

Магнитная структура соединения Nd_5Ge_3

© А.П. Вохмянин¹, Б. Мэджи², А.Н. Пирогов¹, А.Е. Теплых¹

¹ Институт физики металлов УрО РАН,
Екатеринбург, Россия

² Индийский технологический институт,
Мумбай, Бомбей, Индия

E-mail: pirogov05@gmail.com

При температурах ~ 10 и 293 К проведены нейтронографические измерения интерметаллического соединения Nd_5Ge_3 , имеющего гексагональную структуру (пространственная группа $P6_3/mcm$). Для облегчения поиска реальной модели магнитной структуры соединения использованы базисные функции неприводимых представлений пространственной группы D_{6h}^3 ($P6_3/mcm$), вычисленные в результате симметричного анализа возможных в Nd_5Ge_3 магнитных структур с волновым вектором $\mathbf{k} = \mu\mathbf{b}_1$.

Работа частично финансировалась программой „Импульс“ (код 01.2.006.13394), проектом РФФИ № 10-02-00155, проектом УрО РАН № 12-Т-2-1006 и Минобрнауки (госконтракт № 14.518.11.7020).

1. Введение

Интерметаллические соединения типа R_5M_3 , где R — редкоземельный ион, $M = \text{Si}, \text{Ge}$, обладают интересными магнитными свойствами, обусловленными наличием двух кристаллографически неэквивалентных позиций, в которых расположены редкоземельные ионы. Например, в интерметаллиде Nd_5Ge_3 имеют место переход в фазу обратного спинового стекла, необратимый индуцированный внешним полем переход из антиферромагнитного в ферромагнитное состояние и т. д. [1,2].

Магнитная структура соединения Nd_5Ge_3 изучалась с помощью дифракции нейтронов в [1,3]. В этих работах был сделан вывод, что соединение имеет неколлинеарную антиферромагнитную структуру с волновым вектором $\mathbf{k} = 0.25\mathbf{b}_1$, где \mathbf{b}_1 — один из основных периодов обратной решетки [4]. При этом магнитные моменты ионов, занимающих позицию 6g, ориентированы параллельно оси c , тогда как моменты ионов, находящихся в 4d-позиции, отклонены от оси c на 31° .

Мы выполнили симметричный анализ возможных в Nd_5Ge_3 магнитных структур и установили, что для волнового вектора $\mathbf{k} = \mu\mathbf{b}_1$ имеют место только одномерные неприводимые представления. Это обстоятельство позволяет предполагать, что в Nd_5Ge_3 допустимы магнитные структуры типа спиновой волны.

Целью настоящей работы является определение магнитной структуры соединения Nd_5Ge_3 , модель которой могла бы быть построена из базисных функций одномерных неприводимых представлений.

2. Методика эксперимента

Исследуемый образец синтезирован на физическом факультете Индийского технологического института. Нейтронографические измерения выполнены на дифрактометрах Д-2 и Д-3, смонтированных на горизонтальных каналах реактора ИВВ-2М (Заречный, Россия), при $T \approx 10$ и 293 К в кристате с замкнутым гелиевым

циклом. Использовались пучки нейтронов с длинами волн $\lambda = 1.8$ (Д-2) и 2.43 \AA (Д-3). Нейтронограммы обрабатывались по методу Ритвелда с использованием программы Fullprof.

3. Кристаллическая структура Nd_5Ge_3

Нейтронограмма, полученная при комнатной температуре (рис. 1), содержит только ядерные рефлексы. Расчет приводит к следующим структурным параметрам: пространственная группа D_{6h}^3 ($P6_3/mcm$) (гексагональная сингония); параметры решетки $a = 8.760(2) \text{ \AA}$, $c = 6.636(2) \text{ \AA}$; ионы Nd расположены в 4d- (1 (1/3 2/3 0), 2 (1/3 2/3 1/2), 3 (2/3 1/3 0), 4 (2/3 1/3 1/2)) и 6g-позициях (1 (x 0 1/4), 2 (0 x 1/4), 3 (\bar{x} \bar{x} 1/4), 4 (\bar{x} 0 3/4), 5 (0 \bar{x} 3/4), 6 (x x 3/4) с $x \approx 0.243$); атомы Ge занимают 6g-позиции с $x \approx 0.606$. Факторы расходимости $R_B = 7.03\%$, $R_f = 7.06\%$.

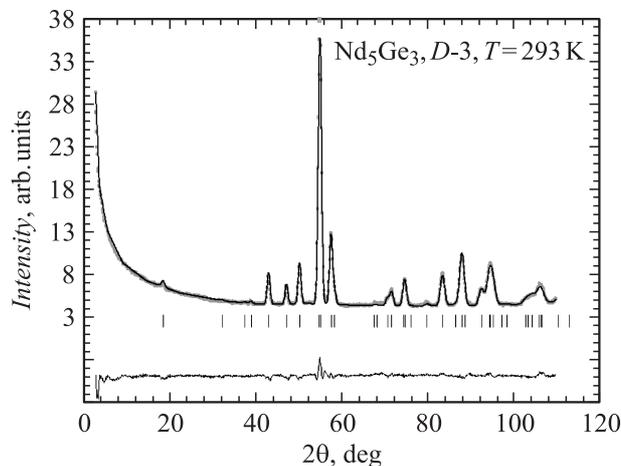


Рис. 1. Нейтронограмма Nd_5Ge_3 , полученная при 293 К.

4. Симметричный анализ магнитных структур, возможных в Nd_5Ge_3

В результате анализа нейтронограммы, измеренной при $T \approx 10\text{ К}$ (рис. 2) установлено, что магнитная структура Nd_5Ge_3 характеризуется волновым вектором $\mathbf{k} = \mu\mathbf{b}_1$ с $\mu \approx 0.187$. Чтобы получить базисные функции, описывающие весь набор магнитных структур, возможных в Nd_5Ge_3 для этого вектора \mathbf{k} , воспользуемся методикой симметричного анализа, следуя [5].

Прежде всего перейдем к системе координат, используемой Ковалевым [4]: $(XYZ)_K = (XYZ)_I - (0\ 0\ 1/4)$, где $(XYZ)_I$ — система координат, принятая в Международных таблицах пространственных групп [6].

Выписываем матрицы преобразований для поворотных элементов группы волнового вектора $\mathbf{k}_5 = \mu\mathbf{b}_1$ из работы [4]

$$H_1 = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}, \quad H_{10} = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 1 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & -1 \end{pmatrix},$$

$$H_{16} = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & -1 \end{pmatrix}, \quad H_{19} = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 1 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}.$$

Для элементов симметрии H_1 и H_{16} сопровождающая трансляция $\boldsymbol{\tau}_h = 0$, для элементов H_{10} и H_{19} $\boldsymbol{\tau}_h = (0\ 0\ 1/2)$.

Для $4d$ - и $6g$ -позиций составляем таблицы перестановок атомов под действием элементов группы волнового вектора \mathbf{k}_5

$$(x' \ y' \ z') = g \begin{pmatrix} x \\ y \\ z \end{pmatrix} - \mathbf{a}_p,$$

где $g = \{h|\boldsymbol{\tau}_h\}$ — элемент симметрии H -группы волнового вектора G_k с сопровождающей трансляцией $\boldsymbol{\tau}_h$, а \mathbf{a}_p — возвращающая трансляция, т.е. трансляция, возвращающая атом с полученными координатами в

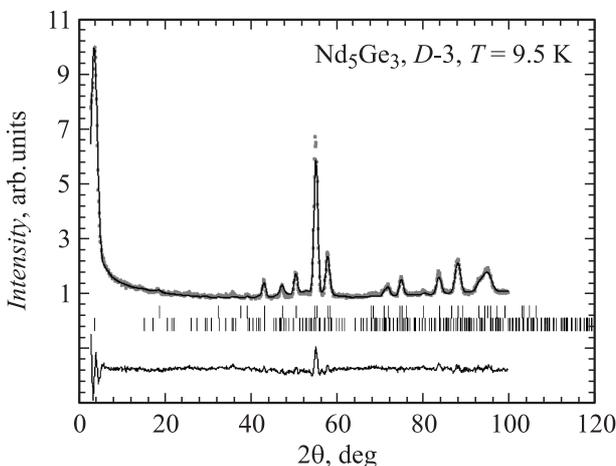


Рис. 2. Нейтронограмма Nd_5Ge_3 , полученная при 9.5 К.

Таблица 1. Проективные представления группы волнового вектора $\mathbf{k} = \mu\mathbf{b}_1$

$T32$	H_1	H_{10}	H_{16}	H_{19}
τ_1	1	1	1	1
τ_2	1	1	-1	-1
τ_3	1	-1	1	-1
τ_4	1	-1	-1	1

нулевую ячейку. Мы используем обозначения Вигнера–Зейтца [5], в которых все поворотные элементы симметрии считаются помещенными в начало системы координат, а наличие трансляционных компонент учитывается приписыванием сопровождающих трансляций к этим элементам. Полученные таблицы перестановок атомов мы не приводим. В дальнейшем учитываются следующие переходы атомов: $1 \rightarrow 1$, $1 \rightarrow 2$, $3 \rightarrow 3$ и $3 \rightarrow 4$ в $4d$ -позиции и $1 \rightarrow 1$, $1 \rightarrow 6$, $2 \rightarrow 2$, $2 \rightarrow 5$, $3 \rightarrow 3$ и $3 \rightarrow 4$ в $6g$ -позиции.

Определим значения $\exp(-i\mathbf{k}\boldsymbol{\tau}_h)$ для каждого элемента группы волнового вектора. В случае элементов H_1 и H_{16} экспонента $\exp(-i\mathbf{k}\boldsymbol{\tau}_h) = 1$, так как $\boldsymbol{\tau}_h = 0$, в случае элементов H_{10} и H_{19} экспонента $\exp(-i\mathbf{k}\boldsymbol{\tau}_h) = 1$, так как $\boldsymbol{\tau}_h$ и \mathbf{k} взаимно перпендикулярны.

Затем выписываются проективные представления группы волнового вектора из работы [4] (табл. 1). Поскольку $\exp(-i\mathbf{k}\boldsymbol{\tau}_h) = 1$ во всех случаях, малые представления совпадают с проективными.

Вычислим характер магнитного представления χ_m^k , знание которого необходимо при расчете кратности вхождения неприводимых магнитных представлений τ_i в приводимое. Для этого используем формулу

$$\chi_m^k = \chi_p^k \delta_h \text{Sp} R^h,$$

в которой

$$\chi_p^k = \sum_j \exp[-ika_p(g, j)] \delta_{j, g_i}$$

— характер перестановочного представления, $\delta_h = 1$ для простых элементов симметрии и $\delta_h = -1$ для инверсионных, R^h — матрица элемента симметрии [5].

Рассчитываем кратность вхождения неприводимых магнитных представлений в приводимое, используя формулу [5]

$$n_v = \left[\sum_{h \in G_k^0} \chi_m^k \chi^{*kv}(g) \right] / n(G_k^0),$$

где χ^{kv} — характер неприводимого представления группы волнового вектора d^{kv} , $n(G_k^0)$ — число элементов в точечной группе G_k^0 . Определяем состав магнитного представления для каждой позиции

$$d_m^{k5}(4d) = 2(\tau_1 + \tau_2) + 4(\tau_3 + \tau_4),$$

$$d_m^{k5}(6g) = 3(\tau_1 + \tau_3) + 6(\tau_2 + \tau_4).$$

Таблица 2. Приведенные к вещественному виду базисные функции неприводимых представлений группы D_{6h}^3 ($P6_3/mcm$), входящих в состав магнитного представления с $\{\mathbf{k}_5\} = \mu\mathbf{b}_1$ (позиция 4d)

Представление	Позиция 4d			
	1 (1/3 2/3 0)	2 (1/3 2/3 1/2)	3 (2/3 1/3 0)	4 (2/3 1/3 1/2)
τ_1	210	$\bar{2}\bar{1}0$	000	000
τ_1'	000	000	210	$\bar{2}\bar{1}0$
τ_2	210	210	000	000
τ_2'	000	000	210	210
τ_3	010	$0\bar{1}0$	000	000
τ_3'	000	000	010	$0\bar{1}0$
τ_3''	001	001	000	000
τ_3'''	000	000	001	001
τ_4	010	010	000	000
τ_4'	000	000	010	010
τ_4''	001	$00\bar{1}$	000	000
τ_4'''	000	000	001	$00\bar{1}$

Таблица 3. Приведенные к вещественному виду базисные функции неприводимых представлений группы D_{6h}^3 ($P6_3/mcm$), входящих в состав магнитного представления с $\{\mathbf{k}_5\} = \mu\mathbf{b}_1$ (позиция 6g)

Представление	Позиция 6g					
	1 (x 01/4)	2 (0x 1/4)	3 ($\bar{x}\bar{x}$ 1/4)	4 (\bar{x} 03/4)	5 (0 \bar{x} 3/4)	6 (xx 3/4)
τ_1	001	000	000	000	000	$00\bar{1}$
τ_1'	000	001	000	000	$00\bar{1}$	000
τ_1''	000	000	001	$00\bar{1}$	000	000
τ_2	210	000	000	000	000	210
τ_2'	000	210	000	000	210	000
τ_2''	000	000	210	210	000	000
τ_2'''	010	000	000	000	000	$0\bar{1}0$
τ_2^{IV}	000	010	000	000	$0\bar{1}0$	000
τ_2^V	000	000	010	$0\bar{1}0$	000	000
τ_3	001	000	000	000	000	001
τ_3'	000	001	000	000	001	000
τ_3''	000	000	001	001	000	000
τ_4	210	000	000	000	000	$\bar{2}\bar{1}0$
τ_4'	000	210	000	000	$\bar{2}\bar{1}0$	000
τ_4''	000	000	210	$\bar{2}\bar{1}0$	000	000
τ_4'''	010	000	000	000	000	010
τ_4^{IV}	000	010	000	000	010	000
τ_4^V	000	000	010	010	000	000

Базисные функции ψ_λ^{kv} , которые необходимо найти, представляют собой полный набор всех атомных компонент и преобразуются по неприводимому представлению d^{kv} . Они могут быть записаны как $3\sigma N$ -мерный столбец (N — число примитивных ячеек в кристалле) в виде прямой суммы [5]

$$\psi_\lambda^{kv} = \sum_n^\otimes \sigma_\lambda^{kv} \exp(i\mathbf{k}\mathbf{t}_n),$$

где σ_λ^{kv} — $3\sigma_m$ -мерный столбец. Его можно представить в виде прямой суммы σ_m аксиальных трехмерных векторов $S\left(\begin{smallmatrix} k v \\ \lambda \end{smallmatrix} \middle| i\right)$, относящихся к отдельным магнитоактив-

ным атомам i примитивной ячейки кристалла [5],

$$\sigma_\lambda^{kv} = \sum_{i=1}^{\otimes \sigma_m} S\left(\begin{smallmatrix} k v \\ \lambda \end{smallmatrix} \middle| i\right).$$

Рассчитываем атомную (для i -го атома) компоненту λ -й аксиальной базисной функции ν -го неприводимого представления с помощью следующего соотношения [5]:

$$S\left(\begin{smallmatrix} k v \\ \lambda \end{smallmatrix} \middle| i\right) = \sum_{h \in G_k^0} d_{\lambda[\mu]}^{*kv}(g) \exp[-ika_p(g, j)] \delta_{i,g[j]} \delta_h \begin{pmatrix} R_{x[\beta]}^h \\ R_{y[\beta]}^h \\ R_{z[\beta]}^h \end{pmatrix},$$

где $d_{\lambda[\mu]}^{kv}$ — матрица неприводимого представления d^{kv} , $[\mu]$ — фиксированный (стартовый) номер столбца матри-

цы), $\delta_{i,g[j]}$ — δ -символ Кронекера, а $\begin{pmatrix} R_{x[\beta]}^h \\ R_{y[\beta]}^h \\ R_{z[\beta]}^h \end{pmatrix}$ — столбец

матрицы поворотного элемента симметрии точечной группы волнового вектора G_k^0 со стартовым номером β .

Базисные функции на произвольном луче \mathbf{k}_L связаны с базисными функциями на исходном луче $\mathbf{k} = \mathbf{k}_1$ следующей формулой:

$$S \begin{pmatrix} k_L \nu | i' \\ \lambda \end{pmatrix} = \exp[-i\mathbf{k}_L \mathbf{a}_p(g_L, i)] \delta_{h_L} R^{h_L} \mathbf{S} \begin{pmatrix} k \nu | i \\ \lambda \end{pmatrix}.$$

Здесь $\mathbf{k}_L = h_L \mathbf{k}_1$, где h_L — поворотная часть элемента-представителя $g_L = \{h_L | \boldsymbol{\tau}_{h_L}\}$.

Комплексные базисные функции приводим к вещественному виду. Для этого следует рассчитать базисные функции для лучей звезды волнового вектора $\mathbf{k}_1 = \mu \mathbf{b}_1$ и $\mathbf{k}_2 = -\mathbf{k}_1$. Линейная комбинация базисных функций для этих лучей, как правило, является вещественной величиной.

Полученные нами базисные функции неприводимых представлений группы $D_{6h}^3 (P6_3/mcm)$, входящих в состав магнитного представления со звездой волнового вектора $\{\mathbf{k}_5\} = \mu \mathbf{b}_1$, приведены в табл. 2 и 3.

5. Магнитная структура Nd_5Ge_3 при $T \approx 10 \text{ K}$

Используя данные табл. 2 и 3 и нейтронограмму, измеренную при $T \approx 10 \text{ K}$, мы пришли к выводу, что модель магнитной структуры Nd_5Ge_3 можно построить из следующих базисных функций неприводимых представлений группы $D_{6h}^3 (P6_3/mcm)$: $\psi(4d) = \psi_{\tau 3''} + \psi_{\tau 3''}$ и $\psi(6g) = \psi_{\tau 3} + \psi_{\tau 3'} + \psi_{\tau 3''}$, т.е. магнитные моменты ионов Nd направлены вдоль оси c в обеих позициях. Величина магнитного момента иона Nd в $4d$ -позиции равна $2.6(1) \mu_B$, а в $6g$ -позиции — $1.9(1) \mu_B$. Факторы расходимости $R_B = 9.73\%$, $R_f = 8.70\%$, $R_m = 9.52\%$.

6. Заключение

Результаты симметричного анализа возможных в Nd_5Ge_3 магнитных структур с $\mathbf{k}_5 = \mu \mathbf{b}_1$ показывают, что неприводимые представления, входящие в состав магнитного представления, являются одномерными. Этот результат указывает на возможность существования магнитной структуры типа спиновой волны. Полученное из расчета нейтронограммы при $T \approx 10 \text{ K}$ значение $\mu \approx 0.187$ свидетельствует о модуляции магнитного момента вдоль волнового вектора.

Список литературы

[1] P. Schobinger-Papamantellos, K.H.J. Buschov. J. Magn. Magn. Mater. **49**, 349 (1985).

- [2] B. Maji, K.G. Suresh, A.K. Nigam. J. Phys: Cond. Matter **23**, 506 002 (2011).
 [3] B. Maji, K.G. Suresh, A.K. Nigam. Europhys. Lett. **91**, 37 007 (2010).
 [4] О.В. Ковалев. Неприводимые и индуцированные представления и копредставления федоровских групп. Наука, М. (1986). 368 с.
 [5] Нейтроны и твердое тело. Т. 2. Нейтронография магнетиков / Ю.А. Изюмов, В.Е. Найш, Р.П. Озеров. Атомиздат, М. (1981). 312 с.
 [6] International tables for X-ray crystallography. V. I. Kynoch Press, Birmingham (1952). 558 p.