные сверхтонкие поля на ядрах Fe. При этом было установлено, что величина сверхтонкого эффективного поля H_n на ядрах Fe практически линейно уменьшается с увеличением числа ионов Mn в ближайшем окружении ионов Fe. При малых концентрациях ($x \sim 0.1$) влияние Mn на характер

магнитных взаимодействий мало и его можно рассматривать как немагнитный разбавитель. При более высоком содержании Mn в 3d-подрешетке наряду с простым разбавлением происходит заметное изменение величин магнитных моментов у ионов Fe, находящихся в различных локальных окружениях, и, как следствие, изменение характера магнитных взаимодействий. Это обстоятельство делает простую ферромагнитную модель неприемлемой для анализа концентрационной зависимости точек компенсации.

Литература

1. *Тейлор К.* Интерметаллические соединения редкоземельных металлов. М., 1974.
2. *Теслюк М.Ю.* Металлические соединения со структурой фаз Лавеса. М., 1969.
3. *Илюшин А.С.* Введение в структурную физику редкоземельных интерметаллических соединений. М., 1991.
4. *Свенсон К.С.* Физика высоких давлений. М., 1963.
5. *Стронг Г.* Высокотемпературные методы при высоких давлениях. М., 1964.
6. *Khvostantsev L.G., Vereshchagin L.F., Novikov A.P.* // High temp.-high press. 1977. **9**. P. 637.
7. *Foner S.* // Rev. Sci. Instr. 1959. **30**, N 7. P. 548.
8. *Meyer C., Hartman-Boutron F., Cros Y. et. al.* // J. Physique. 1979. **40**. P. 5.
9. *Цвященко А.В., Алиханов Р.А., Смирнов Л.С. и др.* // ФТТ. 1986. **28**, № 9. С. 2832.
10. *Inoue K., Nakamura Y., Tsvyashchenko A.V., Fomicheva L.* // J. Magn. and Magn. Materials. 1995. **140**. P. 797.

Поступила в редакцию
10.09.03