

05,01

Магнитное состояние квазиупорядоченных сплавов Fe–Al с добавками Ga и В: магнитное фазовое расслоение и спиновый порядок

© Е.В. Воронина¹, А.Г. Иванова¹, А.К. Аржников², А.И. Чумаков³,
Н.И. Чистякова⁴, А.В. Пятаев¹, А.В. Королев⁵

¹ Институт физики Казанского федерального университета,
Казань, Россия

² Физико-технический институт УрО РАН,
Ижевск, Россия

³ European Synchrotron Radiation Facility (ESRF),
Grenoble, France

⁴ Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова,
Москва, Россия

⁵ Институт физики металлов им. М.Н. Михеева УрО РАН,
Екатеринбург, Россия

E-mail: evoronina2005@yandex.ru

(Поступила в Редакцию 26 сентября 2017 г.)

Представлены результаты структурных, магнитных и мессбауэровских исследований квазиупорядоченных сплавов $\text{Fe}_{65}\text{Al}_{35-x}\text{M}_x$ ($M_x = \text{Ga}, \text{B}; x = 0, 5 \text{ at.}\%$). В исследуемых структурно-однофазных сплавах магнитное состояние при низких температурах интерпретируется с позиций магнитного фазового расслоения. Предложено объяснение наблюдаемого поведения магнитных характеристик сплавов $\text{Fe}_{65}\text{Al}_{35}$ и $\text{Fe}_{65}\text{Al}_{30}\text{Ga}_5$ в рамках модели двух магнитных фаз: ферромагнитного типа и волны спиновой плотности. Показано, что сплав с добавлением бора $\text{Fe}_{65}\text{Al}_{30}\text{B}_5$ демонстрирует поведение, характерное для материала с ферромагнитным типом упорядочения.

DOI: 10.21883/FTT.2018.04.45683.280

1. Введение

Длиннопериодические коллинеарные и неколлинеарные неупорядоченные [1] и упорядоченные [2–4] структуры магнитных моментов остаются одной из самых интригующих тем современной физики твердого тела. Кроме необходимости понять причину их существования [2], они тесно связаны с сверхпроводимостью [2–4] и актуальны для спинтронных приложений [5]. Представления о природе магнитных структур нанометрового масштаба различаются. Предполагается, что причиной их возникновения могут быть конкурирующие обменные взаимодействия, нестинг поверхности Ферми и низколежащие тепловые возбуждения. Более того, сама идентификация структур остается сложной проблемой. В нейтронографических исследованиях упорядоченных по $B2$ -типу сплавах Fe–Al была обнаружена корреляция магнитных моментов с длиной когерентности около 5 nm [6]. Наблюдаемое упорядочение магнитных моментов было объяснено с позиций волны спиновой плотности (ВСП). Выяснилось, что при концентрации $x = 35 \text{ at.}\%$ в сплавах $\text{Fe}_{100-x}\text{Al}_x$ волна спиновой плотности имеет наибольшую длину когерентности. В исследованиях [7] магнитотранспортных свойств квазиупорядоченных сплавов $\text{Fe}_{100-x}\text{Al}_x$, $x = 30–35 \text{ at.}\%$ аномалии поведения поперечного магнитосопротивления и константы Холла объяснялись на основе модели неодно-

родной магнитной структуры. В данном контексте квазиупорядоченные сплавы Fe–Al с содержанием Al от 25 до 40 at.% представляют интерес в качестве модельных объектов для исследований природы возникновения и стабилизации магнитных неоднородностей в структурно-однородных магнетиках, в частности, несоизмерных длиннопериодических спиновых структур. Предполагается, что малые добавки третьего элемента, например Ga или B, к сплаву $\text{Fe}_{65}\text{Al}_{35}$ позволят проследить за изменением магнитного состояния исходного сплава и тем самым прояснить особенности его магнитной микроструктуры.

Целью настоящей работы является изучение магнитного состояния тройных квазиупорядоченных сплавов $\text{Fe}_{65}\text{Al}_{35-x}\text{M}_x$ ($M_x = \text{Ga}, \text{B}; x = 5 \text{ at.}\%$) на основе анализа данных структурных, мессбауэровских и магнитометрических измерений и сравнения с результатами аналогичных исследований сплава $\text{Fe}_{65}\text{Al}_{35}$.

2. Эксперимент

Бинарный и тройные квазиупорядоченные сплавы $\text{Fe}_{65}\text{Al}_{35}$, $\text{Fe}_{65}\text{Al}_{35-x}\text{M}_x$ ($M_x = \text{Ga}, \text{B}; x = 5 \text{ at.}\%$) были получены термообработкой неупорядоченных нанокристаллических сплавов, синтезированных методом механохимии. Сплавы из исходных порошков (99.98% Fe и

99.99% Al) и добавок Ga или В (99.98%) в соответствующем весовом соотношении синтезировались в шаровой планетарной мельнице FRITSCH P-7 с сосудами и шарами из упрочненной стали ШХ-15 в атмосфере Ar в течение 16 h. Далее подбирались схема и параметры термообработки таким образом, чтобы обеспечить структурную и химическую гомогенность сплавов и требуемое структурное состояние (сверхструктуру B2-или $D0_3$ -типа). Химический состав сплавов определялся методами вторичной ионной масс-спектрометрии (ВИМС, MC7201), атомно-эмиссионной спектрометрии (SPECTROFLAME–MODULAD с индуктивно связанной плазмой). Результаты этих исследований показали, что содержание добавок совпадало с заложенным в исходную смесь для механосинтеза в пределах ± 0.5 at. %.

Аттестация структурного состояния осуществлялась методом рентгеноструктурного анализа при комнатной температуре с использованием дифрактометра SMARTLAB (Rigaku) с $Cu K\alpha$ -монохроматизированным излучением. Фазовый состав полученных материалов определялся обработкой дифрактограмм методом Ритвельда с использованием программного обеспечения PDXL 2 и базы данных ICDD (PDF-2). Мессбауэровские спектры на ядрах ^{57}Fe измерялись на станции ядерного резонансного рассеяния ID18 [8] в Европейском центре синхротронного излучения (ESRF) с помощью синхротронного мессбауэровского источника [9]. Измерения проводились при температуре 4.2 К, как без внешнего магнитного поля, так и в приложенном внешнем поле $H_{\text{ext}} = 5$ Т. Направление внешнего магнитного поля было выбрано вертикальным, т.е. перпендикулярно направлению падающего на образцы гамма-излучения и перпендикулярно направлению магнитного вектора практически полностью ($\sim 99\%$) поляризованного излучения синхротронного Мессбауэровского Источника [9]. В этих условиях измеряемые мессбауэровские спектры должны содержать только компоненты сверхтонких переходов с изменением квантового числа проекции магнитного момента $\Delta m = \pm 1$, что многократно облегчает интерпретацию результатов.

Для обработки мессбауэровских спектров применялся программный продукт SpectrRelax [10]. Магнитные измерения выполнялись в центре магнитометрии ИФМ УрО РАН на SQUID магнитометре MPMS-XL-5 (Quantum Design) во внешних магнитных полях до 5 Т при температурах от 5 до 400 К.

3. Результаты и обсуждение

Данные рентгенофазового анализа свидетельствуют о том, что исследуемые сплавы являются структурно-однофазными и химически однородными. В дифрактограммах всех образцов сплавов $\text{Fe}_{65}\text{Al}_{35}$ и $\text{Fe}_{65}\text{Al}_{30}\text{Ga}_5$, присутствуют только рефлексы B2-сверхструктуры. Диффузный фон, указывающий на присутствие областей, упорядоченных по типу $D0_3$, не обнаруживается. Для

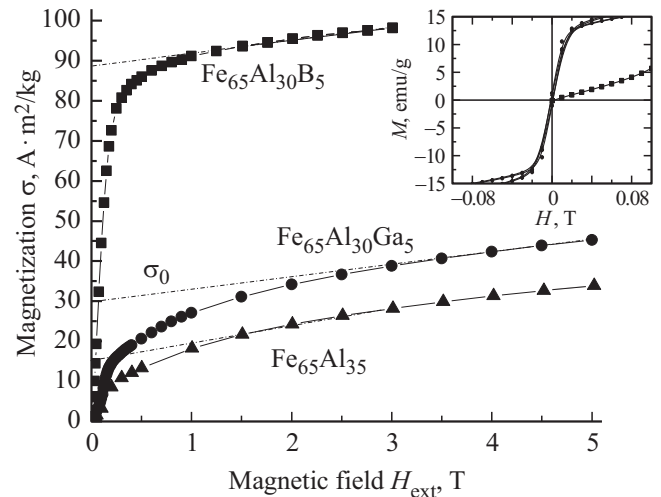


Рис. 1. Первичные кривые намагничивания квазиупорядоченных сплавов $\text{Fe}_{65}\text{Al}_{35}$, $\text{Fe}_{65}\text{Al}_{35-x}\text{M}_x$ ($M_x = \text{Ga}, \text{B}; x = 5$ at. %). На вставке — первичная кривая намагничивания и петля гистерезиса для сплава $\text{Fe}_{65}\text{Al}_{30}\text{Ga}_5$.

сплава $\text{Fe}_{65}\text{Al}_{35-x}\text{B}_x$ фиксируются сверхструктурные рефлексы решетки $D0_3$ -типа. Для достижения структурно-однофазного состояния образца $\text{Fe}_{65}\text{Al}_{35-x}\text{B}_x$ температура его термообработки была невысокой — 400°С. Несмотря на присутствие сверхструктурных (110), (200), (311) рефлексов на дифрактограмме этого образца, все отражения заметно уширены. Для образца, подвергнутого длительному отжигу, причиной такого уширения, по-видимому, является малость областей когерентного рассеяния (ОКР) рентгеновских лучей. Это в свою очередь дает основания для предположения о более высокой степени разупорядочения этого образца по сравнению с $\text{Fe}_{65}\text{Al}_{35}$ и $\text{Fe}_{65}\text{Al}_{30}\text{Ga}_5$. Увеличение параметра ОЦК-решетки тройного сплава с примесью 5 at. % Ga (по сравнению с $\text{Fe}_{65}\text{Al}_{35}$) составляет 0.1%. Для сплава $\text{Fe}_{65}\text{Al}_{30}\text{B}_5$ наблюдается уменьшение параметра решетки на 0.3% (табл. 1).

Из рис. 1 видно, что для сплавов $\text{Fe}_{65}\text{Al}_{35}$ и $\text{Fe}_{65}\text{Al}_{30}\text{Ga}_5$ на кривых намагничивания не достигается насыщения во внешних магнитных полях вплоть до $H_{\text{ext}} = 5.0$ Т. Характерный для ферромагнетика выход кривой намагничивания в режим технического насыщения при $H_{\text{ext}} = 3$ Т наблюдается только для сплава $\text{Fe}_{65}\text{Al}_{30}\text{B}_5$. Петли гистерезиса являются несмещенными и симметричными, а значения коэрцитивной силы, оцененные из петли гистерезиса, невелики (табл. 1). Значение удельной намагниченности насыщения σ_0 оценивалось экстраполяцией высокополевой части кривой намагничивания на $H_{\text{ext}} = 0$ Т (показано на рис. 1 пунктирными линиями). Оцененный из σ_0 магнитный момент на атом Fe \bar{m}_{Fe} также приведен в табл. 1. Полученные результаты согласуются с магнитными измерениями при $T = 4.2$ К работы [11], где было показано, что намагниченность не достигает насыщения в деформиро-

Таблица 1. Структурные и магнитные параметры квазиупорядоченных сплавов $\text{Fe}_{65}\text{Al}_{35}$, $\text{Fe}_{65}\text{Al}_{35-x}\text{M}_x$ ($\text{M}_x = \text{Ga}, \text{B}; x = 5 \text{ at.}\%$): тип и параметр решетки, температура магнитного упорядочения T_C , намагниченность насыщения σ_0 , в скобках магнитный момент на атом Fe \bar{m}_{Fe} , коэрцитивная сила H_C , среднее значение СТМП (B_{hf}), рассчитанное из $p(B_{hf})$, в скобках — $\langle B_{hf} \rangle$ при $H_{\text{ext}} = 5 \text{ T}$

Сплав	Тип решетки	Параметр решетки*, nm	Температура T_C , К	Намагниченность σ_0 , $\text{A} \cdot \text{m}^2/\text{kg}$ (\bar{m}_{Fe} , μ_B/Fe)	Коэрцитивная сила, Oe	$\langle B_{hf} \rangle$, T
$\text{Fe}_{65}\text{Al}_{35}$	B2	0.2894	340	15 (0.3–0.4)	65	14.0 (13.1)
$\text{Fe}_{65}\text{Al}_{30}\text{Ga}_5$	B2	0.2897	400	30 (0.7–0.8)	7	15.5 (13.6)
$\text{Fe}_{65}\text{Al}_{30}\text{B}_5$	$D0_3$	0.5772	620	89 (2.2)	130	19.8 (16.2)

Примечание. * Погрешность определения постоянной решетки методом рентгеновской дифракции: $\pm 1 \cdot 10^{-4} \text{ nm}$ для сплавов $\text{Fe}_{65}\text{Al}_{35}$ и $\text{Fe}_{65}\text{Al}_{30}\text{Ga}_5$ и $\pm 4 \cdot 10^{-4} \text{ nm}$ для $\text{Fe}_{65}\text{Al}_{30}\text{B}_5$.

ванных $\text{Fe}_{100-x}\text{Al}_x$ сплавах с $x > 40 \text{ at.}\%$ в импульсных магнитных полях вплоть до 150 кОе. Петли гистерезиса, ZFC- и FC-циклы $\text{Fe}_{65}\text{Al}_{30}\text{Ga}_5$ совпадают, тогда как первичная кривая намагничивания лежит заметно ниже петли гистерезиса (см. вставку на рис. 1). Значения восприимчивости начального участка первичной кривой намагничивания и аналогичного участка петли гистерезиса отличаются в 2 раза. Температурные кривые намагничивания $\sigma(T)$ в магнитном поле и в нулевом магнитном поле (FC и ZFC) показывают наличие гистерезиса в малых полях (0.05–1 кОе). При более высоких значениях внешнего поля гистерезис исчезает. Сравнение значений $\sigma(H)$ для петли гистерезиса и для ZFC и FC циклов убеждает, что они являются близкими. По-видимому, истинной причиной наблюдаемого гистерезиса является магнитный, а не термомагнитный гистерезис. Температурная зависимость магнитной AC-восприимчивости исследуемых сплавов имеет вид, характерный для антиферромагнетика [12] и позволяет оценить температуры перехода в парамагнитное состояние: для сплава $\text{Fe}_{65}\text{Al}_{30}\text{Ga}_5$ $T_C = 400 \text{ K}$, что выше, чем для бинарного сплава $\text{Fe}_{65}\text{Al}_{35}$ — 340 К. Наблюдаемые особенности полевого и температурного поведения магнитных характеристик позволяют утверждать, что магнитное состояние исследуемых сплавов в области низких температур не может быть отнесено однозначно ни к одному из хорошо известных типов магнитного упорядочения [13].

На рис. 2 приведены мессбауэровские спектры, измеренные без внешнего поля, и соответствующие распределения сверхтонкого магнитного поля (СТМП) (пунктирная кривая). Здесь же для сравнения показаны распределения $p(B_{hf})$ спектров, измеренных в приложенном внешнем магнитном поле $H = 5 \text{ T}$ (сплошная кривая). Очевидно, что добавка галлия к сплаву $\text{Fe}_{65}\text{Al}_{35}$ приводит к росту „интегральных“ средних магнитных характеристик: намагниченности и среднего СТМП. Введение примеси бора с концентрацией 5 at.% вызывает резкое увеличение намагниченности (в три раза) и среднего СТМП на 5.8 T.

Согласно данным магнитных измерений, для сплава $\text{Fe}_{65}\text{Al}_{35}$ магнитный момент составляет 0.3–0.4 μ_B/Fe (табл. 1). Если считать этот сплав однофазным ферро-

магнетиком, то исходя из значения среднего СТМП — 14.0 T и используя известный для ферромагнитных систем железа с *sp*-элементами коэффициент $\langle B_{hf} \rangle / \bar{m}_{\text{Fe}}$ — 11.0–12.0 T/ μ_B [14,15], можно сделать оценку магнитного момента на атом железа в сплаве \bar{m}_{Fe} . Вычисленный по данным мессбауэровских измерений магнитный момент \bar{m}_{Fe} составляет 1.1–1.2 μ_B/Fe для сплава $\text{Fe}_{65}\text{Al}_{35}$ и 1.3 μ_B/Fe для сплава $\text{Fe}_{65}\text{Al}_{30}\text{Ga}_5$, что в 3 и 1.5 раза превышает значения, полученные из магнитных измерений.

Разрешенная сверхтонкая структура в мессбауэровских спектрах сплавов железа с содержанием Al выше 25 at.% отсутствует. В ряде работ это рассматривалось как следствие увеличения числа возможных локальных окружений атомов Fe в сверхструктурах нестехиометрического состава либо проявления коллективизированного магнетизма. Мессбауэровские, магнитометрические и нейтронографические исследования [11,16–19] привели к предположению о существовании в упорядоченных сплавах Fe–Al кластеров, или групп магнитных моментов, образующих магнитные микронеоднородности. Однако размеры этих предполагаемых магнитных неоднородностей у разных авторов отличались существенно: от одной или нескольких элементарных ячеек [11] до 2–4 nm [16]. Кроме того, в ряде работ высказывалась идея о существовании в упорядоченных Fe–Al сплавах противоположно ориентированных магнитных моментов. В качестве причин указывалось, например, антиферромагнитное косвенное обменное взаимодействие между атомами Fe, разделенными атомом Al [17,20], либо отрицательное обменное взаимодействие за счет РККИ-взаимодействия. Теоретические расчеты электронной структуры и локальных магнитных моментов упорядоченных сплавов Fe–Al (29–44 at.% Al) в рамках теории функционала плотности [21] показали возможность существования в них трех типов магнитного упорядочения с малой энергетической разницей между состояниями: коллинеарного локально-антиферромагнитного и локально-ферромагнитного и спиральной спиновой волны (ССП). Оценка разницы в энергиях между этими состояниями не превысила 7 mRy/cell. В основном состоянии наиболее выгодными по энергии являются СПП и локально-

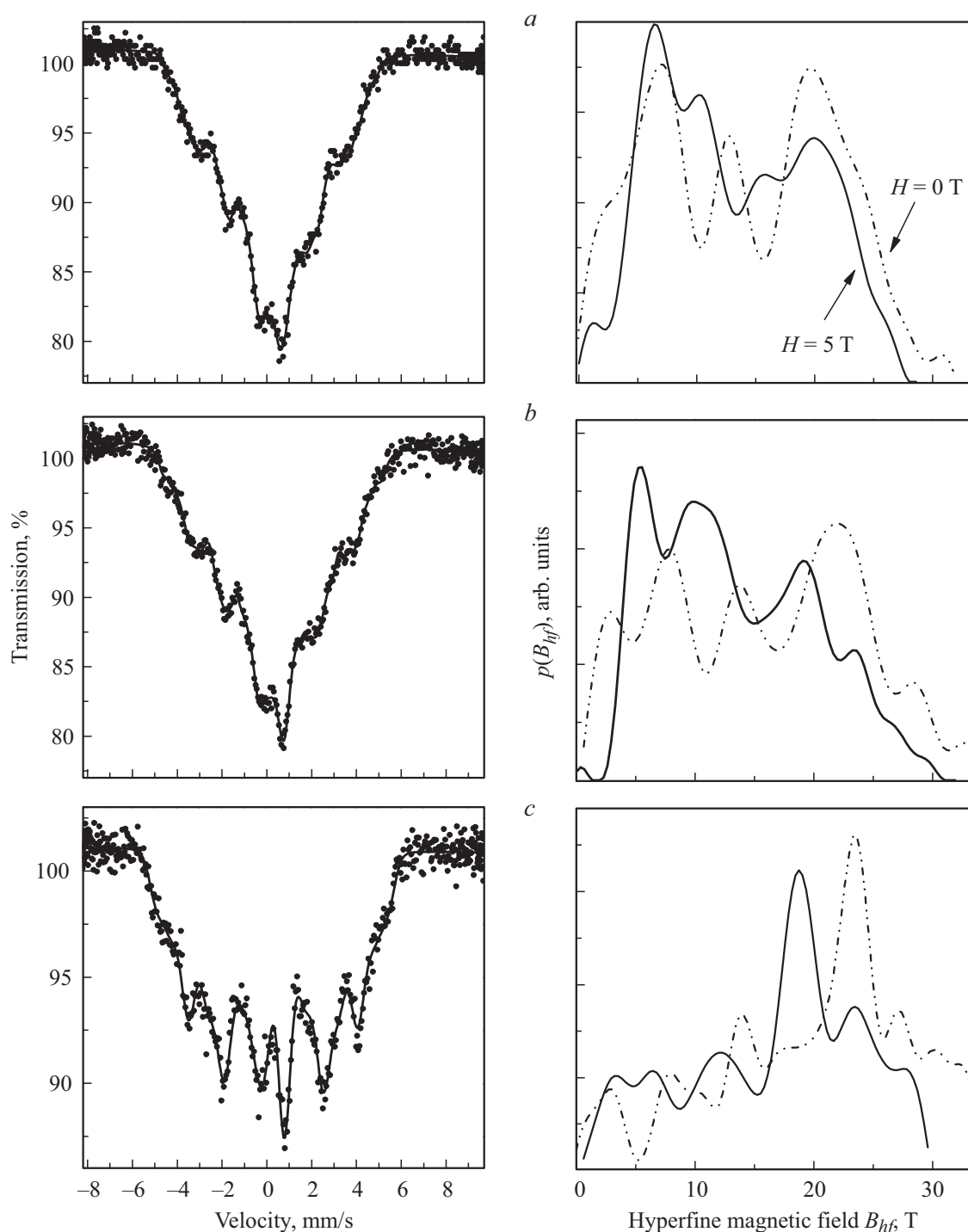


Рис. 2. Мессбауэровские спектры, измеренные без внешнего поля (левая часть), соответствующие распределения СТМП $p(B_{hf})$ (пунктирная кривая в правой части), $p(B_{hf})$ спектров, измеренных в приложенном внешнем магнитном поле $H = 5$ Т (сплошная кривая в правой части) для сплавов (а) $\text{Fe}_{65}\text{Al}_{35}$, (б) $\text{Fe}_{65}\text{Al}_{30}\text{Ga}_5$, (с) $\text{Fe}_{65}\text{Al}_{30}\text{B}_5$.

антиферромагнитного состояния. Но энергия ферромагнитного состояния настолько близка, что при внешних воздействиях, либо при изменениях граничных условий и параметров решетки вероятность возникновения этого состояния велика. Это дает основание предполагать возможность магнитного фазового расслоения в таких

системах. Кроме того, авторами работы отмечалось существование зависимости величины магнитного момента и его направления от числа атомов Al в ближайшем окружении атома Fe.

Нейтроннографические исследования упорядоченных по B2-типу сплавов Fe–Al с концентрациями

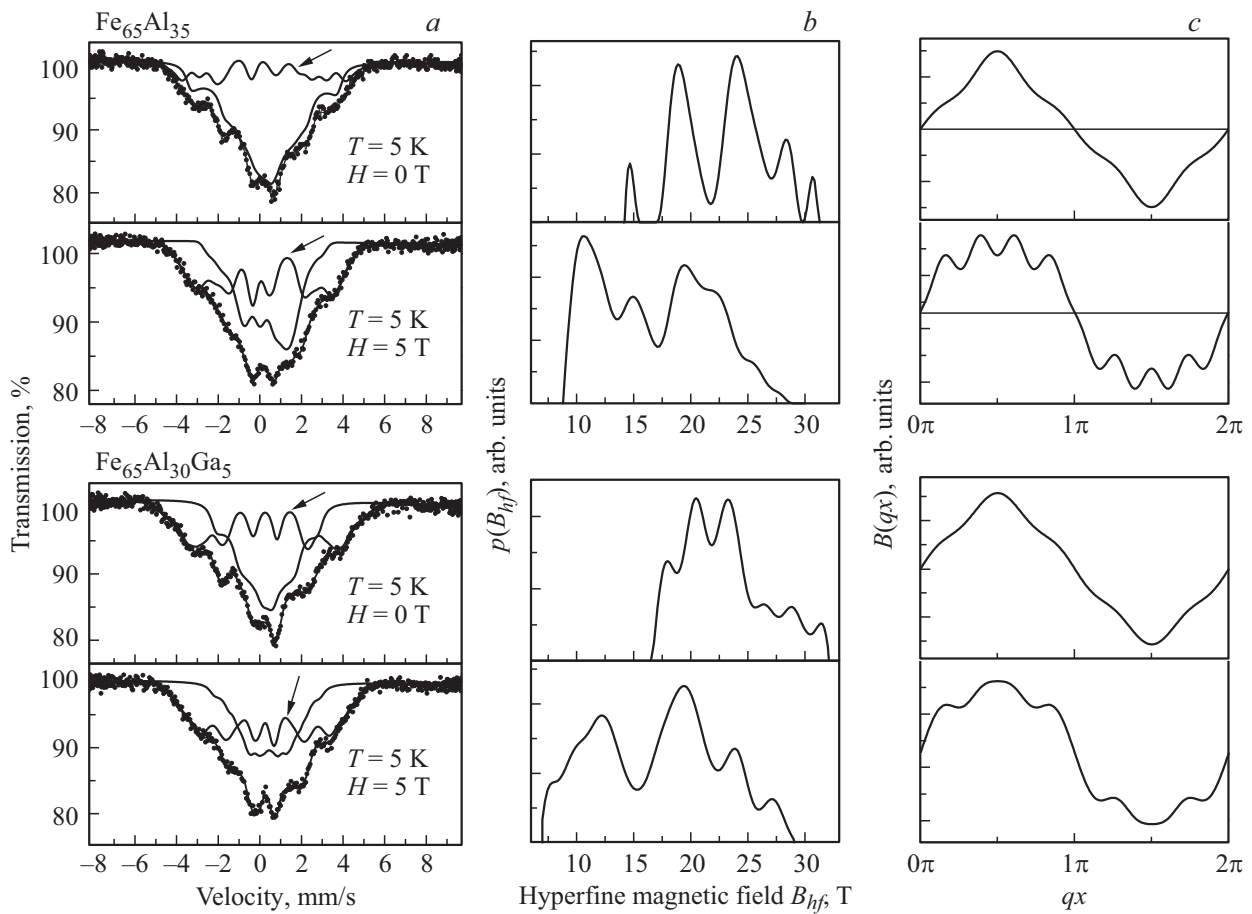


Рис. 3. *a)* Мессбауэровские спектры, измеренные без внешнего поля и в приложенном внешнем магнитном поле $H_{ext} = 5$ Т для сплавов $Fe_{65}Al_{35}$, $Fe_{65}Al_{30}Ga_5$. Приведены компоненты спектра, соответствующие подсистемам ферромагнитного типа (показана стрелкой) и ВСП, и результирующая огибающая спектра. *b)* Распределения СТМП компоненты ферромагнитного типа. *c)* Форма волны спиновой плотности.

34–43 at.% Al подтвердили существование пространственных корреляций магнитных моментов с длиной когерентности ~ 5 nm, которые были интерпретированы в рамках волн спиновой плотности.

При изучении поперечного магнитосопротивления и эффекта Холла на упорядоченных сплавах $Fe_{100-x}Al_x$, $x = 30-35$ at.% [7] были обнаружены аномалии магнитотранспортных свойств, объяснение которым было дано на основе модели пространственно-неоднородной магнитной структуры.

Спектры обрабатывались в дискретном представлении с числом секстетов, равным числу обнаруженных центров в распределении СТМП $p(B_{hf})$, каждый из которых соотносился ядру атома ^{57}Fe в определенном локальном окружении. Предполагалось также, что параметры локального атомного окружения (СТМП ^{57}Fe и вероятности конфигураций) близки к значениям СТМП и вероятностям соответствующих локальных конфигураций для упорядоченных сплавов Fe–Al [22]. Однако в рамках модели локальных атомных окружений не было получено удовлетворительного описания мессбауэровских спектров.

Ожидалось, что низкотемпературные мессбауэровские измерения во внешнем магнитном поле дадут дополнительную информацию для выбора адекватной модели мессбауэровских спектров. Известно, что в спектрах поликристаллического ферромагнитного материала с $m_{Fe} \uparrow \downarrow B_{hf}$ в магнитном поле, направление которого параллельно направлению магнитного вектора падающего излучения, что было реализовано в данных исследованиях, наблюдаются два изменения: меняется соотношение интенсивностей линий элементарного секстета от 3:2:1 к 3:0:1 и происходит сдвиг распределения $p(B_{hf})$ в область меньших значений на величину приложенного магнитного поля. Для исследуемых образцов подобное (близкое к ферромагнитному) поведение имеет место только для сплава $Fe_{65}Al_{30}B_5$, в спектре которого наблюдается видимое уменьшение интенсивности второй и пятой линий секстета, а среднее СТМП уменьшается на 3.6 Т (рис. 3). Для сплавов $Fe_{65}Al_{35}$ и $Fe_{65}Al_{30}Ga_5$ наложение внешнего магнитного поля 5 Т приводит к уменьшению СТМП на 0.9 и 1.9 Т соответственно. Наблюдаемые в распределении $p(B_{hf})$ изменения свидетельствуют о неоднородной

Таблица 2. Результаты обработки спектров сплавов Fe₆₅Al₃₅ и Fe₆₅Al₃₀Ga₅ без внешнего поля и в приложенном внешнем магнитном поле $H = 5$ Т.

Сплав	$S_F, \%$	$S_{SDW}, \%$	$\langle B_{hf}(F) \rangle, \text{Т}$	b_1	b_3	b_5	b_7	b_9
Fe ₆₅ Al ₃₅ ($H = 0$ Т)	20–30	80–70	23.0	183.8	–24.0	15.7	0.0	0.0
Fe ₆₅ Al ₃₀ Ga ₅ ($H = 0$ Т)	45–55	55–45	23.3	137.8	–10.1	9.7	0.66	0.0
Fe ₆₅ Al ₃₅ ($H = 5$ Т)	47	53	17.8	138.2	18.3	13.9	10.4	–17.4
Fe ₆₅ Al ₃₀ Ga ₅ ($H = 5$ Т)	60	40	17.6	128.5	11.9	18.8	3.9	–2.6

Примечание. S_F — доля ферромагнитной фазы, S_{SDW} — доля ВСП, $\langle B_{hf}(F) \rangle$ — среднее СТМП ферромагнитной подсистемы, b_{2n+1} — амплитуды гармоник, описывающие ВСП согласно формуле (1).

магнитной структуре сплавов Fe₆₅Al₃₅ и Fe₆₅Al₃₀Ga₅. Обнаруживаются составляющие с эффективным СТМП, которое уменьшается при наложении внешнего поля. Эти компоненты соответствуют атомам Fe, ориентация магнитных моментов которых совпадает с направлением приложенного внешнего поля. Значения эффективного СТМП на ядрах таких атомов лежат в интервале (~ 12 – 15.0 – 33.0 Т). Сравнение распределений СТМП (рис. 2) доказывает, что в спектрах присутствует и составляющая, поведение которой нетипично для ферромагнитно-упорядоченных магнитных моментов. Эта компонента характеризуется значениями СТМП в интервале (0 – 15.0 – 17.5 Т). Для сплава Fe₆₅Al₃₀Ga₅ сравнение мессбауэровских спектров и $p(B_{hf})$, измеренных во внешнем магнитном поле и без поля, показывает, что магнитное состояние этого сплава — ферромагнитное.

Учитывая упомянутые выше литературные данные экспериментальных и теоретических исследований и результаты измерений, выполненных в данной работе, мы предположили следующую модель магнитной микроструктуры сплавов Fe₆₅Al₃₅ и Fe₆₅Al₃₀Ga₅. Спектр представлялся в виде:

1) вклада от резонансных атомов в ферромагнитной фазе, для которых значения локального СТМП зависят от локального окружения и могут быть описаны распределением локального СТМП $p(B_{hf})$;

2) вклада от резонансных атомов, для которых значения локального СТМП (и магнитные моменты соответственно) изменяются от узла к узлу кристаллической решетки пропорционально значению волны спиновой плотности.

Имеется достаточно много примеров оценки данных мессбауэровского эксперимента в модели ВСП [23,24]. ВСП представляет собой стационарное периодическое поле электронной спиновой плотности в кристаллической решетке. Предполагается, что СТМП на ядре резонансного атома в среднем положении в кристаллической решетке пропорционально амплитуде ВСП в этом положении. Считаем, что ВСП является коллинеарной и имеет антиферромагнитный характер. Кроме того, допускаем, что ВСП имеет симметрию, подобную ранее обнаруженной, например, в хrome [25]. ВСП может быть представлена в виде ряда синусоидальных функций с

нечетным аргументом, а амплитуда ВСП (B_{hf}) записана в следующей форме [26]:

$$B_{hf}(qx) = \sum_{n=1}^N b_{2n-1} \sin[(2n-1)qx], \quad (1)$$

где символ b_{2n-1} обозначает амплитуду последовательных гармоник, переменная q — волновое число ВСП, символ x служит для обозначения относительного положения резонансного ядра вдоль направления распространения стационарной ВСП, индекс N нумерует максимально необходимую гармонику. Вследствие периодичности ВСП аргумент qx удовлетворяет следующему условию $0 \leq qx \leq 2\pi$. Средняя амплитуда $\langle B_{hf} \rangle$ ВСП, описываемая выражением (1), равна нулю. Амплитуда первой гармоники b_1 по определению положительна, так как абсолютный фазовый сдвиг между ВСП и кристаллической решеткой, в общем случае, в рамках используемого метода не наблюдаем. Амплитуды последующих гармоник при обработке экспериментального спектра являются варьируемыми параметрами. Электрическое квадрупольное взаимодействие рассматривается как возмущение первого порядка малости, так как оно мало по сравнению с магнитным взаимодействием для всех рассматриваемых случаев. Результаты обработки мессбауэровских спектров в рамках данной модели приведены в табл. 2.

Преобладающий вклад в мессбауэровский спектр сплава Fe₆₅Al₃₅ ($H_{\text{ext}} = 0$ Т) вносит длиннопериодическая магнитная структура типа ВСП, доля которой составляет не менее 70%. Для сплава с добавкой галлия этот вклад заметно меньше, но не ниже доли фазы ферромагнитного типа. Как видно из рис. 3, в этих сплавах ВСП имеет „треугольную“ форму, для которой распределение $p(B_{hf})$ является довольно равномерным, „плоским“ [26]. В спектрах, измеренных при $H_{\text{ext}} = 5$ Т, форма ВСП меняется на „прямоугольную“, появляются гармоники высших порядков. Распределение $p(B_{hf})$ для ВСП такой формы имеет характер дельта-функции Дирака.

В принятом приближении ВСП считаем, что вклад в намагниченность от атомов с магнитными моментами, образующими ВСП, равен нулю. С учетом доли и среднего СТМП $\langle B_{hf}(F) \rangle$ фазы ферромагнитного типа

оценка магнитного момента составляет $\bar{m} = 0.42 \mu_B / \text{Fe}$ для сплава $\text{Fe}_{65}\text{Al}_{35}$ и $0.8 \mu_B / \text{Fe}$ для $\text{Fe}_{65}\text{Al}_{30}\text{Ga}_5$. Следует заметить, что в области фазы ферромагнитного типа нельзя исключить присутствие атомов с магнитными моментами, направление которых противоположно суммарной намагниченности. Величина и направление этих магнитных моментов определяются характеристиками локального окружения атома [12,21]. Доля таких атомов невелика и использованное достаточно грубое приближение двух фаз позволяет достичь удовлетворительного согласия с данными магнитометрии.

При наложении внешнего магнитного поля среднее значение СТМП ферромагнитной подсистемы уменьшается на величину, приблизительно равную приложенному полю. Вместе с этим за счет уменьшения вклада от ВСП возрастает доля подсистемы ферромагнитного типа. Наблюдаемые изменения вкладов в мессбауэровский спектр позволяют сделать вывод о том, что при помещении исследуемых сплавов в магнитное поле имеет место изменение пространственного распределения и вкладов двух магнитных фаз.

Принимая во внимание известные литературные данные, результаты магнитометрических и мессбауэровских исследований настоящей работы, магнитная микроструктура сплавов $\text{Fe}_{65}\text{Al}_{35}$ и $\text{Fe}_{65}\text{Al}_{30}\text{Ga}_5$ в основном состоянии качественно может быть представлена как совокупность областей, характеризующихся двумя разными типами упорядочения. Область с ферромагнитно-упорядоченными моментами в отсутствие внешнего поля и при низких температурах занимает малую часть объема материала. В этой области хаотически могут встречаться атомы с магнитными моментами, направление которых противоположно суммарной намагниченности данной области. Большую часть объема занимают области или кластеры, в которых спиновая плотность и связанные с ней магнитный момент и эффективное СТМП на ядрах атомов ^{57}Fe периодически изменяются от узла к узлу. Такие области охватывают несколько ячеек кристаллической решетки (10–15), распределение коллинеарных магнитных моментов в них описываются в представлении волны спиновой плотности. Наличие именно таких областей приводит к наблюдаемому большому парамагнитному вкладу в магнитную восприимчивость материала при низких температурах и малых внешних полях. При увеличении внешнего магнитного поля сначала намагничивается ферромагнитная область, затем постепенно магнитные моменты в области ВСП меняют свою ориентацию на более выгодную относительно направления внешнего магнитного поля и „растворяются“ (становятся более мелкими) в возрастающей по объему ферромагнитно-упорядоченной области. Таким образом, в процессе намагничивания материала изменяются пространственное распределение и доля двух магнитных фаз в кристаллической решетке. Это объясняет необычное поведение первичной кривой намагничивания относительно петли гистерезиса при намагничивании материала.

В сплаве с добавкой галлия доля ВСП заметно меньше. В качестве возможной причины этого экспериментального факта можно назвать увеличение межатомных расстояний, флуктуации состава или/и возрастание разупорядочения, непосредственно следующее из хаотического замещения атомов Al атомами Ga в решетке исходного сплава. Согласно выводам теоретических работ [21], даже небольшие возмущения параметров ближайшего окружения в упорядоченных сплавах Fe–Al могут приводить к реализации ферромагнитного упорядочения магнитных моментов, а не ВСП.

Наблюдавшееся в магнитных и мессбауэровских экспериментах преимущественно ферромагнитное поведение сплава $\text{Fe}_{65}\text{Al}_{30}\text{B}_5$ наиболее вероятно обусловлено его структурным состоянием. Малость ОКР, о которой свидетельствуют результаты рентгеноструктурных исследований, имеет следствием высокую степень беспорядка в расположении атомов в $D0_3$ -сверхструктуре, поскольку большая доля атомов находится непосредственно на или вблизи границ кристаллитов. Кроме того, по нашим оценкам, размер ОКР для данного сплава имеет тот же порядок величины, что и длина когерентности ВСП в Fe–Al сплавах [6]. Все это в совокупности может являться причиной ферромагнитного упорядочения магнитных моментов.

4. Заключение

В данной работе предлагается объяснение наблюдаемого поведения магнитных характеристик сплавов $\text{Fe}_{65}\text{Al}_{35-x}\text{M}_x$ ($\text{M}_x = \text{Ga}, \text{B}$; $x = 0, 5 \text{ at.}\%$) на основе модели магнитного фазового расслоения, предусматривающей существование как минимум двух магнитных подсистем: ферро- или ферримагнитного типа и волны спиновой плотности. Принятые модельные представления позволяют получить удовлетворительное согласие значений магнитного момента из мессбауэровских и магнитных измерений, интерпретировать наблюдаемое поведение сплавов во внешнем магнитном поле как результат изменения пространственного распределения и долей магнитных фаз. Хотя основные качественные изменения магнитных характеристик сплавов $\text{Fe}_{65}\text{Al}_{35}$ и $\text{Fe}_{65}\text{Al}_{30}\text{Ga}_5$ в таком представлении воспроизводятся, однако выбранная модель требует дальнейшего экспериментального и теоретического изучения в отношении особенностей длиннопериодических магнитных структур типа ВСП в условиях внешних воздействий (температуры и магнитного поля). Сплав $\text{Fe}_{65}\text{Al}_{30}\text{B}_5$ демонстрирует поведение, характерное для ферромагнетика.

Работа выполнена за счет средств субсидии, выделенной Казанскому федеральному университету в рамках государственного задания в сфере научной деятельности (3.7352.2017/8.9). Авторы выражают благодарность ESRF (станция ID18) за предоставленную возможность выполнения мессбауэровских измерений (грант HC-1907).

Список литературы

- [1] M. van Schilfgaarde, I.A. Abrikosov, B. Johansson. *Nature* **400**, 46 (1999).
- [2] S. Mühlbauer, B. Binz, F. Jonietz, C. Pfleiderer, A. Rosch, A. Neubauer, R. Georgii, P. Böni. *Science* **323**, 915 (2009).
- [3] J.M. Tranquada, B.J. Sternlieb, J.D. Axe, J.D. Axe, Y. Makamura, S. Uchida. *Nature* **375**, 561 (1995).
- [4] C. de la Cruz, Q. Huang, J.W. Lynn, Jiying Li, W. Ratcliff II, J.L. Zarestky, H.A. Mook, G.F. Chen, J.L. Luo, N.L. Wang, Pengcheng Dai. *Nature* **453**, 899 (2008).
- [5] A. Manchon, N. Ryzhanova, A. Vedyayev, B. Dieny. *J. Appl. Phys.* **103**, 07A721 (2008).
- [6] D.R. Noakes, A.S. Arrott, M.G. Belk, S.C. Deevi, Q.Z. Huang, J.W. Lynn, R.D. Shull, D. Wu. *Phys. Rev. Lett.* **91**, 217201 (2003).
- [7] А.Е. Елсукова, Н.С. Перов, В.Н. Прудников, А.Б. Грановский, А.К. Аржников, Е.П. Елсуков, Е.В. Воронина, Е.А. Печина. *ФТТ* **50**, 1028 (2008).
- [8] R. Rüffer, A.I. Chumakov. *Hyperfine Interaction* **97/98**, 589 (1996).
- [9] V. Potapkin, A.I. Chumakov, G.V. Smirnov, J.P. Celse, R. Rüffer, C. McCammon, L. Dubrovinsky. *J. Synchrotron Rad.* **19**, 559 (2012).
- [10] M.E. Matsnev, V.S. Rusakov. *AIP Conf. Proceed.* **1489**, 178 (2012).
- [11] M.J. Besnus, A. Herr, A.J.P. Meyer. *J. Phys. F: Met. Phys.* **5**, 2138 (1975).
- [12] Е.В. Воронина, Е.П. Елсуков, С.К. Годовиков, А.В. Королев, А.Е. Елсукова. *Физика металлов. металловедение.* **109**, 453 (2010).
- [13] C.M. Hurd. *Contemp. Phys.* **23**, 469 (1982).
- [14] Е.П. Елсуков, Г.Н. Коньгин, Е.В. Воронина, Ю.Н. Воробьев. *Изв. РАН. Сер. физ.* **56**, 119 (1992).
- [15] Е.Р. Yelsukov, E.V. Voronina, G.N. Konygin, V.A. Barinov, S.K. Godovikov, G.A. Dorofeev, A.V. Zagainov. *J. Magn. Mater.* **166**, 334 (1997).
- [16] S. Takahashi, Y. Umakoshi. *J. Phys.: Condens. Matter* **3**, 5805 (1991).
- [17] J.V. Cable, L. David, R. Parra. *Phys. Rev. B* **16**, 1132 (1977).
- [18] G.P. Huffman. *J. Appl. Phys.* **42**, 1606 (1971).
- [19] I. Vincze, A.T. Aldred. *Phys. Rev. B* **9**, 3845 (1974).
- [20] A. Arrott, H. Sato. *Phys. Rev.* **114**, 1420 (1959).
- [21] А.К. Аржников, Л.В. Добышева. *ФТТ* **50**, 2009 (2008).
- [22] Е.Р. Yelsukov, E.V. Voronina, V.A. Barinov. *J. Magn. Mater.* **115**, 271 (1992).
- [23] A. Olariu, P. Bonville, F. Rullier-Albenque, D. Colson, A. Forget. *New J. Phys.* **14**, 053044 (2012).
- [24] J. Cieślak, S.M. Dubiel. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B* **101**, 295 (1995).
- [25] E. Fawcett. *Rev. Mod. Phys.* **60**, 209 (1988).
- [26] A. Blachowski, K. Ruebenbauer, J. Żukrowski, K. Rogacki, Z. Bukowski, J. Karpinski. *Phys. Rev. B.* **83**, 134410 (2011).