

Исследование интерметаллических сплавов Лавеса LuFe_2 и $\text{LuFe}_{1.96}\text{Al}_{0.04}$ методом ЯМР

© В.С. Покатилов

Московский институт радиотехники, электроники и автоматики,
117454 Москва, Россия

(Поступила в окончательном виде 28 ноября 1998 г.)

Измерены спектры ЯМР ^{57}Fe и ^{27}Al в сплавах LuFe_2 и $\text{LuFe}_{0.96}\text{Al}_{0.04}$ методом спинового эха при 4.2 К. Оценены главные вклады в сверхтонкие поля на ядрах ^{57}Fe , а также магнитные моменты на атомах Fe и Lu в LuFe_2 .

В течение последних примерно десяти лет интерметаллические соединения Лавеса $A\text{Fe}_2$ ($A = \text{Y}, \text{Sc}, \text{Zr}, \text{Hf}$ и др.) привлекают большое внимание исследователей. Ранее предполагалось, что в этих сплавах магнитным моментом обладает только атом железа. Однако расчеты электронных структур многих из этих соединений показали, что атомы A также должны иметь магнитные моменты, причем магнитные моменты этих атомов антипараллельны моментам атомов железа [1–4]. В работах по рассеянию поляризованных нейтронов в сплавах YFe_2 [5], ZrFe_2 [6], а также в исследованиях методом ЯМР YFe_2 [7], ZrFe_2 [8] и ScFe_2 [9] было установлено, что на атомах A ($\text{Cs}, \text{Y}, \text{Zr}$) имеется отрицательный магнитный момент по отношению к моменту на атомах железа. Изучение зависимости частоты максимума спектра ЯМР f_0 на ядрах ^{89}Y в YFe_2 и ^{91}Zr в ZrFe_2 [10] от внешнего давления P показало, что f_0 растет с увеличением P . Эти данные указывали на существование положительного "локального" вклада в экспериментальные сверхтонкие поля (СТП) на ядрах ^{89}Y и ^{91}Zr , и, следовательно, отрицательных магнитных моментов на Y- и Zr-атомах.

Расчеты электронных структур сплава LuFe_2 [4] предсказывают отрицательный магнитный момент на Lu-атомах $\mu(\text{Lu}) = -0.41\mu_B$. При исследовании рассеяния нейтронов в LuFe_2 [11] был оценен только магнитный момент на атомах железа. Недавнее изучение зависимости ЯМР частоты f_0 ядер ^{175}Lu от внешнего давления P в LuFe_2 [12] показало, что величина $\partial f_0/\partial P$ является положительной и, следовательно, атомы лютетия должны иметь отрицательный магнитный момент. Экспериментальные оценки магнитных моментов на атомах лютетия также отсутствуют.

В настоящей работе проведены исследования методом ЯМР сплавов Лавеса с кубической структурой LuFe_2 , содержащих примеси алюминия, с целью измерения СТП на ядрах ^{57}Fe и ^{27}Al , а также оценки магнитных моментов на атомах железа и лютетия.

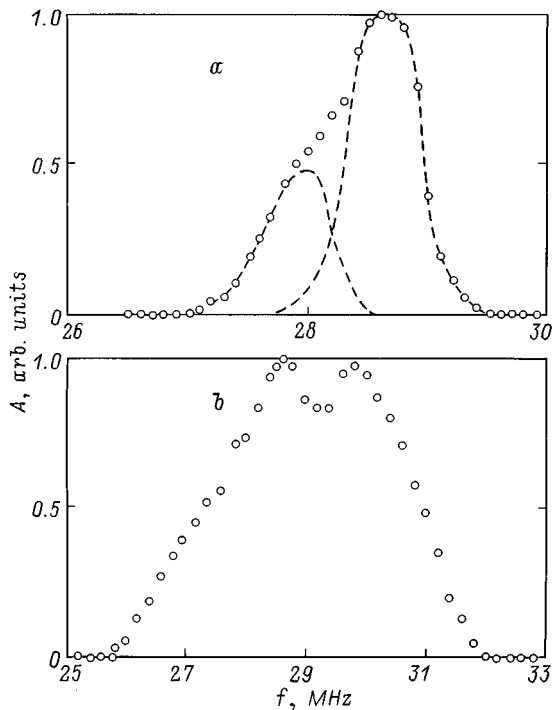
1. Экспериментальные данные

Образцы сплавов LuFe_2 и $\text{LuFe}_{1.96}\text{Al}_{0.04}$ были приготовлены из металлов высокой чистоты в дуговой печи в атмосфере высокочистого аргона. При плавке учиты-

вались потери на испарение металлов. Слитки сплавов LuFe_2 и $\text{LuFe}_{1.96}\text{Al}_{0.04}$ отжигались в течение 50 часов при 900°C в атмосфере аргона. Рентгенографические измерения на порошковых образцах, полученных из этих слитков, показали, что сплавы имели кубическую структуру и были однофазны. Спектры ЯМР измерялись методом спинового эха при 4.2 К. ЯМР-спектры нормировались на квадрат частоты измерения.

Как известно [13], для получения необходимого разрешения и корректного измерения узких ЯМР-спектров в ферромагнетиках необходимо использовать радиоимпульсы, возбуждающие эхо, сравнительно большой длительности τ и малой амплитуды B_0 . Спектр ЯМР ^{57}Fe в LuFe_2 измерялся при помощи двух одинаковых радиоимпульсов $\tau \geq 10 \mu\text{s}$ (т.е. частотный диапазон возбуждения эхо составляет $\Delta f \leq 0.1 \text{ MHz}$) и $B_0 \leq 0.3B_m$ (где B_m — амплитуда радиоимпульсов, соответствующая наибольшему сигналу эха в максимуме ЯМР-спектра). Для сплава $\text{LuFe}_{1.96}\text{Al}_{0.04}$ длительность радиоимпульсов составляла $\tau \geq 5 \mu\text{s}$. Кроме требования малых углов (α) поворота ядерной намагниченности ($\alpha \sim \tau B_0$) при измерении спектров ЯМР, необходимо также поддерживать постоянной величину $(B_0 f)$ для всего диапазона измеряемых частот f . Согласно [14], при соблюдении этих экспериментальных условий измеренный спектр ЯМР, нормированный на квадрат частоты (f^2), соответствует истинному распределению резонансных частот (или сверхтонких полей) для исследуемого ферромагнетика.

На рисунке приведены спектры ЯМР соединений LuFe_2 и $\text{LuFe}_{1.96}\text{Al}_{0.04}$. Спектр ЯМР ^{57}Fe в LuFe_2 имеет несимметричную линию с максимумом при 28.6 МГц. Обычно спектр ЯМР ^{57}Fe в кубических фазах Лавеса (MgCu_2) на основе Fe состоит из двух линий (с отношением 1:3) из-за двух магнитно-неэквивалентных состояний атомов Fe, когда направление легкой оси совпадает с направлением $\langle 111 \rangle$. Для случая, когда легкая ось совпадает с направлением типа $\langle 100 \rangle$, спектр ЯМР ^{57}Fe состоит из одиночной линии, а для направления типа $\langle 110 \rangle$ — из двух линий одинаковых интенсивностей. Из рисунка, а видно, что в области частот 28.0 МГц в спектре имеется дополнительный вклад. Геометрическое разделение линий показало, что отношение площадей линий с максимумами при 28.0 и 28.6 МГц равно при-



мерно 1:2. В неотожженном сплаве это отношение составляет 1:2.4. Вероятно, легкая ось в LuFe_2 совпадает с направлением $\langle 111 \rangle$ при 4.2 К. Спектр ЯМР сплава $\text{LuFe}_{1.96}\text{Al}_{0.04}$ находится в области 20–30 МГц и содержит два разрешенных пика, один из которых относится к ЯМР ^{57}Fe (при 28.6 МГц), а другой — к ЯМР-спектру ^{27}Al с максимумом при 29.8 МГц.

2. Обсуждение экспериментальных данных

СТП на ядрах магнитных атомов (например, ^{57}Fe) в ферромагнитных металлических сплавах обычно представляется в виде суммы двух главных вкладов: локального и наведенного

$$H(\text{Fe}) = H_{loc}(\text{Fe}) + H_{tr}(\text{Fe}), \quad (1)$$

где $H_{loc}(\text{Fe})$ — вклад в СТП от поляризации внутренних и внешних s -электронов собственным магнитным моментом атома железа $\mu(\text{Fe})$, а $H_{tr}(\text{Fe})$ — вклад в СТП, обусловленный поляризацией внешних s -электронов магнитными моментами соседних атомов. Поскольку $H_{loc}(\text{Fe})$ пропорционально $\mu(\text{Fe})$ [15], то обычно полагают $H_{loc}(\text{Fe}) = P(\text{Fe})\mu(\text{Fe})$, где $P(\text{Fe})$ — константа поляризации, для железа $P(\text{Fe}) = -9.05\tau/\mu_b$ [15].

Из эксперимента определяем $H(\text{Fe})$. Чтобы определить $\mu(\text{Fe})$ из данных по СТП, необходимо оценить вклад $H_{loc}(\text{Fe})$ (или $H_{tr}(\text{Fe})$) в $H(\text{Fe})$. В настоящий момент оценка главных вкладов из экспериментальных данных — одна из основных проблем в методах сверхтонких взаимодействий. Наиболее достоверный и надеж-

ный экспериментальный способ оценки главных вкладов в СТП магнитного $3d$ -атома основывается на измерении СТП на примесных немагнитных атомах начала и конца $3d$ -ряда [16].

Величина $H_{tr}(\text{Fe})$ в Fe-матрице была оценена в [17]. На основе сдвигов СТП ^{57}Fe $\Delta H(\text{Fe})$ в разбавленных Fe-сплавах, а также в соединениях Fe_3Si оценка дала значение $H_{tr}(\text{Fe}) \approx -14.5 \text{ T}$.

В [7] был рассмотрен еще один метод для оценки наведенных вкладов в сплавах на основе Fe. Было предложено оценивать $H_{tr}(\text{Fe})$ из данных по СТП на немагнитных примесях. Однако к доводам, изложенным в [7], необходимо добавить следующее. СТП $H(Z)$ на немагнитных примесях (Z) в Fe-матрице имеют осциллирующую зависимость в функции Z , изменяясь по знаку и значительно по величине [15]. Из этой зависимости видно, что только для ядер ^{27}Al и $^{63,65}\text{Cu}$ значение $B(Z) = H(Z)/A_s(Z)$ (где $A_s(Z)$ — константа поляризации для s -электронов [18]) почти равно $B(\text{Fe}) = H_{tr}(\text{Fe})/A_s(\text{Fe}) = 0.81 \cdot 10^{-1}$ ($H_{tr}(\text{Fe}) = -14.5 \text{ T}$). Для других же ядер значения $B(Z)$ отличаются от $B(\text{Fe})$ в несколько раз. Из равенств $B(\text{Fe}) = B(\text{Cu}) = B(\text{Al})$ можно найти связь между $H_{tr}(\text{Fe})$ и экспериментальными СТП на примесных ядрах ^{27}Al или $^{63,65}\text{Cu}$ в исследуемом сплаве на основе железа, т.е.

$$H_{tr}(\text{Fe}) = H(Z)A_s(\text{Fe})/A_s(Z), \quad (2)$$

где $Z = \text{Al}$ или Cu . Таким образом, измерив СТП на ядрах примесных атомов ^{27}Al или $^{63,65}\text{Cu}$, занимающих места Fe в сплаве на основе железа, и используя соотношение (2), можно оценить наведенный вклад в СТП на ядрах ^{57}Fe , и затем $H_{loc}(\text{Fe}) = H(\text{Fe}) - H_{tr}(\text{Fe})$.

$H_{tr}(\text{Fe})$ и $H_{loc}(\text{Fe})$ на ядрах ^{57}Fe в соединениях LuFe_2 были оценены на основе экспериментальных данных $H(\text{Fe})$ и $H(\text{Al})$, измеряемых в этой работе. Приведенные значения $H(\text{Al})$ и $H(\text{Fe})$ содержали также поле Лоренца для LuFe_2 . Итак, $H(\text{Al}) = 2.88$ и $H(\text{Fe}) = -21.08 \text{ T}$, тогда $H_{tr}(\text{Fe}) = -5.89 \text{ T}$ (оценено по формуле (2)). Следовательно, $H_{loc}(\text{Fe}) = -15.19 \text{ T}$ и $\mu(\text{Fe}) = 1.69\mu_b$. Это значение моментов на атомах Fe находится в согласии с оценками $\mu(\text{Fe})$ из опытов по рассеянию поляризованных нейтронов в LuFe_2 $\mu(\text{Fe}) = 1.67\mu_b$ [11]. Расчеты электронных структур LuFe_2 [4] дали следующее значение магнитного момента на состояниях железа $\mu(\text{Fe}) = 1.64\mu_b$.

Чтобы корректно оценить магнитные моменты на атомах A в соединениях Лавеса $A\text{Fe}_2$ из данных по СТП, также необходимы значения СТП на примесных ядрах s -, p - и d -атомов, занимающих A - и Fe-узлы в решетке $A\text{Fe}_2$. Однако такие данные для сплавов LuFe_2 отсутствуют. В LuFe_2 $\mu(\text{Lu})$ можно оценить из данных по среднему магнитному моменту сплава μ_f , рассчитанного на формулу соединения $A\text{Fe}_2$ ($\mu_f = 2\mu(\text{Fe}) + \mu(A)$). Надо также иметь в виду, что при этом могут быть получены значительные вариации по $\mu(A)$, так как имеется разброс данных по μ_f из-за чувствительности значений μ_f к

стехиометрии состава и однофазности образцов соединений AFe_2 . Магнитные моменты μ_f в LuFe_2 измерялись в [12,19] и $\mu_f = (2.85-3.00)\mu_b$. Используя полученное значение $\mu(\text{Fe})$, получаем $\mu(\text{Lu}) = -(0.38-0.53)\mu_b$. Оценки $\mu(\text{Lu})$ в LuFe_2 из расчетов электронных структур дают $\mu(\text{Lu}) = -0.41\mu_b$ [4]. Итак, данные ЯМР исследования LuFe_2 указывают на ферромагнитную структуру соединения LuFe_2 , причем на атомах Lu имеется значительный магнитный момент, антипараллельный магнитному моменту атомов Fe.

Список литературы

- [1] H. Yamada, M. Shimizu. *J. Phys. F: Met. Phys.* **16**, 1039 (1986).
- [2] S. Asano, S. Ishida. *J. Magn. Magn. Mater.* **70**, 187 (1987).
- [3] Sh. Ishida, S. Asano. *J. Phys. Soc. Japan* **54**, 4688 (1985).
- [4] M.S.S. Brooks, O. Erikssou, B. Jokansson. *J. Phys.: Condens. Mater.* **1**, 5861 (1989).
- [5] C. Ritter. *J. Phys.: Condens. Mater.* **1**, 2765 (1989).
- [6] P. Warren, J.B. Forsyth, G.Y. McIntyre, N. Bernhoeft. *J. Phys.: Condens. Mater.* **4**, 5795 (1992).
- [7] В.С. Покатилов, В.В. Голикова, Е.Ф. Сидохин. *ЖЭТФ* **95**, 2079 (1989).
- [8] V.S. Pokatilov, V.V. Golikova. *Hyperfine Interact.* **60**, 533 (1990).
- [9] V.S. Pokatilov, V.V. Golikova, A.V. Tchvyatchenko, L.N. Fomitcheva. *Hyperfine Interact.* **60**, 529 (1990).
- [10] T. Dumelow, P.C. Riedi, P. Mohn, K. Schwarz, Y. Yamada. *J. Magn. Magn. Mater.* **54-57**, 1081 (1986).
- [11] D. Givord, A.R. Gregory, Y. Schweizer. *J. Magn. Magn. Mater.* **15-18**, 293 (1980).
- [12] Y. Kasamatsu, J.G.M. Armitage, J.S. Lord, P.C. Riedi, D. Fort. *J. Magn. Magn. Mater.* **140-144**, 819 (1995).
- [13] M.B. Stearns. *Phys. Rev.* **162**, 496 (1967).
- [14] R.H. Dean, R.J. Urwin. *J. Phys. C: Solid Stat. Phys.* **3**, 1747 (1970).
- [15] M.B. Stearns. *Phys. Rev.* **4B**, 4081 (1971).
- [16] D.A. Shirley, S.S. Rosenblum, E. Matthials. *Phys. Rev.* **170**, 363 (1986).
- [17] M.B. Stearns. *Phys. Rev.* **B4**, 4069 (1971).
- [18] J.A. Cambell. *J. Phys. C: Solid State Phys.* **2**, 1338 (1969).
- [19] K.H.J. Bushow, R.P. Van Stapele. *J. Appl. Phys.* **41**, 4066 (1970).