

Изучение магнитных свойств сплава $(\text{Pd}_{1-x}\text{Fe}_x)_{0.95}\text{Mn}_{0.05}$ с помощью поляризованных мюонов и нейтронов

© С.Г. Барсов, С.И. Воробьев, В.П. Коптев, С.А. Котов, С.М. Микиртычянц, Г.В. Щербаков, Л.А. Аксельрод, Г.П. Гордеев, В.Н. Забенкин, И.М. Лазебник

Петербургский институт ядерной физики им. Б.П. Константинова Российской академии наук, 188300 Гатчина, Ленинградская обл., Россия

E-mail: vsiloa@npi.spb.ru

(Поступила в Редакцию 11 октября 2006 г.)

В окончательной редакции 3 декабря 2006 г.)

Методом измерения релаксации спина мюона в нулевом и поперечном внешнем магнитном поле проведено исследование сплава $(\text{Pd}_{1-x}\text{Fe}_x)_{0.95}\text{Mn}_{0.05}$ со случайным конкурирующим взаимодействием. Изучение зависимости скорости динамической релаксации λ и характеристик распределения локальных статических полей позволило уточнить фазовые состояния исследуемого образца. В частности, показано, что ниже 25 К в образце одновременно сосуществуют два фазовых состояния: ферромагнитное и состояние спинового стекла. Совместные исследования образца μRS -методом и методом деполяризации нейтронов позволили определить величину магнитных неоднородностей, равных $2\text{--}6\ \mu\text{m}$, в температурном диапазоне $5\text{--}40\ \text{K}$.

Работа выполнена при финансовой поддержке Программы ОФН РАН.

PACS: 76.75.+i, 61.12.Ex, 75.20.Hr, 75.30.Et, 75.50.Lk, 75.50.Gg, 75.47.Np

Как известно, сплавы палладия с небольшим количеством атомов Fe и Mn принадлежат к магнитным материалам, магнетизм которых обусловлен взаимодействием магнитных примесей через поляризованную матрицу Pd. Наличие двух типов примесных атомов в сплаве приводит к тому, что обменное взаимодействие между атомами имеет разные знаки: ферромагнитное и антиферромагнитное. В результате конкуренции этих взаимодействий некоторые спины примесей оказываются фрустрированными. Это отражается на корреляциях магнитных моментов атомов примесей как на микроскопическом, так и на мезоскопическом масштабе длины. В зависимости от соотношения количества ферро- и антиферромагнитных связей в сплаве могут образовываться различные магнитные мезоструктуры. Так, в сплаве $(\text{Pd}_{1-x}\text{Fe}_x)_{0.95}\text{Mn}_{0.05}$ с $x = 0.016$ при понижении температуры вначале существенную роль играют ферромагнитные связи, и сплав испытывает переход из парамагнитного состояния в ферромагнитное при температуре $T_c = 41\ \text{K}$. При низких температурах образец переходит в состояние спинового стекла при $T_g = 7\text{--}10\ \text{K}$. Однако исследования с помощью поляризованных нейтронов [1] показывают, что в данном состоянии имеется значительная коллинеарная составляющая намагниченности, что свидетельствует об асперомагнетизме на микроскопическом уровне. Для исследования магнитной мезоструктуры был использован метод трехмерного анализа поляризации нейтронов. Монохроматический нейтронный пучок с вектором начальной поляризации \mathbf{P}_0 падает на образец. После прохождения нейтронов через образец поляризация пучка становится равной $\mathbf{P} = \hat{D} \cdot \mathbf{P}_0$, где \hat{D} — матрица, описывающая изменения вектора поляризации. Экспериментально определив матрицу \hat{D} , можно вычислить угол поворота φ вектора поляриза-

ции вокруг направления средней намагниченности $\langle M \rangle$ и деполяризацию нейтронов ΔP , причем $\varphi \sim \langle M \rangle$, а $\Delta P = -\ln(|\hat{D}|)$.

В работах [1,2] была обнаружена необычная немонотонная зависимость нейтронной деполяризации от температуры при охлаждении образца сплава $(\text{Pd}_{1-x}\text{Fe}_x)_{0.95}\text{Mn}_{0.05}$ с $x = 0.016$ в различных магнитных полях. На рис. 1 представлены температурные зависимости угла поворота φ (рис. 1, а) и деполяризации ΔP (рис. 1, б). При малых значениях внешнего магнитного поля ($H < 5\ \text{Oe}$) деполяризация монотонно возрастает при охлаждении. Для этих значений поля деполяризация растет и с увеличением величины H , в то время как при полях $H > 5\ \text{Oe}$ температурная зависимость деполяризации имеет максимум при $T = 35\ \text{K}$, и ее значения падают с ростом поля H . Отметим, что поведение средней намагниченности или угла φ при охлаждении в нулевом поле (режим ZFC) также имеет немонотонный характер: при $T = 35\ \text{K}$ температурная зависимость намагниченности имеет максимум. Такое поведение намагниченности характерно как для коллинеарного ферромагнетика, так и для асперомагнетика, испытывающих фазовый переход в состояние, подобное фазе спинового стекла.

Нейтронная деполяризация ΔP обусловлена магнитными неоднородностями и определяется их характеристиками: $\Delta P \sim (M_{\text{inh}})^2 \delta$, где M_{inh} — остаточная намагниченность, δ — средний размер домена (или кластера). Поскольку эти характеристики входят в выражения для деполяризации в виде произведения, нет возможности разделить вклад каждой из них, используя только данные, полученные из деполяризации без привлечения теоретических моделей или данных, полученных другими экспериментальными методами. Для решения указанной задачи использовались мюоны, чувствительные

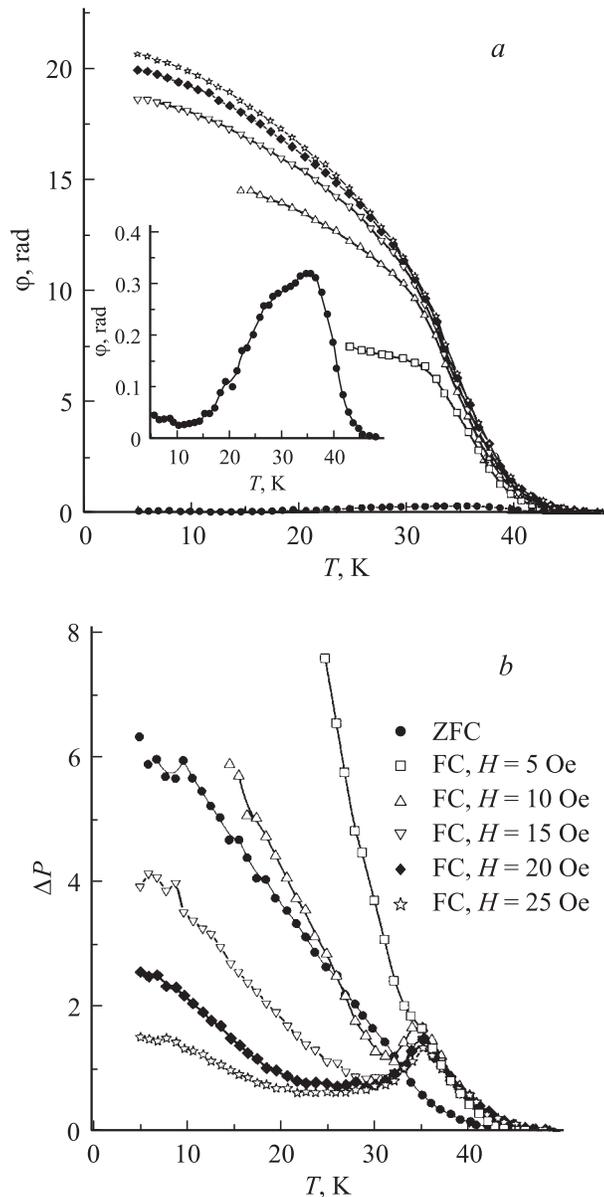


Рис. 1. Температурные зависимости угла поворота φ (a) и деполаризации ΔP (b).

к локальной намагниченности, т.е. к намагниченности неоднородности.

Следующий этап исследования образца был выполнен μ SR-методом на мюонном канале синхроциклотрона ПИЯФ РАН [3,4]. Измерения проводились как в нулевом внешнем магнитном поле, так и в поперечном магнитном поле различной величины в диапазоне температур 10–300 K.

В эксперименте измерялись временные распределения позитронов $N_e(t)$, образовавшихся при распаде μ^+ -мезона ($\mu^+ \rightarrow e^+ + \nu_e + \bar{\nu}_\mu$) и вылетевших в направлении исходной мюонной поляризации во временном окне $\Delta t \sim 4.5\tau_\mu$ после момента остановки каждого мюона в образце, где τ_μ — время жизни мюона. Временное

распределение позитронов описывается выражением

$$N_e(t) = [N_0 \exp(-t/\tau_\mu)][1 + a_s G_s(t) + a_f G_f(t)] + \Phi, \quad (1)$$

где N_0 — нормировочная константа или, иными словами, число зарегистрированных позитронов; $\tau_\mu \approx 2.19711 \cdot 10^{-6}$ s; a_s, a_f — начальная асимметрия распада мюонов, остановившихся в образце, и ее фоновая компонента от мюонов, остановившихся во входных окнах криостата и задающем счетчике детектора мюонов; $G_s(t), G_f(t)$ — функции релаксации поляризации для мюонов, остановившихся в образце и фоновых источниках; Φ — фон случайных совпадений (события, не скоррелированные во времени со „стартом“, вносящие вклад в распределение $N_e(t)$, где „старту“ соответствует момент остановки мюона) представляет сумму двух компонент: изотропного фона, связанного с выходом позитронов, которые образовались при распаде мюонов, остановившихся в коллиматоре, служащем для ограничения пространственного размера пучка в области исследуемого образца, и позитронного фона, связанного с временной структурой пучка синхроциклотрона. Для данного образца фон случайных совпадений составляет величину $\approx 0.6\%$ и в дальнейшем учитывается при обработке результатов эксперимента.

В парамагнитной области ($T > T_c > T_g$) функции релаксации $G_s(t)$ и $G_f(t)$ имеют одну и ту же зависимость от времени. Поэтому, приложив к образцу внешнее поперечное спину мюона (в нашем случае направление спина мюона совпадает с направлением импульса мюона) магнитное поле и обработав спектр $N_e(t)$, получим величину полной начальной асимметрии $a_{\text{tot}} = a_s + a_f$ (рис. 2). Измерения во внешнем поперечном магнитном поле при температуре образца ниже температуры перехода в магнитоупорядоченное состояние позволяют получить значение параметра a_f . При этом для получения параметра a_f начало обра-

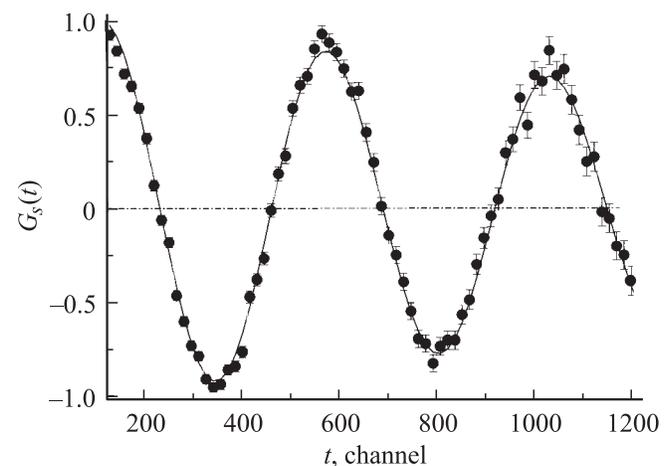


Рис. 2. Прецессия спина мюона во внешнем магнитном поле $H_{\perp \text{ext}} = 32.7$ Oe при $T = 61$ K, $a_{\text{tot}} = a_s + a_f$, где $a_{\text{tot}} = 0.2893(32)$; $\lambda = 0.077(5) \mu\text{s}^{-1}$. По горизонтальной шкале один канал соответствует 5 ns.

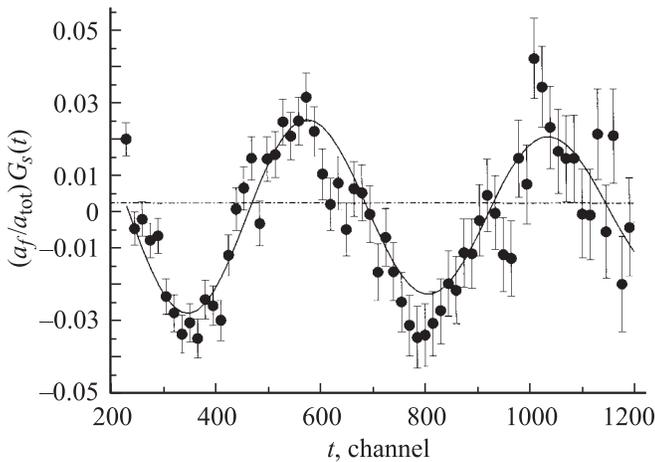


Рис. 3. Прецессия спина мюона во внешнем магнитном поле $H_{\perp ext} = 32.6$ Ое при $T = 35$ К. $a_{tot} = 0.2893(32)$; $a_f = 0.0090(8)$; $\lambda_f = 0.092(4) \mu s^{-1}$. По шкале времени t один канал соответствует 5 ns.

ботки спектра $N_e(t)$ следует переместить в сторону больших времен (на ~ 350 ns), где вклад от прецессии спина мюонов, остановившихся в образце, становится достаточно малым из-за довольно быстрой релаксации на сравнительно больших внутренних магнитных полях. В данных условиях эксперимента значение параметра a_f составляет величину $\approx 3\%$ (рис. 3). Отметим, что параметры N_0 и a_{tot} зависят только от телесного угла, эффективности регистрации позитронов и начальной поляризации мюонов P_0 [5]. Определяемая из $N_e(t)$ функция релаксации спина мюона $G_s(t)$ отображает влияние локальных магнитных полей на спин мюона в месте его остановки. В рамках той или другой модели для некоторых экспериментальных условий рассчитывается или предполагается некоторый вид функции $G_s(t)$, после чего справедливость предложенной модели проверяется путем сравнения с экспериментальной гистограммой (1) с помощью метода наименьших квадратов.

При анализе экспериментальных данных используют предположение о факторизации функции релаксации

$$G_s(t) = G_d(t)G_{st}(t), \quad (2)$$

где $G_d(t)$ — функция релаксации, обусловленная динамическими эффектами, а $G_{st}(t)$ — функция релаксации в статических полях. При изучении динамических явлений, обуславливающих релаксацию спина мюона, функция релаксации задается зависимостью

$$G_d(t) = \exp(-\lambda t), \quad (3)$$

где λ — скорость динамической релаксации. Поведение параметра релаксации λ позволяет определить значение температуры фазового перехода, поскольку из-за критических флуктуаций вблизи этой точки наблюдается резкое увеличение значений λ . На рис. 4 представлена зависимость динамической скорости релаксации от

температуры $\lambda(T)$; видно, что при $T_c = 39.5$ К имеется четко выраженный пик λ , свидетельствующий о развитии критических флуктуаций вблизи этой температуры.

Дальнейший анализ экспериментальных данных показал, что ниже $T_c = 39.5$ К описание $G_s(t)$ будет иметь наилучшее значение χ^2 только в случае применения модели коллинеарного ферромагнетика CFM (рис. 5)

$$G_s(t) = [1/3 + 2/3(\cos(\Omega t) \exp(-\Delta t))] \exp(-\lambda t). \quad (4)$$

Функция распределения локальных статических полей имеет лоренцев вид со значением среднего магнитного поля H и разбросом магнитных полей Δ (рис. 6); их температурная зависимость при $T > 25$ К может быть описана функцией вида $H \sim H_{max}(1 - T/T_c)^\beta$, где $\beta \approx 0.40 \pm 0.02$, что соответствует модели 3d-магнетика гейзенберговского типа.

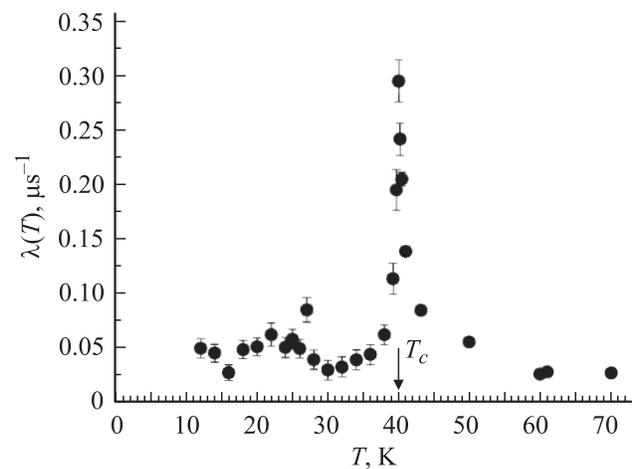


Рис. 4. Температурная зависимость динамической скорости релаксации λ .

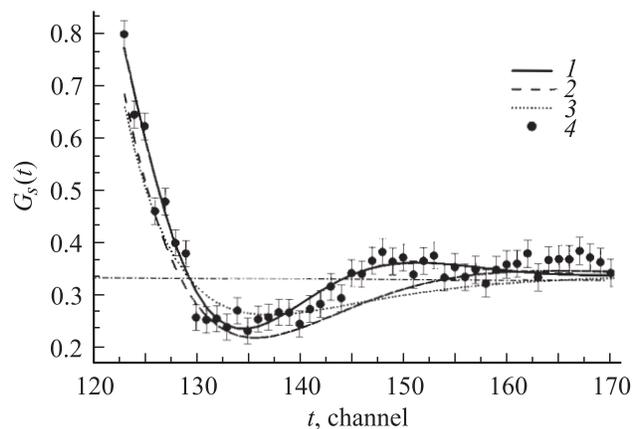


Рис. 5. Вид функции релаксации спина мюона. 1 — обработка по модели коллинеарного ферромагнетика CFM с $\chi^2 = 1.02$; 2 — обработка по модели асперомагнетика ASM с $\chi^2 = 2.26$; 3 — обработка по модели спинового стекла SG с $\chi^2 = 2.6$; 4 — экспериментальные точки, полученные при $T = 28$ К в поле $H_{ext} = 0$. Один канал по шкале времени t соответствует 5 ns.

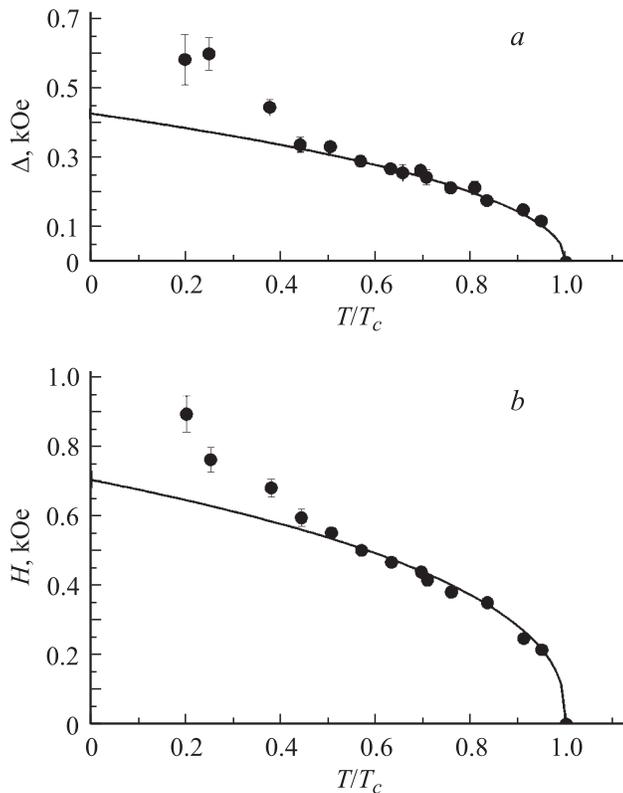


Рис. 6. Зависимость разброса Δ статических полей (а) и величины среднего поля H (б) от температуры. Кривые — аппроксимация экспериментальных данных при помощи соотношения $H \sim H_{\max}(1 - T/T_c)^\beta$, где $\beta = 0.40 \pm 0.02$, что соответствует модели 3d-магнетика гейзенберговского типа.

Дальнейшее понижение температуры (ниже 25 К) приводит к изменению значения параметра χ^2 и уменьшению уровня достоверности до нуля. Экспериментальные данные на рис. 6 существенно отклоняются от аппроксимированной кривой и плохо описываются моделью, представленной соотношением (4). Ни одна из предложенных в [3,4] гипотез (коллинеарного ферромагнетика CFM, асперомагнетика ASM и спинового стекла SG) не дает более или менее удовлетворительного описания G_s -функции. Значение $\chi^2 = 1$ при 97% уровня достоверности были достигнуты только в случае применения для обработки результатов эксперимента суммы двух функций: коллинеарного ферромагнетика и спинового стекла „CFM + SG“ (рис. 7)

$$G_s(t) = \left[a_{\text{CFM}} \left(\frac{1}{3} + \frac{2}{3} \cos(H_0 t) \exp(-\Delta_{\text{CFM}} t) \right) + a_{\text{SG}} \left(\frac{1}{3} + \frac{2}{3} (1 - \Delta_{\text{SG}} t) \exp(-\Delta_{\text{SG}} t) \right) \right] \exp(-\lambda t), \quad (5)$$

где $a_{\text{CFM}} + a_{\text{SG}} = a_s$ — начальная асимметрия распада.

Выражение начальной асимметрии распада в виде суммы двух слагаемых, описывающих различные со-

стояния, дает нам возможность выделить оба вклада. Таким образом, можно сказать, что ниже 25 К в образце одновременно сосуществуют два фазовых состояния: ферромагнитное и состояние спинового стекла, что соответствует модели, представленной соотношением (5). Из рис. 8, где показана температурная зависимость отношения асимметрии спин-стекольной фракции к максимальной асимметрии, видно, что с понижением температуры спин-стекольная фракция увеличивается задолго до перехода образца в состояние спинового стекла.

Анализ распределений локальных магнитных полей показывает, что для сплава $(\text{Pd}_{0.984}\text{Fe}_{0.016})_{0.95}\text{Mn}_{0.05}$ при изменении температуры реализуются различные магнитные состояния (рис. 6). Так, в диапазоне температур $25 < T < 39$ К этот сплав находится в коллинеарном

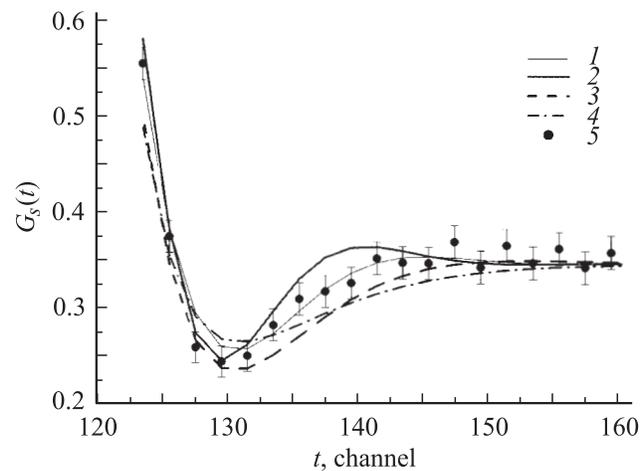


Рис. 7. Вид функции релаксации спина мюона. 1 — описание через сумму двух функций CFM + SG с $\chi^2 = 1.0$; 2 — обработка по модели CFM с $\chi^2 = 1.23$, 3 — обработка по модели ASM, $\chi^2 = 1.58$, 4 — обработка по модели SG, $\chi^2 = 1.85$; 5 — экспериментальные точки, полученные при $T = 15$ К в нулевом внешнем поле. Один канал по шкале времени t соответствует 5 ns.

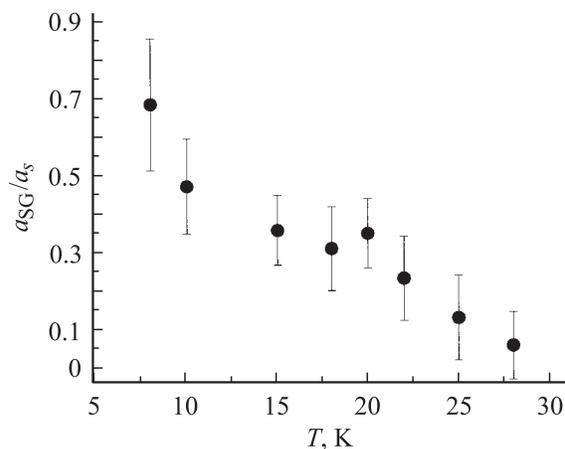


Рис. 8. Температурная зависимость доли спин-стекольного вклада в деполяризацию ансамбля мюонов.

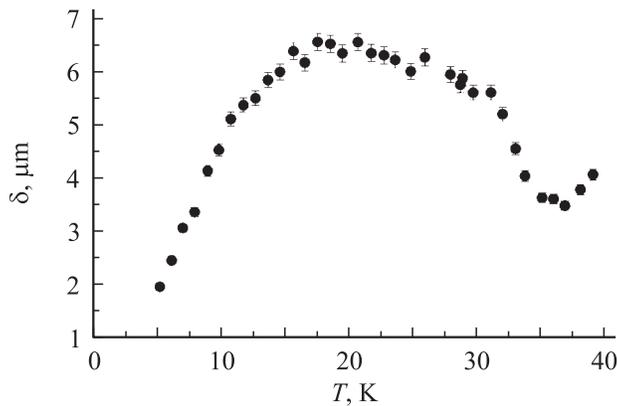


Рис. 9. Температурная зависимость среднего размера магнитных неоднородностей при охлаждении в нулевом поле.

ФМ-состоянии с лоренцевым распределением локальных магнитных полей. В температурном интервале $10 < T < 25$ К магнитную структуру сплава можно рассматривать как суперпозицию коллинеарного ферромагнетика и спинового стекла также с лоренцевым законом распределения локальных магнитных полей. Ниже $T = 10$ К сплав, возможно, переходит в фазу спинового стекла.

Также нами был проведен расчет размера магнитных неоднородностей (δ). Для его оценки использовались данные о нейтронной деполяризации ΔP , полученные при охлаждении образца в нулевом магнитном поле (режим ZFC) (рис. 1, b). Отметим, что зависимость деполяризации ΔP от температуры T для данного режима имеет вид, характерный для образцов, в которых отсутствует магнитная анизотропия (выполняется так называемое правило 3/2 [6]). При вычислении δ (среднего размера домена или кластера) была учтена магнитная изотропность образца, а среднее значение намагниченности неоднородностей M_{inh} принято равным величине среднего поля H (рис. 6). Результаты данного расчета представлены на рис. 9.

Внешнее поперечное магнитное поле, как видно из рис. 10, проникает в образец и намагничивает его, выстраивая часть доменов по направлению приложенного поля, что приводит к уменьшению продольной составляющей асимметрии в распределении позитронов; вследствие этого асимптотическое значение G_s -функция становится меньше 1/3. Это изменение видно уже в малых полях: ≈ 10 – 30 Ое (рис. 10). На рис. 10 показаны для сравнения функции релаксации в перпендикулярном магнитном поле $H_{\perp ext} = 28$ Ое и при $H = 0$. В случае больших внешних полей изменение становится еще более значительным, и в поле $H_{\perp ext} \sim 800$ Ое происходит полная ориентация доменов по направлению приложенного поля (рис. 11). Для описания экспериментальных данных потребовалось, чтобы начальная асимметрия была поделена между тремя компонентами: асимметрией

фона, продольной и поперечной асимметрией

$$G_s(t) = a_f \exp(-\lambda_f t) + a_1 \exp(-\lambda t) + a_2 \cos(\Omega t) \exp(-\lambda t) \exp(-\Delta t), \quad (6)$$

где $a_f + a_1 + a_2 = a_{tot}$; a_{tot} — полная начальная асимметрия распада, a_f — асимметрия фона, a_1 — асимметрия продольной компоненты, a_2 — асимметрия перпендикулярной компоненты.

С ростом величины внешнего поля растет вклад поперечной компоненты. Это ведет к уменьшению асимптотического значения функции $G_s(t)$ в связи с переориентацией в образце той части доменов, для которых внешнее поле достаточно, чтобы развернуть их по направлению приложенного поля. Рис. 12 демонстрирует, как с ростом величины внешнего поля изменяется

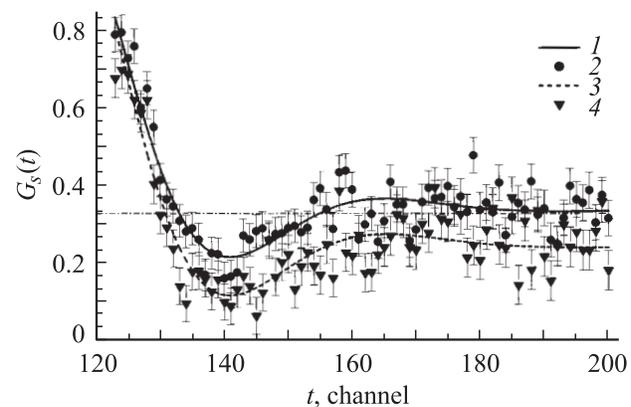


Рис. 10. Сравнение видов функций релаксации. 1 — описание в рамках модели CFM экспериментальных точек 2, полученных во внешнем поле $H_{ext} = 0$ при $T = 35$ К; 3 — описание в рамках модели $G_s(t) = a_1 e^{-\lambda t} + a_2 \cos(\Omega t) e^{-\lambda t}$, где $a_s = a_1 + a_2$, экспериментальных точек 4, полученных во внешнем магнитном поле $H_{\perp ext} = 28$ Ое при $T = 35$ К. Один канал по шкале времени t соответствует 5 ns.

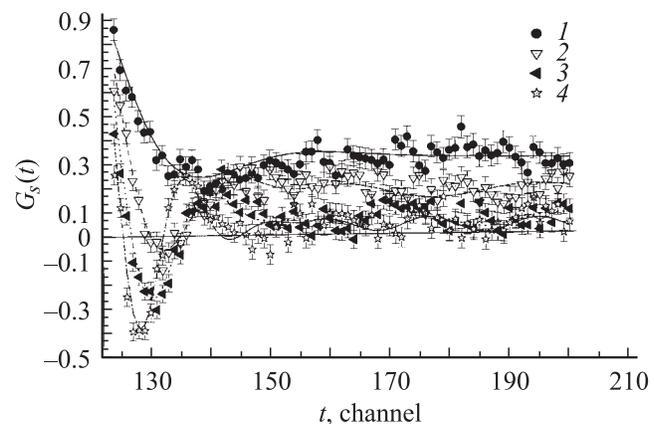


Рис. 11. Вид функции релаксации $G_s(t)$ для различных внешних магнитных полей при температуре 35 К. $H_{\perp ext}$, Ое: 1 — 0, 2 — 410.0(2), 3 — 590.0(2), 4 — 824.0(2). Один канал по шкале времени t соответствует 5 ns.

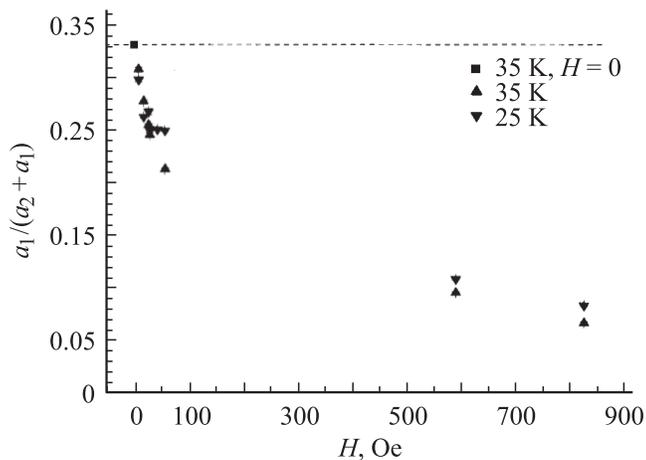


Рис. 12. Зависимость степени анизотропии от величины внешнего магнитного поля, приложенного к образцу.

степень анизотропии, которая представляет долю сохраняющейся первоначальной продольной асимметрии от полной асимметрии образца. Интересной особенностью здесь является наличие роста степени анизотропии при $T = 25$ К в полях порядка 15–30 Ое. Не исключено, что этот рост может быть связан с наличием максимума, наблюдаемого на температурной зависимости нейтронной деполяризации в полях $H > 5$ Ое при $T = 35$ К (рис. 1, *b*). Это явление нуждается в экспериментальной проверке и будет предметом дальнейших исследований образца $(\text{Pd}_{0.984}\text{Fe}_{0.016})_{0.95}\text{Mn}_{0.05}$.

Исследование сплава $(\text{Pd}_{1-x}\text{Fe}_x)_{0.95}\text{Mn}_{0.05}$ с $x = 0.016$ μSR -методом еще раз продемонстрировало эффективность этого метода при исследовании магнитных материалов. Была отмечена высокая однородность изготовленного образца; на это указывает узость пика $\lambda(T)$ на рис. 4 (≈ 2 К). При температуре ниже 39.5 К в нулевом внешнем магнитном поле образец находится в состоянии коллинеарного ферромагнетика с изотропной ориентацией статических магнитных полей. При понижении температуры в образце на фоне коллинеарного ферромагнетика появляется фракция спинового стекла задолго до перехода образца в спин-стекляное состояние, наступающее предположительно при $T_g = 7$ –10 К. По полученным данным был проведен расчет размера магнитных неоднородностей. Приложение внешнего поперечного магнитного поля ведет к постепенному, с ростом величины прикладываемого поля, росту анизотропии образца и приводит к переориентации доменов в направлении приложенного поля.

Список литературы

[1] G.P. Gordeev, L.A. Axelrod, V.N. Zabenkin, I.M. Lazebnik, S.V. Grigoriev, V. Wagner, H. Eckerlebe. *Physica B* **335**, 127 (2003).

[2] G.P. Gordeev, L.A. Axelrod, S.V. Grigoriev, I.M. Lazebnik, V.N. Zabenkin, V. Wagner, H. Eckerlebe. *Physica B* **350**, 95 (2004).

[3] С.Г. Барсов, А.Л. Геталов, В.П. Коптев, Л.А. Кузьмин, С.М. Микиртычянц, Н.А. Тарасов, Г.В. Щербаков. Препринт ЛИЯФ-1312. Л. (1987). 17 с.

[4] В.П. Коптев, Н.А. Тарасов. Препринт ЛИЯФ-1313. Л. (1987). 20 с.

[5] А.Л. Геталов. Автореф. канд. дис. ПИЯФ РАН. СПб (1998). 25 с.

[6] S.V. Maleyev. *J. Phys. (France)* **43**, 7 (1982).