

МАГНИТНЫЕ ФАЗОВЫЕ ПЕРЕХОДЫ И ФАЗОВЫЕ ДИАГРАММЫ DyMn_2Ge_2

Го Гуанхуа^{a}, М. В. Еремин^b, А. Кирсте^{c**}, Н. П. Колмакова^{b***},
А. С. Лагутин^d, Р. З. Левитин^{a****}, М. фон Ортенберг^{c**}, А. А. Сидоренко^b*

^a *Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова
119899, Москва, Россия*

^b *Брянский государственный технический университет
241035, Брянск, Россия*

^c *Humboldt Universität
D-10115, Berlin, Germany*

^d *Институт молекулярной физики Российского научного центра «Курчатовский институт»
123182, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 24 апреля 2001 г.

Продолжено экспериментальное исследование магнитных фазовых переходов в слоистом тетрагональном интерметаллическом соединении DyMn_2Ge_2 . Наличие спонтанных фазовых переходов подтверждено измерениями температурных зависимостей параметров решетки и начальной магнитной восприимчивости. При измерениях в сильных (до 50 Тл) и сверхсильных (до 150 Тл) полях обнаружены два новых индуцированных полем магнитных перехода. Учет наряду с антиферромагнитным обменным взаимодействием соседних слоев марганца обменного взаимодействия между слоями марганца, следующими за ближайшими, и эффектов кристаллического поля для редкоземельной подсистемы позволил описать магнитные свойства DyMn_2Ge_2 в широком интервале магнитных полей. Из сравнения экспериментальных и рассчитанных кривых намагничивания и фазовых H - T -диаграмм определены параметры взаимодействий.

PACS: 75.30.-m, 75.30.Kz, 75.50.Gg

1. ВВЕДЕНИЕ

Магнитные и другие физические свойства тройных интерметаллических соединений RMn_2Ge_2 (R — редкая земля) представляют большой интерес из-за эффектов, связанных с сосуществованием двух магнитных подсистем: зонной $3d$ (марганцевой) и локализованной $4f$ (редкоземельной). Кроме того, эти соединения являются идеальными естественными сверхрешетками, и в них может проявляться эффект гигантского магнитосопротивления, например, при метамагнитных переходах, индуцированных магнитным полем. Слоистая структура, силь-

ная чувствительность обменных параметров к межатомным расстояниям, антиферромагнитное обменное взаимодействие в марганцевой подсистеме в интерметаллидах с тяжелыми редкими землями и заметные эффекты кристаллического поля в редкоземельной подсистеме обуславливают сложные и очень интересные магнитные фазовые диаграммы этих соединений.

Соединения RMn_2Ge_2 кристаллизуются в тетрагональную структуру типа ThCr_2Si_2 (пространственная группа $I4/mmm$), которая представляет собой набор слоев — R-Ge-Mn-Ge-R , — перпендикулярных оси c . Магнитные свойства этих соединений интенсивно изучались в последние два десятилетия [1–4], и было обнаружено, что в них существуют многочисленные магнитные фазовые переходы. В этих интерметаллидах и редкая земля,

*Guo Guanghua

**A. Kirste, M. von Ortenberg

***E-mail: npk@bit.mcnit.bryansk.su

****E-mail: levitin@plms.phys.msu.su

и марганец обладают магнитными моментами. Обменное Mn–Mn-взаимодействие внутри слоя является самым сильным из взаимодействий, оно определяет ферромагнитное упорядочение марганцевых моментов в слое. В случае тяжелых редких земель обменные взаимодействия между слоями Mn–Mn и R–Mn антиферромагнитны. При комнатной температуре Mn-подсистема упорядочена антиферромагнитно, а редкоземельная подсистема разупорядочена, поскольку эффективные поля, действующие на эту подсистему со стороны двух соседних слоев марганца, компенсируют друг друга, а собственный обмен внутри редкоземельной подсистемы мал. Магнитные моменты редкой земли упорядочиваются только при достаточно низких температурах. Соединения $GdMn_2Ge_2$ и $TbMn_2Ge_2$, например, испытывают переход первого рода в состояние с упорядоченной редкой землей соответственно при $T = 96$ и 95 К [2]. Ниже этой температуры под действием обменного взаимодействия R–Mn реализуется коллинеарная ферромагнитная структура: магнитные моменты редкой земли ориентированы вдоль тетрагональной оси, а магнитные моменты всех атомов марганца антипараллельны им.

Более сложным является магнитное поведение $DyMn_2Ge_2$. Как показали магнитные и нейтронографические исследования на монокристалле [5], в $DyMn_2Ge_2$ магнитные моменты Mn упорядочиваются антиферромагнитно при $T_N = 431$ К. По данным работы [5], а также работ [6, 7], в которых исследования с помощью дифракции нейтронов проводились на порошках, $DyMn_2Ge_2$ в низкотемпературной области имеет два магнитных фазовых перехода первого рода: при температурах T_1 , которая лежит в интервале от 33 до 35 К, и T_2 , которая составляет от 37.5 до 40 К. При $T < T_1$ соединение $DyMn_2Ge_2$ характеризуется коллинеарной ферромагнитной (Fi) структурой, аналогичной описанной выше для $GdMn_2Ge_2$ и $TbMn_2Ge_2$. При $T > T_2$ соединение имеет антиферромагнитную (AF) структуру с разупорядоченными моментами диспрозия. Для температурного интервала между T_1 и T_2 данные работ [5–7] разноречивы. В соответствии с [6] в этом температурном интервале сосуществуют три фазы: Fi, AF и промежуточная, в которой все магнитные моменты также направлены вдоль оси c , направления магнитных моментов марганца в слоях чередуются в последовательности $\downarrow\uparrow\downarrow\uparrow\downarrow\dots$ и магнитная элементарная ячейка характеризуется утроением вдоль тетрагональной оси, т. е. $a' = a$ и $c' = 3c$. Согласно [7], ниже T_2 фаза AF не существует, о чем свидетельствует температурная зависимость ин-

тегрированной интенсивности соответствующей линии. Авторы работы [7] считают, что между T_1 и T_2 существует единая несоразмерная фаза, волновой вектор которой был предварительно определен как равный $\mathbf{k} \approx (0, 0, 0.65)$. Измерения кривых намагничивания на монокристаллах $DyMn_2Ge_2$ в полях до 15 Тл [6] и 5 Тл [8] показали наличие переходов первого рода во всех исследованных температурных интервалах до 70 К. Попыток теоретического описания магнитных фазовых диаграмм $DyMn_2Ge_2$ не предпринималось, за исключением попытки определения обменных параметров из условия существования спонтанного перехода первого рода из ферромагнитной в антиферромагнитную фазу вблизи 40 К в работе [6], которая была выполнена недостаточно корректно.

Данная работа посвящена дальнейшему экспериментальному исследованию магнитных свойств соединения $DyMn_2Ge_2$ и теоретическому описанию магнитных фазовых переходов при различных температурах и направлениях магнитного поля, построению фазовых H – T -диаграмм и определению параметров взаимодействий этого соединения на основе предложенной в работе модели.

2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

Поликристаллические образцы интерметаллида $DyMn_2Ge_2$ были выплавлены в индукционной печи в атмосфере аргона в условиях квазилевитации из исходных элементов с чистотой 99.9. Для лучшей гомогенизации образцы переплавлялись три раза и отжигались в течение 170 ч в динамическом вакууме при температуре 750°C . Однофазность образцов контролировалась рентгенографически.

Начальная магнитная восприимчивость измерялась как в переменном поле (интервал температур от 4.2 до 270 К), так и в постоянном поле (от 300 до 500 К). Такие измерения, как известно, позволяют надежно выявлять особенности на температурной зависимости магнитной восприимчивости, возникающие при магнитных фазовых переходах. На зависимости восприимчивости от температуры, $\chi(T)$ (рис. 1), хорошо заметны аномалии, обусловленные низкотемпературными фазовыми переходами, а также аномалия при переходе из парамагнитного в антиферромагнитное состояние в марганцевой подсистеме при $T_N \approx 440$ К.

Измерение температурной зависимости параметра решетки рентгеновским методом проводилось на дифрактометре «Гейгерфлекс» (Япония) в темпе-

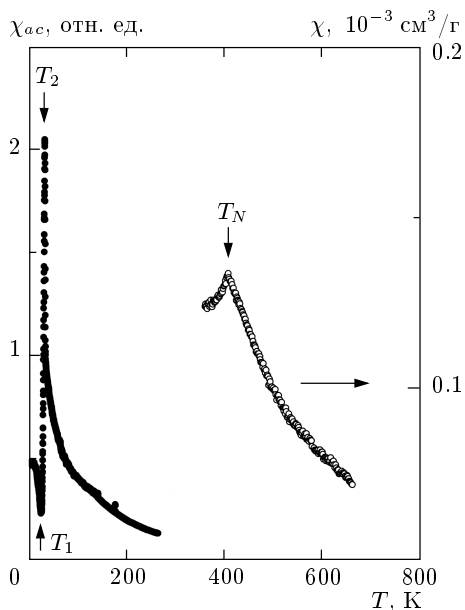


Рис. 1. Температурная зависимость начальной магнитной восприимчивости соединения DyMn_2Ge_2 , измеренная в переменном поле (темные кружки) и статическом поле (светлые кружки). T_1 и T_2 — температуры спонтанных магнитных фазовых переходов (см. текст), T_N — температура магнитного упорядочения

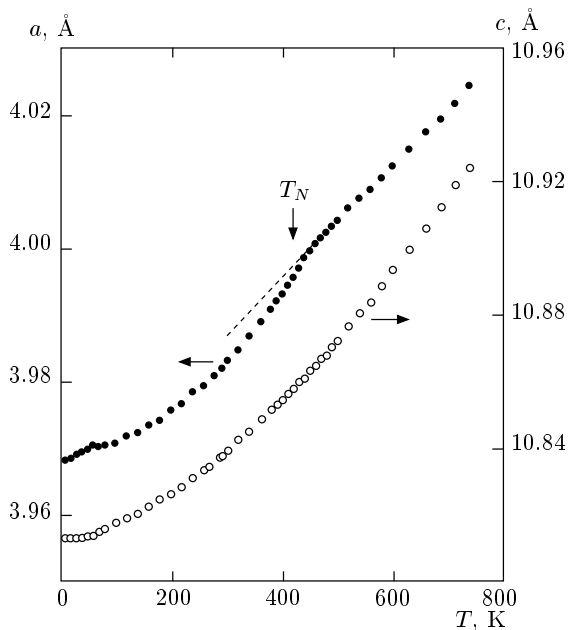


Рис. 2. Температурные зависимости параметров кристаллической решетки DyMn_2Ge_2

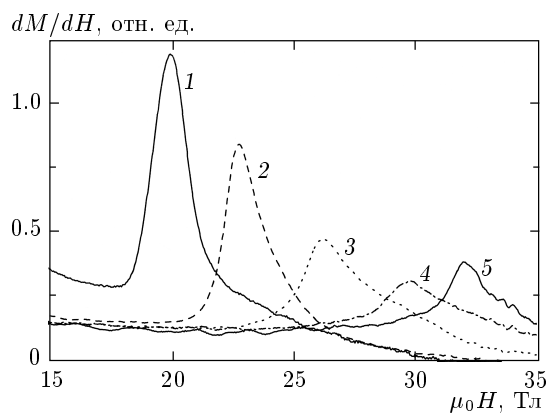


Рис. 3. Дифференциальная магнитная восприимчивость DyMn_2Ge_2 , измеренная на свободных порошках в полях до 50 Тл при следующих температурах: 58 К (1); 48 К (2); 32 К (3); 18 К (4) и 7 К (5). Приведены кривые, снятые при возрастании поля. Кривые при уменьшении поля смещены в сторону более низких полей примерно на 1 Тл

ратурном диапазоне 10–800 К. На представленных на рис. 2 температурных зависимостях параметров решетки DyMn_2Ge_2 хорошо видно, что переход из парамагнитного в антиферромагнитное состояние в марганцевой подсистеме ($T_N \approx 440$ К) сопровождается заметной аномалией на зависимости $a(T)$, т. е. при этом переходе меняется температурная зависимость межатомного расстояния Mn–Mn в слое. Низкотемпературные переходы на температурных зависимостях параметров решетки проявляются не так сильно. Причина этого в настоящее время остается неясной. Возможно, это связано с тем, что в DyMn_2Ge_2 , как утверждается в [6], при низких температурах различные магнитные структуры сосуществуют и поэтому не удается разделить рентгеновские рефлексы, относящиеся к разным магнитным фазам с различными параметрами решетки. В пользу этого говорит тот факт, что ниже T_2 , как показали наши измерения, рентгеновский рефлекс (220) сильно уширяется.

Намагниченность и полевая зависимость dM/dt в сильных импульсных магнитных полях до 50 Тл с длительностью импульса 26 мс измерялись с помощью импульсного индукционного магнитометра [9] в температурном интервале от 7 до 70 К на свободных порошках, частицы которых могут поворачиваться в поле. На рис. 3 приведены полевые зависимости дифференциальной магнитной восприимчивости dM/dH для различных температур, полученные при возрастании поля. Хорошо виден фазовый

переход первого рода, соответствующий максимуму на кривой. Зависимости восприимчивости от поля, снятые при уменьшении поля, аналогичны приведенным на рис. 3 для возрастания поля, однако максимумы смещены в сторону низких полей примерно на 1 Тл, что указывает на существование гистерезиса при фазовом переходе.

В импульсных магнитных полях до 150 Тл, генерируемых при разряде батареи конденсаторов на одновитковый соленоид (длительность первого полупериода импульса 6 мкс), измерения проводились индукционным методом на фиксированных порошках с размерами частиц около 10 мкм при температурах 5–7 К. В данной методике не удается до конца скомпенсировать измерительные катушки и сигнал описывается формулой

$$V = (a + b\chi) \frac{dH}{dt}.$$

Первый член в скобках — сигнал, обусловленный раскомпенсированностью измерительных катушек, второй — сигнал от образца, χ — дифференциальная магнитная восприимчивость образца, a и b — константы, связанные с параметрами соответственно катушек и образца (подробнее см. [10]). В критическом поле фазового перехода первого рода восприимчивость χ проходит через максимум, что приводит к тому, что в этой области полей должен наблюдаться максимум индуцированного в измерительных катушках напряжения V . Отметим, что поля H_{max} , при которых наблюдаются максимумы на зависимостях $V(H)$ и $\chi(H)$, будут точно совпадать только в случае $dH/dt = \text{const}$, что выполнялось при измерениях в полях до 50 Тл. Если переход происходит при $H > 0.5H_{max}$, необходимо определять значения критического поля из зависимости от поля величины $V/(dH/dt)$, что мы и делали в данном случае.

Полученная зависимость дифференциальной магнитной восприимчивости DyMn_2Ge_2 приведена на рис. 4. Отчетливые максимумы dM/dH соответствуют фазовому переходу. Значения критических полей при возрастании (112 Тл) и уменьшении (108 Тл) поля различаются, что характерно для фазовых переходов первого рода. На ширину петли гистерезиса, кроме того, по-видимому, влияют релаксационные эффекты, обусловленные импульсным характером намагничивания в сильных полях.

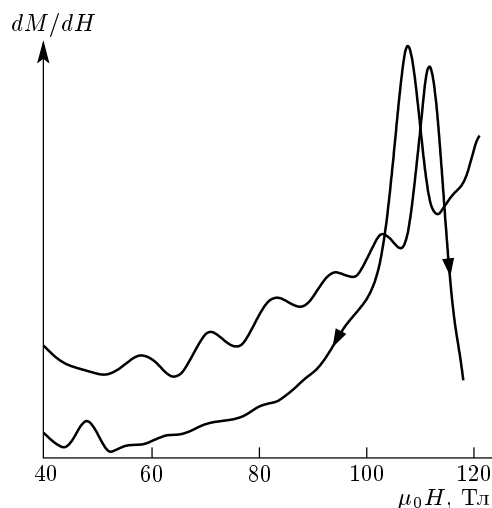


Рис. 4. Дифференциальная магнитная восприимчивость при $T = 5$ К, измеренная в импульсных полях до 150 Тл. Стрелки различают кривые, полученные при включении и выключении поля

3. ТЕОРЕТИЧЕСКИЙ ПОДХОД

В наших предыдущих работах для описания экспериментальных данных для интерметаллидов $\text{Gd}_{1-x}\text{Y}_x\text{Mn}_2\text{Ge}_2$ и $\text{Gd}_{1-x}\text{La}_x\text{Mn}_2\text{Ge}_2$ [11–13] использовалась модель, в которой в приближении молекулярного поля наряду с обменными взаимодействиями в редкоземельных и марганцевых слоях учитывались взаимодействия между соответствующими ближайшими слоями магнитных атомов. Эта модель позволила достаточно хорошо описать наблюдаемые в этих интерметаллидах фазовые переходы, однако в некоторых случаях количественного согласия экспериментальных и теоретических данных добиться не удалось. Анализ экспериментальных данных для DyMn_2Ge_2 показывает, что такая простая модель не позволяет даже качественно описать магнитные свойства этого интерметаллида. В частности, не удается объяснить возможность существования магнитной структуры, наблюдаемой в интервале температур между T_1 и T_2 , величину скачка намагниченности при фазовом переходе первого рода при низких температурах в поле, ориентированном вдоль тетрагональной оси кристалла (см. [5]) и т. д. Поэтому мы усложнили модель и учли обменные взаимодействия между магнитными слоями, следующими за ближайшими. Такое предположение является естественным, так как обменное взаимодействие в рассматриваемых интерметаллидах наряду с косвенным обменом через германий осуществляется

через электроны проводимости и является дальнедействующим. Кроме того, в отличие от иона Gd^{3+} ион Dy^{3+} не является S -ионом, следовательно в этом случае существенными являются эффекты, обусловленные кристаллическим полем. При учете указанных факторов в кристалле могут возникать неэквивалентные позиции магнитных моментов как в диспрозиевой, так и в марганцевой магнитных подсистемах. Наличие таких неэквивалентных позиций и обменные взаимодействия между различными слоями магнитных атомов и были учтены при записи эффективных гамильтонианов.

Эффективный гамильтониан для иона Dy^{3+} , находящегося в i -й позиции, в приближении молекулярного поля может быть записан в виде

$$\mathcal{H}_{Dy}^{(i)} = B_2^0 O_2^0 + B_4^0 O_4^0 + B_4^4 O_4^4 + B_6^0 O_6^0 + B_6^4 O_6^4 - gJ\mu_B \mathbf{J}^{(i)} \cdot (\mathbf{H} + \mathbf{H}_m^{(i)}), \quad (1)$$

где B_n^m — параметры кристаллического поля тетрагональной симметрии, O_n^m — эквивалентные операторы, gJ — фактор Ланде, $\mathbf{J}^{(i)}$ — оператор углового момента иона Dy^{3+} . Молекулярное поле $\mathbf{H}_m^{(i)}$ определяется выражением

$$\mathbf{H}_{mj}^{(i)} = \sum_l \lambda_{11}^{(l)} M_j^{(l)} + \sum_k \lambda_{12}^{(k)} m_j^{(k)}, \quad j = x, y, z. \quad (2)$$

Компоненты i -го диспрозиевого $\mathbf{M}^{(i)}$ и k -го марганцевого $\mathbf{m}^{(k)}$ магнитных моментов равны соответственно

$$M_j^{(i)} = \mu_B g J \langle J_j^{(i)} \rangle, \quad m_j^{(k)} = \mu_B g \langle S_j^{(k)} \rangle,$$

где g — g -фактор Мп, $\mathbf{S}^{(k)}$ — оператор спинового момента Мп; $\lambda_{11}^{(l)}$, $\lambda_{12}^{(k)}$ — параметры обменных взаимодействий соответственно Ду–Ду и Ду–Мп. Сразу отметим, что наши расчеты показали, что параметры обмена между атомами Ду–Ду и Ду–Мп, относящимися к разным слоям, входят во все выражения аддитивно, поэтому будем в дальнейшем использовать суммарные параметры λ_{11} и λ_{12} .

Для зонных электронов марганцевой d -подсистемы в эффективном гамильтониане $H_{Mn}^{(k)}$ для k -го атома марганца учтем только обменные взаимодействия:

$$\mathcal{H}_{Mn}^{(k)} = -g\mu_B \mathbf{S}^{(k)} \cdot \mathbf{H}_{Mn}^k. \quad (3)$$

Эффективное поле, действующее на k -ый атом Мп

во внешнем магнитном поле \mathbf{H} , ориентированном под углом φ к оси c кристалла, равно

$$\begin{aligned} H_{Mn}^{(k)} &= H \cos(\varphi - \eta_k) + H_m^{(k)}, \\ H_m^{(k)} &= \sum_{n=k, k\pm 1, \dots} \lambda_{22}^{(n)} m^{(n)} \cos(\eta_n - \eta_k) + \\ &+ \lambda_{12} \sum_i \left(M_z^{(i)} \cos \eta_k + M_x^{(i)} \sin \eta_k \right), \end{aligned} \quad (4)$$

где η_k — полярный угол k -го марганцевого магнитного момента, $\lambda_{22}^{(n)}$ — параметры обменного взаимодействия между атомами марганца, относящимися к k -му и n -му слоям. Анизотропия марганцевой подсистемы вследствие ее малости по сравнению с обменом будет включена в термодинамический потенциал как аддитивное слагаемое. Отметим, что для удобства обозначений во введенные нами обменные параметры λ наряду с обменными константами I включены также и множители, необходимые для записи эффективных гамильтонианов и молекулярных полей в виде (1)–(4), а именно:

$$\lambda_{11} = \frac{(gJ - 1)^2}{gJ\mu_B} I_{11}, \quad \lambda_{12} = \frac{gJ - 1}{gJ\mu_B} I_{12},$$

$$\lambda_{22}^{(n)} = \frac{1}{g\mu_B} I_{22}^{(n)}.$$

Термодинамический потенциал в приближении молекулярного поля в расчете на одну формульную единицу определяется следующим выражением (N — число неэквивалентных формульных единиц):

$$\begin{aligned} \Phi &= \frac{1}{N} \left\{ -k_B T \sum_{i=1}^N \ln Z_i + \frac{1}{2} \sum_{i=1}^N \mathbf{M}^{(i)} \cdot \mathbf{H}_m^{(i)} - \right. \\ &- k_B T \sum_{i=1}^{2N} \ln \frac{\text{sh}[(2S + 1)x_k/2]}{\text{sh}(x_k/2)} + \\ &\left. + \frac{1}{2} \sum_{k=1}^{2N} \mathbf{m}^{(k)} \cdot \mathbf{H}_m^{(k)} + \sum_{k=1}^{2N} K \sin^2 \theta_k \right\}. \quad (5) \end{aligned}$$

Статистическая сумма Z_i для i -го диспрозиевого момента вычислялась численной диагонализацией гамильтониана $\mathcal{H}_{Dy}^{(i)}$ (1) с решением соответствующих самосогласованных задач, $x_k = \mu_B g H_{Mn}^{(k)} / k_B T$, K — константа анизотропии для марганцевой подсистемы. Второй и четвертый члены в выражении (5) являются обычными в теории молекулярного поля корректирующими членами.

При известных значениях параметров системы, входящих в термодинамический потенциал, можно

находить области существования различных магнитных структур из условия минимальности их термодинамического потенциала и рассчитывать поля фазовых переходов; в случае фазовых переходов первого рода — из равенства термодинамических потенциалов соответствующих фаз. Мы в данной работе будем решать обратную задачу определения полного набора параметров соединения DyMn_2Ge_2 при интерпретации экспериментальных данных для магнитных свойств этого соединения на основе термодинамического потенциала (5).

4. ФАЗОВЫЕ ПЕРЕХОДЫ В ПОЛЕ, ПАРАЛЛЕЛЬНОМ ТЕТРАГОНАЛЬНОЙ ОСИ

Низкотемпературные переходы. Начнем рассмотрение с индуцированных магнитным полем, параллельным тетрагональной оси, фазовых переходов при гелиевых температурах. Известно [5], что при этой температуре исходной является ферромагнитная фаза (Fi) с магнитными моментами марганца во всех слоях, ориентированными антипараллельно моментам M_{Dy} , и что вблизи 7 Тл происходит фазовый переход первого рода. В более сильных полях по нашим экспериментальным данным имеют место еще два фазовых перехода первого рода: вблизи 30 Тл (см. рис. 3) и около 110 Тл (см. рис. 4). Фазовый переход первого рода вблизи 110 Тл был обнаружен при измерениях на порошковых образцах. Мы приписываем его кристаллитам, для которых поле ориентировано вдоль тетрагональной оси, поскольку наши расчеты показали, что в этой области полей для других взаимных ориентаций поля и тетрагональной оси фазовые переходы первого рода уже невозможны. Исходя из величины намагниченности после скачка при $H \approx 7$ Тл [5], можно предположить, что переход осуществляется в фазу (назовем ее промежуточной, I), в которой каждый третий слой марганцевой подсистемы имеет магнитный момент переориентировавшийся вдоль направления поля¹⁾. Спонтанное

¹⁾ Отметим, что по величине намагниченности после фазового перехода можно было предположить, что при фазовом переходе происходит переориентация магнитного момента каждого четвертого слоя марганца. Однако наши расчеты показали, что энергия такого состояния выше, при этом поля фазовых переходов в приближении, когда учитываются обменные взаимодействия Mn-слоев не далее, чем через один слой, совпадают. Учет антиферромагнитного обменного Mn-Mn-взаимодействия через два слоя приводит к снятию вырождения для критических полей, причем критическое поле $H_{\text{Fi} \rightarrow \text{I}}$ характеризуется меньшей величиной.

появление именно такой фазы предполагалось при нейтронографических и мессбауэровских исследованиях в области температур между T_1 и T_2 [6]. Эта структура содержит антиферромагнитные и ферромагнитные Mn-блоки (см. [6], Fig. 5), так что вся фаза I представляет собой фактически упорядоченное наложение фаз Fi и антиферромагнитной (AF), при котором после двух блоков фазы AF следует блок фазы Fi. Понятно, что при этом имеются два типа атомов диспрозия. В нулевом поле в блоках Fi диспрозий намагничены за счет обмена Dy-Mn, а в блоках AF он разупорядочен. В работе [5] было сделано предположение, что переход вблизи 7 Тл происходит в треугольную фазу, в которой магнитный момент диспрозия по-прежнему ориентирован вдоль тетрагональной оси (и вдоль направления поля), а моменты марганца образуют с M_{Dy} тупые углы. Это предположение противоречит экспериментальным данным той же работы [5], в соответствии с которыми восприимчивость системы выше поля перехода практически отсутствует, в то время как в треугольной фазе она должна быть существенна.

Если вблизи 7 Тл имеет место переход $\text{Fi} \rightarrow \text{I}$, то в качестве более высокополевых фаз можно предполагать антиферромагнитную фазу AF с антиферромагнитным упорядочением в марганцевой подсистеме и ферромагнитную (F), в которой магнитные моменты обеих подсистем ориентированы по полю. Величины трех критических полей фазовых переходов первого рода при гелиевых температурах,

$$H_{\text{Fi} \rightarrow \text{I}} = 7 \text{ Тл}, \quad H_{\text{I} \rightarrow \text{AF}} = 32 \text{ Тл}, \quad H_{\text{AF} \rightarrow \text{I}} = 110 \text{ Тл},$$

позволяют определить три обменных параметра соединения: λ_{12} (Dy-Mn), $\lambda_{22}^{(2)}$ (Mn-Mn в соседних слоях) и $\lambda_{22}^{(3)}$ (Mn-Mn через слой). Поскольку рассматривается ситуация, когда температуры низкие, внешнее поле направлено параллельно тетрагональной оси и заведомо велико для того, чтобы все магнитные моменты были в состоянии насыщения ($M_{\text{Dy}} = M$, $m_1 = m_2 = \dots = m$), можно использовать выражения для критических полей, полученные из низкотемпературного разложения термодинамического потенциала (5):

$$\begin{aligned} H_{\text{Fi} \rightarrow \text{I}} &= -\lambda_{12}M + \left(\lambda_{22}^{(2)} + \lambda_{22}^{(3)} \right) m, \\ H_{\text{I} \rightarrow \text{AF}} &= -\lambda_{12}M + \left(\lambda_{22}^{(2)} - 2\lambda_{22}^{(3)} \right) m, \\ H_{\text{AF} \rightarrow \text{F}} &= -\lambda_{12}M - \left(\lambda_{22}^{(2)} + \lambda_{22}^{(3)} \right) m. \end{aligned} \quad (6)$$

При гелиевых температурах магнитный момент диспрозия формируется с большой степенью точности

нижним уровнем основного кramerсовского дублета, расщепленного обменным и внешним магнитными полями. По данным работы [6] этот уровень является почти чистым состоянием $|15/2\rangle$, поэтому мы полагаем $M = 10\mu_B$. Принимая $m = 2.2\mu_B$ в соответствии с работой [5], находим

$$\lambda_{12} = -5.85 \frac{\text{Тл}}{\mu_B}, \quad \lambda_{22}^{(2)} = -20 \frac{\text{Тл}}{\mu_B}, \quad (7)$$

$$\lambda_{22}^{(3)} = -3.5 \frac{\text{Тл}}{\mu_B}.$$

Вычисленная с этими параметрами полная низкотемпературная кривая намагничивания соединения DyMn_2Ge_2 для поля вдоль тетрагональной оси приведена на рис. 5. Там же представлены экспериментальная кривая, измеренная в поле до 15 Тл в работе [5], и высокополевые пики дифференциальной магнитной восприимчивости, полученные в нашей работе. Отметим, что при значениях обменных параметров (7) треугольная фаза в поле вдоль тетрагональной оси возникнуть не может.

Из значения $T_N = 440 \text{ К}$ с известными $\lambda_{22}^{(2)}$ и $\lambda_{22}^{(3)}$ можно найти параметр обменного взаимодействия Mn-Mn в слое:

$$\lambda_{22}^{(1)} = 2 \cdot 10^3 \frac{\text{Тл}}{\mu_B}.$$

Как известно, обменное Mn-Mn -взаимодействие между слоями в слоистых соединениях RMn_2Ge_2 весьма чувствительно к межатомному расстоянию в слое, т.е. к параметру решетки a . Это приводит к зависимости $\lambda_{22}^{(2)}$ от температуры из-за теплового расширения в виде [14]

$$\lambda_{22}^{(2)}(T) = \rho [a(T) - a_c], \quad (8)$$

где $a_c = 4.045 \text{ \AA}$ для интерметаллических соединений RMn_2Ge_2 . Однако наши расчеты показали, что для рассматриваемого нами температурного интервала ниже 70 К в DyMn_2Ge_2 учет температурной зависимости $\lambda_{22}^{(2)}$ не существует.

Н-Т-диаграмма. Температурные зависимости критических полей следует рассчитывать на основе общего выражения для термодинамического потенциала (5). Параметры кристаллического поля для иона Dy^{3+} в DyMn_2Ge_2 были определены в работе [6] из температурных зависимостей сверхтонкого поля и квадрупольного взаимодействия, полученных при анализе мессбауэровских спектров. При этом параметры шестого порядка, B_6^0 и B_6^4 , были положены равными нулю, а остальные найдены с

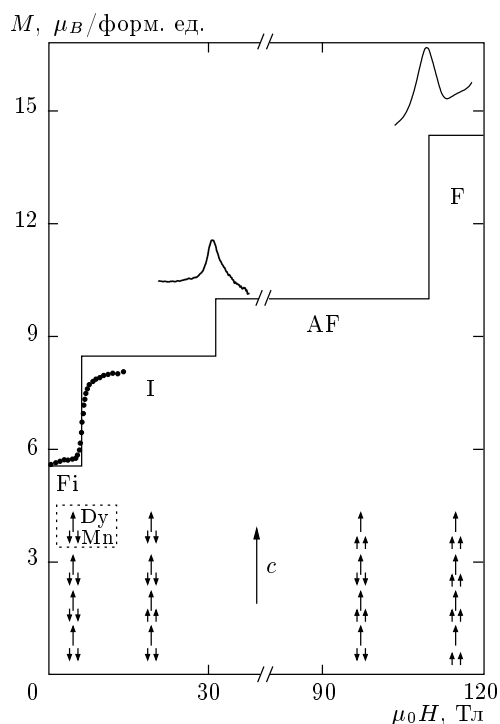


Рис. 5. Низкотемпературная намагниченность соединения DyMn_2Ge_2 в расчете на формульную единицу как функция поля, приложенного вдоль тетрагональной оси. Линия — расчет, темные кружки — экспериментальные данные для монокристалла при 4.2 К [5]. Для фазовых переходов $\text{I} \rightarrow \text{AF}$ и $\text{AF} \rightarrow \text{F}$ над кривой намагничивания показаны пики dM/dH , полученные в данной работе при $T = 7 \text{ К}$ и 5 К , соответственно. Стрелками показаны магнитные моменты диспрозия и марганца в слоях. Штрихами выделена формульная единица

точностью до 30%. Как будет показано в дальнейшем, для описания процессов намагничивания в поле, перпендикулярном тетрагональной оси, придется изменять значения некоторых параметров из приведенных в [6] в пределах указанной точности. Для $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$ эффекты кристаллического поля, а следовательно, и вариации параметров не столь существенны. Однозначно определить параметр λ_{11} обмена Dy-Dy из имеющихся экспериментальных данных не представляется возможным, однако отсутствие фазы Fi выше T_2 накладывает на его значение верхнюю границу. Мы принимаем его равным $0.49 \text{ Тл}/\mu_B$, соответствующая этому значению λ_{11} температура Кюри диспрозиевой подсистемы составляет 25 К.

Рассчитанная фазовая $H-T$ -диаграмма приведена на рис. 6 вместе с экспериментальными данными,

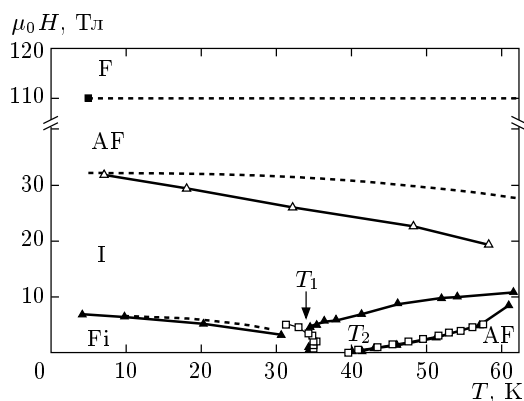


Рис. 6. Магнитная фазовая H - T -диаграмма DyMn_2Ge_2 . Обозначения фаз расшифрованы в тексте. Штриховые линии — расчет. Остальное — экспериментальные данные: темный квадратик и светлые треугольники — данная работа, темные треугольники — данные из работы [5], светлые квадратики — данные из работы [8]

полученными в работах [5] и [8], а также в нашей работе. Обратим особое внимание на то, что все фазовые переходы являются фазовыми переходами первого рода, все соответствующие кривые намагничивания при измерениях показали наличие гистерезиса. Видно, что рассчитанная температурная зависимость критического поля $H_{\text{Fi} \rightarrow \text{I}}$ хорошо согласуется с экспериментальной, полученной на монокристалле в работе [5]. Поле $H_{\text{I} \rightarrow \text{AF}}$ перехода $\text{I} \rightarrow \text{AF}$ по расчету зависит от температуры слабее, чем полученное при измерениях на свободных порошках.

Как уже указывалось во Введении, в имеющихся работах магнитное состояние интерметаллида DyMn_2Ge_2 в нулевом поле в интервале температур между T_1 и T_2 окончательно не выяснено и не определена природа магнитных фазовых переходов в области температур выше T_1 . Напомним, что данные мессбауэровских и нейтронографических исследований, проведенных в работе [6], позволили ее авторам предположить, что в нулевом поле в интервале температур между T_1 и T_2 сосуществуют три фазы: ферримагнитная (Fi), антиферромагнитная (AF) и промежуточная (I). Такая ситуация возможна, если в этой области температур промежуточная фаза является стабильной, а две другие фазы находятся в метастабильном состоянии.

В то же время в работе Кобаяши и др. [7] из предварительных данных нейтронографических исследований сделан вывод, что в интервале температур $T_1 < T < T_2$ магнитная структура является

однородной: она представляет собой несоизмерную фазу с волновым вектором $\mathbf{k} = (0, 0, 0.65)$. Такое значение волнового вектора означает, что эта несоизмерная фаза близка к соизмерной с утроением элементарной ячейки вдоль тетрагональной оси c . С нашей точки зрения, в пользу этой модели свидетельствуют кривые намагничивания при $T > T_1$ из работ [5] и [8], на которых гистерезис невелик (в случае, если в этой области температур сосуществуют три различные магнитные фазы, гистерезисные явления должны проявляться значительно сильнее). Версия о существовании несоизмеримой фазы позволяет предположить, что низкополевой магнитный фазовый переход, наблюдаемый в антиферромагнитной фазе выше температуры T_2 , является переходом в несоизмерную фазу. Это, однако, является только предположением, и мы вынуждены констатировать, что имеющихся экспериментальных данных недостаточно для теоретического описания низкополевого магнитного поведения DyMn_2Ge_2 выше температуры T_2 .

Рисунок 7*г* демонстрирует весьма хорошее согласие экспериментальной [5] и рассчитанной на основе термодинамического потенциала (5) кривых намагничивания для фазы AF в поле, параллельном тетрагональной оси.

5. ФАЗОВЫЕ ПЕРЕХОДЫ В ПОЛЕ, ПЕРПЕНДИКУЛЯРНОМ ТЕТРАГОНАЛЬНОЙ ОСИ

Экспериментальная фазовая H - T -диаграмма для направления поля, перпендикулярного тетрагональной оси, отсутствует, однако кривые намагничивания при $T = 4.2$ и 20 К для этого направления, приведенные в [5], свидетельствуют о наличии фазового перехода первого рода в поле (рис. 7*а, б*). При этих температурах исходной является фаза Fi. Наши численные расчеты на основе термодинамического потенциала (5) показали, что, как этого и следовало ожидать, восприимчивость фазы Fi при $\mathbf{H} \perp c$ очень чувствительна к параметрам кристаллического поля. Нам пришлось изменить параметры из работы [6] в пределах точности их определения в этой работе и взять их равными (в см^{-1})

$$B_2^0 = 200, \quad B_4^0 = -3.5,$$

$$B_6^0 = -50, \quad B_4^4 = -390,$$

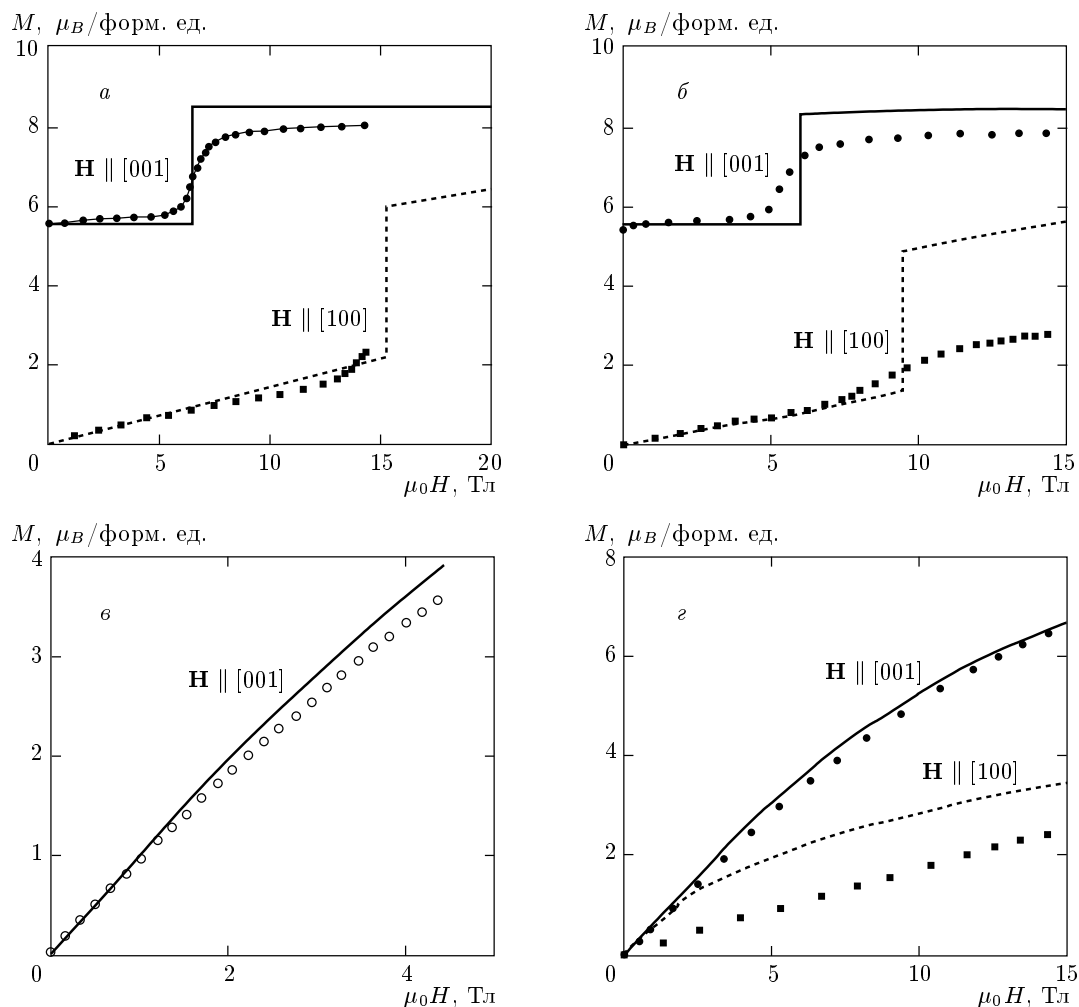


Рис. 7. Намагниченность соединения DyMn_2Ge_2 в расчете на формульную единицу как функция магнитного поля, приложенного вдоль указанных направлений, при разных температурах: $T = 4.2$ К (*a*), 20 К (*б*), 60 К (*в*) и 77 К (*з*). Значки — экспериментальные данные из работ [5] (темные кружки и квадратики) и [8] (светлые кружки); линии — расчет

с тем чтобы, не ухудшив описания закономерностей для мессбауэровских спектров в работе [6], одновременно получить восприимчивость соединения в фазе при $\mathbf{H} \perp \mathbf{c}$ и $T = 4.2$ К, совпадающую с экспериментальной из [5] (рис. 7*a*). В полях, меньших поля перехода, магнитный момент диспрозия приобретает компоненту вдоль направления поля, а магнитные моменты марганца остаются параллельными друг другу и поворачиваются к направлению поля, но слабо, так как обменное поле со стороны диспрозия стремится сохранить антипараллельную ориентацию моментов диспрозиевой и марганцевой подсистем. В критическом поле происходит фазовый переход первого рода в треугольную фазу, в которой магнитный момент диспрозия ориентирован по

направлению поля, а моменты Mn образуют с ним тупые углы. Соответствующие теоретические кривые намагничивания приведены на рис. 7*a, б*. Видно, что рассчитанная восприимчивость в фазе F_1 и при 20 К оказалась совпадающей с экспериментальной. Также удалось правильно описать уменьшение критического поля с ростом температуры (поле фазового перехода как в эксперименте, так и в теории меньше при 20 К, чем при 4.2 К). Рассчитанный скачок намагниченности превышает наблюдаемый в эксперименте. Наши попытки небольшой вариацией параметров увеличить скачок успехом не увенчались. Изменение параметров кристаллического поля, например уменьшение параметра B_2^0 , приводит к увеличению перпендикулярной восприим-

чивости в ферромагнитной фазе. Вариации параметров обменных взаимодействий Dy–Mn и Mn–Mn смещают поля фазовых переходов для обоих направлений поля. Величина константы анизотропии для марганцевой подсистемы, которую мы принимали, в частности, равной $15.8 \text{ Тл} \cdot \mu_B / \text{форм. ед.}$ для GdMn_2Ge_2 [12], не существенна, поскольку анизотропия Mn-подсистемы весьма мала по сравнению с анизотропией Dy-подсистемы. Таким образом, в данной модели величину скачка описать не удается. Усложнение модели означало бы введение новых параметров, определение которых делает задачу менее однозначной и требует дополнительных экспериментальных данных для их определения.

Весьма интересно, что, как уже было сказано, в поле, перпендикулярном тетрагональной оси, магнитный момент диспрозия сравнительно легко переориентируется от тетрагональной оси к направлению поля. Например, при $H = 10 \text{ Тл}$ угол, образуемый магнитным моментом диспрозия с тетрагональной осью, составляет около 7° . Тетрагональная ось кристалла фактически должна являться изинговской осью для момента диспрозия при низких температурах, поскольку его основное состояние характеризуется волновой функцией $|15/2\rangle$. Сравнительно легкая переориентация магнитного момента диспрозия от изинговской оси объясняется тем, что уже в поле около 1 Тл для этого направления поля имеет место пересечение нижних энергетических уровней иона Dy^{3+} (кроссовер) и перпендикулярная тетрагональной оси компонента магнитного момента начинает расти быстрее.

На рис. 7в, г приведены кривые намагничивания для направления поля в базисной плоскости в области температур, где исходной является фаза АФ. Видно, что при $T = 60 \text{ К}$ (рис. 7в) наша теоретическая кривая хорошо согласуется с экспериментальной, полученной в работе [8] при измерениях на монокристалле, имеющем форму пластинки. При этом нам пришлось пересчитать экспериментальную кривую с учетом размагничивающих полей для указанной формы монокристалла, чего не было сделано в [8]. Для $T = 77 \text{ К}$ (рис. 7г) согласие между рассчитанной и экспериментальной из работы [5] кривыми намагничивания хуже. Мы не можем исключить, что это также связано с необходимостью учета размагничивающих полей (информация по поводу учета размагничивающих полей в работе [5] отсутствует).

6. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, в работе проведено экспериментальное и теоретическое исследование слоистого тетрагонального интерметаллического соединения DyMn_2Ge_2 . Из измеренных температурных зависимостей параметров решетки a и c и начальной магнитной восприимчивости определена температура антиферромагнитного упорядочения марганцевой подсистемы ($T_N \approx 440 \text{ К}$) и подтверждено существование двух низкотемпературных спонтанных фазовых переходов первого рода ($T_1 \approx 33 \text{ К}$ и $T_2 \approx 44 \text{ К}$), что согласуется с экспериментальными данными работ [5] и [6]. Дифференциальная магнитная восприимчивость при низких температурах измерена на свободных порошках в сильных (до 50 Тл) и на порошковых образцах в сверхсильных (до 150 Тл) магнитных полях. Обнаружены два фазовых перехода первого рода для ориентации поля вдоль тетрагональной оси: между 20 и 35 Тл (в зависимости от температуры) и вблизи 110 Тл .

Низкотемпературные магнитные свойства слоистого интерметаллического соединения DyMn_2Ge_2 объяснены в модели, учитывающей, что этот интерметаллид состоит из двух магнитных подсистем: редкоземельной и марганцевой, причем собственное обменное взаимодействие марганцевой подсистемы приводит к антиферромагнитному упорядочению этой подсистемы. Показано, что в отличие от ранее изученных интерметаллидов подобного типа на основе гадолиния для правильной интерпретации магнитных свойств DyMn_2Ge_2 необходим учет обменного взаимодействия между слоями марганца, следующими за ближайшими. Это приводит к возможности возникновения в поле вдоль тетрагональной оси наряду с антиферромагнитным и ферромагнитным типами магнитного упорядочения в марганцевой подсистеме магнитной структуры, в которой взаимная ориентация магнитных моментов марганца в слоях изменяется как $\downarrow\uparrow\downarrow\uparrow\downarrow \dots$. Из сравнения экспериментальных значений индуцированных фазовых переходов при гелиевой температуре с теоретически рассчитанными определены параметры, описывающие как обменные взаимодействия внутри подсистем, так и обменное взаимодействие между подсистемами. Используя эти значения параметров обмена, а также величины параметров кристаллического поля, действующего на ион Dy^{3+} , уточненные по экспериментальным данным в работах [5, 6], удалось полуколичественным образом описать кривые намагничивания при более высоких температурах и построить фазовую H – T -диаграмму.

Отметим, что остается ряд нерешенных вопросов. В частности, так как окончательно не выяснен характер магнитного упорядочения в области температур $T_1 < T < T_2$ и не ясна природа индуцированных полем низкополевых магнитных фазовых переходов при $T > T_1$, остается открытым вопрос о том, какие изменения надо внести в модель, чтобы описать магнитные фазовые диаграммы DyMn_2Ge_2 полностью.

Работа поддержана РФФИ (проект № 99-02-17358) и грантом № 96-15-96429 по поддержке научных школ.

ЛИТЕРАТУРА

1. K. S. V. Narasimhan, V. U. S. Rao, R. L. Bergner et al., *J. Appl. Phys.* **46**, 4957 (1975).
2. T. Shigeoka, *J. Sci. Hiroshima Univ. A* **48**, 103 (1984).
3. A. Szutula and J. Leciejewicz, in *Handbook on the Physics and Chemistry of Rare Earths*, ed. by K. A. Gschneidner, Jr. and L. Eyring, Elsevier Science, Amsterdam (1989), vol. 12, p. 133.
4. G. Venturini, B. Malaman, and E. Ressouche, *J. Alloys Compounds* **240**, 139 (1996).
5. H. Kobayashi, H. Onodera, Y. Yamaguchi et al., *Phys. Rev. B* **43**, 728 (1991).
6. G. Venturini, B. Malaman, K. Tomala et al., *Phys. Rev. B* **46**, 207 (1992).
7. H. Kobayashi, M. Ohashi, H. Onodera et al., *J. Magn. Magn. Mat.* **140–144**, 905 (1995).
8. H. Wada, Y. Tanabe, K. Hagiwara, and M. Shiga, *J. Magn. Magn. Mat.* **218**, 203 (2000).
9. A. S. Lagutin, J. Vanacken, N. Harrison, and F. Herlach, *Rev. Sci. Instrum.* № 8, 4267 (1995).
10. N. Puhlmann, H.-U. Mueller, M. Barczewski et al., *J. Phys. D: Appl. Phys.* **32**, 2354 (1999).
11. Guo Guanghua, N. P. Kolmakova, R. Z. Levitin et al., in *Proceedings of MISM'99*, ed. by A. Granovsky and N. Perov, MSU, Moscow (1999), pt. 2, p. 133.
12. А. Ю. Соколов, Го Гуанхуа, С. А. Грановский и др., *ЖЭТФ* **116**, 1346 (1999).
13. Го Гуанхуа, Р. З. Левитин, В. В. Снегирев и др., *ЖЭТФ* **117**, 1127 (2000).
14. C. Kittel, *Phys. Rev. B* **120**, 335 (1960).