Особенности полевых и температурных зависимостей магнитострикции многокомпонентных сплавов Sm_{0.2}(Y, Tb)_{0.8}Fe₂

Т. А. Алероева,^{1,2} А. С. Илюшин,^{1,3} З. С. Умхаева,^{2,3} Н. Ю. Панкратов,^{1, а} И. С. Терёшина¹

¹ Московский государственный университет имени М.В. Ломоносова,

физический факультет. Россия, 119991, Москва, Ленинские горы, д. 1, стр. 2.

² ФГБОУ ВО «Чеченский государственный университет». Россия, 364907, Грозный, ул. А. Шерипова, 32.

ФГБУН Комплексный исследовательский институт имени Х.И. Ибрагимова РАН.

Россия, 364051, Грозный, Старопромысловское шоссе, 21а.

Поступила в редакцию 19.01.2020, после доработки 05.02.2020, принята к публикации 05.02.2020.

В работе приведены результаты синтеза и изучения магнитострикционных свойств сплавов многокомпонентной системы Sm_{0.2}(Y, Tb)_{0.8}Fe₂. В данной системе, варьируя концентрацию компонент, температуру и внешнее магнитное поле, можно влиять на конкурирующие обменные взаимодействия и наблюдать целый ряд уникальных явлений, таких как компенсация намагниченности и компенсация магнитострикции. Методом рентгеноструктурного фазового анализа установлено, что данные сплавы обладают кристаллической структурой фазы Лавеса C15. Продольная и поперечная магнитострикции исследованы в области температур от 80 до 300 К в магнитных полях до 12 кЭ. При использовании экспериментальных значений были рассчитаны объемная и анизотропная магнитострикции. Обнаружена инверсия знака объемной магнитострикции в соединении Sm_{0.2}Y_{0.8}Fe₂ при T = 150 К. Показано, что объемная магнитострикция ряда исследованных сплавов практически не изменяется и близка к нулевому значению в широкой области температур 150–300 К. Полученные результаты обсуждены в рамках модели трехподрешеточного магнетика с конкурирующими обменными взаимодействиями.

Ключевые слова: фазы Лавеса, магнитострикция, обменные взаимодействия, спин-переориентационный переход.

УДК: 537.634.2, 537.622.6. РАСS: 75.80.+q.

введение

В настоящее время, в связи с бурным развитием ряда отраслей техники и новых технологий остро стоит проблема получения магнитных материалов нового типа с уникальным комплексом свойств. Наибольший интерес вызывают редкоземельные интерметаллиды стехиометрии RM₂ (где R — редкоземельный элемент, а М — 3*d*-элемент) со структурой фаз Лавеса (кубической фазы С15 или гексагональной С14), демонстрирующие огромное разнообразие физических свойств [1-4]. В соединениях данного типа обеспечивается возможность комбинирования в одном соединении магнитоактивных ионов различного типа, благодаря использованию 4*f*- и 3*d*-металлов. В результате получаются сплавы, которым присущи свойства как 3*d*-металлов (достаточно высокие температуры Кюри), так и 4*f*-магнетиков (гигантская магнитострикция и высокая магнитная анизотропия).

Известно [5, 6], что в 4f-3d-магнетиках действуют сравнимые по величине обменные, магнитоанизотропные и магнитоупругие взаимодействия. В результате в них возникают сложные магнитные структуры и фазовые переходы (при изменении внешних параметров, таких как температура, магнитное поле и давление): метамагнитные, спинпереориентационные и др. В области переходов наиболее ярко проявляются особенности магнитных свойств 4f-3d-магнетиков. Кроме того, большинство редкоземельных соединений и сплавов со структурой фазы Лавеса С15 обладает гигантской магнитострикцией [6, 7]. В связи с этим, создание новых композиций с наиболее уникальным комплексом магнитных и магнитострикционных свойств является актуальной задачей. Одним из направлений поиска новых материалов с оптимальными параметрами является создание многокомпонентных систем редкоземельных интерметаллидов с полной или частичной компенсацией магнитной анизотропии. Такая компенсации может быть достигнута в сплавах смешанных квазибинарных составов или более сложных системах.

Следует отметить, что исследование интерметаллических соединений типа RM₂ со структурой фаз Лавеса С15 имеет огромное прикладное значение. Связано это с тем, что, благодаря разнообразию свойств, эти интерметаллиды и родственные им соединения находят широкое применение в металлургии, лазерной технике, полупроводниковой электронике и в других областях. Сплавы и соединения редкоземельных металлов обладают способностью абсорбировать водород в достаточно больших количествах [8, 9], поэтому их можно использовать в качестве аккумуляторов водорода для батарей, топливных элементов и водородных компрессоров. Особо актуально в последнее время применение фаз Лавеса в некоторых областях энергетики и медицины [10].

Теоретические исследования и опыт практического изучения соединений, близких по составу (SmFe₂, TbFe₂ и системы (Sm,Tb)Fe₂ [11–16]), привели нас к необходимости проведения комплексного исследования магнитных и магнитострикционных свойств многокомпонентных сплавов Sm_{0.2}(Y,Tb)_{0.8}Fe₂. Некоторые магнитные характеристики (температуры Кюри, полевые и температурные зависимости намагниченности) данных сплавов ранее исследованы нами в работе [17]. Обнаружен ряд интересных явлений, в том числе явление магнитной компенсации. Упомянутые явления обусловлены изменением знака и величины обменных взаимодействий в системе.

За основу системы $Sm_{0.2}(Y, Tb)_{0.8}Fe_2$ взяты два соединения, $SmFe_2$ и $TbFe_2$, обладающие рекордными значениями констант магнитострикции разного знака. В данной системе наблюдается конкуренция обменных взаимодействий Sm–Fe и Tb–Fe в зависимости от концентрации ионов немагнитного иттрия, вводимых в редкоземельную подрешетку. Обменные взаимодействия, их тип, знак и величина определяют в конечном счете весь спектр уникальных магнитных и магнитострикционных свойств соединений данного типа.

Соединение SmFe₂ демонстрирует отрицательную спонтанную магнитострикцию [15], в то время как соединение TbFe₂ — положительную [13]. Известно, что в системе $Tb_{1-z}Sm_zFe_2$ [11] происходит инверсия знака спонтанной магнитострикции в области концентрации самария z = 0.45. В системе (Sm,Y,Tb)Fe₂ внедрение ионов иттрия позволяет выделить вклад РЗ подрешетки в обменное взаимодействие и изменить концентрацию РЗ ионов, при которой происходит инверсия знака магнитострикционных констант. Так же разбавление редкоземельной подрешетки иттрием в системе Sm_{0.2}(Y, Tb)_{0.8}Fe₂ позволяет (варьируя концентрацию тербия и иттрия) получить состав с полной компенсацией намагниченности [17]. При этом иттрий не вносит изменений в кристаллическую структуру сплава, так как обладает таким же атомным радиусом, что и «редкие земли». Поэтому в системе наблюдаются только эффекты разбавления магнитной редкоземельной подрешетки. Более того, разбавление редкоземельной подрешетки немагнитным иттрием и увеличение расстояния между ионами тербия и самария приводит к изменению величин конкурирующих друг с другом обменных взаимодействий Tb-Fe и Sm-Fe (магнитные моменты ионов Sm³⁺ и Tb³⁺ упорядочиваются соответственно параллельно и антипараллельно моменту железной подрешетки), что должно сказаться на поведении магнитострикционных свойств сплавов системы.

Цель данной работы — изучение особенностей полевых и температурных зависимостей магнитострикции многокомпонентных сплавов Sm_{0.2}(Y, Tb)_{0.8}Fe₂, как свойства наиболее чувствительного к изменениям обменных взаимодействий, а также выявление основных механизмов, ответственных за формирование особенностей на полевых и температурных зависимостях магнитострикции. Для исследований в работе были получены сплавы $Sm_{0.2}(Y_{x}Tb_{1-x})_{0.8}Fe_{2}$ (x = 0, 0.2, 0.4, 0.6, 0.8, 1.0). Исследование магнитострикции сплавов данной системы позволит изучить трансформацию не только межподрешеточного обменного взаимодействия R-Fe (при разбавлении редкоземельной подрешетки атомами немагнитного иттрия), но и обменного взаимодействия в самой редкоземельной подрешетке.

1. ОБРАЗЦЫ И МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Синтез сплавов $Sm_{0.2}(Y_xTb_{1-x})_{0.8}Fe_2$ (x = 0, 0.2, 0.4, 0.6, 0.8, 1.0) произведен на основе высокочистых РЗМ и Fe в дуговой печи с нерасходуемым вольфрамовым электродом на медном водоохлаждаемом поду специальной конструкции в атмосфере очищенного

инертного газа (аргона) при нормальном давлении. Затем образцы подвергались гомогенизирующему отжигу в течение 2 недель.

Аттестация сплавов проводилась методом рентгеноструктурного фазового анализа на дифрактометре «ДРОН-2». В качестве источника рентгеновского излучения использовалась рентгеновская трубка с Си K_{α} -излучением ($\lambda = 0.1540598$ нм). Параметры элементарной ячейки определялись по отражениям в области углов $2\theta = 15-105^{\circ}$. Анализ показал, что соединения Sm_{0.2}(Y, Tb)_{0.8}Fe₂ обладают структурой кубической фазы Лавеса типа С15 (кристаллическая структура типа MgCu₂, пространственная группа Fd3m). В квазибинарных сплавах Sm_{0.2}Y_{0.8}Fe₂, Sm_{0.2}Tb_{0.8}Fe₂ содержалось незначительное количество (3-4%) второй фазы типа RFe₃ (кристаллическая структура типа PuNi₃, пространственная группа R3m). В более сложных составах $Sm_{0.2}(Y_{0.2}Tb_{0.8})_{0.8}Fe_2$, $Sm_{0.2}(Y_{0.4}Tb_{0.6})_{0.8}Fe_2$, Sm_{0.2}(Y_{0.6}Tb_{0.4})_{0.8}Fe₂, Sm_{0.2}(Y_{0.8}Tb_{0.2})_{0.8}Fe₂ содержание второй фазы типа RFe3 варьировалось от 5 до 10%.

Измерения магнитострикции проводилось тензометрическим методом. Использованные в данной работе тензодатчики были изготовлены из тензочувствительной проволоки, не обладавшей заметным гальваномагнитным эффектом. Коэффициент тензочувствительности составлял S = 2.15 во всем температурном интервале. Датчики имели базу с линейным размером 5 мм и сопротивление 120 Ω. При измерениях один датчик наклеивался на образец, а другой, компенсационный, наклеивался на тонкую кварцевую пластинку, которая прижималась к образцу. Оба датчика включались в противоположные плечи моста Уинстона. Сопротивление рабочего и компенсационного тензодатчиков отличались не более чем на 1%. Для градуировки схемы измерялся сигнал разбаланса моста при включении эталонного сопротивления 0.1 Ω. В качестве эталонного образца использовался поликристаллический никель. Образец в криостате помещался в зазор электромагнита. Образцы предварительно охлаждались до температуры 80К в отсутствии магнитного поля, что позволило проводить измерения магнитострикции в интервале температур 80-320 К в магнитных полях до 12 кЭ [18]. Измерения магнитострикции были выполнены на поликристаллических образцах. Были измерены продольная (λ_{\parallel}) и поперечная (λ_{\perp}) магнитострикции. Объемная и анизотропная магнитострикции рассчитывались по формулам

И

(1)

$$\lambda_a = \lambda_{\parallel} - \lambda_{\perp}$$

 $\omega = \lambda_{\parallel} + 2\lambda_{\perp}$

соответственно.

2. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

На рис. 1, *а* представлены зависимости продольной и поперечной магнитострикции от температуры в магнитном поле $H = 12 \, \text{к}\Im$ для соединения $\text{Sm}_{0.2} \text{Y}_{0.8} \text{Fe}_2$. Поперечная магнитострикция для этого состава меняет знак с изменением температуры.



Рис. 1. Температурные (*a*) и полевые (*б*) зависимости продольной и поперечной магнитострикции сплава Sm_{0.2}Y_{0.8}Fe₂ при H = 12 кЭ. Вставка: температурные зависимости продольной и поперечной магнитострикции SmFe₂ при H = 12 кЭ

 λ_{\perp} отрицательна при $T~<~95\,{
m K}.$ Выше $95~{
m K}~\lambda_{\perp}$ положительна и с ростом температуры достигает максимального значения $0.11 \cdot 10^{-3}$ при T = 150 К. В то же время продольная магнитострикция λ_{\parallel} во всем интервале температур отрицательная, при $T = 84 \, {
m K}$ она имеет значение $-0.4 \cdot 10^{-3}$ и уменьшается в 4 раза при нагреве до комнатной температуры. При охлаждении ниже $T < 110\,{
m K}$ наблюдается резкое падение как λ_{\parallel} , так и λ_{\perp} . Данное соединение можно рассматривать как аналог ферромагнитного соединения SmFe2 с разбавлением РЗ подрешетки ионами немагнитного иттрия. Известно, что в соединении SmFe2 имеет место магнитный фазовый переход в температурном интервале 126-188 К (см. вставку к рис. 1, *a*). Аномалии на кривых $\lambda_{\parallel}(T)$ и $\lambda_{\perp}(T)$ объясняются тем, что при $T_{\mathrm{SR1}} = 188\,\mathrm{K}$ происходит переход из ромбоэдрической в «угловую» фазу, в то время как при $T_{SR2} = 126 \,\mathrm{K}$ «угловая» фаза переходит в ромбическую [19]. Сравнение характера температурных зависимостей продольной магнитострикции $\lambda_{\parallel}(T)$ соединений SmFe₂ и Sm_{0.2}Y_{0.8}Fe₂ позволяет предположить, что в Sm_{0.2}Y_{0.8}Fe₂ аналогичный минимум продольной магнитострикции будет наблюдаться ниже температуры кипения жидкого азота, а резкое уменьшение магнитострикции при понижении температуры можно объяснить наличием фазового перехода аналогичного переходу в соединении SmFe₂.

На рис. 1, б показаны полевые зависимости продольной и поперечной магнитострикции для соединения $\mathrm{Sm}_{0.2}\mathrm{Y}_{0.8}\mathrm{Fe}_2$. Для них характерно сложное поведение в области низких температур ($T < 95\,\mathrm{K}$), где рост внешнего магнитного поля приводит к изменению знака поперечной магнитострикции в магнитном поле $H \ge 8\,\mathrm{k}$ Э. Продольная магнитострикция $\mathrm{Sm}_{0.2}\mathrm{Y}_{0.8}\mathrm{Fe}_2$ остается отрицательной при всех температурах. В области температур $T < T_{\mathrm{sr}}$ магнитное поле $H = 12\,\mathrm{k}$ Э недостаточно для насыщения магнитострикционных кривых, в то время как при повышении температуры выше $T_{\mathrm{sr}} = 110\,\mathrm{K}\,\lambda_{\parallel}(H)$ и $\lambda_{\perp}(H)$ выходят на насыщение в магнитных полях $H \ge 6\,\mathrm{k}$ Э.



Рис. 2. Температурные зависимости продольной и поперечной магнитострикции соединения $Sm_{0.2}(Y_{0.8}Tb_{0.2})_{0.8}Fe_2$ в поле H = 12 кЭ. Вставка: температурные зависимости продольной и поперечной магнитострикции соединения $Sm_{0.2}(Y_{0.6}Tb_{0.4})_{0.8}Fe_2$ при H = 12 кЭ

На рис. 2 представлены зависимости продольной и поперечной магнитострикции от температуры в магнитном поле $H = 12 \, \mathrm{k} \Im$ для соединения Sm_{0.2}(Y_{0.8}Tb_{0.2})_{0.8}Fe₂. Поведение магнитострикции в этом соединении отличается от $\lambda_{\parallel}(T)$ и $\lambda_{\perp}(T)$ для сплава Sm_{0.2}Y_{0.8}Fe₂. Легирование тербием приводит к изменению знака магнитострикции. Поперечная магнитострикция во всем исследованном интервале температур становится отрицательной. При температуре кипения жидкого азота поперечная магнитострикция составила $\lambda_{\perp} = -0.4 \cdot 10^{-3}$ и с ростом температуры уменьшается на порядок. В то же время продольная магнитострикция для этого состава меняет знак с изменением температуры. При температуре ниже 100 K λ_{\parallel} отрицательна, при этом ее значение сравнимо с поперечной стрикцией. В интервале температур выше 100 К λ_{\parallel} положительна и демонстрирует широкий максимум в области температур 170- $230\,{
m K}$, достигая максимального значения $0.08\cdot 10^{-3}.$



Рис. 3. Температурные зависимости продольной и поперечной магнитострикции сплавов Sm_{0.2}(Y_{0.4}Tb_{0.6})_{0.8}Fe₂ (*a*), Sm_{0.2}(Y_{0.2}Tb_{0.8})_{0.8}Fe₂ (*b*)

При температуре 100 К как продольная, так и поперечная магнитострикция изменяются скачкообразно на величину $\sim 0.3\cdot 10^{-3}$. Таким образом, фазовый переход в этом соединении наблюдается в виде скачка магнитострикции при температуре $T_{\rm sr} = 100 \, {\rm K}.$ В соединении Sm_{0.2}(Y_{0.8}Tb_{0.2})_{0.8}Fe₂ концентрация ионов самария и тербия близки к друг другу. Ранее в работе [11] рассмотрены магнитострикционные деформации в ряду соединений (Sm, Tb) Fe2 и построена фазовая диаграмма. Было показано, что в области примерно равных концентраций ионов Sm и Tb меняется знак величины спонтанных ромбоэдрических искажений. Изменение знака магнитострикции при легировании тербием в соединении $Sm_{0.2}(Y_{0.8}Tb_{0.2})_{0.8}Fe_2$ коррелирует с изменением знака ромбоэдрических искажений в (Sm,Tb)Fe₂ [11].

На вставке к рис. 2 представлены зависимости продольной и поперечной магнитострикции от температуры в магнитном поле $H = 12 \,\mathrm{k}\Im$ для сплава Sm_{0.2}(Y_{0.6}Tb_{0.4})_{0.8}Fe₂. В этом соединении поперечная магнитострикция во всем интервале температур отрицательная. При температуре кипения жидкого азота $\lambda_{\perp} = -0.08 \cdot 10^{-3}$, а при $T = 180\,\mathrm{K}$ она достигает максимального значения $-0.02 \cdot 10^{-3}$. При температуре 280 К наблюдается минимум поперечной магнитострикции ($\lambda_{\perp} = -0.07 \cdot 10^{-3}$). Продольная магнитострикция для этого состава меняет знак при изменении температуры. В области температур ниже 104 К λ_{\parallel} отрицательная ($\lambda_{\parallel}=-0.04\cdot 10^{-3}$ при T=90 К). Выше 104 К λ_{\parallel} положительная и монотонно возрастает, достигая при комнатной температуре значения 0.12 · 10⁻³. Величины продольной магнитострикции соединений Sm_{0.2}(Y_xTb_{1-x})_{0.8}Fe₂ с концентрацией иттрия x = 0.8 и 0.6 примерно равны, а величина поперечной магнитострикции в соединении с x = 0.6 значительно меньше, чем в соединении с x=0.8. Изменение знака λ_{\parallel} при $T = 104 \,\mathrm{K}$ в $\mathrm{Sm}_{0.2}(\mathrm{Y}_{0.6}\mathrm{Tb}_{0.4})_{0.8}\mathrm{Fe}_2$, по-видимому, также связано с фазовым переходом (по аналогии с составом x = 0.8). Максимум поперечной магнитострикции в области температур 150-200 К обусловлен уменьшением спонтанной намагниченности данного ферримагнетика в результате магнитной компенсации [12].

Температурные зависимости продольной поперечной магнитострикции соединения И $Sm_{0.2}(Y_{0.4}Tb_{0.6})_{0.8}Fe_2$ (x = 0.4) представлены на рис. 3, *a*. Продольная магнитострикция Sm_{0.2}(Y_{0.4}Tb_{0.6})_{0.8}Fe₂ положительна. В то же время поперечная магнитострикция для этого состава во всем интервале температур отрицательна. области температур 85-100 К наблюдаются В аномалии в виде максимумов (и минимумов) на кривых $\lambda_{\parallel}(T)$ и $\lambda_{\perp}(T)$ при всех значениях приложенного магнитного поля. Максимальное значение $\lambda_{\parallel} = 0.35 \cdot 10^{-3}$ при $T = 130\,{
m K}$ в поле $12\,\mathrm{k}\Im$ и с дальнейшем ростом температуры λ_{\parallel} уменьшается, достигая при комнатной температуры значения 0.25 · 10⁻³. При температуре кипения жидкого азота $\lambda_{\perp} = -0.25 \cdot 10^{-3}$ и с ростом температуры уменьшается примерно в 2 раза.

На рис. 3, б показаны температурные зависимости продольной и поперечной магнитострикции соединения $Sm_{0.2}(Y_{0.2}Tb_{0.8})_{0.8}Fe_2$ (x = 0.2). Так же, как и в соединении с x = 0.4, продольная магнитострикция $Sm_{0.2}(Y_{0.2}Tb_{0.8})_{0.8}Fe_2$ положительная, а поперечная — отрицательная. Значение $\lambda_{\parallel} = 0.66 \cdot 10^{-3}$ при температуре 82 К в поле 12 кЭ и с ростом температуры λ_{\parallel} уменьшается, достигая при комнатной температуре значения $0.46 \cdot 10^{-3}$. При температуре кипения жидкого азота $\lambda_{\perp} = -0.36 \cdot 10^{-3}$. С ростом температуры λ_{\perp} уменьшается по абсолютной величине, достигая при комнатной температуре значения $-0.2 \cdot 10^{-3}$.

Для сплава Sm_{0.2}Tb_{0.8}Fe₂ (x = 0) температурные зависимости $\lambda_{\parallel}(T)$ и $\lambda_{\perp}(T)$ исследованы в работе [20]. В данной работе представлены изотермы продольной и поперечной магнитострикции (рис. 4). Для состава Sm_{0.2}Tb_{0.8}Fe₂ продольная магнитострикция положительная в области исследованных температур, а поперечная, наоборот, отрицательная. При этом в поле 12 кЭ продольная магнитострикция достигает гигантского значения $\lambda_{\parallel} \approx 1.2 \cdot 10^{-3}$ при T = 80 К (не выходя на полное насыщение). Поперечная магнитострикция λ_{\perp} , как видно из рисунка, при тех же условиях в 1.5 раза меньше, чем λ_{\parallel} .



Рис. 4. Полевые зависимости продольной и поперечной магнитострикции Sm_{0.2}Tb_{0.8}Fe₂



Рис. 5. Зависимость объемной магнитострикции сплавов системы $Sm_{0.2}(Y_xTb_{1-x})_{0.8}Fe_2$ от температуры в поле $H = 12 \, \mathrm{k}\Im$

На основе результатов исследования продольной и поперечной магнитострикции по формуле (1) определена объемная магнитострикция ω , индуцированная внешним магнитным полем. На рис. 5 показаны температурные зависимости $\omega(T)$ для сплавов системы Sm_{0.2}(Y_xTb_{1-x})_{0.8}Fe₂ (где x = 0, 0.4, 0.8, 1) в магнитном поле H = 12 кЭ. У всех составов в интервале температур 80–320 К объемная магнитострикция отрицательна при низких температурах, а в области комнатной температуры близка к нулю.

В системе исследованных многокомпонентных соединений Sm_{0.2}(Y_xTb_{1-x})_{0.8}Fe₂ объемная магнитострикция демонстрирует аномальное поведение при температурах ниже 110 К. Например, в соединении Sm_{0.2}Y_{0.8}Fe₂ (x = 1) наблюдается резкий рост величины отрицательной объемной магнитострикции при охлаждении. Аномальное поведение зависимости $\omega(T)$ можно связать с трансформацией кристаллической решетки в результате спонтанного спинпереориентационного перехода. Кроме того, в этом соединении ω меняет знак с отрицательного на по-

ложительный при температуре $T = 150 \,\mathrm{K}$. При температуре 80 К значение объемной магнитострикции $\omega = -0.57 \cdot 10^{-3}$. В интервале температур 150-320 К магнитострикция положительна и практически не изменяется ($\omega = 0.02 \cdot 10^{-3}$). Температурные зависимости объемной магнитострикции соединений Sm_{0.2}Y_{0.8}Fe₂ и SmFe₂ отличаются достаточно сильно. Во-первых, частичное замещение атомов Sm в редкоземельной подрешетке ионами немагнитного иттрия вызывает уменьшение магнитострикции при комнатной температуре на 2 порядка. Во-вторых, объемная магнитострикция SmFe₂ в интервале температур 80-320 К положительна и аномалия в области СПП в SmFe₂ проявляется в виде широкого максимума при $T_{SR1} = 188 \,\mathrm{K}$. В отличие от SmFe₂, в соединении $Sm_{0.2}Y_{0.8}Fe_2 \omega(T)$ становится отрицательной в области температур 80-150 К. Столь сильное изменение поведения объемной магнитострикции связано главным образом с изменением обменных взаимодействий при разбавлении РЗ подрешетки ионами иттрия.

Объемная магнитострикция соединения $Sm_{0.2}Tb_{0.8}Fe_2$ (x = 0) отрицательная во всем исследованном интервале температур. В интервале 300 K температур ОТ 110 до наблюдается практически линейное уменьшение величины $\omega(T)$. При изменении температуры от 80 до 300 K значение объемной магнитострикции В поле 12 кЭ уменьшается на порядок. Хотя объемная $TbFe_2$ магнитострикция соединений [12,131 и Sm_{0.2}Tb_{0.8}Fe₂ близки по величине в области температур 80-300 К, однако их температурные зависимости отличаются существенным образом. В соединении Sm_{0.2}Tb_{0.8}Fe₂ вблизи температуры ${\sim}100\,{
m K}$ наблюдается аномалия на кривых $\omega(T)$ в виде изменения наклона. Наличие аномалий зависимости температурной объемной на магнитострикции соединения Sm_{0.2}Tb_{0.8}Fe₂ обусловлено различным температурным поведением намагниченности отдельных подрешеток Объемная Tb и (подрешетки Fe, Sm) [20]. магнитострикция многокомпонентных сплавов $Sm_{0.2}(Y_x Tb_{1-x})_{0.8}Fe_2$ (x = 0.4, 0.8) в магнитном поле *H* = 12 кЭ отрицательна во всем исследованном интервале температур. Важно, что сразу для трех составов $Sm_{0.2}(Y_{x}Tb_{1-x})_{0.8}Fe_{2}$ (где x = 0.4, 0.8 и 1) наблюдается широкая область температур (150- $300 \,\mathrm{K}$), в которой значения ω близки к 0. В соединении $Sm_{0,2}(Y_{0,8}Tb_{0,2})_{0,8}Fe_2$ при уменьшение температуры ниже 110К наблюдается резкий рост величины объемной магнитострикции, вызванный магнитоструктурным фазовым переходом.

Как уже упоминалось выше, сплавы $Sm_{0.2}(Y_xTb_{1-x})_{0.8}Fe_2$ относятся к широкому классу магнитных материалов с конкурирующими обменными взаимодействиями (ферро-, антиферомагнитными), благодаря которым возникают различные магнитоструктурные фазовые переходы, при которых наблюдаются важные (для применения на практике) магнитные явления. Наряду с высокой магнитострикцией возможно наблюдение большого магнитокалорического эффекта, заметного магнитосопротивления и др. явлений [21–27]. Как следует из анализа

составов Sm-Y-Tb-Fe. в них может присутствовать 5 типов обменных взаимодействий, а именно: Fe-Fe, Tb-Fe, Sm-Fe, Tb-Tb и Sm-Sm. В зависимости от значения параметра замещения и температуры наиболее интенсивно проявляется тот или иной тип взаимодействия (ферро- или ферримагнитный). Взаимодействие Fe-Fe — наиболее сильное из них. Однако в сплавах с большим содержанием тербия (как, например, в соединении Sm_{0.2}Tb_{0.8}Fe₂), следующим по величине вкладом в обменное взаимодействие является межподрешеточное Tb–Fe. Обусловлено это тем, взаимодействие что магнитный момент атомов тербия $\mu = 9 \mu_{\rm B}$, в то время как магнитный момент атомов самария невелик $\mu = 0.7 \,\mu_{\rm B}$ и количество атомов Sm относительно небольшое и фиксированное во всех составах. Магнитный момент на ионах железа $\mu_{\rm Fe} = 1.45 \ \mu_{\rm B}/{\rm Fe}$ [28]. Тогда магнитный момент подрешетки Tb может быть рассчитан в зависимости от параметра замещения по формуле: $\mu_{\rm Tb}(x) = 0.8 \cdot (1-x) \cdot 9 \ \mu_{\rm B} = (1-x)7.2 \ \mu_{\rm B}/{\rm f.u.}$

В том случае, когда в модели ферримагнетика с тремя магнитными подрешетками (Tb, Sm, Fe) магнитные моменты ориентированы коллинеарно относительно друг друга, величина полного магнитного момента является суперпозицией трех вкладов:

$$\mu(x) = 2\mu_{\rm Fe} - \mu_{\rm Tb}(x) + \mu_{\rm Sm}.$$
 (2)

Поскольку магнитный момент тербия в нашей модели линейно зависит от параметра замещения, то и полный магнитный момент демонстрирует линейную зависимость от концентрации иттрия. Формула (2) позволяет получить как положительные, так и отрицательные значения (для области параметра замещения x в интервале от 0 до 1), поэтому для оценки величины магнитного момента соединений надо использовать абсолютное значение. По мере замещения редкоземельного Тb ионами немагнитного У происходит уменьшение полного магнитного момента $\mu(x)$. Линейная зависимость $\mu(x)$ достигает нулевого значения при $x \sim 0.6$. Следовательно, состав Sm_{0.2}(Y_{0.6}Tb_{0.4})_{0.8}Fe₂ является компенсационным. Наши расчеты согласуются с экспериментальными данными по намагниченности [17]. Подобное поведение намагниченности также обнаружено в системе многокомпонентных сплавов (Tb_{0.2}Pr_{0.8})_xY_{1-x}Fe₂ – внедрение немагнитного У приводит к появлению компенсационного состава при концентрации x = 0.6 [21].

Объемная магнитострикция в многоподрешеточных магнетиках изменяется аномально по сравнению с одно- и двухподрешеточными ферромагнетиками, так как она зависит от намагниченности всех подрешеток, а, как уже было показано выше, намагниченность подрешеток по-разному зависит от концентрации замещающего элемента, а также от температуры. Вследствие этого аномальное поведение магнитострикции в области спин-переориентационных переходов имеет более выраженный характер, чем изменение намагниченности [29].

В области парапроцесса, в отличие от ферромагнетиков, объемная магнитострикция ферримагнетика с двумя подрешетками имеет сложную зависимость от магнитных моментов подрешеток [30]:

$$\omega = n_{\rm Fe} \cdot \mu_{\rm Fe}^2 + n_{\rm R-Fe} \cdot \mu_{\rm R} \cdot \mu_{\rm Fe} + n_{\rm R} \cdot \mu_{\rm R}^2, \qquad (3)$$

где n_R, n_{Fe} — это магнитоупругий обменный параметр для РЗ и 3*d*-подрешеток и $n_{\rm R-Fe}$ — параметр межподрешеточного магнитоупругого-обменного взаимодействия, $\mu_{\rm R}$ и $\mu_{\rm Fe}$ — магнитные моменты РЗ и 3*d*-подрешеток. В первом приближении мы можем применить данную формулу для исследуемых соединений, выражая магнитный момент РЗ подрешетки через моменты самария и тербия $\mu_{\rm R} = |\mu_{\rm Sm} - \mu_{\rm Tb}(x)|.$ Разность под знаком модуля будет линейно зависеть от параметра замещения x. Первый член в (3) отвечает за вклад в магнитострикцию от железной подрешетки и не зависит от параметра замещения. Этот вклад можно оценить из результатов объемной магнитострикции соединения YFe2, магнитострикция которого крайне мала и не показывает каких-либо аномалий. Третий член в формуле (3) обычно достаточно мал в РЗ интерметаллидах с высоким содержанием 3*d*-металла [30]. Таким образом, основной вклад в объемную магнитострикцию дает второй член, т.е. магнитострикция парапроцесса обусловлена обменным взаимодействием между железной подрешеткой и подрешеткой РЗ металлов (тербия и самария). Знак параметра n_{R-Fe} тоже будет зависеть от параметра замещения. Только в соединении Sm_{0.2}Y_{0.8}Fe₂ (без тербия) обменный параметр межподрешеточного упругого взаимодействия будет положительным, а в соединениях с тербием $n_{\rm R-Fe}$ становиться отрицательным. Следовательно, положительная объемная магнитострикция Sm_{0.2}Y_{0.8}Fe₂ обусловлена обменным взаимодействием. При внедрении Tb обменная магнитострикция становится отрицательной.

Как показали наши исследования (рис. 5), в сплавах системы $Sm_{0,2}(Y_{x}Tb_{1-x})_{0,8}Fe_{2}$ конкуренция всех типов обменных взаимодействий наиболее сильно сказывается в области низких температур *T* < 100 К. Именно в этой области, к примеру, наблюдаются спин-переориентационные переходы в сплавах Sm_{0.2}Y_{0.8}Fe₂ и Sm_{0.2}(Y_{0.8}Tb_{0.2})_{0.8}Fe₂, которые ясно прослеживаются на температурных зависимостях продольной, поперечной и объемной магнитострикций. Хотя в составе Sm_{0.2}(Y_{0.8}Tb_{0.2})_{0.8}Fe₂ концентрация атомов самария немного превышает концентрацию атомов тербия, атомы иттрия настолько уменьшают величину интеграла обменного взаимодействия Sm-Fe, что им практически можно пренебречь во всех составах с $x \geqslant 0.8$. Введение немагнитного иттрия приводит к разбавлению редкоземельной подрешетки. Уменьшаются обменные взаимодействия R-Fe, а также обменные взаимодействия внутри редкоземельной подрешетки (Sm–Sm и Tb–Tb), что приводит в области параметра замещения x = 0.6к полной взаимной компенсации редкоземельной и железной подрешеток. Именно в этой области концентраций значительно уменьшаются все деформации, которым подвергается кристаллическая структура при переходе в магнитоупорядоченное состояние, и она стремится вернуться к первоначальному (недеформированному) состоянию.

Рассмотрим магнитострикцию кубического ферримагнетика в рамках модели одноионной магнитострикции. Полную магнитострикцию можно представить в следующем виде [29, 31]:

$$\frac{\Delta\ell}{\ell} = \frac{3}{2}\lambda_{\rm R}\left(\cos^2\psi_{\rm R} - \frac{1}{3}\right) + \frac{3}{2}\lambda_{\rm Fe}\left(\cos^2\psi_{\rm Fe} - \frac{1}{3}\right) + n_{\rm R-Fe}\left[\mu_{\rm R}\mu_{\rm Fe} + \mu_{\rm R}\mu_{\rm Fe}\cos\left(\theta_{\rm R} + \theta_{\rm Fe}\right)\right].$$
 (4)

Здесь первые два члена обозначают анизотропную магнитострикцию РЗ и 3d-подрешетки, $\psi_{\rm R}$ и $\psi_{\rm Fe}$ углы между векторами намагниченности и направлением измерения магнитострикции. Последний член в формуле (4) описывает вклад объемной магнитострикции парапроцесса, $\theta_{\rm R}$ и $\theta_{\rm Fe}$ — углы между векторами магнитного момента подрешеток и направлением внешнего магнитного поля. Экспериментальные данные для YFe2 показывают, что анизотропная магнитострикция подрешетки железа на 2 порядка меньше, чем стрикция в составах TbFe₂ или SmFe₂ [30]. Тогда, в первом приближении, без учета вклада магнитокристаллической анизотропии в кубическом ферримагнетике магнитострикция определяется одноионным вкладом анизотропной стрикции и обменным вкладом изотропной объемной стрикции парапроцесса. Для случая продольной магнитострикции углы $\psi_{\rm R}$ и $\theta_{\rm R}$ равны, тогда формулу (4) можно преобразовать к виду

$$\lambda_{\parallel} = \frac{3}{2} \lambda_{\rm R} \left(H, T \right) \left(\cos^2 \theta_{\rm R} - \frac{1}{3} \right) + n_{\rm RFe} \left[(\mu_{\rm R})_S \mu_{\rm Fe} + \mu_{\rm R} (T, H) \mu_{\rm Fe} \cos(\theta_{\rm R} + \theta_{\rm Fe}) \right], \quad (5)$$

где $(\mu_R)_S$ характеризует прирост намагниченности РЗ подрешетки в области парапроцесса. В формуле (5) первый член описывает одноионный вклад, в то время как второй член показывает вклад в магнитострикцию от парапроцесса. В коллинеарном ферримагнетике в полях выше поля насыщения (парапроцесс) углы $\theta_{\rm R}$ и $\theta_{\rm Fe}$ равны 0 и π соответственно. На рис. 1, б и рис. 4 представлены полевые зависимости магнитострикции для соединений Sm_{0.2}Y_{0.8}Fe₂ и Sm_{0.2}Tb_{0.8}Fe₂ соответственно. Видно, что в соединении Sm_{0.2}Y_{0.8}Fe₂ в области температур выше 170 К кривые $\lambda_{\parallel}(H)$ выходят на насыщение в полях выше 8 кЭ, и в этом случае доминирует вклад в магнитострикцию от парапроцесса. При низких температурах (< 170 К) для данного соединения и для сплава Sm_{0.2}Tb_{0.8}Fe₂ насыщение кривых магнитострикции не наблюдается, следовательно, здесь основным вкладом в магнитострикцию является одноионный.

В кубических интерметаллидах RFe₂ преобладает одноионная анизотропная магнитострикция, в отличие от соединений RCo₂, где возникает большая по величине объемная магнитострикция [32]. Рис. 6 демонстрирует температурные зависимости анизотропной магнитострикции λ_a в магнитном поле $H = 12 \, \text{к} \Im$ для сплавов Sm_{0.2}(Y_xTb_{1-x})_{0.8}Fe₂ с различной концентрацией тербия. Для сравнения на рис. 6 показана температурная зависимость магнитострикция соединения SmFe₂ в таком же магнитном поле [19]. Соединения SmFe₂ и Sm_{0.2}Y_{0.8}Fe₂



Рис. 6. Температурные зависимости анизотропной магнитострикции соединений $\text{Sm}_{0.2}(Y_x\text{Tb}_{1-x})_{0.8}\text{Fe}_2$ и SmFe₂ в поле $H = 12 \, \mathrm{k}\Im$

являются ферромагнетиками, и оба этих соединения демонстрируют отрицательную анизотропную одноионную магнитострикцию. При этом магнитострикция $Sm_{0.2}Y_{0.8}Fe_2$ в 10 раз меньше, чем в $SmFe_2$. Константа одноионной магнитострикции зависит от концентрации магнитоактивных ионов (Sm) и кристаллического поля, создаваемого локальным окружением. При уменьшении концентрации самария в $Sm_{0.2}Y_{0.8}Fe_2$ в 5 раз величина стрикции также должна уменьшиться на эту же величину. Однако уменьшение значительно больше. Следовательно, при замещении Sm ионами иттрия происходит, в том числе, и уменьшение величины кристаллического поля.

Соединение Sm_{0.2}(Y_{0.6}Tb_{0.4})_{0.8}Fe₂ демонстрирует наименьшую величину анизотропной магнитострикции. Это уменьшение связано с уменьшением намагниченности, поскольку данный состав является компенсационным. Во всех других соединениях с тербием наблюдается положительная анизотропная магнитострикция. В области параметра замещения x < 0.6 в соединениях Sm_{0.2}(Y_xTb_{1-x})_{0.8}Fe₂ происходит ее возрастание в зависимости от концентрации ионов тербия. Все низкотемпературные (T < 100 K) аномалии анизотропиной магнитострикции вызваны магнитоструктурным переходом и связаны с возрастанием констант магнитокристаллической анизотропии при уменьшении температуры.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В заключение важно отметить, что в работе удалось получить практически однофазные многокомпонентные сплавы $Sm_{0.2}(Y, Tb)_{0.8}Fe_2$, а также провести исследования полевых и температурных зависимостей магнитострикции (как продольной, так и поперечной) в широком интервале температур в невысоких магнитных полях до 12 кЭ. Это позволило произвести расчеты объемной и анизотропной магнитострикции для исследуемых составов и выявить соединения с практически нулевой объемной магнитострикцией в области температур 150–300 К. Кроме того, установлено, что ряд составов демонстрируют магнитоструктурный фазовый переход в области температур 80-100 К. Найдено, что в ферромагнитном соединении Sm_{0.2}Y_{0.8}Fe₂ наблюдается положительная объемная магнитострикция, обусловленная обменным вкладом. При легировании ионами тербия объемная магнитострикция становится отрицательной благодаря отрицательному обменному взаимодействию между ионами тербия и подрешеткой железа. Таким образом, установлено, что знак объемной магнитострикции коррелирует со знаком межподрешеточного обменного взаимодействия в соединениях Sm_{0.2}(Y, Tb)_{0.8}Fe₂. Показано, что в исследованных составах основным вкладом в магнитострикцию является одноионный анизотропный вклад РЗ подрешетки, что коррелирует с исследованиями магнитострикции бинарных редкоземельных сплавов фазы Лавесса с железом.

Авторы выражают благодарность профессору С.А. Никитину за помощь в получении экспериментальных данных. Исследование выполнено за счет гранта Российского фонда фундаментальных исследований № 19-32-50025.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Ren W. J., Zhang Z. D. // Chin. Phys. B. 2013. 22, N 7. 077507.
- Wang N. J., Liu Y., Zhang H. W. et al. // China Foundry. 2016. 13. N 2. P. 75.
- Tereshina I., Cwik J., Tereshina E. et al. // IEEE Trans. Mag. 2014. 50. N 11. 2504604.
- Grössinger R., Turtelli R.S. Mehmood N. // IOP Conf. Series: Materials Science and Engineer. 2014. 60. 012002.
- 5. Тейлор К. Интерметаллические соединения редкоземельных металлов. М.: Мир, 1974.
- 6. Белов К. П. Магнитострикционные явления и их технические приложения. М.: Наука, 1987.
- 7. Илюшин А.С. Основы структурной физики редкоземельных интерметаллических соединений. М.: МГУ, 2005.
- Сташкова Л. А., Гавико В. С., Мушников Н. М., Терентьев П. Б. // Физика металлов и металловедение. 2013. 114, № 12. С. 985. (Stashkova L. A., Gaviko V. S., Mushnikov N. V., Terent'ev P. B. // Phys. Metals and Metal. 2013. 114, N 12. P. 985.)
- 9. Терёшина И.С., Каминская Т.П., Чжан В.Б. и др. // ФТТ. 2019. **61**, № 7. С. 1229. (*Tereshina I.S., Kaminskaya T.P., Chzhan V.B.* et al. // Physics of the Solid State. 2019. **61**, N 7. P. 1169.)
- Chzhan V.B., Tereshina I.S., Karpenkov A.Yu., Tereshina-Chitrova E.A. // Acta Materialia. 2018. 154 P. 303.
- 11. Илюшин С.А., Солодов Е.В., Умхаева З.С. // Перспективные материалы. 2013. **11**. С. 42. (Ilushin A.S.,

Solodov Ye. V., Umkhaeva Z. S. // Perspektivnye Materialy. 2013. **11**. P. 42.)

- Buck S., Fähnle M. // J. Magn. Magn. Matter. 1999.
 204. P. L1.
- Tang Y. M., Chen L. Y., Zhang L. et al. // J. Appl. Phys. 2014. 115, N 17. 173902.
- Samata H., Fujiwara N., Nagata Y. et al. // J. Magn. Magn. Mater. 1999. 195, N 2. P. 376.
- Liu X. N., Lin K, Gao Q. L. et al. // Inorganic chemistry. 2018. 57, N 2. P. 689.
- Gaviko V.S., Korolyov A.V., Mushnikov N.V. // J. Magn. Magn. Matter. 1995. 157. P. 659.
- Umkhaeva Z. S., Ilyushin A. S., Aleroeva T. A. et al // Advan. in Engin. Research. 2018. 177. P. 198.
- Bodriakov V. Yu., Ivanova T. I., Nikitin S. A., Tereshina I. S. // J. Alloys and Compounds. 1997. 259, N 1–2. P. 265.
- Политова Г.А., Карпенков А.Ю., Каминская Т.П. и др. // НТВ СПбГПУ. 2019. 12, № 1. С. 28. (Politova G.A., Karpenkov A. Yu., Kaminskaya T.P., et al. // St. Petersburg Polytechnical State University Journal. Physics and Mathematics. 2019. 12, N 1. P. 28.)
- 20. Алероева Т.А., Терешина И.С., Умхаева З.С. и др. // ФТТ. 2019. **61**, № 12. С. 2471.
- Zhang G. B., Liu Y. D., Kan C. X. et al // Materials Research Bulletin. 2019. 112. P. 174.
- Ren W. J., Yang B.Li, Zhao X. G. et al. // Physica B. 2009. 404, N 20. P. 3410.
- Каманцев А. П., Коледов В. В., Маширов А. В. и др. // Известия РАН. Сер. физ. 2014. 78, № 9. С. 1180. (Kamantsev A. P., Koledov V. V., Mashirov A. V. et al. // Bulletin of the RAS. 2014. 78. Р. 936.)
- Tereshina I., Politova G., Tereshina E. et al. // J. Phys.: Conf. Series. 2010. 200. 092012.
- Wang Y., Ma T. Y., Wu C. et al. // AIP Advances. 2017.
 7. 075311.
- Tereshina I., Politova G., Tereshina E. et al. // J. Phys.: Conf. Series. 2011. 266. 012077.
- Tereshina I., Politova G., Tereshina E. et al. // J. Phys.: Conf. Series. 2011. 303. 012024.
- Buschow K. H. J., van Diepen A. M. // Solid State Com. 1976. 19. P. 79.
- 29. Белов К. П., Звездин А. К., Кадомцева А. М., Левитин Р. З. Ориентационные переходы в редкоземельных магнетиках. М. Наука. 1979.
- Andreev A. V. Handbook of Magnetic Materials. 1995. 8. P. 59.
- Белов К. П., Катаев Г. И., Левитин Р. З. и др. // УФН. 1983. 140. С. 271. (Belov К. Р., Kataev G. I., Levitin R. Z. et al // Sov. phys. uspekhi. 1983. 26. P. 518.)
- 32. Никитин С.А. // Вестн. Моск. ун-та. Физ. Астрон. 2011. № 6. С. 27. (Nikitin S.A. // Moscow Univ. Phys. Bull. 2011. 66, N 6. P. 519.)

Specific Features in the Field and Temperature Dependences of the Magnetostriction of Multicomponent $Sm_{0.2}(Y,Tb)_{0.8}Fe_2$ Alloys

T. A. Aleroeva^{1,2}, A. S. Ilyushin^{1,3}, Z. S. Umkhaeva^{2,3}, N. Yu. Pankratov^{1,a}, I. S. Tereshina¹

¹Faculty of Physics, Lomonosov Moscow State University. Moscow 119991, Russia.

²Chechen State University. Grozny 364907, Russia.

³Ibragimov Complex institut, RAS. Grozny 364051, Russia.

E-mail: ^apankratov@phys.msu.ru.

This paper presents results on the synthesis of multicomponent $Sm_{0.2}(Y, Tb)_{0.8}Fe_2$ alloys and the study of their magnetostriction properties. In this system, it is possible to control competing exchange interactions by varying

the concentrations of components, the temperature, and the external magnetic field and to observe a variety of unique phenomena, such as magnetization and magnetostriction compensation. Using X-ray diffraction analysis, it has been established that these alloys have a cubic crystal structure of the C₁₅ Laves phase. Longitudinal and transversal magnetostrictions were studied within a temperature range from 80 to 300 K in magnetic fields of up to 12 kOe. The bulk and anisotropic magnetostrictions were calculated from experimental values. The sign inversion of bulk magnetostriction in Sm_{0.2}Y_{0.8}Fe₂ was revealed at T = 150 K. It has been shown that the bulk magnetostriction of some studied alloys is almost invariable and close to zero within a broad temperature range of 150–300 K. The results are discussed within the model of a three-sublattice magnet with competing exchange interactions.

Keywords: Laves phases, magnetostriction, exchange interactions, spin-reorientation transition. PACS: 75.80.+q.

Received 19 January 2020.

English version: Moscow University Physics Bulletin. 2020. 75, No. 3. Pp. 257-265.

Сведения об авторах

- 1. Алероева Тамила Ахмадовна аспирант, e-mail: taleroy@mail.ru.
- 2. Илюшин Александр Сергеевич доктор физ.-мат. наук, профессор, зав. кафедрой; тел.: (495) 939-23-87, e-mail: sols146i@phys.msu.ru.
- 3. Умхаева Зарган Сайпудиновна доктор физ.-мат. наук, доцент, профессор; e-mail: zargan.umhaeva@yandex.ru.
- 4. Панкратов Николай Юрьевич канд. физ.-мат. наук, ст. науч. сотрудник; тел.: (495) 939-49-02, e-mail: pankratov@phys.msu.ru.
- 5. Терёшина Ирина Семеновна доктор физ.-мат. наук, вед. науч. сотрудник; e-mail: irina_tereshina@mail.ru.