

## Магнитные свойства редкоземельного интерметаллида $\text{HoMn}_2\text{Ge}_2$

© Го Гуанхуа, М.В. Ерёмин\*, Н.П. Колмакова\*, А.С. Лагутин\*\*, Р.З. Левитин

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

\* Брянский государственный технический университет,  
241035 Брянск, Россия

\*\* Институт молекулярной физики Российского исследовательского центра „Курчатовский институт“,  
123182 Москва, Россия

E-mail: nprk@bitmcnit.bryansk.su

(Поступила в Редакцию 11 декабря 2001 г.)

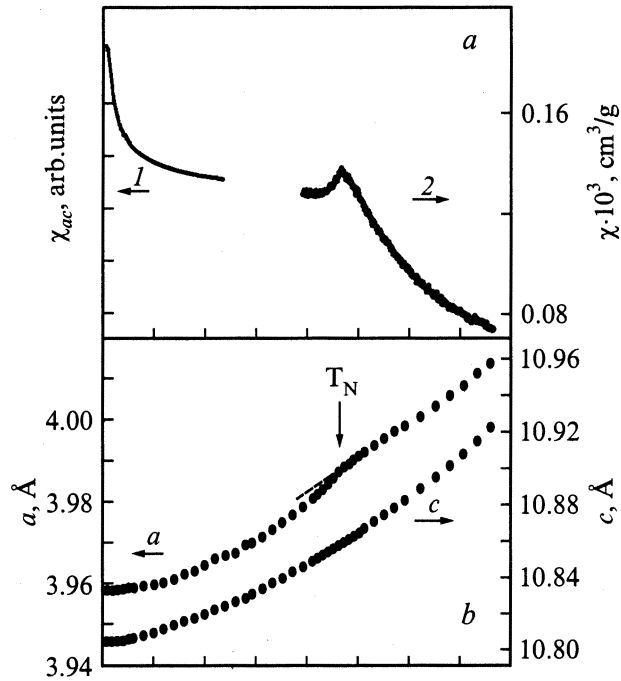
Экспериментально и теоретически исследованы магнитные свойства тетрагонального интерметаллического соединения  $\text{HoMn}_2\text{Ge}_2$ . Измерены температурные зависимости параметров решетки и начальной магнитной восприимчивости и кривые намагничивания в поля до 50 Т. Определены параметры кристаллического поля и обменных  $\text{Ho-Mn}$  и  $\text{Mn-Mn}$  взаимодействий, рассчитана температурная зависимость поля перехода из антиферромагнитной в ферромагнитную фазу в поле вдоль тетрагональной оси.

Работа частично поддержана Российским фондом фундаментальных исследований (грант № 99-02-17358).

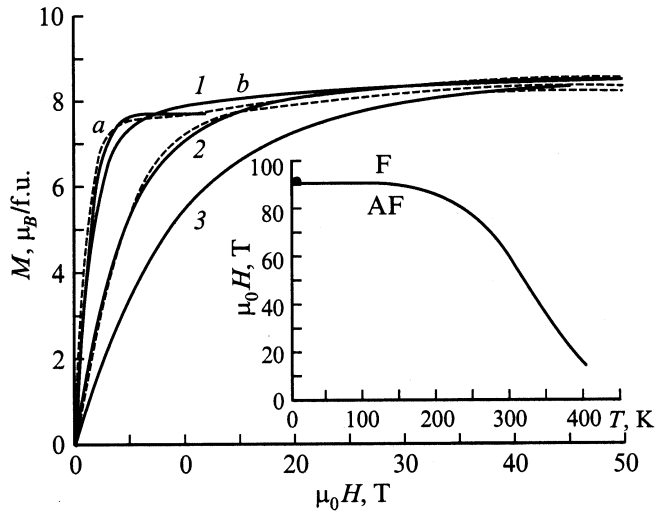
1. Соединения  $\text{RMn}_2\text{Ge}_2$  кристаллизуются в тетрагональную структуру типа  $\text{ThCr}_2\text{Si}_2$  (пространственная группа  $I4/mmm$ ), которая представляет собой набор  $-\text{R-Ge-Mn-Ge-R-}$  слоев, перпендикулярных оси  $c$ . Магнитные и другие физические свойства этих соединений, представляющих собой идеальные естественные сверхрешетки, интенсивно изучались последние два десятилетия, в частности в связи с многочисленными фазовыми переходами. В интерметаллидах  $\text{RMn}_2\text{Ge}_2$  с тяжелыми редкими замлями магнитные моменты марганца ферромагнитно упорядочены в слоях за счет  $\text{Mn-Mn}$ -обменного взаимодействия в слое, которое является самым сильным из взаимодействий. Межслойное  $\text{Mn-Mn}$ - и  $\text{R-Mn}$ -взаимодействия антиферромагнитны. При  $T < T_N \approx 460$  К марганцевая подсистема упорядочена антиферромагнитно, а редкоземельная подсистема разупорядочена. В  $\text{HoMn}_2\text{Ge}_2$ , в отличие от соединений с некоторыми другими редкими землями ( $R = \text{Gd, Tb}$  или  $\text{Dy}$ ), редкоземельная подсистема остается разупорядоченной до очень низких температур [1], что связано с меньшей величиной  $\text{R-Mn}$ -обмена [2]. В соответствии с нейтронографическими данными [1], ниже  $T_N^{\text{Ho}} = 2.5$  К магнитные моменты гольмия образуют наложение двух синусоидально модулированных магнитных структур с разными волновыми векторами. Антиферромагнитное упорядочение марганцевой подсистемы с ориентацией магнитных моментов коллинеарно тетрагональной оси сохраняется вплоть до 1.3 К [1]. В работе [3] при исследовании магнитных фазовых переходов в соединениях  $\text{RMn}_2\text{Ge}_2$  в сверхсильных магнитных полях при гелиевых температурах для гольмиевого соединения обнаружен переход первого рода вблизи 90 Т, который идентифицирован как переход из антиферромагнитной в ферромагнитную фазу. Этот факт, а также наши измерения начальной восприимчивости, параметров кристаллической решетки и кривых намагничивания в полях до 50 Т позволяли обсудить магнитные свойства соединения  $\text{HoMn}_2\text{Ge}_2$  и определить величины параметров основных взаимодействий в этом соединении.

2. Поликристаллические образцы интерметаллида  $\text{HoMn}_2\text{Ge}_2$  выплавлены в индукционной печи в атмосфере аргона в условиях квазилевитации из исходных элементов с чистотой 99.9%. Для лучшей гомогенизации образцы переплавлялись 3 раза и отжигались в течение 170 часов 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). Измерение температурной зависимости параметров решетки рентгеновским методом производилось на дифрактометре „Гейгерфлекс“ (Япония) в температурном диапазоне 10–800 К. Из рис. 1, на котором показаны температурные зависимости магнитной восприимчивости и параметров кристаллической структуры  $\text{HoMn}_2\text{Ge}_2$ , видно, что при  $T_N \approx 460$  К марганцевая подсистема переходит из парамагнитного в антиферромагнитное состояние, при этом для параметра решетки  $a(T)$  наблюдается отрицательная аномалия. При низких температурах магнитная восприимчивость резко возрастает, что может быть связано с близостью появления магнитного упорядочения в гольмиевой подсистеме.

Намагниченность  $\text{HoMn}_2\text{Ge}_2$  измерялась с помощью импульсного индукционного магнитометра [4] в температурном интервале от 8 до 50 К в сильных импульсных магнитных полях до 50 Т с длительностью импульса 26 ms на свободных порошках, частицы которых могут поворачиваться в поле. При  $T = 8$  К измерения проводились также на вибромагнитометре в полях до 12 Т. На рис. 2, где приведены кривые намагничивания, видно достаточно хорошее совпадение результатов измерений этими двумя методами (ср. кривые  $a$  и  $b$ ). Величина намагниченности  $\text{HoMn}_2\text{Ge}_2$  в больших полях составляет примерно  $8 \mu_B/\text{f.u.}$ , что меньше значения для свободного иона ( $10 \mu_B/\text{f.u.}$ ) и свидетельствует о существенном влиянии кристаллического поля (КП).



**Рис. 1.** Температурные зависимости магнитной восприимчивости (*a*) в переменном поле (1) и в статическом поле (2), а также параметров кристаллической решетки (*b*) соединения HoMn<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub>.



**Рис. 2.** Экспериментальные (сплошные) и рассчитанные (штриховые) кривые намагничивания для температур 8 (1), 27.5 (2) и 49 К (3). На вставке приведена *H*–*T*-диаграмма для фазового перехода из антиферромагнитной (AF) в ферромагнитную (F) фазу в поле вдоль тетрагональной оси; кружком показано экспериментальное значение поля фазового перехода при *T* = 5 К из работы [3].

3. Как было указано выше, при  $T > T_N^{\text{Ho}} = 2.5$  К гольмиевая подсистема соединения HoMn<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub> находится в парамагнитном состоянии, марганцевая подсистема антиферромагнитна, при критическом значении поля,

ориентированного вдоль тетрагональной оси, она скачком переходит в ферромагнитное состояние. Рассмотрим магнитные свойства этого соединения в поле вдоль тетрагональной оси с учетом минимального, но достаточного для описания экспериментальных данных, числа обменных взаимодействий в приближении молекулярного поля. Для марганцевой подсистемы будем учитывать обменные взаимодействия в слое (параметр  $\lambda_{22}^0$ ) и между соседними слоями (параметр  $\lambda_{22}$ ). Обмен Ho–Ho учитывать не будем, поскольку он мал [1] и не существен для интересующего нас температурного интервала. Действие на редкоземельную подсистему всех слоев марганцевой подсистемы суммируется и может быть описано одним параметром  $\lambda_{12}$  (см. [5]). При расчетах учитывалась известная для этих соединений зависимость параметра Mn–Mn-обменного взаимодействия в соседних слоях  $\lambda_{22}$  от межатомного расстояния в слое, т.е. от параметра решетки *a* [6], которая приводит к температурной зависимости этого обменного параметра,

$$\lambda_{22} = \rho(a - a_c), \quad (1)$$

где  $a_c = 4.045$  Å для интерметаллических соединений RMn<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub>.

Эффективный гамильтониан для иона Ho<sup>3+</sup>, испытывающего действие КП тетрагональной симметрии, в поле вдоль тетрагональной оси (ось *z*) имеет вид

$$H = \sum_{n,m} B_n^m O_n^m - g_J \mu_B J_z (H + H_z^{\text{Ho}}), \quad (2)$$

$$n = 2, 4, 6, ; \quad m = 0, 4,$$

где  $B_n^m$  — параметры КП,  $O_n^m$  — эквивалентные операторы,  $g_J$  — фактор Ланде ( $g_J = 5/4$ ),  $J_z$  — *z*-компонента оператора углового момента иона Ho<sup>3+</sup>. Молекулярное поле, действующее со стороны марганцевой подсистемы, равно  $H_z^{\text{Ho}} = \lambda_{12}(m_{1z} + m_{2z})$ ,  $m_{kz} = \mu_B g \langle S_{kz} \rangle$ , ( $k = 1, 2$ ),  $g$  — *g*-фактор Mn,  $S_{kz}$  — *z*-компонента оператора *k*-го спинового момента Mn.

Термодинамический потенциал системы в поле вдоль тетрагональной оси в расчете на одну формульную единицу определяется выражением

$$\Phi = -k_B T \ln Z + \frac{1}{2} M_z H_z^{\text{Ho}} - k_B T \sum_{k=1}^2 \ln \frac{\text{sh}[(2S+1)x_k/2]}{\text{sh}(x_k/2)} + \frac{1}{2} \sum_{k=1}^2 m_k H_{mk}. \quad (3)$$

Статсумма *Z* для гольмиевого магнитного момента определялась с помощью численной диагонализации гамильтониана (2),  $M_z = \mu_B g J \langle J_z \rangle$ ,  $x_k = \mu_B g H_k^{(\text{Mn})} / k_B T$ ,  $H_k^{(\text{Mn})} = H \cos \varphi_k + H_{mk}$ ,  $H_{mk} = \sum_{n=k, k\pm 1} \lambda_{22}^{(n)} m_n \cos(\varphi_n - \varphi_k) + \lambda_{12} M_z \cos \varphi_k$ ;  $\varphi_k$  — полярный угол *k*-го марганцевого магнитного момента (в нашем случае  $\varphi_k = 0$  или  $\pi$ ),  $\lambda_{22}^{(n)}$  — параметры Mn–Mn-обменного взаимодействия

между атомами  $k$ -го и  $n$ -го слоя. Второй и четвертый члены в выражении (3) являются обычными в теории молекулярного поля корректирующими членами.

Были рассчитаны кривые намагничивания  $M(H)$  и  $H$ - $T$ -фазовая диаграмма для поля фазового перехода первого рода из антиферромагнитного в ферромагнитное состояние в Mn-подсистеме в поле вдоль тетрагональной оси. Параметры соединения HoMn<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub> найдены из сопоставления рассчитанных величин с экспериментальными данными.

4. Экспериментальные кривые намагничивания HoMn<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub> для трех значений температуры (сплошные кривые на рис. 2) свидетельствуют о существенном влиянии КП на магнитный момент Ho-подсистемы, которая находится в парамагнитном состоянии, поскольку в этой области температур молекулярные поля, действующие на каждый слой гольмия со стороны двух соседних слоев марганца, компенсируют друг друга. Мы использовали эти кривые для определения параметров КП, при этом в отсутствие спектроскопической информации рассмотрение было ограничено тремя параметрами (параметры шестого порядка  $B_6^0$  и  $B_6^4$  были положены равными нулю, как это было сделано в работе [7] в случае DyMn<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub> при определении КП из температурных зависимостей сверхтонкого поля и квадрупольного взаимодействия). В качестве начальных значений при подгонке использовались, в частности, параметры КП DyMn<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub>, уточненные нами в работе [5] по совокупности магнитных данных. Наилучшее описание кривых намагничивания (рис. 2) достигнуто при следующих величинах параметров (в см<sup>-1</sup>):  $B_2^0 = 169$ ,  $B_4^0 = -72$ ,  $B_4^4 = -556$ , которые существенно отличаются от определенных нами для DyMn<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub> только по параметру  $B_4^0$ .

5. Величины параметров обменных взаимодействий Mn-Mn в соседних слоях ( $\lambda_{22}$ ) и Ho-Mn ( $\lambda_{12}$ ) мы определили, используя экспериментальное значение поля перехода из антиферромагнитной фазы в ферромагнитную при ориентации поля вдоль тетрагональной оси  $H_{AF \rightarrow F} = 91$  Т для  $T = 5$  К из работы [3]. При низких температурах из разложения термодинамического потенциала (3) (см. также [5]) имеем

$$H_{AF \rightarrow F} = -\lambda_{12}M - \lambda_{22}m. \quad (4)$$

Магнитный момент гольмия  $M$  полагаем, в соответствии с нашими экспериментальными данными, равным  $8.3\mu_B$  (рис. 2), а для магнитного момента марганца  $m$  в антиферромагнитной фазе принимаем усредненное по серии RMn<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub> ( $R = Tb, Ho, Er, Tm$ ) в работе [1] значение  $2.3\mu_B$ . Далее величины  $\lambda_{12}$  и  $\lambda_{22}$  из их линейной комбинации (4) определялись двумя способами. В первом —  $\lambda_{12}$  для HoMn<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub> пересчитывали из  $\lambda_{12}$  для DyMn<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub> [5] через соответствующие факторы Ланде, а затем  $\lambda_{22}$  определяли из выражения (4). Во втором —  $\lambda_{22}$  в HoMn<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub> пересчитывали через  $\lambda_{22}$  в DyMn<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub> [5] с помощью формулы (1), для  $a_{Dy}$  использовались данные нашей работы [5], а затем  $\lambda_{12}$  определяли из выражения (4). Примечательно, что оба способа приводят к

близким значениям параметров:  $\lambda_{12} = -4.5 \pm 0.5$  Т/ $\mu_B$ ,  $\lambda_{22} = -23 \pm 2$  Т/ $\mu_B$ . Аналогичное определение параметров HoMn<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub> на основе параметров для соединения GdMn<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub>, определенных в работе [8], дает больший их разброс. Это обстоятельство, возможно, связано с тем, что Gd дальше, чем Dy, отстоит от Ho в ряду редкоземельных элементов.

Расчет температурной зависимости критического поля  $H_{AF \rightarrow F}$  произведен на основе термодинамического потенциала (3), в котором учтены температурные и полевые зависимости всех характеристик рассматриваемой системы. При этом мы также учли температурную зависимость межслойного Mn-Mn-обменного параметра  $\lambda_{22}$  по формуле (1) с помощью измеренной температурной зависимости параметра решетки  $a(T)$  (рис. 1, b). Параметр обменного взаимодействия Mn-Mn в слое  $\lambda_{22}^0$  найден из значения  $T_N = 460$  К с учетом известной величины  $\lambda_{22}$ :  $\lambda_{22}^0 = 2.1 \cdot 10^3$  Т/ $\mu_B$ . Рассчитанная фазовая диаграмма приведена на вставке к рис. 2.

## Список литературы

- [1] G. Venturini, B. Malaman, E. Ressouche. J. Alloys Compounds **240**, 1, 139 (1996).
- [2] A. Szutula, J. Leciejewicz. In: Handbook on the Physics and Chemistry of Rare Earths / Ed. K.A. Gschneidner, jr., L. Eyring. Elsevier Science, Amsterdam (1989). Vol. 12. P. 133.
- [3] А. Кирсте, Р.З. Левитин, М. фон Ортенберг, В.В. Платонов, Н. Пульманн, В.В. Снегирев, Д.А. Филиппов, О.М. Таценко. ФТТ **43**, 9, 1661 (2001).
- [4] A.S. Lagutin, J. Vanacken, N. Harrison, F. Herlach. Rev. Sci. Instrum. **8**, 4267 (1995).
- [5] Го Гуанхуа, М.В. Ерёмин, А. Кирсте, Н.П. Колмакова, А.С. Лагутин, Р.З. Левитин, М. фон Ортенберг, А.А. Сидоренко. ЖЭТФ **120**, 10, 910 (2001).
- [6] C. Kittel. Phys. Rev. **120**, 2, 335 (1960).
- [7] G. Venturini, B. Malaman, K. Tomala, A. Szutula, J.P. Sanchez. Phys. Rev. **B46**, 1, 207 (1992).
- [8] А.Ю. Соколов, Го Гуанхуа, С.А. Грановский, Р.З. Левитин, Х. Вада, М. Шига. ЖЭТФ **116**, 4, 1346 (1999).