Индуцированные магнитные фазовые переходы в редкоземельных интерметаллидах RMn₂Ge₂ в сверхсильных магнитных полях

© А. Кирсте, Р.З. Левитин*, М. фон Ортенберг, В.В. Платонов**, Н. Пульманн, В.В. Снегирев*, Д.А. Филиппов*, О.М. Таценко**

Университет им. Гумбольдта, D-10115 Берлин, Германия * Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова, 119899 Москва, Россия ** Институт экспериментальной физики, 607189 Саров, Россия E-mail: Levitin@plms.phys.msu.su

(Поступила в Редакцию 13 февраля 2001 г.)

В импульсных магнитных полях до 130 T измерена дифференциальная магнитная восприимчивость интерметаллических соединений RMn_2Ge_2 (R = Ge, Tb, Dy, Ho и Y), имеющих слоистную тетрагональную структуру. Обнаружено, что во всех этих интерметаллидах в сильных полях происходит магнитный фазовый переход первого рода. Обсуждается природа этого перехода, и сделан вывод о том, что он обусловлен изменением магнитного состояния марганцевой подрешетки.

Работа частично поддержка проектом Российского фонда фундаментальных исследований № 99-02-17358 и грантом по поддержке научных школ № 00-15-96695.

Интерметаллические соединения RMn_2Ge_2 (*R* — редкоземельные элементы (РЗЭ), иттрий, уран и т.д.) имеют тетрагональную кристаллическую структуру (пространственная группа І4/тт), которая состоит из чередующихся в последовательности R-Ge-Mn-Ge-R-... слоев соответствующих атомов, перпендикулярных тетрагональной оси [1]. С магнитной точки зрения в этих интерметаллидах имеются две магнитные подсистемы, одну из которых образуют атомы РЗЭ, в другую — атомы марганца. Многочисленные исследования (см. обзор [1] и ссылки там) показали, что в RMn₂Ge₂ наибольшим является ферромагнитный обмен Mn-Mn в слое. Межслойное обменное взаимодействие Mn-Mn приблизительно на порядок меньше, чем обмен в слое марганца. Примерно такую же величину имеет обменное взаимодействие между марганцевой и редкоземельной подсистемами. Еще на порядок меньше обмен внутри редкоземельной подсистемы. В интерметаллидах с тяжелыми РЗЭ и иттрием как межслойное обменное взаимодействие Mn-Mn, так и обмен РЗЭ-марганец являются антиферромагнитными.

Описанная выше иерархия обменных взаимодействий определяет особенности магнитных свойств интерметаллидов RMn₂Ge₂ с тяжелыми РЗЭ. Марганцевая подсистема в них упорядочивается при температурах 350–450 К. Это упорядочение является антиферромагнитным: в соседних ферромагнитных слоях марганца направления магнитных моментов антипараллельны [1]. При этом редкоземельная магнитная подсистема остается в парамагнитном состоянии, так как эффективные поля, действующие на эту подсистему со стороны двух соседних слоев марганца, компенсируют друг друга.

При понижении температуры в некоторых интерметаллидах (с гадолинием, тербием, диспрозием) наблюдается фазовый переход первого рода редкоземельной подсистемы в ферромагнитное состояние [1]. При этом под действием обменного взаимодействия РЗЭ-марганец марганцевая подсистема также переходит в ферромагнитное состояние. Поскольку это взаимодействие является антиферромагнитным, магнитные моменты редкоземельной и марганцевой подсистем ориентированы антипараллельно, так что магнитная структура в целом является ферримагнитной. В интерметаллических соединениях с гольмием, эрбием и тулием обменное взаимодействие РЗЭ-марганец меньше, поэтому в этих интерметаллидах марганцевая подсистема находится в антиферромагнитном состоянии до самых низких температур [1].

Магнитное поведение интерметаллидов RMn2Ge2 в поле изучено значительно меньше. В ряде интерметаллидов (с диспрозием, гадолинием, в системах гадолинийиттрий и гадолиний-лантан) [2-6] обнаружены индуцированные магнитным полем фазовые переходы, которые интерпретированы как обусловленные изменением характера магнитного упорядочения в марганцевой подсистеме, однако природу этих переходов в настоящее время нельзя считать выясненной окончательно. Подчеркнем, что даже в самых больших применяемых в этих экспериментах полях (до 40 Т) намагниченность изученных соединений была существенно меньшей, чем теоретическая намагниченность насыщения при параллельной ориентации магнитных моментов редкоземельной и марганцевой подсистем, что дает основание предполагать, что в более сильных полях должны наблюдаться дополнительные магнитные фазовые переходы, индуцированные полем.

В данной работе предпринята попытка обнаружить эти переходы с помощью измерений магнитных свойств интерметаллидов RMn₂Ge₂ в сверхсильных магнитных полях.



Рис. 1. Индуцированный сигнал I для изученных интерметаллидов при экспериментах в одновитковых соленоидах I-5 — при возрастании поля, I'-5' — при убывании поля. Стрелки указывают на возрастание (вверх) и на убывание (вниз) поля индуцированного фазового перехода.

Поликристаллические образцы интерметаллидов RMn_2Ge_2 (R = Gd, Tb, Dy, Er) были выплавлены в индукционной печи в атмосфере аргона в условиях квазилевитации из исходных элементов. Для лучшей гомогенизации образцы переплавлялись три раза и отжигались в течение 170 h в динамическом вакууме при температуре 750°C. Однофазность образцов контролировалась рентгенографически.

Измерения проводились при температурах 5-7 К в импульсных магнитных полях до 150 Т, генерируемых при разряде батареи конденсаторов на одновитковый соленоид (длительность первого полупериода импульса $6\,\mu s$), индукционным методом на порошковых образцах с размерами частиц около 10 µm. Отметим, что в данном варианте методики возникают значительные паразитные сигналы, обусловленные шумами при разряде батареи конденсаторов, раскомпенсацией измерительных катушек, механическими колебаниями системы измерительных катушек и т.д., из-за чего возникают трудности при выделении полезного сигнала. В случае если этот сигнал был мал, мы проводили несколько измерений. Критерием правильности выделения полезного сигнала было также то, что он наблюдался как при возрастании, так и при убывании поля, тогда как в подавляющем большинстве случаев для паразитных сигналов это не наблюдалось. Наконец, для интерметаллида гадолиния, в котором сигнал при фазовом переходе в наших экспериментах был наименьшим, мы провели дополнительные измерения с использованием методики взрывной компрессии для получения сверхсильного поля [7]. Все это позволило достаточно уверенно определить значения полей Н_с индуцированных магнитных фазовых переходов для изученных интерметаллидов.

Сигнал, индуцируемый в измерительных катушках, можно описать следующей формулой:

$$V = (a + B\chi)dH/dt.$$
 (1)

Здесь dH/dt — производная поля по времени, первый член в скобках описывает сигнал раскомпенсации от измерительных катушек, второй — сигнал от образца, χ дифференциальная магнитная восприимчивость образца, *а* и *b* — константы, связанные с параметрами катушек (количество витков и площади их поперечного сечения) и образца (масса, геометрические размеры) соответственно. В критическом поле Н_с магнитного фазового перехода первого рода восприимчивость χ проходит через максимум; это ведет к тому, что в данной области полей должен наблюдаться максимум индуцированного в измерительных катушках напряжения V. Отметим, что поля максимумов на зависимостях V(H) и $\chi(H)$ будут точно совпадать только в случае dH/dt = const, что, как показывают оценки, выполняется в случае сравнительно слабых полей (при синусоидальной зависимости импульса поля от времени при примерно $H < 0.5 H_{\text{max}}$); если же переход происходит в более сильном поле, необходимо делать соответствующую поправку. Поэтому мы определяли значения Н_с из зависимости от поля величины V/(dH/dt), когда такой ошибки не возникает. Эти зависимости приведены на рис. 1. Видно, что намагниченность всех изученных интерметаллидов испытывает размытый метамагнитный переход в сильных полях. Значения критических полей перехода при возрастании и уменьшении поля различаются, что характерно для фазовых переходов первого рода. Отметим, что на ширину петли гистерезиса, по-видимому, влияют и релаксационные эффекты, обусловленные импульсным



Рис. 2. Индуцированный сигнал *I* для GdMn₂Ge₂ при эксперименте с взрывной компрессией магнитного потока. Обозначения те же, что на рис. 1.

характером намагничивания. Такие эффекты были недавно обнаружены в DyMn₂Ge₂ при низких температурах [6]. В таблице приведены средние (при возрастании и убывании поля) значения критических полей H_c и полуширина петли гистерезиса $\Delta H_c/2$ (ΔH_c — разность полей перехода при возрастании и убывании поля) для изученных интерметаллидов.

На рис. 2 представлены данные для GdMn₂Ge₂, полученные в эксперименте на установке с взрывной компрессией магнитного потока (в этом случае приводится только зависимость сигнала от поля при его возрастании, так как образец и измерительная система разрушаются при достижении максимального поля). Видно, что эти данные подтверждают результаты эксперимента в одновитковом соленоиде, свидетельствующие о наличии в этом интерметаллиде индуцированного магнитного фазового перехода. Величины критического поля H_c в обоих экспериментах совпадают в пределах точности (±3% при измерениях в одновитковом соленоиде, ±5% при измерениях в установке с взрывной генерацией поля).

В работах [4,5] магнитные свойства интерметаллидов систем гадолиний–иттрий и гадолиний–лантан интерпретировались в рамках модифицированной с учетом магнитной анизотропии модели Яфета–Киттеля [8] для ферримагнетика с антиферромагнитным обменным вза-

Критические поля индуцированных магнитных фазовых переходов H_c и полуширина петли гистерезиса $\Delta H_c/2$ в интерметаллидах RMn₂Ge₂ при температуре 5 K

R	Gd	Tb	Dy	Но	Y
$H_c, \mathrm{T} \ \Delta H_c, \mathrm{T}$	105	116	110	91	51
	7	2	2	3	5

имодействией в одной из подрешеток. В данной модели предполагается, что эта подрешетка является нестабильной и разбивается на две эквивалентные субподрешетки. В таком ферримагнетике возможно возникновение (наряду с коллинеарными ферримагнитной (Fi) и ферромагнитной (F) фазами и неколлинеарной фазой (NC), осуществляющимися в ферримагнетиках с ферромагнитными внутриподрешеточными взаимодействиями) новых магнитных фаз: фазы, в которой нестабильная подрешетка находится в антиферромагнитном состоянии (AF-фаза), и треугольной (T) фазы, в которой магнитные моменты субподрешеток направлены под углом друг к другу и к магнитному моменту стабильной подрешетки (в случае интерметаллидов RMn₂Ge₂ стабильной является редкоземельная, а нестабильной — марганцевая подсистема). Было показано, что эта модель позволяет достаточно хорошо описать магнитные свойства GdMn₂Ge₂ в полях, использованных в эксперименте (примерно до 40 T) [4]. Было также предсказано в рамках модифицированной модели Яфета-Киттеля, что в этом интерметаллиде должен происходить еще один магнитный переход первого рода в более сильных полях из AF-фазы в T-фазу. Повидимому, именно переход подобного типа, связанный с изменением магнитного состояния марганцевой магнитной подсистемы, наблюдается в наших экспериментах на интерметаллидах гадолиния и других магнитных РЗЭ. О том, что наблюдаемые переходы обусловлены именно изменением магнитной структуры марганцевой подсистемы, свидетельствуют резуьтаты наших исследований интерметаллида YMn₂Ge₂, в котором также наблюдается индуцированный полем фазовый переход. Поскольку иттрий немагнитен, в этом соединении имется только антиферромагнитная марганцевая подсистема, и в ней в поле происходит либо переход типа спин-флопа в неколлинеарную фазу, либо метамагнитный переход в ферромагнитное состояние.

Однако теоретически рассчитанное в рамках модели Яфета-Киттеля значение поля магнитного перехода из AF- в T-фазу в GdMn₂Ge₂ (70 Т при 5 К) [9] оказалось значительно меньше определенного экспериментально при этой температуре (105 Т). Это свидетельствует о приближенности модели Яфета-Киттеля и о необходимости выхода за рамки этой модели для более точного описания эксперимента. К аналогичному выводу приводит анализ экспериментальных данных [2,3] для монокристалла DyMn₂Ge₂ [10]. С нашей точки зрения, приближенность модели Яфета-Киттеля обусловлена тем, что в ней учитываются только обменные взаимодействия между соседними плоскостями, содержащими магнитные ионы (по существу, это приближение ближайших соседей), что, несомненно, является слишком грубой картиной, особенно если учесть дальнодействующий характер обменного взаимодействия через электроны проводимости (типа Рудермана-Киттеля-Касуя-Иосиды), которое наряду в косвенным обменом через германий определяет магнитные свойства интерметаллидов RMn₂Ge₂ [1].

Список литературы

- A. Szytula, J. Leciejevicz. In: Handbook of Physics and Chemistry of Rare Earths / Ed. K.A. Gschneidner, Jr., I. Eyring. (1989). V. 12. P. 133.
- [2] H. Kobayashi, H.Onodera, Y. Yamaguchi, H. Yamamoto. Phys. Rev. B43, 728 (1991).
- [3] H. Wada, Y. Tanabe, K. Hagivara, M. Shiga. J. Magn. Magn. Mater. 123, 203 (2000).
- [4] А.Ю. Соколов, Го Гуанхуа, С.А. Грановский, Р.З. Левитин, Х. Вада, М. Шига, Т. Гото. ЖЭТФ 116, 1346 (1999).
- [5] Го Гуанхуа, Р.З. Левитин, В.В. Снегирев, Д.А. Филиппов, А.Ю. Соколов. ЖЭТФ 117, 1127 (2000).
- [6] A.S. Lagutin, R.Z. Levitin, J. Vanacken. J. Magn. Magn. Mater., in press.
- [7] A.I. Pavlovski, N.P. Kolokolchikov, O.M. Tatsenko. Megagauss Physics and Techniques / Ed. P. Tachi. Plenum Press, N.Y. (1980).
- [8] Y. Yafet, C. Kittel. Phys. Rev. 87, 290 (1952).
- [9] Guo Guanghua, N.P. Kolmakova, R.Z. Levitin, M.Yu. Nekrasova, A.Yu. Sokolov, D.A. Filippov. Proc. Moscow Int. Symp. on Magnetism (June 20–24, 1999) / Ed. A. Granovsky, N. Perov. Moscow (2000). Pt 2. P. 133.
- [10] Guo Guanghua, N.P. Kolmakova, R.Z. Levitin, A.A. Sidorenco, D.A. Filippov. Abstracts of 8th European Magnetic Masterials and Applications Conf. Kiev, Ukraine (7–10 June 2000). P. 301.