УДК 669.866.018:448.7

## ВОЗНИКНОВЕНИЕ АНТИФЕРРОМАГНИТНОГО УПОРЯДОЧЕНИЯ В СПЛАВАХ Mn<sub>19.8-x</sub> Fe<sub>x</sub> Sn<sub>0.2</sub> СО СТРУКТУРОЙ ТИПА β-Mn

И. Ю. Гайдукова, А. С. Илюшин, К. Иноуе<sup>\*)</sup>, И. А. Никанорова, А. С. Маркосян, З. С. Умхаева<sup>\*\*)</sup>

(кафедра физики твердого тела; кафедра общей физики и магнитоупорядоченных сред)

E-mail: sols146i@phys.msu.su

## Выявлено магнитное состояние сплавов системы Mn<sub>19.8-x</sub> Fe<sub>x</sub> Sn<sub>0.2</sub> и определены закономерности изменения их свойств в зависимости от содержания железа.

Парамагнетизм  $\beta$ -марганца является предметом многочисленных дискуссий, и сплавы на основе  $\beta$ -Мп привлекают внимание многих исследователей [1-6]. В частности, этот интерес обусловлен проблемой локального окружения атомов Мп и магнитного состояния в разбавленных сплавах на основе  $\beta$ -Мп. Аллотропная модификация  $\beta$ -Мп имеет кубическую кристаллическую структуру типа A13, пространственная группа P4<sub>1</sub>32. Двадцать атомов Мп, образующие элементарную ячейку, распределены по двум кристаллографически неэквивалентным позициям 8*c* и 12*d* [7, 8], причем атомы Мп в позициях 12*d* имеют меньший радиус, нежели атомы Мп в позициях 8*c* и их электронные конфигурации различны.

Исходя из результатов ЯМР исследований сплавов  $\beta$ -Мп<sub>1-x</sub> Al<sub>x</sub> авторы [9] пришли к заключению, что в магнитном отношении атомы Мп в различных позициях ведут себя практически независимо, и только позиции 12d являются «магнитными» (было показано, что за возникновение состояния спинового стекла в этой системе сплавов ответственны лишь атомы Mn в местах 12d, тогда как атомы марганца, занимающие позиции 8с, остаются немагнитными). Соответственно в парамагнитном β-Мп атомы в позициях 12d дают доминирующий вклад в антиферромагнитные спиновые флуктуации. В позициях 12*d* атомы марганца образуют сетку из правильных треугольников. При этом каждый атом, расположенный в этой позиции, связан с шестью другими атомами в позициях 12d так, что три треугольника имеют общую вершину. Такая геометрия наряду с антиферромагнитным Mn-Mn обменным взаимодействием приводит к тому, что в *β*-Мп возникают фрустрированные связи, не позволяющие установиться какой-либо одной равновесной антиферромагнитной структуре. Вследствие этого

не удается стабилизировать дальний магнитный порядок в  $\beta$ -Mn [9].

Рядом авторов изучались структура и свойства систем со структурой типа  $\beta$ -Mn, в которые вводились небольшие количества немагнитных (Sn, Al) или магнитных (Fe) атомов [4-6, 9-12]. Рентгеновский дифракционный анализ позволил заключить, что при замещениях атомы Al занимают почти исключительно (90%) «магнитные» позиции 12d [9]. Такой же вывод был сделан и для атомов Sn при анализе мёссбауэровских спектров сплавов  $\beta$ -Mn<sub>19.3-x</sub>Sn<sub>0.7</sub>Fe<sub>x</sub> [6]. Одновременно было показано, что атомы железа имеют сильное предпочтение к «немагнитным» позициям 8с. Такое предпочтительное замещение обусловливает различное локальное окружение атомов Мп в сплавах  $\beta$ -Mn<sub>1-x</sub> M<sub>x</sub> в зависимости от замещающего элемента М и как следствие существенную зависимость их физических свойств от М.

На основе анализа мёссбауэровских и нейтронографических экспериментальных данных авторы работ [3, 4, 13, 14] пришли к заключению, что при замещениях Mn на атомы Sn в этих сплавах возникает антиферромагнитное упорядочение. Такие же результаты были получены в работе [15] при изучении сплавов  $Mn_{20-x}$  Fe<sub>x</sub>,  $Mn_{19.9-x}$  Fe<sub>0.1</sub> Sn<sub>x</sub> и  $Mn_{16-x}$  Fe<sub>4</sub> Sn<sub>x</sub>, содержащих одновременно как атомы Sn, так и атомы Fe. Тем не менее до настоящего времени остались неясными некоторые особенности магнитного поведения сплавов на основе модификаций Мп. В частности, не были изучены концентрационные зависимости магнитных свойств ряда квазибинарных систем, и не было установлено их магнитное состояние. Ряд данных в литературе противоречив. Так, в работе [9] сделан вывод об отсутствии антиферромагнитного упорядочения в системе  $\beta$ -Мп<sub>20-x</sub>Al<sub>x</sub>, а в [5] указывается на возможное отсутствие дальнего магнитного порядка также и в сплавах  $\beta$ -Мп<sub>19.8-x</sub> Fe<sub>x</sub> Sn<sub>0.2</sub>. С целью установления магнитного состояния в системе Мп<sub>19.8-x</sub> Fe<sub>x</sub> Sn<sub>0.2</sub> и выяснения закономерностей

<sup>\*)</sup> Institute of Molecular Science, Nishigounaka 38, Myodaiji, Okazaki, Aichi 444-8585, Japan.

<sup>\*\*)</sup> Чеченский государственный университет, г. Грозный.

изменения их свойств при изменении содержания железа в настоящей работе были изучены их намагниченность и магнитная восприимчивость при низких температурах.

Образцы сплавов  $Mn_{19.8-x}$  Fe<sub>x</sub> Sn<sub>0.2</sub> с x = 0.0, 0.5, 1.0, 2.0, 3.0, 4.0, 5.0, 6.0, 6.2 и 6.4 были синтезированы в индукционной печи. Для гомогенизации выплавленные слитки отжигались в течение 100 ч при 900°С и закаливались в воду. Рентгеновский фазовый анализ показал, что все образцы рентгеновски однофазны и изоструктурны  $\beta$ -модификации марганца. С увеличением концентрации железа от x = 0 до x = 6.4 параметр элементарной ячейки монотонно уменьшается от 6.302 до 6.272 Å.

Измерения намагниченности и восприимчивости в постоянном магнитном поле производились на СКВИД магнитометре (Quantum Design) в температурном интервале 1.8–400 К и полях до 10 кЭ.

На рис. 1 приведены кривые температурных зависимостей восприимчивости сплавов системы  $Mn_{19.8-x}$  Fe<sub>x</sub> Sn<sub>0.2</sub>, полученные в постоянном поле 1000 Э. Как видно, все кривые однотипны и имеют вид  $\lambda$ -зависимостей с четко выраженными максимумами в области температур 15-40 К. Подобная картина с аналогичными максимумами на зависимостях  $\chi(T)$  наблюдалась и в работе [15] в близких по составу антиферромагнитных сплавах Mn-Fe и Mn-Sn со структурой *β*-Мn. Чтобы выяснить характер магнитного упорядочения ниже температуры возникновения максимума и установить возможное влияние примесных магнитных фаз, были получены кривые намагничивания для этих сплавов. Результаты этих измерений, проведенные при температуре 4 К, приведены на рис. 2. Видно, что все они практически одинаковы и намагниченность демонстрирует линейную зависимость от поля. Это указывает на антиферромагнитный характер магнитного упорядочения. Величина намагниченности в фиксированном магнитном поле практически не зависит от концентрации железа.

Тем не менее с помощью более детальных измерений было обнаружено, что намагниченности всех исследованных сплавов при низких температурах зависят от магнитной предыстории. В качестве примера на рис. З приведены зависимости, иллюстрирующие поведение намагниченности сплава Mn<sub>15.8</sub> Fe<sub>4</sub> Sn<sub>0.2</sub> при повышении температуры от 4 до 30 К, предварительно охлажденного в нулевом поле и в поле 10 кЭ. Видно, что при температуре ниже 22 К образец, охлажденный в нулевом поле, все-таки обладает небольшой остаточной намагниченностью. На вставке, где показана область перехода в увеличенном по оси ординат масштабе, видно, что при этой температуре на обеих зависимостях M(H) отсутствует максимум. Отметим, что температура Нееля этого сплава составляет 34 К, т.е. существенно ниже. Поскольку изменение остаточного сигнала намагниченности M<sub>r</sub> в этой



*Рис.* 1. Температурные зависимости восприимчивости сплавов системы Mn<sub>19.8-x</sub> Fe<sub>x</sub> Sn<sub>0.2</sub> в постоянном поле 1000 Э



*Рис.* 2. Полевые зависимости намагниченности сплавов системы  $Mn_{19.8-x}$  Fe<sub>x</sub>Sn<sub>0.2</sub> при температуре 4 К

системе в зависимости от *х* является нерегулярным, можно предположить, что оно обусловлено примесями. Возможно, однако, что при низких температурах в этих сплавах происходит переход в состояние возвратного спинового стекла с антиферромагнитными корреляциями.

На рис. 4 приведена концентрационная зависимость температуры максимума  $\chi(T)$ , соответствующая  $T_N$ . Видно, что при изменении концентрации железа от x = 0 до x = 6.0 температура Нееля  $T_N$ монотонно возрастает от 17 до 40 К. Последнее







*Рис. 4.* Концентрационная зависимость температуры Нееля сплавов системы Mn<sub>19.8-x</sub> Fe<sub>x</sub> Sn<sub>0.2</sub>

значение *x* определено как концентрация твердого раствора железа в *β*-Mn, что хорошо согласуется с данными рентгенофазового анализа.

Таким образом, показано, что в сплаве  $Mn_{19.8}Sn_{0.2}$  со структурой  $\beta$ -Mn возникает антиферромагнитное упорядочение. Отличие этого сплава от изотипных сплавов  $Mn_{1-x}Al_x$ , в которых отсутствует дальний магнитный порядок, обусловлено существенным различием в величине межатомных расстояний. В твердых растворах  $Mn_{19.8-x}$  Fe<sub>x</sub> Sn<sub>0.2</sub>, где атомы Fe замещают Mn преимущественно в «немагнитных» позициях 8*c*, магнитное упорядочение сохраняется, а  $T_N$  возрастает по мере замещения.

## Литература

- Shiga M., Yoshimoto K., Nakamura H., Wada H. // Proc. Intern. Conf. Phys. Trans. Met. / Eds. P.M. Oppeneer, J. Kuebler. Singapore, 1993. P. 1008.
- Shiga M., Nakamura H., Nishi M., Kakurai K. // J. Phys. Soc. Jap. 1994. 63. P. 1656.
- 3. Nakai Y. // J. Phys. Soc. Jap. 1994. 63. P. 775.
- 4. Nakai Y. // J. Phys. Soc. Jap. 1996. 65. P. 1787.
- 5. Андрианов А.В., Васильев А.Н., Виноградова А.С. и др. // ФММ. 1998. **85**. С. 70.
- 6. *Русаков В.С., Илюшин А.С., Виноградова А.С.* и др. // Изв. РАН. Металлы. 1999. **63**. С. 91.
- 7. Preston G.D. // Phil. Mag. 1928. 5. P. 1207.
- 8. Крипякевич П.И. // Кристаллография. 1960. **5**. С. 273.
- 9. Nakamura H., Yoshimoto K., Shiga M. et al. // J. Phys. Condens. Matter. 1997. 9. P. 4701.
- Kohori Y., Noguchi Y., Kohara T. // J. Phys. Soc. Jap. 1993. 62. P. 447.
- 11. Виноградова А.С., Илюшин А.С., Никанорова И.А., Русаков В.С. // ФТТ. 1997. **39**. С. 1437.
- Shiga M., Nakamura H., Nishi M., Kakurai K. // J. Magn. Magn. Matter. 1995. 140–144. P. 2009.
- Kimball C.W., Sill I.R. // Phys. Rev. B. 1970. 1. P. 3953.
- Dunlop J.B., Williams J. M., Crangle J. // Physica B. 1997. 86-88. P. 269.
- Noshikawa Y., Ogawa S., Waki S. // J. Phys. Soc. Jap. 1977. 42. P. 845.

Поступила в редакцию 22.05.06