

Нейтроннографическое исследование метамагнитного перехода в $Tb_{0.1}Tm_{0.9}Co_2$

© Е.А. Шерстобитова*, А.Ф. Губкин**, А.В. Захаров**, А.Е. Теплых*, А.А. Подлесняк***,****, С.Н. Гвасалия***, Д.-Г. Парк****,*****, Н.В. Баранов**, А.Н. Пирогов*,*****

* Институт физики металлов Уральского отделения Российской академии наук, 620041 Екатеринбург, Россия

** Уральский государственный университет им. А.М. Горького, 620083 Екатеринбург, Россия

*** Лаборатория рассеяния нейтронов, ETH Цюрих и Пауль Шеррер институт, CH-5232 Виллиген ПШИ, Швейцария

**** Ган-Мейтнер институт, 10014109 Берлин, Германия

***** Сангкюнкван университет, 440-746 Сувон, Корея

***** Центр сильнокоррелированных систем, Сеульский национальный университет, 151-742 Сеул, Корея

E-mail: sherl@imp.uran.ru

(Поступила в Редакцию 2 ноября 2006 г.)

Нейтроннографическим методом показано, что в соединении $Tb_{0.1}Tm_{0.9}Co_2$ происходит индуцированный внешним магнитным полем необратимый зонный метамагнитный переход. Намагниченность подрешетки Co увеличивается от 0.2 до $0.6 \mu_B$. Величина критического поля составляет около 1Т при 1.8 и 4К. С ростом температуры влияние поля на магнитное состояние образца уменьшается так, что при 25К внешнее поле 0.75Т уже не вызывает видимых изменений. Метамагнитный переход при 1.8К сопровождается исчезновением ромбоэдрических искажений и расширением решетки примерно на 1%.

Работа основана на экспериментах, выполненных на Швейцарском источнике нейтронов SINQ (Paul Scherer Institute, Villigen, Switzerland). Работа была частично поддержана грантом РФФИ-Урал (№ 04-02-96082), программой „Нейтронные исследования вещества“ (контракты № 23/06/327 и 02.452.11.704), проектами № 9 и 33 Уральского отделения РАН и Швейцарским фондом SCOPES (проект N IB7420-110849). Работа в Сангкюнкван университете была поддержана KRF грантом N 2005-C00153 и программой KPOSEF-CSCMR.

PACS: 75.50.-y, 61.12.-q

1. Введение

В [1] нами был изучен зонный метамагнитный переход (ЗМП), происходящий в системе соединений $Tb_xTm_{1-x}Co_2$ при изменении концентрации x . Было показано, что при критической концентрации $x_c \approx 0.15$ замещение ионов Tm ионами тербия сопровождалось расщеплением d -зоны подрешетки Co, причем ее намагниченность (μ_{Co}) увеличивалась от 0.2 до $0.8 \mu_B$. Происходил также рост намагниченности редкоземельной подсистемы (μ_R). Последнее обуславливало увеличение эффективного поля (H_{ef}), действующего со стороны ионов Tb и Tm на подрешетку Co. В соединениях с $x \geq x_c$ величина H_{ef} превышала критическое значение ($H_{ef}^c \approx 70Т$) [2], при котором в подрешетке Co реализуется дальний магнитный порядок. В образцах с $x < x_c$ поле H_{ef} ниже, чем H_{ef}^c , их магнитное состояние неоднородно и характеризуется наличием областей ближнего ферримагнитного порядка. Средний размер областей составлял примерно 100 Å.

Подобное неоднородное состояние наблюдалось ранее вблизи критической концентрации соединений типа $R_{1-x}Y_xCo_2$ (где R = Er, Ho) [3], и, как было показано в [4], оно может трансформироваться в состояние с

дальним магнитным порядком даже в сравнительно небольшом по величине внешнем магнитном поле. Так, приложения поля 0.1Т было достаточно для увеличения в несколько раз намагниченностей R- и Co-подрешеток в соединении $Er_{0.55}Y_{0.45}Co_2$, т. е. такое поле индуцировало ЗМП.

Поэтому следует ожидать, что в составах $Tb_xTm_{1-x}Co_2$ с $x \approx x_c$ также можно индуцировать ЗМП относительно низким магнитным полем. Поскольку при воздействии внешнего поля будут изменяться намагниченности обеих (R и Co) подрешеток, для определения величины каждой из них необходимо применение дифракции нейтронов.

Цель данной работы состояла в нейтроннографическом исследовании ЗМП в $Tb_{0.1}Tm_{0.9}Co_2$, индуцированного внешним полем.

2. Образцы и методика эксперимента

В данной работе исследовался тот же поликристаллический образец $Tb_{0.1}Tm_{0.9}Co_2$, что и в [1].

Нейтроннографический эксперимент был проведен на установках DMC [5] и TASP [6], смонтированных на источнике SINQ (Институт Паула Шеррера, Швейца-

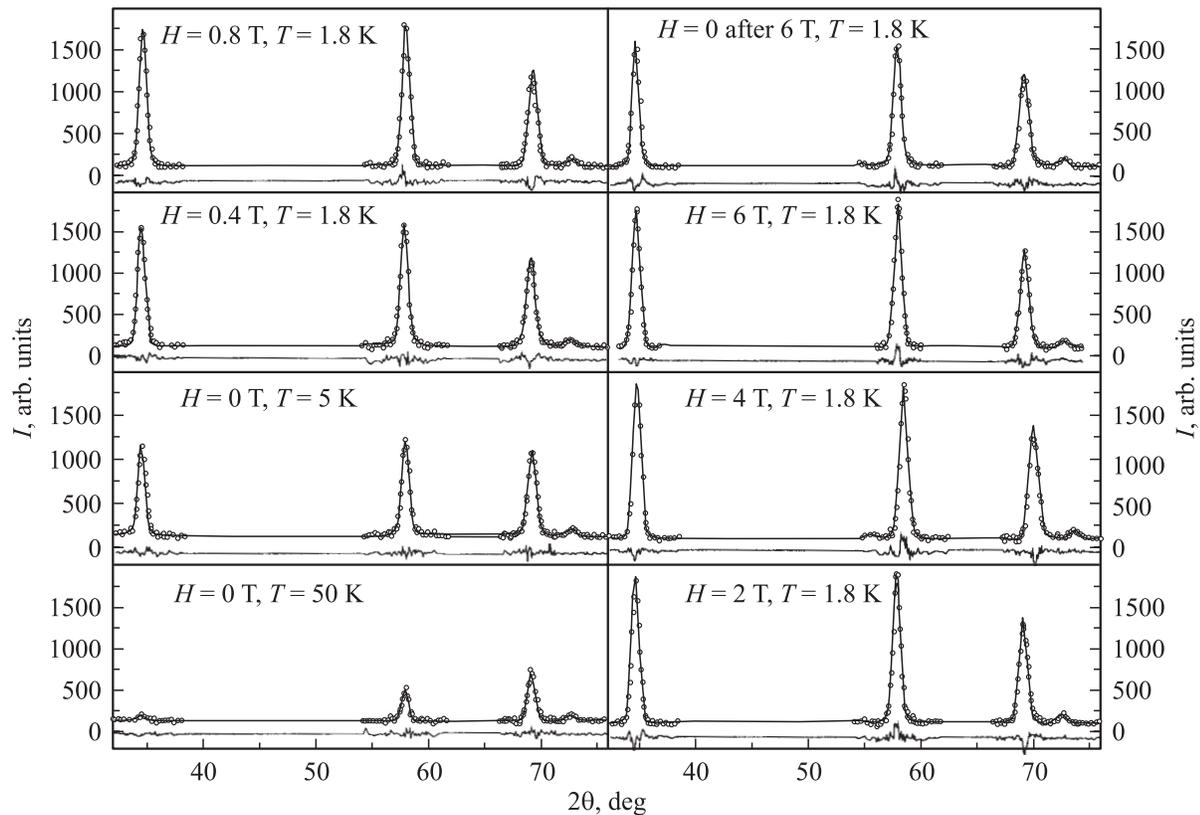


Рис. 1. Нейтроннограммы соединения $Tb_{0.1}Tm_{0.9}Co_2$ при 50, 5 и 1.8 К во внешних магнитных полях до 6 Т. Точки — эксперимент, линии — расчет. Кривая под графиком — разностная кривая между моделью и экспериментом.

рия) с использованием длин волн нейтронов $\lambda = 3.80$ и 2.445 \AA соответственно. Магнитное поле прикладывалось вертикально. На установке DMC нейтроннограммы были получены с постоянным угловым шагом 0.1° в интервале углов $2\theta = 30\text{--}110^\circ$, включающем только рефлексы (111) и (220). Образец представлял собой порошок, уплотненный в контейнере.

Измерения на трехосном спектрометре TASP выполнены в режиме упругого рассеяния с постоянной длиной волны нейтронов [7]. Пиролитический графит (плоскость (002)) использовался в качестве анализатора рассеянных образцом нейтронов. Образцом являлся порошок, спрессованный в виде таблеток диаметром 5 мм и общей высотой 50 мм. При каждом значении внешнего поля измерялись короткие участки нейтроннограмм, каждый из которых содержал по одному рефлексу из (111), (220), (311) и (222). Затем эти участки складывались так, чтобы сформировать нейтроннограмму, содержащую все четыре указанных рефлекса. При расчете нейтроннограмм использовался программный пакет „FullProf“ [8].

3. Результаты

На рис. 1 приведены нейтроннограммы соединения $Tb_{0.1}Tm_{0.9}Co_2$, полученные на установке TASP при 1.8 К в магнитных полях до 6 Т. Для сравнения там же

показана нейтроннограмма при 50 К, соответствующая парамагнитному состоянию образца. Как видно из рисунка, приложение внешнего поля приводит к увеличению интенсивности рефлексов (111), (220) и (311), что свидетельствует о росте подрешеточных намагниченностей. Основное увеличение интенсивностей происходит при повышении внешнего поля от 0 до 0.75–1 Т. Дальней-

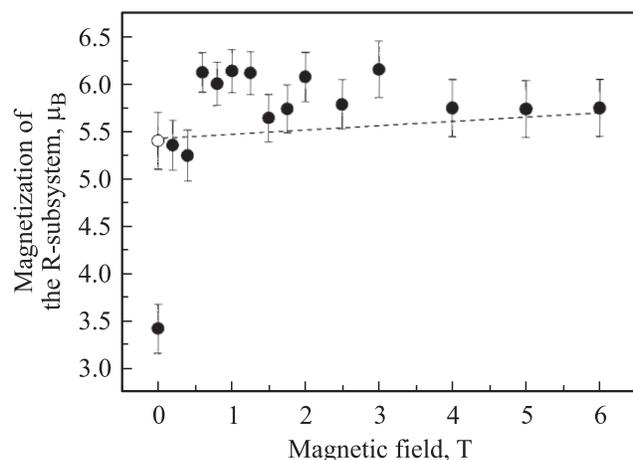


Рис. 2. Полевая зависимость намагниченности редкоземельной подрешетки в $Tb_{0.1}Tm_{0.9}Co_2$ при 1.8 К. Светлая точка — значение намагниченности после выключения поля 6 Т.

ший рост величины поля до 6 Т вызывает, напротив, даже некоторое уменьшение интенсивностей. После выключения поля интенсивности рефлексов хотя и несколько понижаются, но остаются значительно выше, чем до приложения внешнего поля. Следовательно, индуцированное внешним полем новое магнитное состояние образца сохраняется и после выключения поля.

Из расчета нейтронограмм следует, что в интервале полей 0.2–6 Т образец $Tb_{0.1}Tm_{0.9}Co_2$ имеет кубическую решетку (тип $MgCu_2$, пространственная группа $Fd\bar{3}m$),

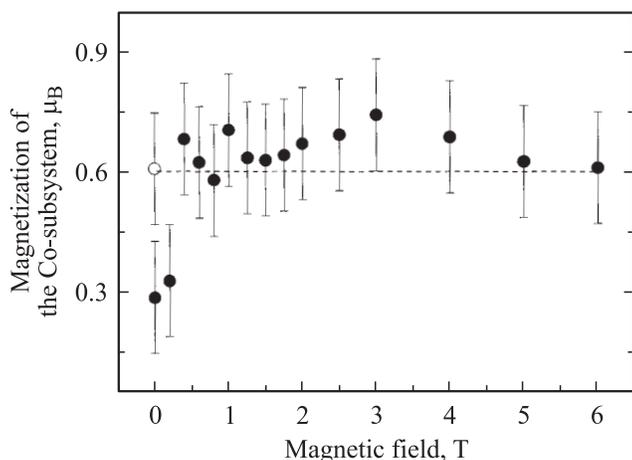


Рис. 3. Полевая зависимость намагниченности кобальтовой подрешетки в $Tb_{0.1}Tm_{0.9}Co_2$ при 1.8 К. Светлая точка — значение намагниченности после выключения поля 6 Т.

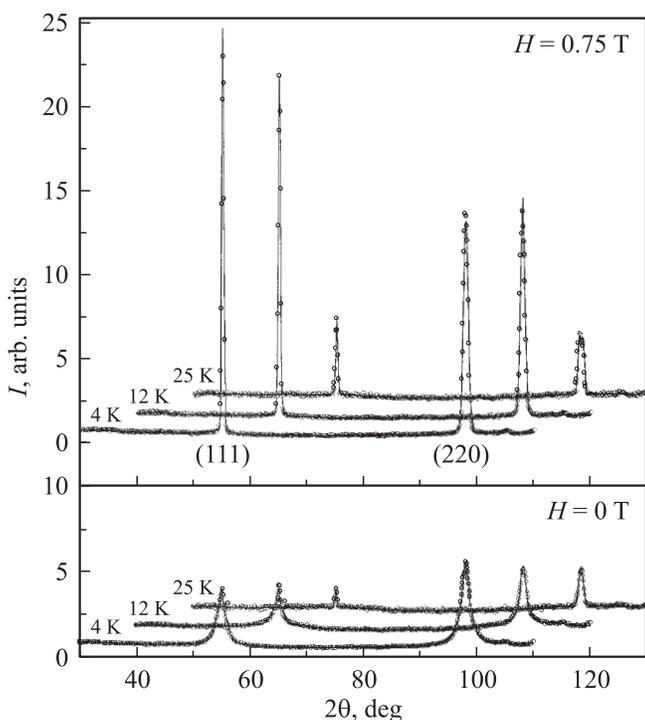


Рис. 4. Нейтронограммы соединения $Tb_{0.1}Tm_{0.9}Co_2$ при 4, 12 и 25 К в нулевом поле и в поле 0.75 Т. Точки — эксперимент, линии — расчет.

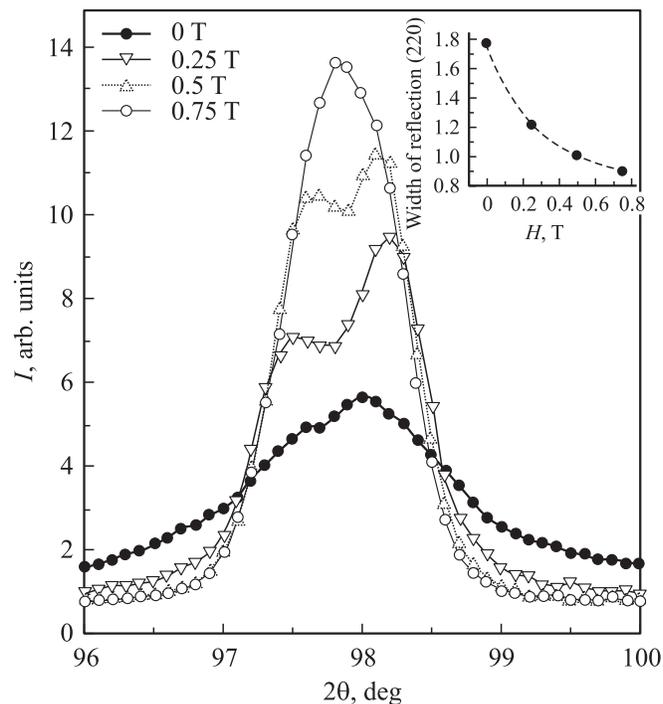


Рис. 5. Изменение рефлекса (220) под действием внешнего магнитного поля 0, 0.25, 0.5, 0.75 Т. На вставке — полевая зависимость полуширины рефлекса (220).

а его магнитная структура описывается волновым вектором $\mathbf{k} = 0$. Намагниченности редкоземельных μ_R и кобальтовых μ_{Co} подрешеток антипараллельны между собой. На рис. 2 и 3 показаны полевые зависимости намагниченности этих подрешеток. Видно, что приложение поля $H \sim 1$ Т вызывает рост намагниченностей μ_R и μ_{Co} почти в 2 раза.

Таким образом, основное изменение магнитного состояния соединения $Tb_{0.1}Tm_{0.9}Co_2$ происходит в интервале внешних полей 0–1 Т. Для более детального изучения магнитного состояния образца в этом интервале были выполнены также измерения на дифрактометре DMC, имеющем угловое разрешение выше, чем разрешение установки TASP. Нейтронограммы, полученные с DMC, представлены на рис. 4. Как хорошо видно, приложение внешнего поля вызывает сильный рост интенсивности рефлексов и заметное сужение их ширины. Рис. 5 показывает зависимость полуширины рефлекса (220) от поля. Видно, что полуширина уменьшается с 1.8° до инструментальной (0.9°) величины в поле 0.75 Т.

4. Обсуждение результатов эксперимента и выводы

В [1] было установлено, что в парамагнитном состоянии образец $Tb_{0.1}Tm_{0.9}Co_2$ имеет кубическую структуру типа $MgCu_2$ (пространственная группа $Fd\bar{3}m$), а ниже температуры Кюри ($T_C \sim 10$ К) — ромбоэдрическую структуру (пространственная группа $R\bar{3}m$). Именно воз-

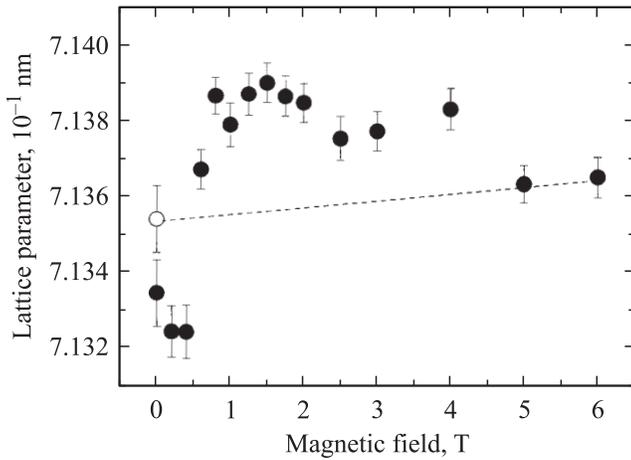


Рис. 6. Полевая зависимость параметра кубической элементарной ячейки соединения $Tb_{0.1}Tm_{0.9}Co_2$ при 1.8 К.

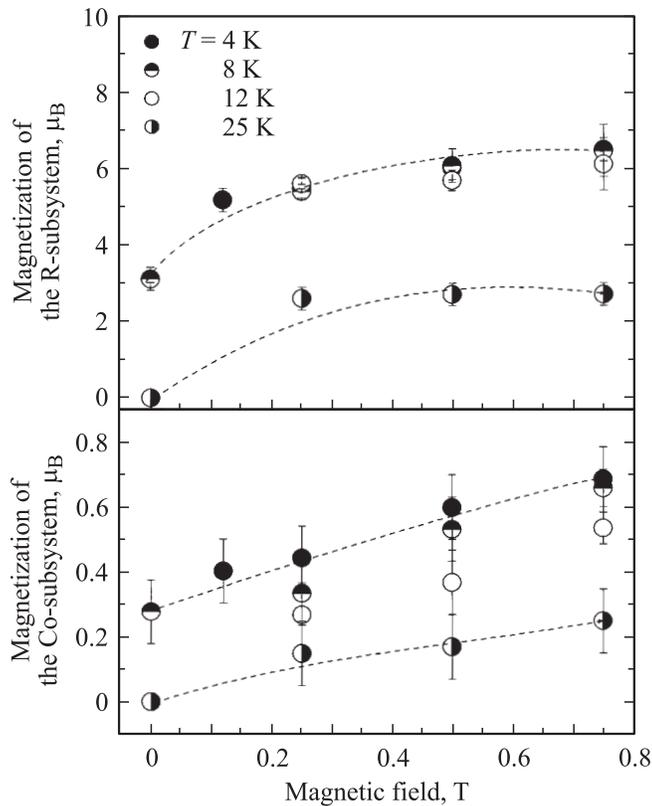


Рис. 7. Полевые зависимости намагниченностей редкоземельной и кобальтовой подрешеток в $Tb_{0.1}Tm_{0.9}Co_2$ при 4, 8, 12 и 25 К.

никновением ромбоэдрических искажений обусловлено уширение рефлексов (111) и (220) при $T < T_C$ в нулевом внешнем поле. Сужение этих рефлексов до значения инструментальной полуширины (рис. 5) при воздействии полем 0.75 Т указывает на уменьшение ромбоэдрических искажений с ростом поля и структурный переход в кубическую фазу.

На рис. 6 приведена полевая зависимость параметра кубической решетки ($a(H)$) при 1.8 К. Видно, что параметр a резко увеличивается с ростом поля в интервале 0.5–1.5 Т. Увеличение параметра составляет около $\Delta a = a(1.5) - a(0) \approx 0.007 \text{ \AA}$. Дальнейший рост поля сопровождается, напротив, некоторым сжатием решетки. Если считать, как это обычно принимается [9], что изменение объема элементарной ячейки соединений RCO_2 пропорционально изменению квадрата магнитного момента атомов Co, то сжатие решетки с ростом поля при $H \geq 1.5 \text{ Т}$ указывает на уменьшение намагниченности подрешетки Co. Полученная нами зависимость $\mu_{Co}(H)$ (рис. 3) показывает, что по крайней мере тенденция к уменьшению намагниченности μ_{Co} с ростом поля при $H \geq 1.5 \text{ Т}$ действительно имеет место. Такое поведение намагниченности подрешетки Co в области больших полей качественно согласуется с приведенными в [10] результатами магнитных измерений соединений RCO_2 в сверхсильных полях.

В случае соединений RCO_2 внешнее поле направлено вдоль намагниченности μ_R и против μ_{Co} . Если подрешетка R была частично разупорядочена при $H = 0$ (как, например, в $Tb_{0.1}Tm_{0.9}Co_2$), то ее намагниченность будет увеличиваться с ростом поля. Благодаря межподрешеточному обмену увеличится и намагниченность подрешетки Co. Как видно из рис. 3, резкий рост намагниченности μ_{Co} происходит в основном в интервале полей 0.2–0.6 Т. При некоторой величине поля (в нашем случае это $H \approx 1 \text{ Т}$) все магнитные моменты R-ионов будут выстроены вдоль поля, при этом намагниченности μ_R и μ_{Co} достигнут максимальных значений. Принимая во внимание приведенные на рис. 2, 3 и 6 данные, можно считать, что в $Tb_{0.1}Tm_{0.9}Co_2$ ЗМП завершается при внешнем поле $H_{ex}^c \approx 1-2 \text{ Т}$. Дальнейший рост поля будет только разупорядочивать подрешетку Co, и последняя может стать даже немагнитной, если приложить поле величиной несколько сотен тесла. Например, в случае $HoCo_2$ это поле равно 220 Т [10]. Уменьшение намагниченности подрешетки Co в больших полях из-за R–Co-обменного взаимодействия приведет к понижению и намагниченности подрешетки R. На это указывает и ход полученной нами зависимости $\mu_R(H)$, которая демонстрирует (рис. 4) по крайней мере тенденцию к понижению намагниченности μ_R в полях 3–6 Т.

После выключения поля намагниченности R- и Co-подрешеток, а также параметр решетки не возвращаются к значениям, которые они имели до воздействия внешним полем при 1.8 К. Новые значения намагниченностей μ_R , μ_{Co} и параметра a близки к полученным в поле $H \approx 1 \text{ Т}$. Это показывает, что в $Tb_{0.1}Tm_{0.9}Co_2$ ЗМП происходит как переход первого рода при 1.8 К.

С ростом температуры образца поле $H \approx 1 \text{ Т}$ становится недостаточным для полного расщепления d -зоны. Это иллюстрирует рис. 7, на котором показаны полевые зависимости $\mu_R(H)$ и $\mu_{Co}(H)$, измеренные при 4, 8, 12 и 25 К. При 4 К полевые зависимости намагниченностей μ_R и μ_{Co} практически совпадают с полученными при

1.8 К (рис. 2 и 3). Но по мере роста температуры внешнее поле вызывает все меньшее увеличение намагниченностей μ_R и μ_{Co} . При 25 К приложение к образцу поля $H = 0.75$ Т уже не сопровождается ЗМП.

Итак, сравнительно небольшое внешнее магнитное поле (~ 1 Т) индуцирует ЗМП первого рода в соединении $Tb_{0.1}Tm_{0.9}Co_2$ при 1.8 и 4 К. В этом поле намагниченность подрешетки Co достигает почти $0.7 \mu_B$. Сильное влияние поля на намагниченность μ_{Co} осуществляется благодаря межподрешеточному (R–Co) обменному взаимодействию.

В $Tb_{0.1}Tm_{0.9}Co_2$ ЗМП сопровождается значительным расширением кристаллической решетки $\Delta a/a \approx 0.1\%$. В поле $H \approx 0.75$ Т происходит переход от ромбоэдрической структуры к кубической.

Рост внешнего магнитного поля от ~ 2 до 6 Т сопровождается тенденцией к уменьшению намагниченностей R- и Co-подрешеток и сжатию кристаллической решетки.

Список литературы

- [1] Е.А. Шерстобитова, А.А. Ермаков, А.В. Захаров, А.Ф. Губкин, В.Ю. Помякушин, Ю.А. Дорофеев, А.А. Подлесняк, А.Н. Пирогов, Н.В. Баранов. ФТТ **48**, 1249 (2006).
- [2] T. Goto, K. Fukamichi, T. Sakakibara, H. Komatsu. Solid State Commun. **72**, 945 (1989).
- [3] N.V. Baranov, A.N. Pirogov, J. Alloys Comp. **217**, 31 (1995).
- [4] Н.В. Баранов, В.В. Келарев, А.И. Козлов, А.Н. Пирогов, Е.В. Сеницин. Письма в ЖЭТФ **49**, 274 (1989).
- [5] P. Fischer, L. Keller, J. Schefer, J. Kohlbrecher. Neutron News **11**, 19 (2000).
- [6] F. Semadeni, V. Roessli, P. Buni. Physica B **297**, 152 (2001).
- [7] N.V. Baranov, A.A. Ermakov, A.N. Pirogov, A.V. Proshkin, S.N. Gvasaliya, A. Podlesnyak. Phys. Rev. B **73**, 104445 (2006).
- [8] J. Rodriguez-Carvajal. Physica B **192**, 55 (1993).
- [9] E. Gratz, A.S. Markosyan. J. Phys.: Cond. Matter. **13**, R 385 (2001).
- [10] И.С. Дубенко, А.К. Звездин, А.С. Лагутин, Р.З. Левитин, А.С. Маркосян, В.В. Платонов, О.М. Ташенко. Письма в ЖЭТФ **64**, 188 (1996).