

# Спин-стекольное упорядочение аморфных сплавов Tb–Cr

© О.В. Стогней, И.В. Золотухин, О. Рапп

Воронежский государственный технический университет,  
394026 Воронеж, Россия

E:mail sto@sci.vrn.ru

(Поступила в Редакцию 12 октября 1998 г.)

Исследованы аморфные сплавы  $Tb_xCr_{100-x}$  ( $x = 16; 28.5; 43$  и  $59$  at.%), полученные закалкой из газовой фазы. Обнаружено, что структура сплавов гетерогенна: наблюдается сосуществование двух аморфных фаз, характеризующихся различным ближним порядком. Качественно ближний порядок этих фаз соответствует структуре чистых компонент (Cr или Tb). В области низких температур сплавы переходят в состояние спинового стекла. Установлено, что значения температур перехода в спин-стекольное состояние линейно зависят от состава, возрастая с увеличением содержания тербия. Показано, что магнитные свойства аморфных сплавов Tb–Cr определяются случайной магнитной анизотропией, связанной с атомами Tb.

Известно, что, за исключением гадолиния и европия, тяжелые редкоземельные металлы (РЗМ) и их соединения обладают гигантской магнитной анизотропией [1]. Если сплав, содержащий редкоземельный элемент, имеет аморфную структуру, то вследствие атомного беспорядка распределение локальных электростатических полей, воздействующих на РЗМ ионы, будет случайным. Тогда и ориентация осей легкой намагниченности РЗМ ионов будет также носить случайный характер. Терминологически такое состояние определяется как состояние со случайной магнитной анизотропией. Теоретически показано [2], что случайная магнитная анизотропия может обуславливать образование магнитоупорядоченной фазы со свойствами спинового стекла в аморфных сплавах (АС) на основе РЗМ. Исследования аморфных сплавов РЗМ с ферро- и парамагнитными металлами показывают, что в таких системах действительно образуются фазы со свойствами спинового стекла в широких концентрационных интервалах [3,4]. С другой стороны, практически нет данных о сплавах РЗМ с антиферромагнитными металлами. Поэтому в данной работе исследована возможность образования магнитоупорядоченной фазы со свойствами спинового стекла в аморфных сплавах Tb–Cr, т.е. в системе РЗМ-антиферромагнетик, в области составов с низкой концентрацией РЗМ компоненты.

## 1. Методика эксперимента

Все исследованные сплавы были получены методом ионно-плазменного распыления составных мишеней в атмосфере спектрально чистого аргона. Предварительно, до напуска аргона, вакуумная камера откачивалась до давления  $6.65 \cdot 10^{-4}$  Pa, что обеспечивало отсутствие загрязнения пленок остаточными газами. Осаждение материала производилось на алюминиевые подложки, охлажденные до 77 К. Для изготовления мишеней использовались металлический тербий и хром чистотой 99.8 и 99.9 ат.% соответственно.

Полученные образцы имели толщину 10–12  $\mu\text{m}$  и размеры 10 × 20 mm. Аморфность образцов контро-

лировалась с помощью рентгеноструктурного анализа, который проводился при комнатной температуре непосредственно перед исследованием магнитных характеристик. Съемка производилась по схеме Дебая–Шерра в монохромном  $\text{CuK}_\alpha$  излучении. Состав сплавов определялся методом электронно-зондового микроанализа с дисперсией по энергии. Результаты исследований полученных образцов свидетельствуют о том, что содержание аргона в пленках не превышает 1 ат.%, следы прочих газов не обнаружены. Исследование магнитных свойств сплавов проводилось на вибрационном магнетометре в температурном интервале 4.2–300 К.

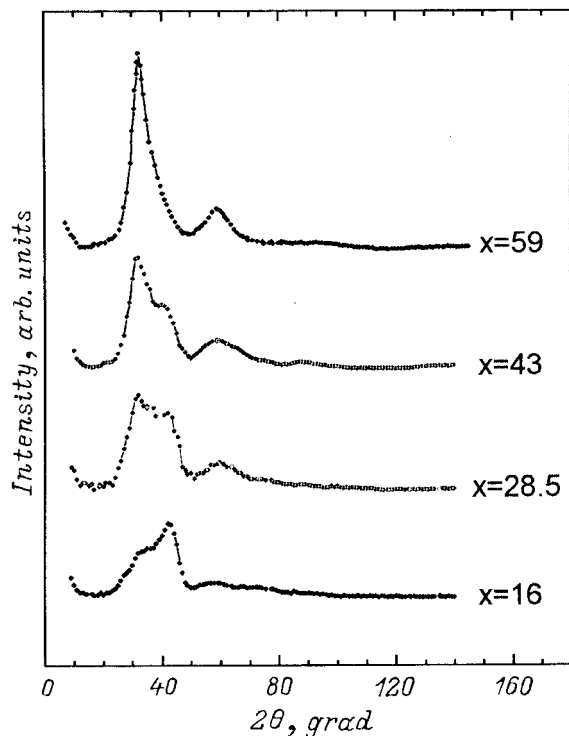
## 2. Результаты и обсуждение

Для проведения исследований было получено четыре сплава  $Tb_xCr_{100-x}$  ( $x = 16; 28.5; 43$  и  $59$  at.%). На рис. 1 представлены рентгеновские дифрактограммы, подтверждающие наличие аморфной структуры у приготовленных образцов. Очевидно, что в данных сплавах аморфная фаза не является гомогенной, а первый пик на дифрактограммах (аморфное гало) представляет собой суперпозицию двух пиков (двух гало), каждый из которых является результатом дифракции рентгеновского излучения на разных областях сплава, имеющих ближний порядок, отличающийся друг от друга. Условно можно определить эти области как аморфная фаза АI и АII. Известно, что для АС переходных металлов среднее ближайшее межатомное расстояние ( $D_m$ ) можно оценить по угловому положению гало с помощью простого соотношения.

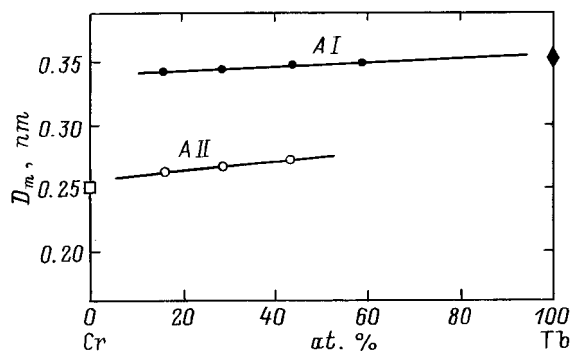
$$D_m = \sqrt{\frac{3}{2}} \frac{\lambda}{2 \sin \theta},$$

где  $\lambda$  — длина волны используемого излучения,  $\theta$  — брэгговский угол [5].

На рис. 2 приведены значения  $D_m$  для АС Tb–Cr, а также ближайшие межатомные расстояния в чистых металлах; хроме и тербии. Экстраполяция средних ближайших межатомных расстояний в аморфной фазе АI к 100 ат.% Tb дает значение, совпадающее с наименьшим



**Рис. 1.** Рентгеновские дифрактограммы аморфных сплавов Tb–Cr. Цифры на рисунке показывают содержание Tb в сплаве (at.%).



**Рис. 2.** Концентрационная зависимость среднего ближайшего межатомного расстояния ( $D_m$ ) в аморфных сплавах Tb–Cr (черные и белые кружки), а также ближайшие межатомные расстояния в чистом кристаллическом Tb и Cr. Прямые линии получены методом линейной регрессии.

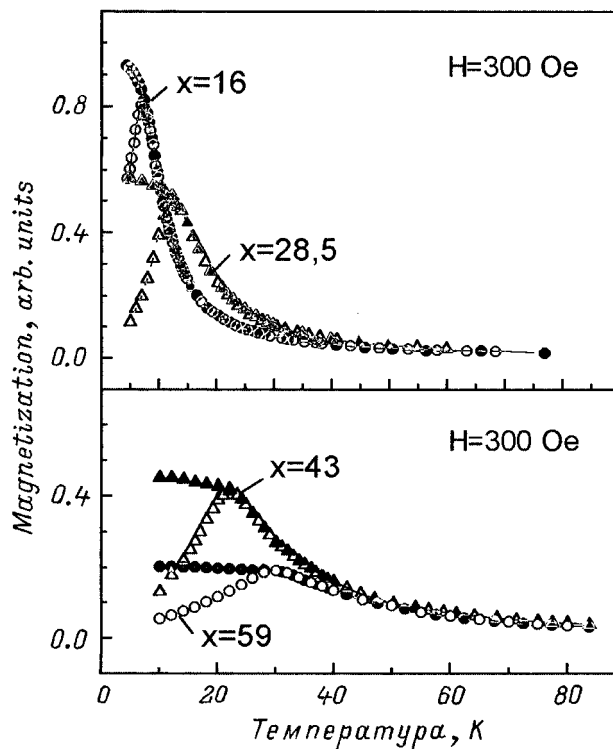
межатомным расстоянием в кристаллическом Tb. Точно также и с аморфной фазой AII, значения  $D_m$  для которой близки к таковым в кристаллическом хrome. Данное обстоятельство свидетельствует о том, что, по крайней мере, качественно ближний порядок аморфных фаз соответствует структуре чистых металлов. Этот факт связан, по-видимому, с тем, что взаимная растворимость компонент крайне низка (так, в равновесных условиях растворимость Tb в Cr не превышает 0.13 at.%) [6].

Вместе с тем, едва ли можно полагать, что структура сплавов представляет собой некое подобие мелкодисперсной эвтектики, поскольку формирование сплавов происходит в крайне неравновесных условиях и атомы, конденсирующиеся на холодной подложке (77 К), быстро теряют диффузионную подвижность, а с ней и способность образовывать равновесные структуры.

### 3. Магнитные свойства

Исследование намагниченности АС Tb–Cr проводилось в двух стандартных режимах: FC — охлаждение образца во внешнем постоянном магнитном поле до температуры 4.2 К и последующий отогрев его в этом же поле; ZFC — отогрев образца в магнитном поле после охлаждения в нулевом поле. Было установлено, что во всех сплавах в области низких температур имеет место термомагнитный гистерезис (рис. 3), т.е. зависимость намагниченности образца от условий его охлаждения. Полученные результаты свидетельствуют о том, что в сплавах Tb–Cr осуществляется переход в магнитоупорядоченную фазу со свойствами спинового стекла [7]. Поскольку оба компонента в сплаве являются магнитными материалами (т.е. концентрация магнитных атомов составляет 100 at.%), формирующаяся низкотемпературная фаза является сперомагнетиком [8].

Известно, что в аморфных сплавах образование спин-стекольного состояния может быть обусловлено двумя



**Рис. 3.** Температурная зависимость намагниченности аморфных сплавов Tb–Cr. Белые символы — ZFC, черные символы — FC.

причинами. Во-первых, наличием конкуренции между ферромагнитным и антиферромагнитным упорядочениями. Конкуренция обусловлена флуктуациями обменного взаимодействия (флуктуация знака обменного интеграла) вследствие структурной разупорядоченности сплавов. В основном этот механизм реализуется в АС на основе магнитных 3d-металлов. Во-вторых, случайным распределением осей локальной магнитной анизотропии, что характерно для АС на основе большинства тяжелых редкоземельных металлов.

Сплавы Tb–Cr являются гетерогенными и в них существуют две аморфные фазы AI и AII (рис. 1, 2), это дает основание предполагать, что в каждой фазе доминирует какой-либо один механизм. Очевидно также, что этот механизм определяется как ближним порядком аморфной фазы, так и природой компонента, преобладающего в этой аморфной фазе. Таким образом, мы полагаем, что в каждой аморфной фазе (AI или AII) реализуется взаимодействие, соответствующее взаимодействию в чистом компоненте (Tb или Cr). В этой связи следует ответить на вопрос, являются ли макроскопические свойства аморфных сплавов Tb–Cr результатом одновременного действия разных механизмов или же один из механизмов превалирует над другим.

Металлический тербий характеризуется гигантской магнитной анизотропией, которая и определяет его магнитные свойства. В кристаллическом состоянии он является геликоидальным антиферромагнетиком с температурой Нееля ( $T_N$ ) 229 К и переходит в ферромагнитное состояние при 222 К. С другой стороны, тербий с неупорядоченной структурой проявляет свойства спинового стекла с температурой перехода 53 К [9]. Аморфный сплав Tb<sub>90</sub>Si<sub>10</sub> (т.е. сплав максимально близкий по составу к идеальному аморфному тербию) переходит в состояние со свойствами спинового стекла при 58 К [10]. Таким образом, аморфизация тербия приводит к возникновению сперомагнитного упорядочения магнитных моментов вместо ферро- или антиферромагнитного, наблюдаемого в ГПУ Tb. Происходит это из-за того, что в аморфном материале межатомные расстояния в первой координационной сфере, а также само число ближайших соседей меняется случайным образом. Поэтому случайным образом меняется и электростатическое взаимодействие 4f-оболочки с локальным кристаллическим полем соседних ионов. В результате ориентация локальных осей легкой намагниченности хаотически (или с некоторой корреляцией) меняется от иона к иону.

На рис. 4 приведена концентрационная зависимость температуры перехода в магнитоупорядоченную фазу ( $T_i$ ) со свойствами спинового стекла. Полученная экспериментальная зависимость строго линейна и этот факт является существенным доводом в пользу того, что во всем исследованном концентрационном интервале действует единый механизм магнитного упорядочения. Экстраполяция  $T_i$  к 100 at.% Tb дает значения температуры перехода равное 52 К. Это значение совпадает с 53 К для аморфного тербия [9] и близко к 58 К для

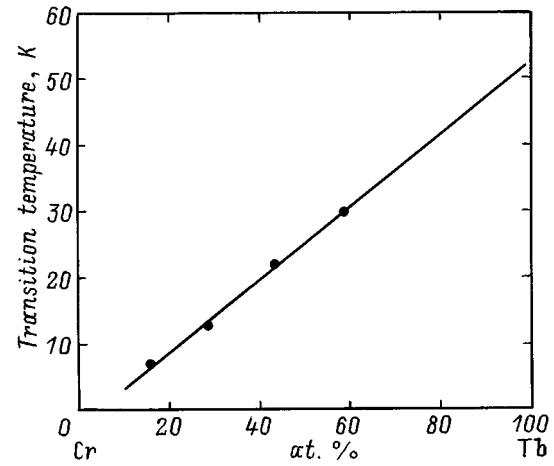


Рис. 4. Концентрационная зависимость температуры перехода в сперомагнитное состояние аморфных сплавов Tb–Cr. Прямая линия получена методом линейной регрессии.

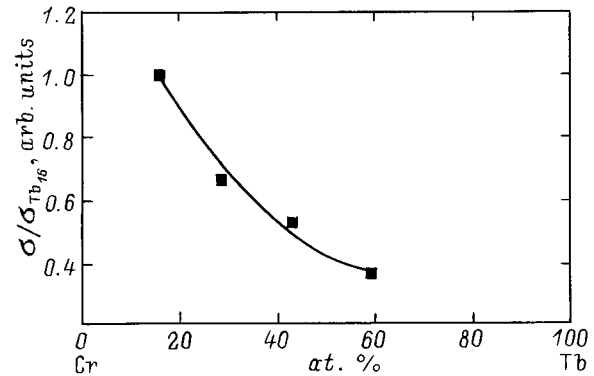


Рис. 5. Концентрационная зависимость приведенной удельной намагниченности аморфных сплавов Tb–Cr.

аморфного сплава Tb<sub>90</sub>Cr<sub>10</sub> [10]. Следовательно, как в чистом аморфном тербии, так и в аморфных сплавах Tb–Cr механизм, упорядочивающий моменты, один и тот же — случайная ориентация локальных осей легкой намагниченности. На рис. 5 показана зависимость приведенной удельной намагниченности аморфных сплавов Tb–Cr от состава (все значения приведены относительно величины намагниченности сплава Tb<sub>16</sub>Cr<sub>84</sub>). Значения намагниченности определялись при 4.2 К после охлаждения от комнатной температуры во внешнем магнитном поле 300 Ое. В соответствии с этими данными намагниченность сплавов уменьшается с ростом концентрации тербия. Этому факту легко дать объяснение только с точки зрения случайной магнитной анизотропии. Известно, что с ростом концентрации редкоземельного металла в сплаве происходит увеличение константы случайной магнитной анизотропии [3, 11]. Вследствие этого система магнитных моментов становится более жестко ориентированной вдоль осей локальной анизотропии, она становится менее лабильной и менее подвержен-

ной влиянию внешнего магнитного поля (до известных пределов, конечно, когда поле просто разрушает фазу спинового стекла). Поэтому при прочих равных внешних условиях суммарная намагниченность такого материала должна быть меньше, чем у сплава с более низкой концентрацией РЗМ, поскольку ориентация осей локальной анизотропии случайна. Кроме того, увеличение значений константы случайной магнитной анизотропии должно приводить к росту температуры упорядочения, так как в этом случае необходима большая величина тепловой энергии ( $\sim kT$ ) для разрушения магнитного порядка. Такая зависимость наблюдается в аморфных сплавах Tb–Cr (рис. 4, 5).

Таким образом, полученные экспериментальные данные объясняются действием только одного механизма, который упорядочивает магнитные моменты сплавов. Этот механизм обусловлен наличием случайной магнитной анизотропии, связанной с атомами тербия.

В заключение авторы выражают благодарность Шведскому Институту, осуществлявшему частичное финансирование исследований, а также Российской промышленной компании "АС", предоставившей металлический тербий.

## Список литературы

- [1] С.А. Никитин. Магнитные свойства редкоземельных металлов и их сплавов. Изд-во МГУ, М. (1989). 248 с.
- [2] A. Aharony, E. Pytte. *Phys. Rev. Lett.* **45**, 1583 (1980).
- [3] Y. Hattori, K. Fukamichi, K. Suzuki, H. Aruga–Katori, T. Goto. *J. Phys.: Condens. Matter.* **7**, 4193 (1995).
- [4] H. Bouchiat, D. Mailly. *J. Appl. Phys.* **57**, *1*, 3453 (1985).
- [5] A. Williams, W.L. Johnson. *J. Non-Cryst. Solids* **34**, 121 (1979).
- [6] Р.П. Эллиот. Структуры двойных сплавов. Т. 1 Металлургия, М. (1970). 367 с.
- [7] K.H. Fisher. *Phys. Stat. Sol. (b)* **116**, 357 (1983).
- [8] К.М. Херд. *УФН* **142**, *2*, 331 (1984).
- [9] J.J. Hauser. *Solid State Commun.* **55**, 163 (1985).
- [10] J.J. Hauser. *Phys. Rev.* **34**, *5*, 3212 (1986).
- [11] A.S. Andrienko, S.A. Nikitin, Yu.I. Spichkin. *JMMM* **118**, 142 (1993).