

# Структурные и магнитные фазовые превращения в разбавленных фазах Лавеса $\text{Pr}(\text{Fe}_{1-x}\text{Al}_x)_2$

© А.А. Опаленко, А.С. Илюшин, А.И. Фиров, Е.В. Солодов, З.С. Умхаева

Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова,  
Москва, Россия

E-mail: tellur25@mail.ru

(Поступила в Редакцию 5 апреля 2011 г.)

При высоком давлении синтезированы сплавы  $\text{Pr}(\text{Fe}_{1-x}\text{Al}_x)_2$  с концентрациями  $x = 0-1$ . Определен фазовый состав и атомно-структурные параметры ( $a$  и  $c$ ) в зависимости от  $x$ . Проведены магнитные и мессбауэровские измерения при температурах  $T = 90-400$  К. Установлено, что температуры Кюри сплавов линейно зависят от их состава.

## 1. Введение

Редкоземельные интерметаллические соединения со структурой фаз Лавеса [1] являются перспективными магнитными материалами, уже нашедшими широкое применение в качестве магнитоотрицателей [2]. Повышенный интерес вызывают многокомпонентные системы на основе интерметаллидов, в частности при разбавлении их немагнитными атомами. Целью настоящей работы явились синтез сплавов, представляющих собой разбавленные фазы Лавеса в квазибинарной системе  $\text{Pr}(\text{Fe}_{1-x}\text{Al}_x)_2$ , и изучение их структурных и магнитных свойств.

## 2. Эксперимент

Сплавы  $\text{Pr}(\text{Fe}_{1-x}\text{Al}_x)_2$  были синтезированы при высоком давлении 25 kbar (2.5 GPa) в аппарате типа „тороид“ путем закалки из расплава при пропускании электрического тока через наковальни с образцом и скорости охлаждения  $10^3$  deg/s.

В результате проведенного рентгеноструктурного анализа было установлено, что в области концентраций  $0 \leq x < 0.2$  сплавы являются однофазными, изотипными кубической фазе Лавеса типа C15. С увеличением концентрации алюминия наблюдается уширение дифракционных линий на дифрактограммах сплавов, что свидетельствует о начале структурного превращения в области  $0.2 < x < 0.3$  в фазу, изотипную гексагональной фазе Лавеса типа C14. В области  $0.3 < x < 0.5$  в сплавах наблюдается только фаза со структурой C14. В сплавах состава с  $0.5 < x < 0.7$  формируется двухфазная область, состоящая из смеси фаз с гексагональной (C14) и кубической (C15) структурами. При последующем увеличении концентрации Al происходит уменьшение количества гексагональной фазы и в области  $0.8 < x \leq 1$  сплавы обладают кубической структурой C15.

На рис. 1 графически представлены концентрационные зависимости фазового состава сплавов и параметров элементарных ячеек.

Мессбауэровские спектры измерялись в температурном интервале 90–300 К. Спектр исходного соединения  $\text{PrFe}_2$  представлял собой сумму двух секстетов с соотношением площадей 3 : 1, что характерно для многих кубических фаз Лавеса и свидетельствует о направлении оси легкого намагничивания вдоль кристаллографической оси [111]. Для соединения  $\text{PrFe}_2$  величины сверхтонких магнитных полей на ядре  $\text{Fe}^{57}$  и значение температуры Кюри хорошо известны из литературы [3].

Спектр образца  $\text{Pr}(\text{Fe}_{0.9}\text{Al}_{0.1})_2$ , приведенный на рис. 2, может быть представлен в виде суммы нескольких секстетов, отвечающих разным атомным конфигурациям около атомов железа. Известно, что в кубической решетке фазы Лавеса типа C15 каждый атом железа имеет в ближайшем окружении шесть атомов железа [4]. При однородном распределении атомов примеси в кубической решетке C15 по формуле биномиального распределения  $P_6^m(x) = C_6^m x^m (1-x)^{6-m}$  вероятность нахождения  $m$  атомов алюминия в ближайшем окружении атома железа для состава  $x = 0.1$  должна быть рав-

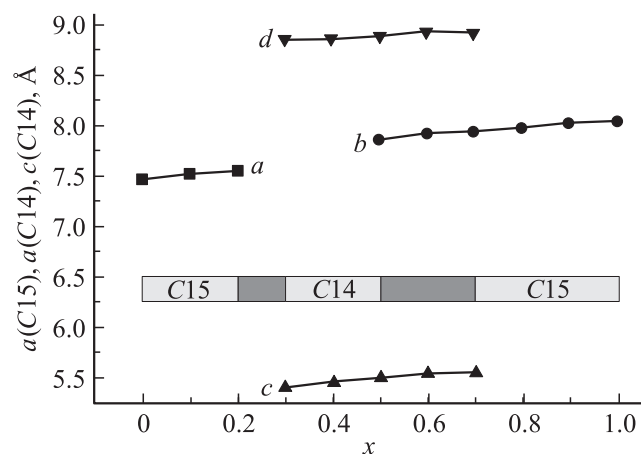


Рис. 1. Фазовый состав и параметры элементарной ячейки системы  $\text{Pr}(\text{Fe}_{1-x}\text{Al}_x)_2$ .  $a, b$  — параметр  $a$  (C15),  $c$  — параметр  $a$  (C14),  $d$  — параметр  $c$  (C14).

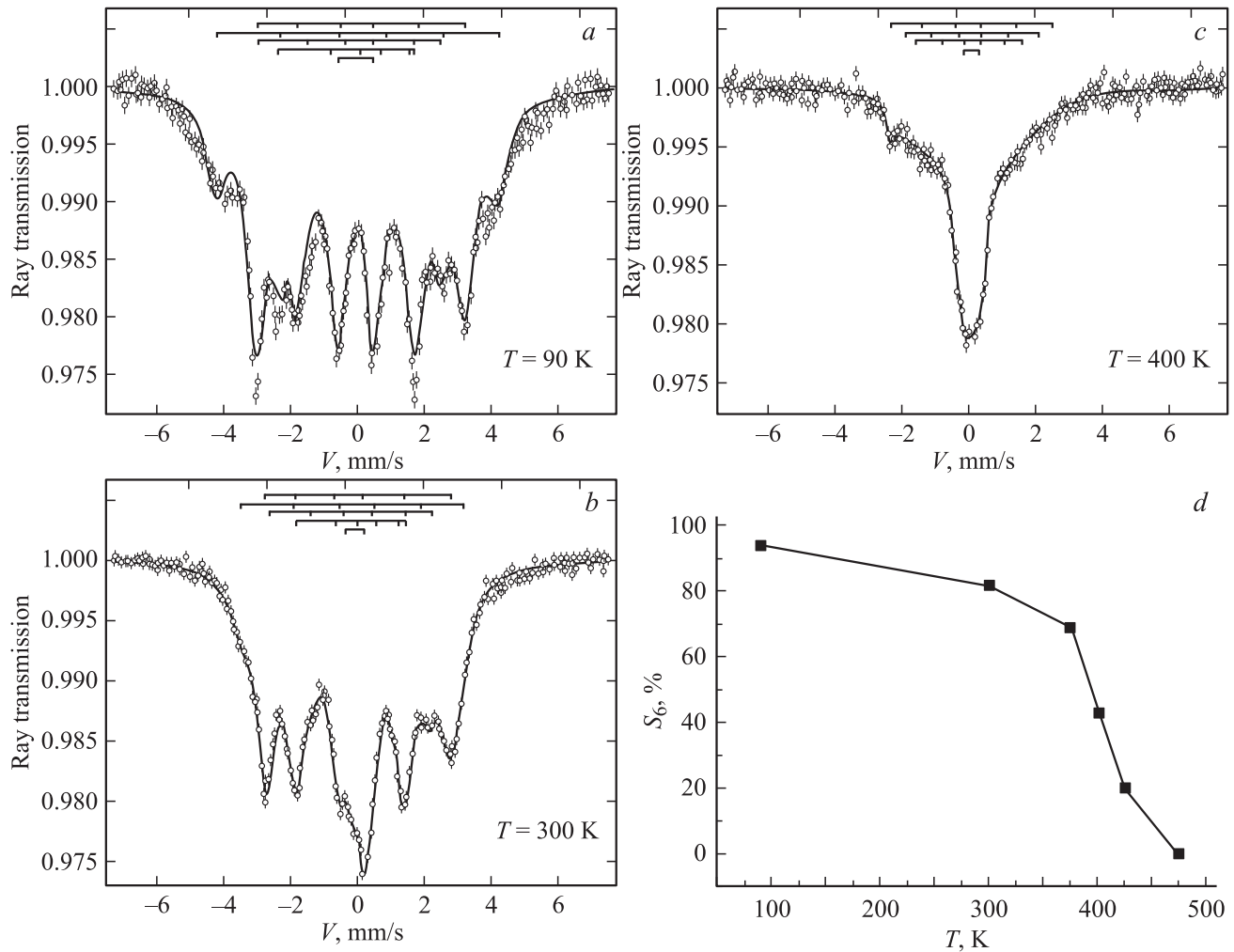


Рис. 2. Мессбауэровские спектры (a–c) и характеристика магнитоупорядочения для сплава с  $x = 0.1$ .

на 53% для  $m = 0$ , 35% для  $m = 1$  и 9.8% для  $m = 2$ . Такое же соотношение в этом случае должно быть между площадями парциальных секстетов в суммарном мессбауэровском спектре сплава. Именно такое соотношение площадей трех основных секстетов было найдено в спектре при  $T = 90$  K, а при  $T = 300$  K в спектре появляется ощутимый вклад от парамагнитного дублета (доля от площади спектра  $\approx 20\%$ ). Исходя из модели биномиального распределения атомов алюминия вокруг атома железа мы определили величины сверхтонких магнитных полей на ядре  $\text{Fe}^{57}$  для разных конфигураций окружения:  $m = 0, 1$  и  $2$ . При  $T = 90$  K эти величины составляют 195, 170 и 130 kOe соответственно; при  $T = 300$  K эти поля равны 170, 150 и 100 kOe. С учетом области промежуточных температур полученные данные в пределах точности измерений демонстрируют уменьшение величины поля с ростом  $m$  практически по линейному закону:  $\Delta H/\Delta m = 35$  kOe/atom.

Образец из этого сплава был подвергнут дальнейшему нагреванию. При нагревании вклад дублета в общий спектр увеличивается и при  $T = 475$  K спектр транс-

формируется в парамагнитный дублет. Если суммарную площадь секстетов в спектре образца принять за характеристику его магнитоупорядоченного состояния и построить относительную площадь секстетов  $S_6$  в зависимости от температуры (рис. 2), то получится кривая, аналогичная кривой Нееля, и может быть определена точка Кюри.

Мессбауэровские спектры сплавов с концентрациями  $x = 0.2, 0.3, 0.4, 0.5$  и  $0.6$  представлены на рис. 3–5.

### 3. Результаты и обсуждение

Мессбауэровские спектры были обработаны по программе Univem MS в виде суперпозиции секстетов, отвечающих за магнитоупорядоченное состояние, и дублетов, характеризующих парамагнитное состояние. Как видно, из рис. 1, область  $x = 0.2–0.3$  является двухфазной областью совместного существования структур C15 и C14. Поэтому спектры, приведенные на рис. 3, достаточно сложны и могут быть представлены суперпози-

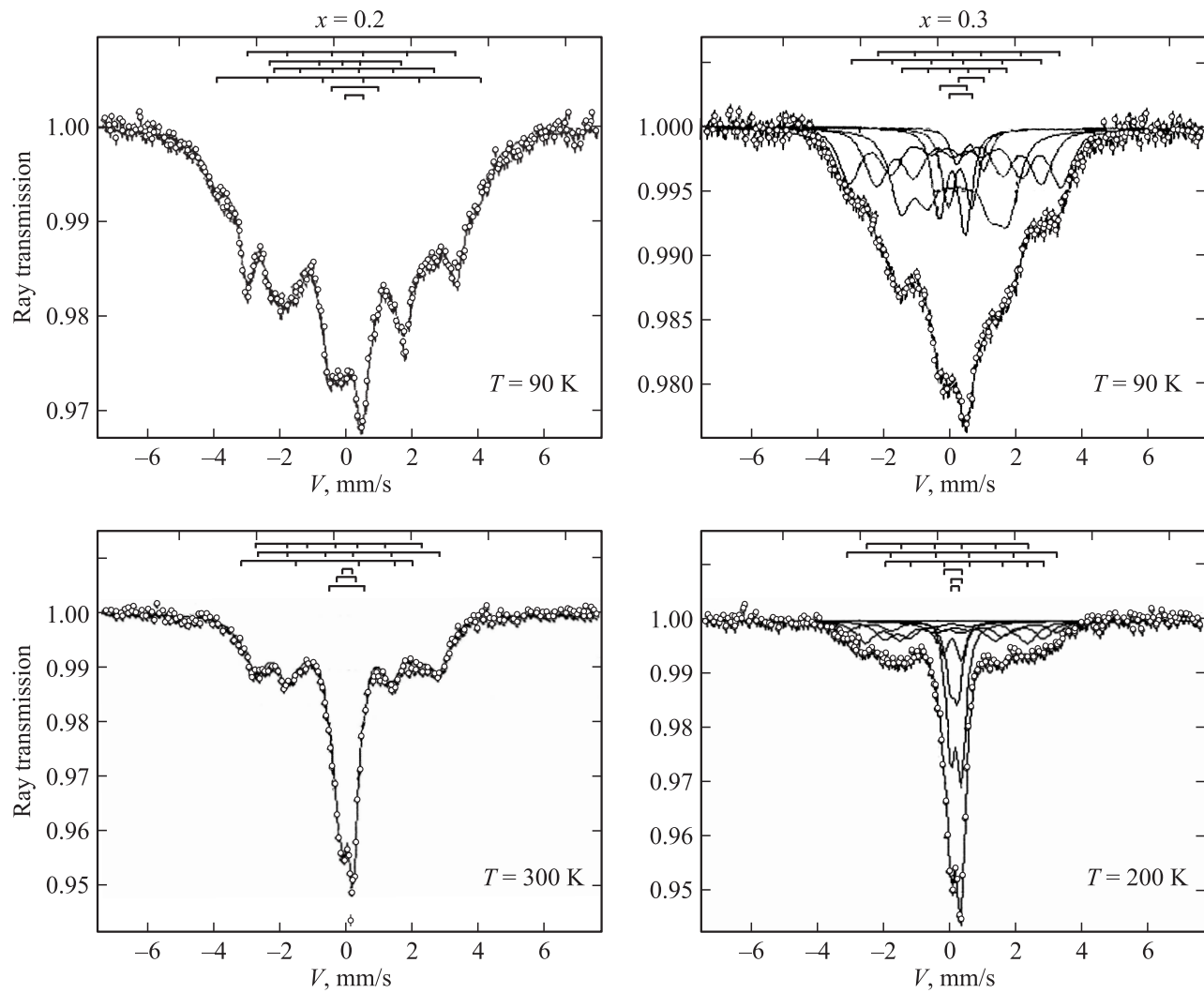


Рис. 3. Мессбауэровские спектры сплава с  $x = 0.2$  и  $0.3$ .

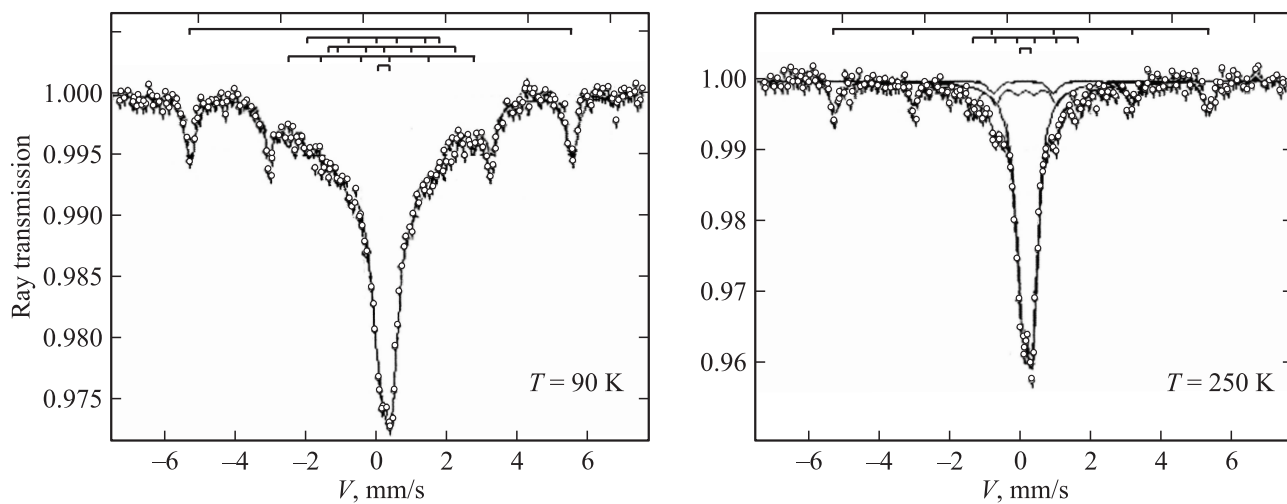


Рис. 4. Мессбауэровские спектры сплава с  $x = 0.4$ .

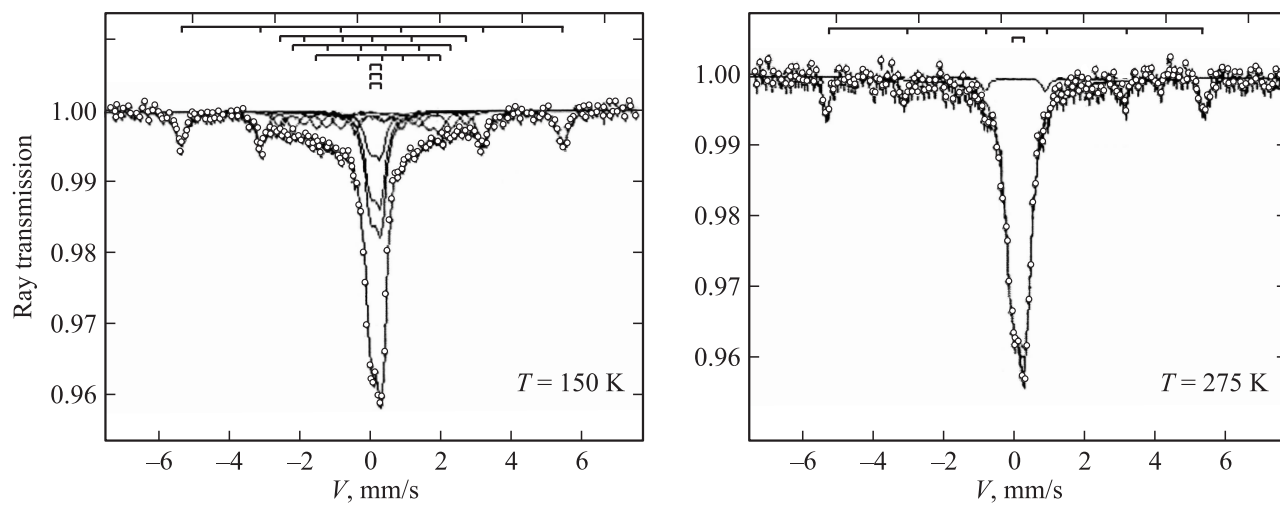
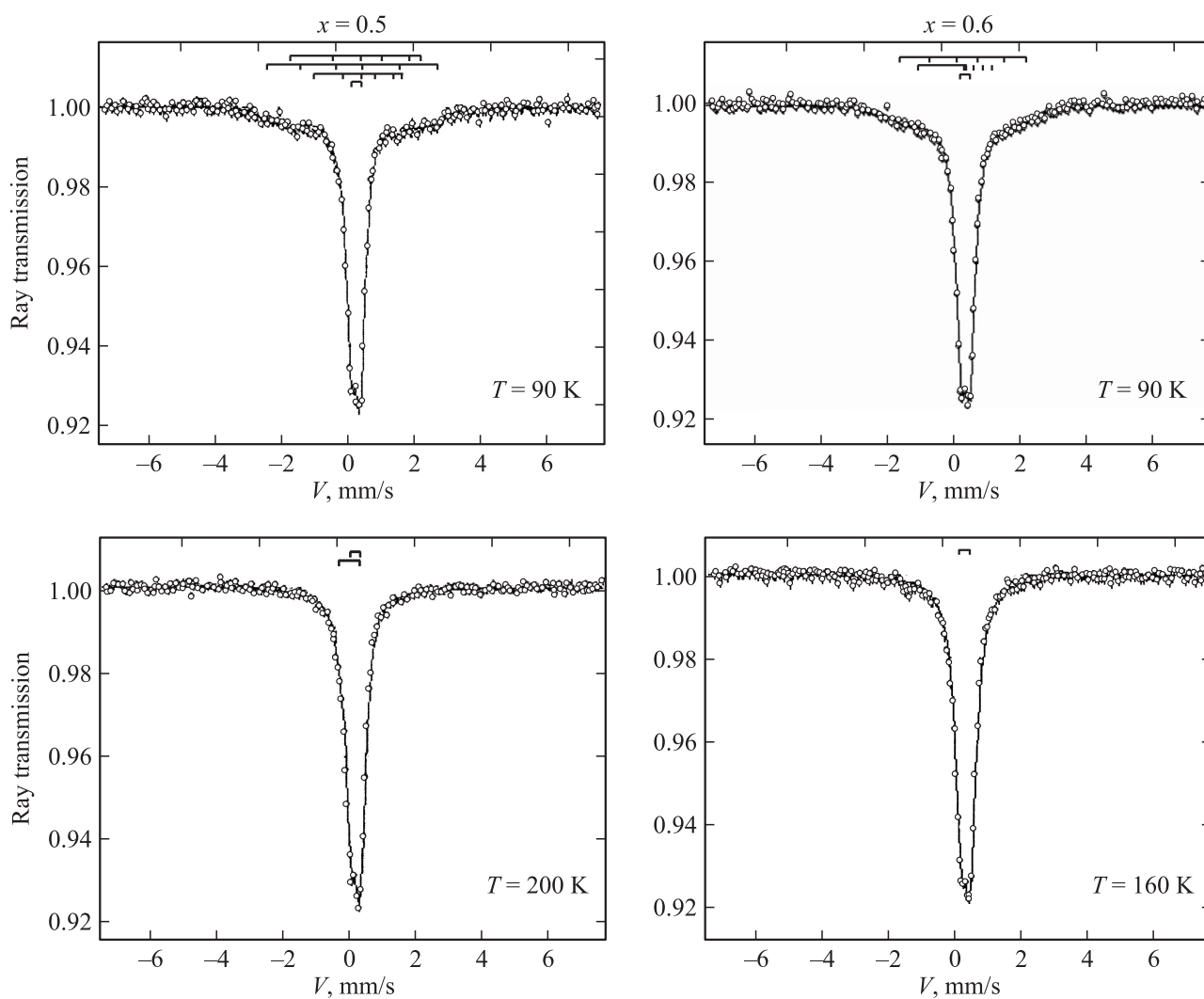


Рис. 4 (продолжение).

Рис. 5. Мессбауэровские спектры сплавов с  $x = 0.5$  и  $0.6$ .

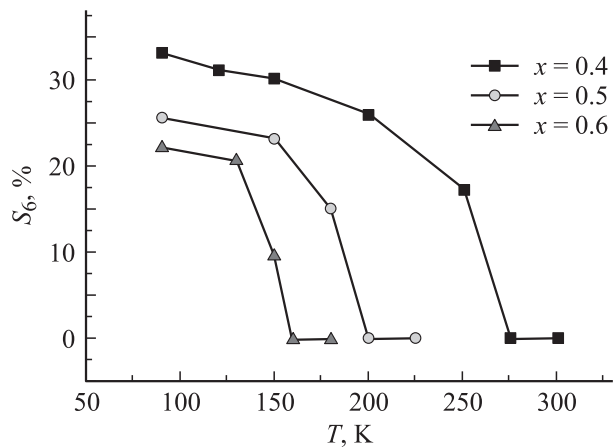


Рис. 6. Характеристики магнитоупорядочения для сплавов с  $x = 0.4, 0.5, 0.6$ .

цией как минимум трех секстетов и трех дублетов. Это количество соответствует трем главным вероятностям нахождения атомов алюминия в ближайшем окружении атома железа для кубической решетки C15.

Область концентраций  $x = 0.4$  является в основном однофазной областью сплава с гексагональной структурой типа C14. Большое количество алюминия в сплаве привело к тому, что спектры, представленные на рис. 4, являются в основном суперпозицией парамагнитных дублетов. Образец с  $x = 0.4$ , к сожалению, содержит примесь  $\alpha$ -Fe, дающую характерный секстет с величиной поля  $H = 330$  кОе.

На рис. 6 приведены графики температурных зависимостей относительных площадей секстетов  $S_6$  для сплавов составов  $x = 0.4, 0.5$  и  $0.6$ .

На наших образцах были проведены измерения магнитного момента от температуры при охлаждении в магнитном поле 100 Ое (рис. 7).

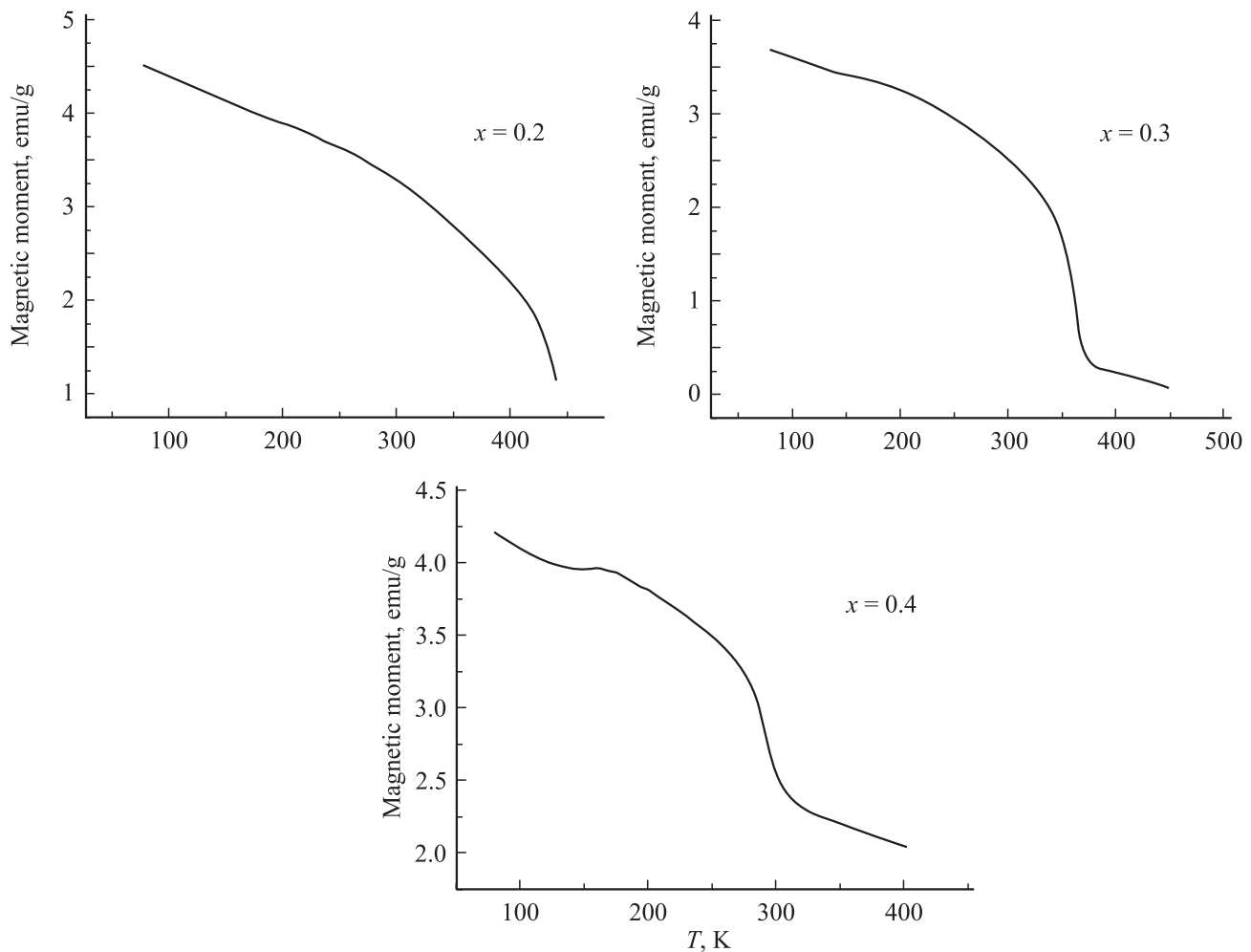
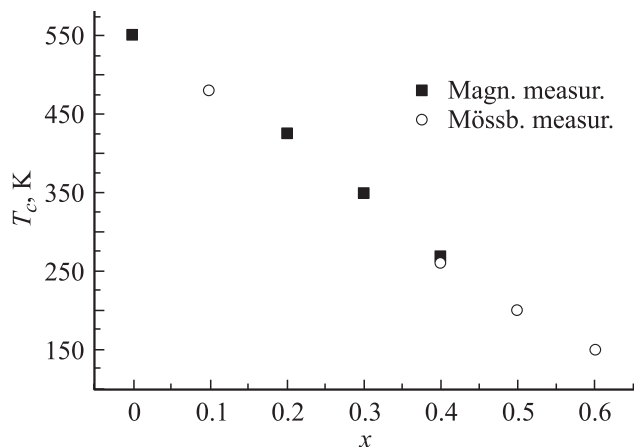


Рис. 7. Магнитные моменты сплавов с  $x = 0.2, 0.3, 0.4$ .



**Рис. 8.** Зависимость температур Кюри системы  $\text{Pr}(\text{Fe}_{1-x}\text{Al}_x)_2$  от концентрации алюминия.

Из рис. 6 видно, что магнитные фазовые переходы из магнитоупорядоченного состояния в парамагнитное хорошо согласуются с данными прямых магнитных измерений. Объединяя данные мессбауэровских и магнитных измерений, можно построить зависимость температуры Кюри от концентрации для сплавов всей системы (рис. 8).

#### 4. Заключение

В работе впервые при высоких давлениях синтезированы сплавы квазибинарной системы  $\text{Pr}(\text{Fe}_{1-x}\text{Al}_x)_2$  при концентрациях  $x = 0-1$ , выявлены области существования кубической фазы со структурой *C15* и гексагональной фазы со структурой *C14* и определены параметры элементарных ячеек.

Выявлены магнитные фазовые переходы типа порядок–беспорядок и показано, что температуры Кюри в данной системе линейно убывают в зависимости от количества немагнитной компоненты.

Авторы считают своим приятным долгом выразить благодарность А.В. Цвященко за помощь в изготовлении образцов, Н.С. Перову за помощь в проведении магнитных измерений, а также А.Г. Хунджуа и В.С. Русакову за ценные замечания при обсуждении результатов.

#### Список литературы

- [1] Ф. Лавес. В сб.: Интерметаллические соединения. Металлургия, М. (1970). С. 139.
- [2] К.П. Белов. Магнитострикционные явления и их приложения. Наука, М. (1987). 250 с.
- [3] H.V. Kirchmayr, E. Burzo. In: Landoit-Bornstein numerical data and functional relationship in science and technology. New series. V. III/19D2/ Ed. H.P.J. Wijn. Springer-Verlag (1990). P. 106.
- [4] А.С. Илюшин. Основы структурной физики редкоземельных интерметаллических соединений. Изд-во МГУ, М. (2005).