

## АТОМНАЯ И ЯДЕРНАЯ ФИЗИКА

УДК 539.163.3:538.945

МАГНИТНЫЕ СВЕРХТОНКИЕ ПОЛЯ НА ЯДРАХ  $^{181}\text{Ta}$   
В ФАЗАХ ЛАВЕСА  $\text{RFe}_2$  ( $\text{R} = \text{Tb}, \text{Ho}, \text{Yb}$ )А. А. Сорокин, Б. А. Комиссарова, Г. К. Рясный, С. И. Рейман, Л. Г. Шпинькова,  
А. В. Цвященко\*), Е. Н. Ширани\*), Л. Н. Фомичева\*), А. С. Денисова\*\*)

(НИИЯФ)

Методом возмущенных угловых корреляций  $\gamma$ -квантов измерены магнитные сверхтонкие поля  $B_{\text{Hf}}$  на ядрах  $^{181}\text{Ta}$  в фазах Лавеса  $\text{YbFe}_2$ ,  $\text{HoFe}_2$  и  $\text{TbFe}_2$ . При 300 К были получены следующие значения  $B_{\text{Hf}}(\text{Ta})$ : 18,5 Тл, 16,2 Тл и 12,1 Тл соответственно. Результаты эксперимента сравниваются с данными, полученными нами ранее для других фаз  $\text{RFe}_2$ .

## 1. Введение

Фазы Лавеса — это обширный класс интерметаллических соединений со стехиометрией  $\text{AB}_2$ . Особый интерес среди них представляют соединения переходных  $3d$  и редкоземельных элементов  $\text{RT}_2$  ( $\text{T} = \text{Mn}, \text{Fe}, \text{Co}, \text{Ni}$ ;  $\text{R}$  — редкоземельный элемент (РЗЭ)). Сочетание локализованного магнетизма  $\text{R}$ -ионов и зонного магнетизма  $\text{T}$ -элементов определяет большое многообразие магнитных свойств этих соединений (см., напр., [1]). Их свойства и электронная структура интенсивно исследуются различными методами, среди которых важное место занимают ядерно-спектроскопические методы сверхтонких взаимодействий.

Ранее нами были опубликованы результаты исследований магнитного сверхтонкого взаимодействия ядер  $^{181}\text{Ta}$  в интерметаллидах  $\text{RFe}_2$  ( $\text{R} = \text{Pr}, \text{Nd}, \text{Sm}, \text{Gd}, \text{Lu}$ ) методом возмущенных угловых корреляций (ВУК)  $\gamma\gamma$ -каскада 133–482 кэВ, возбуждаемого при распаде  $^{181}\text{Hf}$  (см. [2, 3] и ссылки в них). В данной работе приводятся результаты подобных исследований для образцов с тяжелыми редкими землями  $\text{TbFe}_2$ ,  $\text{HoFe}_2$  и  $\text{YbFe}_2$ . Наличие систематических данных по соединениям с легкими и тяжелыми  $\text{R}$ -элементами позволит выяснить, как сказываются величина локализованного  $4f$ -момента  $\text{R}$ -иона, тип магнитного упорядочения на величину и температурную зависимость магнитного сверхтонкого поля для  $\text{Ta}$ , которые в свою очередь связаны со степенью локализации  $5d$ -электронов последнего [2, 4].

## 2. Методика эксперимента

Соединение  $\text{YbFe}_2$  может быть синтезировано только путем спекания или сплавления исходных веществ при высоком давлении [5].  $\text{TbFe}_2$  и  $\text{HoFe}_2$  могут быть сплавлены в обычных условиях, однако в данной работе все образцы были приготовлены одинаковым способом, а именно плавкой под давлением 80 кбар в специальной камере высокого давления. Конструкция камеры и метод плавки описаны в работе [6].

В процессе плавки всех образцов в шихту добавлялось небольшое количество (менее 1 вес.%) фазы Лавеса  $\text{HfFe}_2$ , предварительно облученной в реакторе и содержащей изотоп  $^{181}\text{Hf}$  ( $T_{1/2} = 43$  сут) с высокой удельной активностью. Эта процедура обеспечивала растворение  $\text{HfFe}_2$  в решетке  $\text{RFe}_2$  и локализацию примесных атомов  $\text{Hf}$  в узлах замещения РЗЭ ионов. Качество исследуемых образцов контролировалось методом мёссбауэровской спектроскопии по  $^{57}\text{Fe}$  путем сравнения полученных спектров с имеющимися в литературе данными [7].

При  $\beta$ -распаде  $^{181}\text{Hf}$  в  $^{181}\text{Ta}$  возбуждается каскад  $\gamma$ -переходов с энергиями 133–482 кэВ, проходящий через изомерное состояние 482 кэВ с временем жизни  $\tau = 15,6$  нс. Спин этого состояния  $I = 5/2$  и магнитный момент  $\mu = 3,25 \mu_N$  ( $g = \mu/I = 1,30$ ). Магнитное сверхтонкое поле, действующее на ядра  $^{181}\text{Ta}$ , определялось методом ВУК указанного  $\gamma\gamma$ -каскада. Измерения проводились на автоматическом трехдетекторном сцинтилляционном спектрометре совпадений [8], позволяющем одновременно регистрировать временные спектры совпадений  $N(t, \theta)$  при углах  $\theta = 90^\circ$  и  $180^\circ$  между детекторами. В соответствии с общепринятой процедурой, основанной на теории ВУК [9], значения магнитных сверхтонких полей определялись в результате частотного анализа спектров анизотропии угловой корреляции  $R(t)$ , вычисленной из  $N(t, \theta)$  по формуле

$$R(t) = 2 \frac{N(t, 180^\circ) - N(t, 90^\circ)}{N(t, 180^\circ) + 2N(t, 90^\circ)}$$

Для статического магнитного сверхтонкого взаимодействия в немагнитном ферромагнитном образце (т. е. с хаотической ориентацией доменов) анизотропия выражается следующим образом [9]:

$$R(t) = A\{0, 2 + 0, 4[\exp(-\Lambda\omega_L t) \cos \omega_L t + \exp(-2\Lambda\omega_L t) \cos 2\omega_L t]\}. \quad (1)$$

\*) Институт физики высоких давлений им. Л. Ф. Верещагина, РАН.

\*\*) Институт кристаллографии им. А. В. Шубникова, РАН.

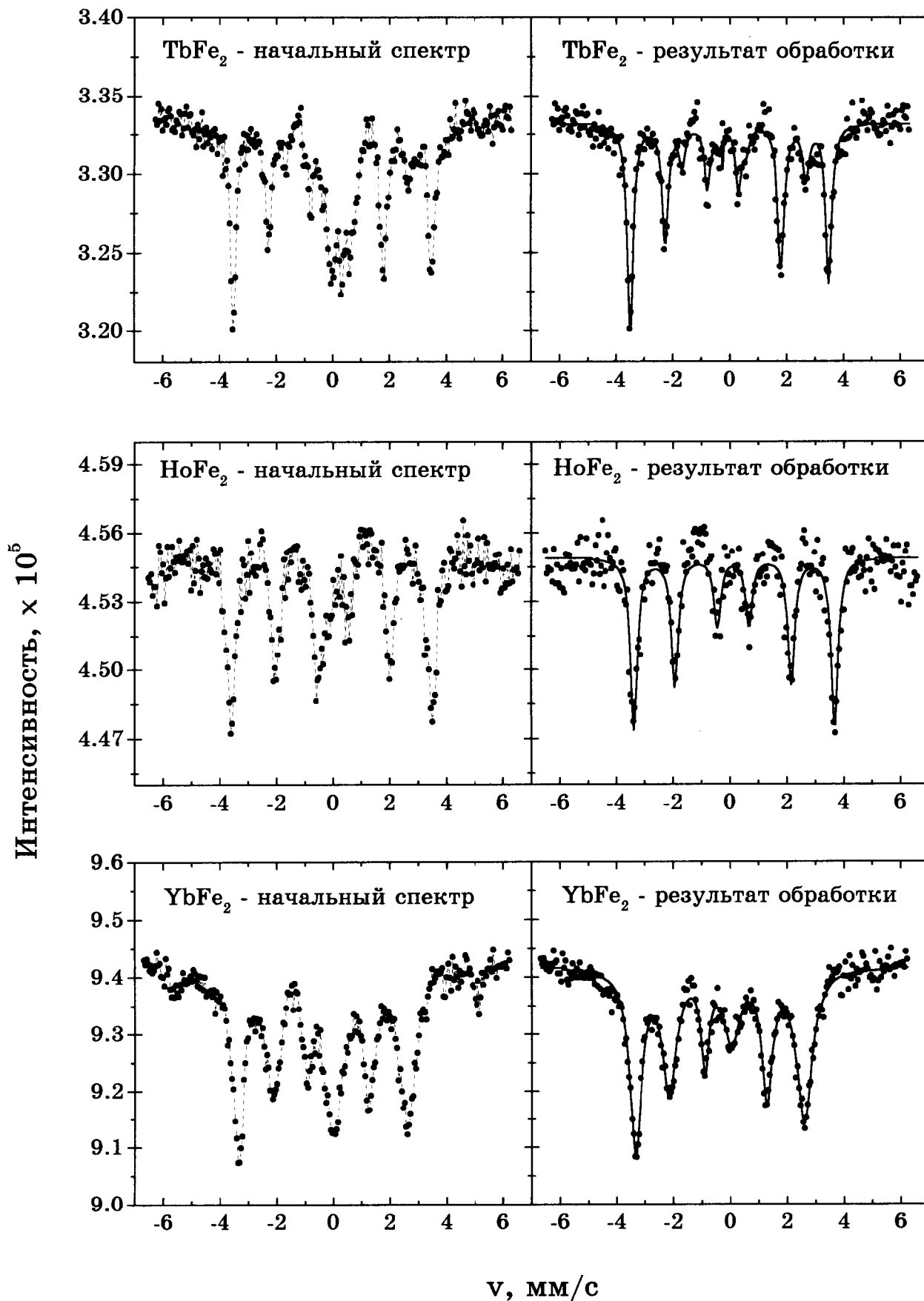


Рис. 1. Мёссбауэровские спектры для образцов  $YbFe_2$ ,  $HoFe_2$ ,  $TbFe_2$ . В левой части — первичные спектры, в правой — спектры, полученные в результате вычитания вкладов от немагнитных соединений железа

Здесь  $\omega_L = 2\pi g\mu_N B_{\text{лф}}/h$  — частота ларморовской прецессии; коэффициент  $A$  вычисляется по известным ядерным параметрам для данного  $\gamma\gamma$ -каскада и в нашем случае, с поправкой на угловое разрешение детекторов,  $A = -0,24$ . Показатель экспоненты  $A$  характеризует разброс частот сверхтонкого взаимодействия за счет несовершенств кристалла в области пробного ядра (в предположении лоренцевского распределения частот около среднего значения).

### 3. Результаты измерений и обсуждение

Мёссбауэровские спектры образцов  $\text{TbFe}_2$ ,  $\text{HoFe}_2$  и  $\text{YbFe}_2$  показаны на рис. 1. В центральной части экспериментальных спектров (левый столбец на рис. 1) наблюдаются линии, соответствующие неидентифицированным немагнитным соединениям железа, которые, по-видимому, содержатся в наружных слоях слитков, покрытых окалиной. После вычитания выделенных при обработке квадрупольных дублетов, обусловленных этими примесями, были получены спектры, представленные в правом столбце рис. 1. Сравнение с литературными данными [5, 7] показало, что они полностью совпадают со спектрами исследуемых фаз Лавеса. Для измерений спектров ВУК из расколотых слитков выби-

рались небольшие блестящие крупинки, свободные от окислы.

Временные спектры анизотропии ВУК для  $^{181}\text{Ta}$  в  $\text{TbFe}_2$ ,  $\text{HoFe}_2$  и  $\text{YbFe}_2$  были измерены в диапазоне от 80 К до температур, превышающих точку Кюри  $T$ . Экспериментальные спектры для  $T = 300$  К и  $T > T_c$  представлены на рис. 2. Для всех исследованных образцов (с учетом конечного разрешающего времени спектрометра  $2\tau_0 = 1,8$  нс) измеренная амплитуда прецессии соответствовала величине  $A = -0,22$  (см. формулу (1)). Это свидетельствует о том, что около 90% ядер  $^{181}\text{Ta}$  находятся в регулярных узлах решетки исследованных соединений.

Наблюдаемое в спектрах ВУК затухание амплитуды прецессии обусловлено, по-видимому, дефектами решетки, создающими в области расположения пробных ядер  $\text{Ta}$  градиент электрического поля (ГЭП) со случайным распределением величины и направления. Этот ГЭП определяет и монотонное уменьшение анизотропии в спектрах, измеренных при  $T > T_c$ . Среднеквадратичное значение квадрупольной частоты, описывающей затухание при  $T = 300$  К, для всех трех образцов лежит в диапазоне 25–40 МГц. Это доказывает, что примесные ядра  $\text{Ta}$  занимают узлы с высокой симметрией, а именно R-узлы в решетке  $\text{RFe}_2$ .

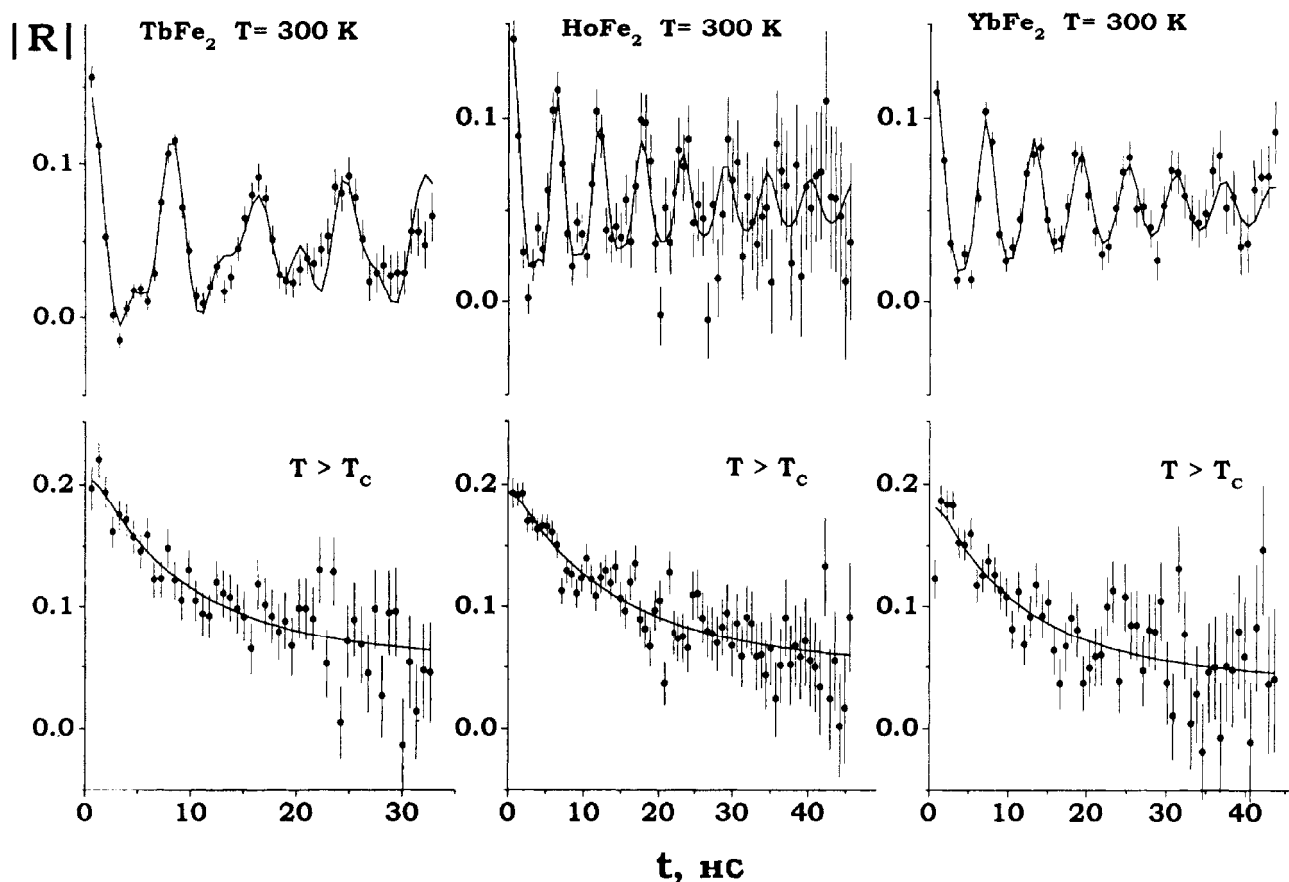


Рис. 2. Спектры анизотропии угловой корреляции  $^{181}\text{Ta}$  в  $\text{YbFe}_2$ ,  $\text{HoFe}_2$  и  $\text{TbFe}_2$ , измеренные при температурах  $T = 300$  К и  $T > T_c$

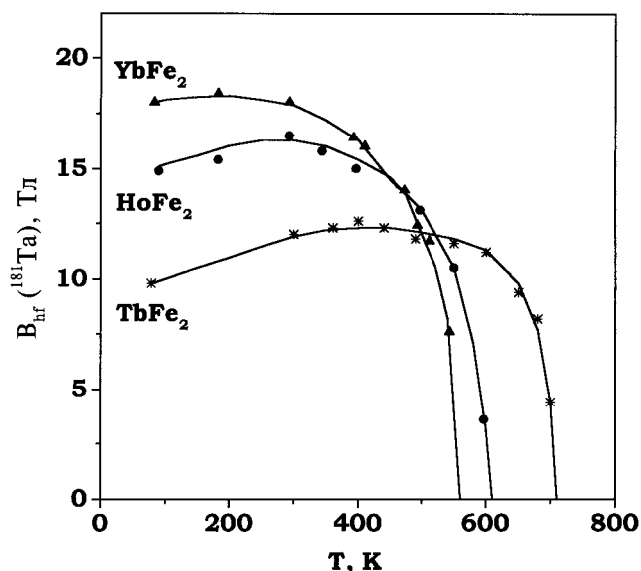


Рис. 3. Температурные зависимости магнитных сверхтонких полей на ядрах <sup>181</sup>Ta в YbFe<sub>2</sub>, HoFe<sub>2</sub> и TbFe<sub>2</sub>

Полученные из обработки спектров ВУК значения магнитных сверхтонких полей на ядрах <sup>181</sup>Ta приведены на рис. 3. В таблице даны значения  $B_{hf}(Ta)$  при  $T = 80$  и  $300$  К для фаз Лавеса RFe<sub>2</sub> с тяжелыми РЗЭ (от Gd до Lu), изученных нами к настоящему времени.

**Значения постоянной решетки, температуры Кюри, магнитных моментов РЗЭ и  $B_{hf}(Ta)$  в фазах Лавеса RFe<sub>2</sub> с тяжелыми РЗЭ**

R-ион	Постоянная решетки, Å	$T_C$ , К	$\mu(R)$ , $\mu_B$	$B_{hf}(Ta)$ , Тл	
				80 К	300 К
Gd	7,39	796	7,0	7,4	9,3
Tb	7,35	697	8,9	9,8	12,1
Dy	7,32	630	9,9	15,5	15,5
Ho	7,30	608	9,9	15,0	16,2
Er	7,28	587	9,0	—	—
Tm	7,23	600	6,9	—	—
Yb	7,24	560	4,0	18,0	18,5
Lu	7,22	596	$\mu(4f) = 0$	20,5	20,5

Значения точек Кюри, определенные по спаду температурных зависимостей  $B_{hf}(Ta)$ , для TbFe<sub>2</sub> и HoFe<sub>2</sub> согласуются с известными значениями  $T$  [1, 5] в пределах  $\pm 5$  К. Для YbFe<sub>2</sub> нами получено значение  $T \cong 560$  К, которое несколько выше приведенного в работе [5] значения 543 К.

Как видно из таблицы, абсолютная величина  $B_{hf}(Ta)$ , в целом, возрастает с увеличением атомного номера R-элемента, в отличие от магнитных сверхтонких полей на ядрах R-элементов и Fe. Величины сверхтонких магнитных полей на ядрах R-элементов, измеренные

методом ядерного магнитного резонанса [5], для тяжелых RFe<sub>2</sub> коррелируют с полным магнитным моментом R-ионов и имеют максимальные значения для Ho и Er. Значения магнитных сверхтонких полей на ядрах Fe во всех RFe<sub>2</sub> близки друг к другу (19–22 Тл [5]), как и магнитные моменты Fe (1,7–1,6  $\mu_B$ ), и имеют тенденцию к незначительному уменьшению с увеличением атомного номера R-элемента ( $\approx 10\%$ ) в тяжелых RFe<sub>2</sub>.

Зависимости  $B_{hf}(Ta)$  от температуры (рис. 3) имеют аномальный характер: в области низких температур, от 80 К до  $\sim 0,5T$ , наблюдается увеличение сверхтонкого поля на ядрах Ta вместо уменьшения, характерного для температурной зависимости полной намагниченности матрицы RFe<sub>2</sub>, а также сверхтонких полей на ядрах Fe и R ионов. Аналогичное поведение, даже более ярко выраженное, наблюдалось нами для NdFe<sub>2</sub>, SmFe<sub>2</sub>, GdFe<sub>2</sub> и DyFe<sub>2</sub>.

Величина  $\Delta = B_{hf}(Ta; T = 0,5T_C) - B_{hf}(Ta; T = 80$  К), которую можно рассматривать как меру температурной аномалии, для RFe<sub>2</sub> с R от Gd до Lu монотонно уменьшается с увеличением номера R. Для LuFe<sub>2</sub> (ион Lu имеет замкнутую 4f-электронную оболочку) температурная зависимость  $B_{hf}(Ta)$  практически повторяет температурную зависимость макроскопической намагниченности ( $T$ ).

Наличие температурной аномалии и ее уменьшение при переходе от Gd к Lu позволяет предположить, что  $B_{hf}(Ta)$  состоит из двух вкладов противоположного знака: вклада, обусловленного поляризованными s-электронами проводимости, и вклада от собственного индуцированного за счет 5d – 3d-гибридизации момента Ta. С уменьшением спинового 4f момента редкоземельного иона величина второго вклада, по-видимому, уменьшается в связи с ослаблением 4f – 5d взаимодействия.

**Литература**

- Wallace W.E. Rare Earth Intermetallics. N.Y., 1973.
- Сорокин А.А., Комиссарова Б.А., Штинькова Л.Г. и др. // Изв. РАН, сер. физ. 1994. **58**, № 4. С. 10.
- Сорокин А.А., Комиссарова Б.А., Рясный Г.К. и др. // ЖЭТФ. 1997. **111**, № 3. С. 1085.
- Yamada H. // Physica B. 1988. **149**. P. 390.
- Meyer C., Hartmann-Boutron F., Gros Y., Berthier Y. // J. de Physique. 1981. **42**. P. 605.
- Tsvyashchenko A.V. // J. Less-Comm. Met. 1984. **99**. P. L9.
- Bowden G.J., Bunbury D.St.P., Guimaraes A.P. et al. // J. Phys. C, ser. 2. 1968. **1**. P. 1376.
- Аксельрод З.З., Комиссарова Б.А., Крюкова Л.Н. и др. // Приб. и техн. эксперимента. 1983. **36**. С. 28.
- Альфа-, бета- и гамма-спектроскопия / Ред. К. Зигбан. М., 1969. Вып 3. С. 211.

Поступила в редакцию 20.12.96