

Магнитоиндуцированный валентный переход в $\text{EuNi}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$ в полях до 500 Т

© В.В. Платонов, О.М. Таценко, В.Д. Селемир, М. Шига*

Всероссийский научно-исследовательский институт экспериментальной физики,
607188 Саров, Нижегородская обл., Россия

* Kyoto University,

Sakyo-ku, Kyoto 606-01, Japan

E-mail: Platonov@ntc.vniief.ru

(Поступила в Редакцию 1 июня 2001 г.)

Измерены критические поля индуцированного магнитным полем валентного перехода в соединении $\text{EuNi}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$ в области промежуточной валентности с $x = 0.5-0.75$. Магнитоиндуцированный валентный переход наблюдался в области низких концентраций вплоть до $x = 0.5$. Показано, что величина критического поля линейно увеличивается с уменьшением концентрации германия.

Работа выполнена при поддержке Министерства по атомной энергии РФ.

1. Некоторые соединения, содержащие ионы Ce, Sm, Eu, Tm и Yb, имеют переменную валентность. Такое поведение обусловлено расположением $4f$ -уровня вблизи уровня Ферми. Среди этих систем значительное изменение валентности под действием внешних воздействий наблюдалось в соединениях $\text{EuNi}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$ [1] и EuPd_2Si_2 [2].

Состояние со смешанной валентностью возникает в растворах EuNi_2Si_2 и EuNi_2Ge_2 . В соединении EuNi_2Si_2 ион Eu^{3+} с конфигурацией $4f^6$ является немагнитным, тогда как в EuNi_2Ge_2 магнитный момент иона Eu^{2+} с конфигурацией $4f^7$ равен $7\mu_B$. В соединениях $\text{EuNi}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$ магнитным полем можно индуцировать валентный переход из состояния преимущественно трехвалентных ионов в состояние преимущественно двухвалентных ионов. Этот переход сопровождается скачком магнитного момента, который наблюдался в [1] в области концентраций $0.75 \leq x \leq 0.82$, близких к магнитному упорядочению. При $x \geq 0.85$ возникает антиферромагнитное упорядочение со стабильным состоянием Eu^{2+} , немагнитная фаза наблюдается при $x \leq 0.70$.

Область малых концентраций в настоящее время не исследована, так как для этого необходимы магнитные поля свыше 100 Т. В данной работе определены критические поля индуцированных валентных переходов в области промежуточной валентности при концентрациях $x = 0.75, 0.70, 0.65, 0.6$ и 0.50 .

2. Измерения магнитной восприимчивости проводились при гелиевой температуре в полях до 600 Т. Образцы предоставлены доктором М. Шига. Они были приготовлены зонной плавкой в аргоне. Однофазность образцов контролировалась по данным рентгеноструктурного анализа и измерению температурной зависимости магнитной восприимчивости. Подробно качество образцов обсуждается в [1]. Во избежание разогрева в импульсном магнитном поле монокристаллы $\text{EuNi}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$ растапливались в фарфоровой ступке до порошка с размером

гранулы менее $100 \mu\text{m}$. В этом случае разогрев в максимуме поля не должен превышать 6 градусов.

Измерение магнитной восприимчивости выполнялось в компенсационном датчике, представляющем пару хорошо скомпенсированных индукционных катушек, включенных навстречу друг другу. Провод ПЭТВ-2 диаметром $71 \mu\text{m}$ укладывался в спиральных канавках двух каркасов из капролона диаметром 2 мм ($N = 9$ витков). Степень компенсации катушек тестировалась в высокочастотном магните. Полные площади катушек NS , где S — площадь одного витка, отличались не более чем на 2%. В одном из каркасов было просверлено отверстие диаметром 1.6 мм для установки исследуемого образца. При помещении образца в одну из катушек сигнал пропорционален производной магнитного момента образца $V(H) \propto dM/dt + KdH/dt$. Коэффициент K зависит от точности компенсации катушек в отсутствие образца и в идеальном случае должен быть равен нулю. В экспериментальной практике этого добиться не удастся, в особенности при работе со сверхсильными магнитными полями, когда скорость изменения магнитного поля достигает $dH/dt \approx 10^6$ Т/с. Однако если фазовый переход происходит в малой области полей и производная dM/dH превышает коэффициент раскомпенсации K , то, измеряя отдельным датчиком dH/dt , можно вычислить зависимость $M(H)$ с достаточно хорошей точностью.

Для создания магнитных полей со значением индукции до 500 Т нами использовался магнитокумулятивный генератор типа МК-1 [3]. Предельные поля, которые можно получать в этом генераторе, достигают 1000 Т. В данной работе такие поля не требовались, основное внимание уделялось гладкости импульса магнитного поля и эффективности использования полезного объема. Поэтому генератор МК-1 был использован в однокаскадном варианте, без промежуточных внутренних каскадов. В одном опыте проводились измерения сразу от 4 до 8 образцов. Начальное магнитное поле ($B \approx 16$ Т) создавалось в

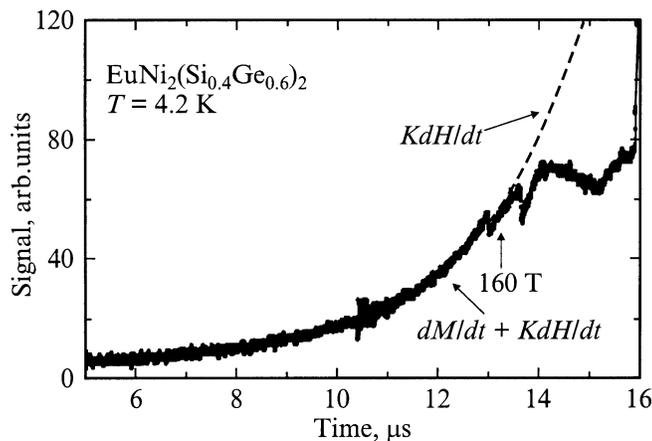


Рис. 1. Зависимость дифференциальной магнитной восприимчивости и производной магнитного поля от времени для образца $\text{EuNi}_2(\text{Si}_{0.4}\text{Ge}_{0.6})_2$.

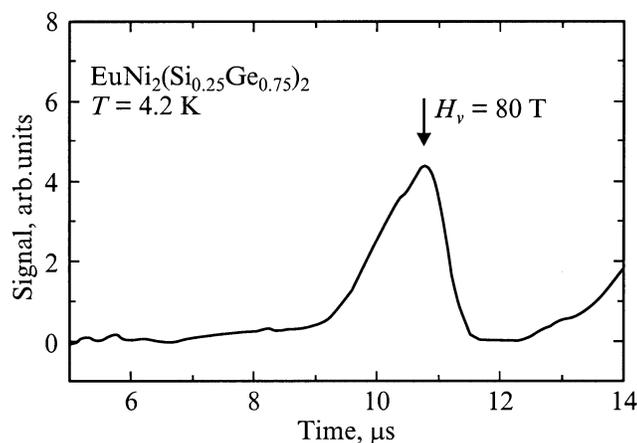


Рис. 2. Зависимость дифференциальной магнитной восприимчивости для образца $\text{EuNi}_2(\text{Si}_{0.25}\text{Ge}_{0.75})_2$.

тонкостенном многослойном многозаходном соленоиде разрядом конденсаторной батареи ($W = 2 \text{ MJ}$). Захваченный проводящим цилиндром магнитный поток сжимался продуктами взрыва до диаметра 20 mm. Время сжатия магнитного поля составляло около $16 \mu\text{s}$. Полезный объем при максимальном значении магнитного поля представлял собой цилиндр с размерами ориентировочно равными: диаметр — 20 mm, длина — 100 mm. Образцы и датчики магнитного поля устанавливались на стеклотекстолитовой пластине и находились непосредственно в гелии проточного криостата. Магнитное поле измерялось набором одновитковых индукционных датчиков диаметрами от 0.6 до 14.0 mm, намотанных проводом ПЭТВ-2. Сигналы регистрировались четырехканальными осциллографами Tektronix 784 и Tektronix 744 с разрешением 2 ns на точку.

3. На рис. 1 показаны типичные осциллограммы сигналов с индукционного датчика магнитного поля и датчика дифференциальной магнитной восприимчивости dM/dt .

При концентрации Ge $x = 0.6$ были зарегистрированы два резких пика, хотя обычно наблюдается один широкий, как например видно из рис. 2, для образца с концентрацией $x = 0.75$. Форма кривой аномалии магнитной восприимчивости указывает на то, что данный переход является переходом 1-го рода. С уменьшением концентрации Ge величина скачка уменьшается.

Образец с содержанием Ge $x = 0.75$ был контрольным, так как на нем были проведены аналогичные измерения в соленоиде с длинным импульсом магнитного поля [1]. Полученные значения величины критического поля $H_v = 80 \text{ T}$ и ширины индуцированного валентного перехода хорошо совпадают с данными работы [1]. На рис. 3 совместно с предыдущими результатами приведены критические поля валентного перехода для $\text{EuNi}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$, полученные в диапазоне концентраций от 0.82 до 0.5. Величина критического поля $H_v(x)$ линейно увеличивается с уменьшением концентрации Ge.

4. Магнитные свойства соединения $\text{EuNi}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$ зависят от степени заселенности двух- и трехвалентных состояний иона Eu. Схема энергетических уровней для Eu показана на рис. 4. В нулевом магнитном

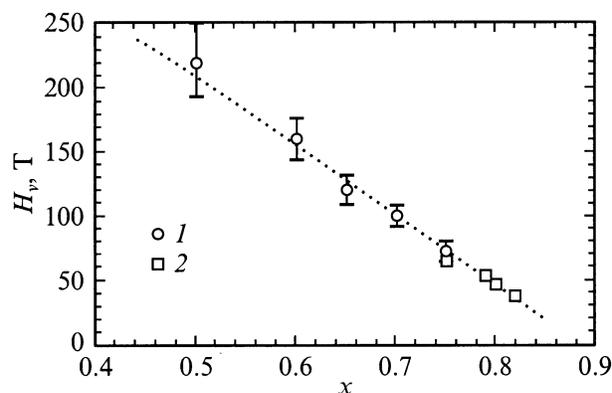


Рис. 3. Зависимость критического поля магнитоиндуцированного валентного перехода в соединении $\text{EuNi}_2(\text{Si}_x\text{Ge}_{1-x})_2$ от концентрации Ge. $T = 4.2 \text{ K}$. 1 — наши данные, 2 — данные [1].

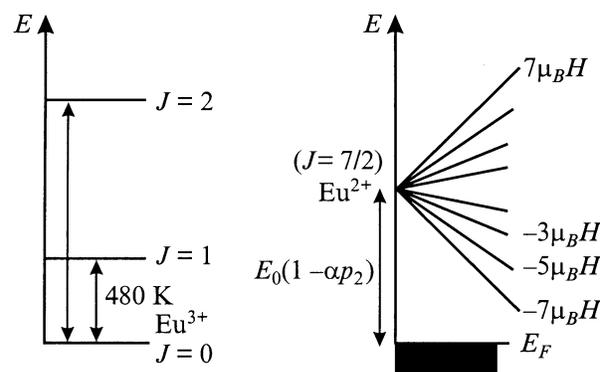


Рис. 4. Схема энергетических уровней в соединении $\text{EuNi}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$ в магнитном поле.

поле при низкой температуре электроны находятся в зоне проводимости, которая по энергии совпадает с немагнитным состоянием $J = 0$ иона Eu^{3+} . Величина энергии между основным и возбужденным состояниями как для иона Eu^{3+} , так и для Eu^{2+} достаточно велика. Используя статистику Больцмана, можно вычислить вероятность заполнения уровня $J = 7/2$ в диапазоне измеряемых температур, при которых наблюдается метамагнитный переход. Она не превышает 10^{-4} . Поэтому для объяснения спонтанной заселенности магнитных состояний в работе [4] была предложена interconfigurational fluctuation (ICF) модель. В ней вводится эффективная температура и зависимость расщепления уровня $J = 7/2$ от степени заселенности p_2 -состояния двухвалентного иона Eu , $E_{\text{ex}} = E_0(1 - \alpha p_2)$, где α и E_0 — параметры. В магнитном поле вероятность заселенности уровня $7/2$, обусловленная зеемановским расщеплением, определяется как

$$p_2 = p_3 \frac{\sum_{j_z=-7/2}^{7/2} \exp[-E_0(1 - \alpha p_2) + g_2 \mu_B J_z H] / kT^*}{1 + \sum_{j_z=-1}^1 \exp[-480k + g_3 \mu_B J_z H] / kT^* + \sum_{j_z=-2}^2 \exp[-1330k + g_3 \mu_B J_z H] / kT^*},$$

где p_3 — вероятность заполнения состояния иона Eu^{3+} , g_2 и g_3 — фактор Ланде соответственно для Eu^{2+} и Eu^{3+} . Выбирая параметры α и E_0 , можно получить скачок магнитной восприимчивости, ширина которого уменьшается с уменьшением температуры и ростом магнитного поля. Данная формула достаточно хорошо описывает экспериментальные результаты со следующими значениями параметров: $\alpha = 1.05$, $E_0 = 700-2000$ К и $T_f = 500$ К. Величина E_0 зависит от концентрации германия.

Таким образом, результаты измерения магнитной восприимчивости в соединениях $\text{EuNi}_2(\text{Si}_x\text{Ge}_{1-x})_2$ в сверхсильных магнитных полях подтвердили существование магнитоиндуцированных валентных переходов в области низких концентраций вплоть до $x = 0.5$. Во всем диапазоне концентраций зависимость критического поля H_v линейно увеличивается с уменьшением x . Кривые магнитных переходов удовлетворительно описываются в рамках ICF-модели.

Список литературы

- [1] H. Wada, A. Nakamura, A. Mitsuda, M. Shida, T. Tanaka, H. Mitamura, T. Goto. *J. Phys: Condens. Matter* **9**, 7913 (1997).
- [2] E.V. Sampathkumaran, L.C. Gupta, R. Vjiayaraghavan, K.V. Gopalakrishnan, R.G. Pillay, H.G. Devare. *J. Phys. C: Solid State Phys.* **14**, L237 (1981).
- [3] А.И. Павловский, Р.З. Людаев. В сб.: Вопросы современной экспериментальной науки и техники / Под ред. А.П. Александрова. Наука, Л. (1984). С. 206.
- [4] A. Mitsuda, H. Wada, M. Shiga, H.A. Katori, T. Goto. *Phys. Rev.* **B55**, 12474 (1997).