

Магнитные и гальваномагнитные свойства упорядочивающихся сплавов Pd_2AuFe

Н. И. Коуров

Институт физики металлов, УрО РАН, Россия, 620219, г. Екатеринбург, ул. С. Ковалевской, 18
E-mail: lowtemp@ifm.e-burg.su

Л. Н. Тюленев

Уральский государственный технический университет, Россия, 620002, г. Екатеринбург, ул. Мира, 19

Т. Мыдлж

International Laboratory of High Magnetic Fields and Low Temperatures
95, Gaiowicka St., 53-529, Wroclaw, Poland

Статья поступила в редакцию 9 августа 1996 г., после переработки 22 ноября 1996 г.

В полях $H \leq 12$ МА/м при $T = 4,2$ К проведены исследования магнитных и гальваномагнитных свойств упорядочивающихся сплавов Pd_2AuFe . Установлено, что в области фазового перехода ферромагнетик–антиферромагнетик, который осуществляется вследствие атомного упорядочения сплавов Pd_2AuFe , исчезновение спонтанной намагниченности сопровождается максимумами восприимчивости парапроцесса и положительного аномального эффекта Холла. При этом изменяется знак нормального эффекта Холла. Показано, что особенности гальваномагнитных свойств связаны с перестройкой электронной зонной структуры при упорядочении сплавов.

В полях $H \leq 12$ МА/м при $T = 4,2$ К проведено дослідження магнітних і гальваномагнітних властивостей упорядкованих сплавів Pd_2AuFe . Установлено, що в області фазового переходу ферромагнетик–антиферромагнетик, який здійснюється внаслідок атомного упорядкування сплавів Pd_2AuFe , зникнення спонтанної намагніченості супроводжується максимумами сприйнятливості парапроцесу і позитивного аномального ефекту Холла. При цьому змінюється знак нормального ефекту Холла. Показано, що особливості гальваномагнітних властивостей обумовлено перебудовою електронної зонної структури при упорядкуванні сплавів.

PACS: 75.30.-m

Известно [1–3], что сплавы Pd_2AuFe в разупорядоченном состоянии являются обычными ферромагнетиками (ФМ) с $T_c \sim 460$ К. Атомное упорядочение данных сплавов в результате отжига при $T = 720$ К в течение $\tau \geq 30$ мин переводит их в близкое к антиферромагнитному (АФ) состояние с $T_N \sim 130$ К. Такой фазовый переход ФМ–АФ сопровождается аномальным поведением не только магнитных, но и исследованных ранее электронных свойств.

Увеличение степени атомного порядка η в рассматриваемых сплавах приводит к росту величины среднего эффективного магнитного момента от $\mu_{\text{eff}} \sim 3 \mu_B$ /моль для закаленного до $\mu_{\text{eff}} \sim 5,6 \mu_B$ /моль для отожженного в течение $\tau = 30$ мин образцов. При этом наблюдается

резкое уменьшение низкотемпературной теплоемкости и, наоборот, рост удельного электросопротивления до необычных для упорядоченных сплавов значений $\rho \sim 200$ мкОм·см [2,3]. Указанные экспериментальные факты свидетельствуют о существенном изменении степени локализации атомных магнитных моментов при переходе от ФМ к АФ состоянию в результате атомного упорядочения сплавов Pd_2AuFe , что связано с перестройкой электронной зонной структуры вблизи уровня Ферми E_F . Это подтверждают результаты исследований оптических свойств упорядочивающихся сплавов Pd_2AuFe [4].

Дополнительную информацию об изменении электронной зонной структуры и о процессах

рассеяния электронов проводимости в области перехода от ФМ к АФ состоянию при отжиге рассматриваемых сплавов можно получить, исследуя гальваномагнитные свойства (магнитосопротивление (МС), нормальную и аномальную составляющие эффекта Холла (ЭХ)). О степени локализации магнитных моментов можно судить, сравнивая эффективный момент, полученный из парамагнитной восприимчивости, и спонтанный момент при $T \sim 0$ К, определенный из кривых намагничивания (по величине параметра Роудса – Вольфарта, μ_{eff}/μ_S [5]). Для того чтобы выделить интересующие нас характеристики сплавов, сильно неоднородных в области фазового превращения ФМ – АФ, важно исследовать магнитные и гальваномагнитные свойства в одних и тех же предельно высоких магнитных полях (в области парапроцесса).

В настоящей работе обсуждаются магнитные и гальваномагнитные свойства упорядочивающихся сплавов Pd_2AuFe , измеренные в Международной лаборатории сильных магнитных полей и низких температур (г. Вроцлав, Польша) при $T = 4,2$ К в магнитных полях до $H \sim 12$ МА/м. Намагниченность J определялась методом баллистического гальванометра с абсолютной погрешностью измерений $\sim 3\%$, а гальваномагнитные свойства – обычным четырехконтактным способом на постоянном токе с использованием приборов с относительной погрешностью $10^{-4}\%$.

На рис. 1 и 2 приведены результаты измерений намагниченности и эффекта Холла для сплавов Pd_2AuFe с разной степенью атомного порядка.

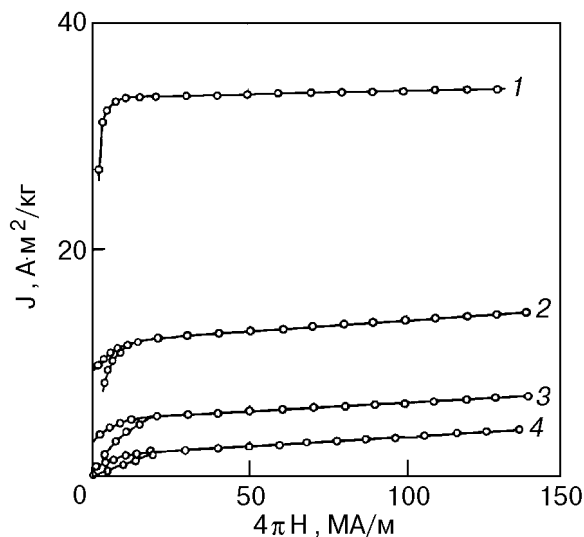


Рис. 1. Намагниченность сплавов Pd_2AuFe при $T = 4,2$ К в разупорядоченном состоянии (1) и после отжига образцов при $T = 720$ К при различных τ , мин: 10 (2); 30 (3); 300 (4).

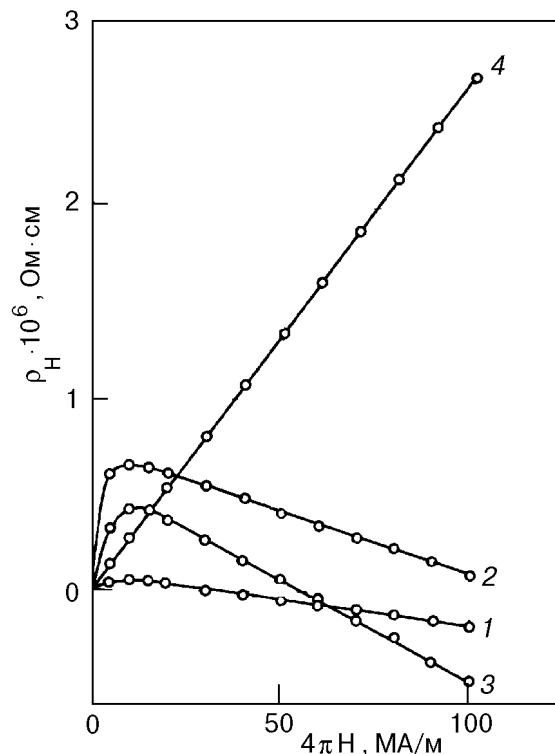


Рис. 2. Холловское сопротивление сплавов Pd_2AuFe при $T = 4,2$ К в разупорядоченном состоянии (1) и после отжига образцов при $T = 720$ К при различных τ , мин: 10 (2); 30 (3); 300 (4).

Видно, что в атомно-разупорядоченном состоянии процесс намагничивания имеет обычный для ферромагнетиков вид: практически отсутствует гистерезис $J(H)$ в области технического намагничивания (ниже поля насыщения $H_s \sim 1$ МА/м). При $H > H_s$ в области парапроцесса намагниченность описывается выражением [6]

$$J = J_s + \chi_p H, \quad (1)$$

где J_s – спонтанная намагниченность; $\chi_p \sim 10^{-6} \text{ см}^3/\text{Г}$ – восприимчивость парапроцесса.

Полевая зависимость холловского сопротивления $\rho_H(H)$ при $H > 1$ МА/м также является линейной функцией и может быть определена как

$$\rho_H = R_0 B + 4\pi R_s J = R_0^* H + 4\pi R_s^* J_s. \quad (2)$$

Здесь R_0 и R_s – коэффициенты нормального и аномального ЭХ; $B = H + (4\pi - N)J$ – индукция в образце; N – размагничивающий фактор образца. Согласно [3], в атомно-разупорядоченных сплавах МС обусловлено парапроцессом начиная с еще более слабых магнитных полей ($H \geq 0,3$ МА/м), а для его

продольной и поперечной составляющих справедливы известные правила Акулова (см., например, [6]).

При увеличении η в сплавах Pd₂AuFe происходит расширение интервала технического намагничивания, усиление гистерезиса на кривых $J(H)$ в полях $H < H_s$, а при $H > H_s$ – возрастание восприимчивости парапроцесса. При этом значение поля, ниже которого наблюдается нелинейная зависимость $\rho_H(H)$, отвечающая техническому намагничиванию, увеличивается незначительно, а в области парапроцесса происходит изменение знака наклона линейной части зависимостей $\rho_H(H)$. Поведение МС в частично и полностью упорядоченных образцах во всем исследованном интервале полей ($0 \leq H < 12$ МА/м) характерно для случая парапроцесса, когда продольный и поперечный эффекты равны, имеют отрицательный знак и являются линейно-квадратичными функциями внешнего поля [6]:

$$\frac{\Delta\rho}{\rho} = \frac{\rho(H) - \rho(0)}{\rho(0)} \sim - (J^2 - J_s^2) \sim (2\chi_p J_s H + \chi_p^2 H^2).$$

Из (1) и (2) следует, что математическая обработка экспериментально полученных линейных зависимостей $J(H)$ и $\rho_H(H)$ при $H > H_s \sim 1$ МА/м позволяет определить, наряду с магнитными характеристиками J_s и χ_p , значения эффективных коэффициентов нормального и аномального ЭХ: $R_0^* = R_0 + 4\pi R_s \chi_p$ и $R_s^* = R_s + (1 - N/4\pi)R_0$ соответственно.

Поскольку в данном случае образцы имеют форму параллелепипеда с величиной $N \sim 4\pi$, а восприимчивость парапроцесса в них не превышает значений $\chi_p \sim 10^{-4}$ см³/г, интересующие нас истинные коэффициенты нормального и аномального ЭХ в пределах погрешности измерений можно считать равными экспериментально определенным значениям соответствующих эффективных констант, т.е. $R_0 \sim R_0^*$ и $R_s \sim R_s^*$.

На рис. 3 показаны полученные таким образом основные магнитные и гальваномагнитные характеристики сплавов Pd₂AuFe в зависимости от степени атомного порядка (т.е. времени отжига τ). Видно, что в разупорядоченном состоянии величина спонтанного магнитного момента $\mu_s \sim 2,8$ μ_B /моль. С ростом η спонтанный момент уменьшается вследствие перехода к АФ состоянию после отжига образцов в течение $\tau \geq 30$ мин.

Если исходить из кластерного характера фазового перехода ФМ–АФ, то наблюдаемое падение величины J_s в упорядоченных образцах

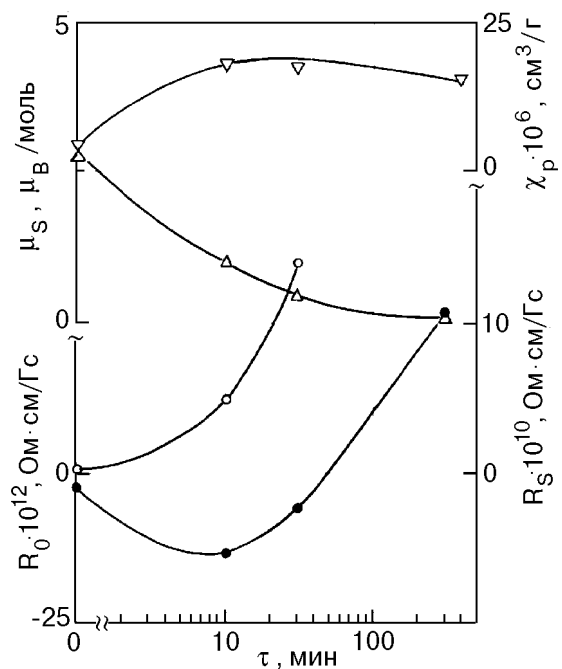


Рис. 3. Спонтанный момент μ_s (Δ), восприимчивость парапроцесса χ_p (∇), коэффициенты нормального R_0 (\bullet) и аномального R_s (\circ) эффектов Холла при $T = 4,2$ К для сплавов Pd₂AuFe в зависимости от времени отжига τ при $T = 720$ К.

необходимо связывать с уменьшением объема ФМ фазы. Естественно, что возрастание восприимчивости «парапроцесса» в этом случае обусловлено упорядочением магнитных неоднородностей (ФМ и АФ кластеров), возникающих в области фазового превращения ФМ–АФ. Процесс упорядочения таких неоднородностей в магнитном поле определяет практически одинаковое поведение как продольного, так и поперечного МС.

Из сравнения результатов измерений намагниченности, полученных нами (см. рис. 1, 3), и парамагнитной восприимчивости, опубликованных в [3], следует, что разупорядоченные сплавы Pd₂AuFe можно отнести к классу гейзенберговских магнетиков, в которых магнитные моменты предельно локализованы на атомах железа. В этом случае параметр Роудса–Вольфарта (отношение μ_{eff}/μ_s) практически равен единице.

Согласно экспериментальным данным, представленным на рис. 3 и приведенным в [3], уменьшение величины μ_s при увеличении η сопровождается ростом μ_{eff} . С одной стороны, это свидетельствует об уменьшении степени локализации атомных магнитных моментов при упорядочении сплавов, так как параметр Роудса–Вольфарта, определенный предложенным в [5] способом, становится при этом много больше

единицы. Однако, с другой стороны, увеличение μ_{eff} и приближение его к значениям моментов свободных ионов железа (при замороженном орбитальном моменте теоретические значения $\mu_{\text{Fe}^{2+}} = 4,9 \mu_B$ и $\mu_{\text{Fe}^{3+}} = 5,92 \mu_B$), наоборот, позволяет авторам [3] сделать вывод об уменьшении перекрытия, а следовательно, и о возрастании степени локализации d -состояний основных магнитоактивных атомов железа при упорядочении сплавов Pd_2AuFe .

Отмеченное выше противоречие можно объяснить ошибкой экспериментального определения величины μ_s как характеристики локального состояния атомов железа в исследуемых сплавах. В области фазового перехода ФМ—АФ значения J_s , полученные из эксперимента по (1), вычисляются по отношению ко всему объему образца, хотя в действительности они определяются только его ФМ частью. При кластерном характере фазового перехода ФМ—АФ объем ФМ фазы в сплаве уменьшается с ростом τ и остается практически неизвестным. В таких условиях спонтанный момент, отнесенный к ФМ части образца, для частично упорядоченных сплавов Pd_2AuFe обычными методами определить невозможно.

Непосредственно в области фазового перехода ФМ—АФ, когда в образцах присутствуют две магнитные подсистемы, величина μ_s , определенная указанным способом, не характеризует истинный момент, локализованный на атомах железа. Следовательно, параметр Роудса—Вольфарта μ_{eff}/μ_s не позволяет однозначно определить степень локализации атомных магнитных моментов. В данном случае более правильную информацию о степени размытости d -волновых функций магнитоактивных атомов можно получить, сравнивая величину μ_{eff} , полученную из результатов измерений парамагнитной восприимчивости, с теоретическим значением магнитного момента соответствующего свободного иона. Для оценки истинной степени локализации магнитных моментов в упорядочивающихся сплавах Pd_2AuFe необходимы дополнительные исследования, позволяющие получить локальные распределения спиновой и зарядовой плотностей.

Из рис. 3 видно, что при переходе от ФМ к АФ состоянию в изучаемых сплавах происходит аномальное изменение коэффициентов как нормального, так и аномального ЭХ. В частично упорядоченных образцах, отожженных в течение $\tau \sim 30$ мин, когда наблюдаются особенности всех ранее исследованных

электронных свойств сплавов и наиболее сильно изменяются величины моментов, локализованных на атомах железа [1–3], экспериментально обнаруживается изменение знака коэффициента $R_0(r)$.

В однозонном приближении изменение знака нормального ЭХ свидетельствует о переходе от электронного к дырочному типу холловских носителей при степени атомного порядка, соответствующей времени отжига $\tau \sim 30$ мин. Однако для сплавов переходных металлов модель с одним типом носителей является довольно грубой. Использование двухзонного приближения, когда

$$R_0 = \frac{n_h \mu_h^2 - n_e \mu_e^2}{(n_h \mu_n + n_e \mu_2)^2},$$

позволяет сделать вывод о том, что при временах отжига $\tau \sim 30$ мин резко меняются величины как плотностей n_h (n_e), так и подвижностей μ_h (μ_e) холловских носителей h - и e -типов. В любом случае результаты измерений коэффициента R_0 согласуются с выводами [3,4] о существенной перестройке электронной зонной структуры вблизи E_F , которая происходит из-за уменьшения перекрытия d -волновых функций атомов Fe при упорядочении сплавов Pd_2AuFe в результате перехода ближайших соседних одноименных атомов Fe из первой во вторую координационные сферы.

Согласно рис. 3, положительный для закаленного сплава коэффициент аномального ЭХ в результате отжига образца возрастает. При временах отжига $\tau \sim 30$ мин, когда в сплаве исчезает ФМ подсистема, он достигает наибольших значений. Для АФ сплавов, отожженных в течение $\tau > 30$ мин, в пределах погрешности используемого способа измерения аномальный ЭХ обнаружить не удастся, т.е. коэффициент $R_s \sim 0$.

Аномальный ЭХ обычно связывают с асимметрией рассеяния холловских носителей на разного рода возмущениях в металле [6,7]. В исследуемых сплавах резкое возрастание коэффициента R_s непосредственно в области перехода ФМ—АФ, казалось бы, свидетельствует о том, что определяющими для аномального ЭХ являются процессы рассеяния на магнитных неоднородностях — ФМ или АФ кластерах. Однако исследования МС показывают [3], что магнитное сопротивление при любой степени атомного порядка имеет примерно одинаковую величину и составляет $\sim (2-3)\%$ общего удельного сопротивления ρ . Как видно из

рис. 3, с ростом времени отжига незначительно изменяется и высокополевая магнитная восприимчивость. В то же время коэффициент R_s при отжиге закаленного сплава в течение $\tau \sim 30$ мин увеличивается более чем на порядок.

Сравнение значений определенного нами коэффициента аномального ЭХ (см. рис. 3) и общего электросопротивления, приведенного в [3], указывает на корреляцию их зависимостей от τ в ФМ состоянии, что согласуется с выводами теории о степенной связи между рассматриваемыми кинетическими свойствами [6,7]. Но отсутствие аномального ЭХ в АФ сплавах при довольно большой и слабо зависящей от τ величине ρ свидетельствует о том, что данные кинетические свойства определяются здесь, скорее всего, особенностями электронной зонной структуры в окрестности E_F . Роль процессов рассеяния электронов проводимости на возмущениях магнитной подсистемы в этом случае несущественна.

Наблюдаемое при отжиге сплавов Pd_2AuFe поведение магнитных и гальваномангнитных свойств можно понять, учитывая вклад интерференционных эффектов в аномальном ЭХ, а также предполагая для холловской проводимости определяющую роль перестройки электронной зонной структуры вблизи E_F в области перехода от ФМ к АФ сплавам. Последнее предположение наиболее важно, если холловская проводимость осуществляется подмагнитными d -носителями.

Необходимо отметить, что максимальное значение коэффициента R_s почти на два порядка превышает величину R_0 . Такая ситуация является довольно обычной для многих ФМ сплавов. При этом знаки нормального и аномального ЭХ, определяемые типом холловских носителей, в ФМ состоянии отличаются друг от друга. В однозонном приближении это возможно, если константа спин-орбитальной связи λ [6,7], которая входит в выражение для коэффициента R_s , имеет отрицательный знак.

Таким образом, полученные результаты исследований магнитных и гальваномангнитных свойств упорядочивающихся сплавов Pd_2AuFe показывают, что

а) в области фазового перехода ФМ—АФ, когда в образцах сосуществуют две магнитные

подсистемы, параметр Роудса—Вольфарта, определенный по результатам измерений только магнитных свойств, не служит истинным критерием степени локализации атомных магнитных моментов в сплавах переходных металлов;

б) аномальный ЭХ в упорядочивающихся сплавах Pd_2AuFe положителен и отличен от нуля только в ФМ состоянии. При исчезновении спонтанной намагнитченности в результате отжига образцов отрицательный коэффициент нормального ЭХ проходит через нуль и в АФ сплавах становится положительным;

в) в области фазового превращения от ФМ к АФ состоянию при упорядочении сплавов Pd_2AuFe наблюдаемые особенности кинетических свойств обусловлены перестройкой электронной зонной структуры вблизи E_F .

1. М. А. Бороздина, Ю. Г. Карпов, Ю. А. Верещагин, Ф. А. Сидоренко, В. М. Павлов, П. В. Гельд, *ФММ* **55**, 1112 (1983).
2. Н. И. Коуров, М. А. Алексеева, Ю. А. Верещагин, *ФНТ* **13**, 173 (1987).
3. А. С. Щербаков, Н. И. Коуров, Ю. А. Верещагин, М. А. Алексеева, *ФММ* **76**, 68 (1993).
4. Н. И. Коуров, Ю. В. Князев, Л. Н. Тюленев, *ФММ* **80**, 84 (1995).
5. С. В. Вонсовский, *Магнетизм*, Наука, Москва (1971).
6. P. Rhodes and E. P. Wohlfarth, *Proc. Roy. Soc.* **273**, 247 (1963).
7. А. В. Ведяев, А. Н. Волошинский, А. Б. Грановский, Н. В. Рыжанова, *Изв. вузов, Физика* **1**, 66 (1987).

Magnetic and galvanomagnetic properties of the ordering Pd_2AuFe alloys

N. I. Kourov, L. N. Tulenev, and T. Mydlars

The magnetic and galvanomagnetic properties of the Pd_2AuFe alloys experiencing ordering are studied in the fields $H \leq 12$ MA/m at $T = 4.2$ K. It is found that in the region of the ferromagnetic-antiferromagnetic phase transition, which is due to the atomic ordering in Pd_2AuFe alloys, the disappearance of spontaneous magnetization leads to the paraprocess susceptibility maxima and the positive anomalous Hall effect; the normal Hall effect changes its sign in this case. The features of the galvanomagnetic properties are due to transformation of the electron band structure in the process of the alloy ordering.