

МАГНИТНАЯ СТРУКТУРА UPd_2Ge_2 , ДОПИРОВАННОГО ЖЕЛЕЗОМ

А.М.Балагуров, В.В.Сиколенко, И.С.Любутин⁺¹⁾, Ж.Андрэ*²⁾, Ф.Бурэ*²⁾,
Х.М.Ду^{□2)}

Лаборатория нейтронной физики, ОИЯИ, 141980 Дубна, Россия

⁺ *Институт кристаллографии РАН, 117333 Москва, Россия*

^{*} *Laboratoire Leon Brillouin, CEA-CNRS, CE-Saclay, 91191, Gif-sur-Yvette, France,*

[□] *Department of Physics, National Kaohsiung Normal University, Kaohsiung, Taiwan 802*

Поступила в редакцию 9 октября 1997 г.

Нейтроннографические исследования показали, что 2% атомов Fe, замещающих Pd, радикально меняют магнитную структуру UPd_2Ge_2 . Если в недопированном соединении магнитная структура при $T < 50$ К представляет собой продольную волну спиновой плотности (LSDW) с "квадратной" модуляцией, то в поликристаллическом $U(Pd_{0.98}Fe_{0.02})_2Ge_2$ ниже 65 К обнаружена "простая" антиферромагнитная (AF) фаза и синусоидально модулированная LSDW – AF фаза в интервале температур между 65 К и точкой Нееля $T_N = 135$ К. В интервале $65 < T < 135$ К магнитная ячейка несообразна с кристаллической, за исключением точки $T = 93$ К, где волновой вектор магнитной структуры проходит через "соразмерное" значение 0.75. Ниже T_N магнитные моменты атомов урана всегда параллельны тетрагональной оси с элементарной ячейки.

PACS: 75.25.+z

Первые нейтроннографические исследования UPd_2Ge_2 [1] обнаружили ниже $T_N = 140$ К магнитную структуру антиферромагнитного (AF) типа с модулированной продольной волной спиновой плотности (LSDW). Недавние магнитные измерения [2–5] указали на наличие по крайней мере двух дополнительных магнитных переходов в районе 87 К и 50 К и на возможное сосуществование при низких температурах нескольких магнитных фаз – AF, ферромагнитной (FM), метамагнитной (MM) и спинового стекла (SG). Это стимулировало повторные нейтроннографические исследования UPd_2Ge_2 [6] с гораздо лучшим разрешением и точностью, чем в ранней работе [1]. Было показано, что при $1.4 \leq T \leq 50$ К магнитная структура UPd_2Ge_2 описывается соразмерной LSDW с "квадратной" модуляцией и с магнитным волновым вектором $\mathbf{k} = (0, 0, 3/4)$. При $95 \leq T \leq T_N$ ($T_N = 135$ К) магнитная структура представляет собой несообразную LSDW с синусоидальной модуляцией. В интервале $50 \leq T \leq 95$ К структура представлена смесью этих двух фаз и постепенно преобразуется из квадратно- в синусоидально модулированную, при этом около 80 К происходит фазовый переход первого рода из соразмерной фазы в несообразную, выражающийся в резком изменении величины k_z . Носителями магнитного момента являются только атомы урана, и направление моментов параллельно оси с элементарной ячейки.

¹⁾ e-mail: root@magnet.crystal.msk.su

²⁾ G.André, F.Bourée, H.M.Duh

Система $UPd_2Ge_2 - UFe_2Ge_2$ образует непрерывный ряд твердых растворов со структурой типа $ThCr_2Si_2$ [3, 4], при этом любопытно, что конечный член этого ряда UFe_2Ge_2 немагнитен и проявляет свойства парамагнетика Паули [7, 4]. Измерения магнитной восприимчивости и намагниченности в системе $U(Pd_{1-x}Fe_x)_2Ge_2$ показали, что даже очень маленькая концентрация железа радикально меняет магнитное состояние исходного соединения UPd_2Ge_2 [3, 4]. В частности, 2% Fe являются критической концентрацией, при которой резко меняется ряд магнитных свойств.

Мы провели нейтронографические магнитные и структурные исследования системы $U(Pd_{1-x}Fe_x)_2Ge_2$ для различных концентраций Fe и Pd. В настоящей работе представлены результаты для критической концентрации $x = 0.02$.

Поликристаллические образцы чистого UPd_2Ge_2 и допированного $U(Pd_{0.98}F_{0.02})_2Ge_2$ образцов были приготовлены расплавлением стехиометрических количеств составляющих материалов в аргоновой дуговой печи. Детали методики приготовления описаны в [3]. Измерения магнитной восприимчивости и намагниченности выполнены на СКВИД-магнетометре в температурном интервале 5 – 300 К и во внешних магнитных полях H до 5.5 Тл.

Нейтронографические данные по уточнению структуры были получены для нескольких температур на фурье-дифрактометре высокого разрешения на импульсном реакторе ИБР-2 в Дубне. Для нейтронных магнитных исследований использовался дифрактометр G4.1 на реакторе Orphee в Сакле (Франция) с длиной волны нейтронов 2.426 Å. Все нейтронограммы, полученные на G4.1, записывались в режиме увеличения температуры от 1.4 К до 142 К. Данные анализировались по методу Ритвельда с использованием программ MR1A и FullProf [8, 9].

На рис.1 показаны температурные зависимости магнитной восприимчивости χ для чистого и допированного железом образцов. На вставке к рис.1 показаны также кривые обратной восприимчивости $1/\chi = f(T)$. Кроме магнитной аномалии при T_N , в обоих образцах наблюдаются две дополнительные аномалии. В UPd_2Ge_2 восприимчивость проходит через максимум при $T_{m1} = 87$ К и при $T_{m2} \approx 50$ К. В $U(Pd_{0.98}F_{0.02})_2Ge_2$ максимум восприимчивости при T_{m1} сдвигается к 74 К и становится очень интенсивным, тогда как максимум при $T_{m2} \approx 50$ К сильно подавлен.

Нейтронограммы высокого разрешения подтвердили, что $U(Pd_{0.98}F_{0.02})_2Ge_2$ имеет простую объемно-центрированную тетрагональную структуру типа $ThCr_2Si_2$ с пространственной группой $I4/mmm$ и с атомами в следующих кристаллографических позициях: U в $2(a)$: 0,0,0; Pd (Fe) в $4(d)$: 0,1/2,1/4; Ge в $4(e)$: 0,0, z . Были уточнены z -координата Ge и тепловые факторы для всех атомов, и в их температурной зависимости не обнаружено сколько-нибудь существенных аномалий.

Из ядерных дифракционных пиков, полученных на дифрактометре G4.1, были уточнены только координата $z(Ge)$ и параметры решетки. Найдено, что $z(Ge) = 0.3812(2)$ при 142 К, и этот параметр остается постоянным вплоть до 1.4 К. На температурных зависимостях параметров решетки a и c обнаружена небольшая аномалия в области 65 К, которая не наблюдалась в чистом UPd_2Ge_2 [6].

Из нейтронных данных следует, что при $T < 65$ К соединение $U(Pd_{0.98}F_{0.02})_2Ge_2$ обладает простой АФ-структурой с волновым вектором $k = c^*$. Магнитные моменты урана параллельны оси c , и магнитная элементарная ячейка совпадает с ядерной ячейкой. Единственное различие между ними состоит в том, что для магнитной ячейки не выполняется объемно-центрированная симметрия (магнитные моменты

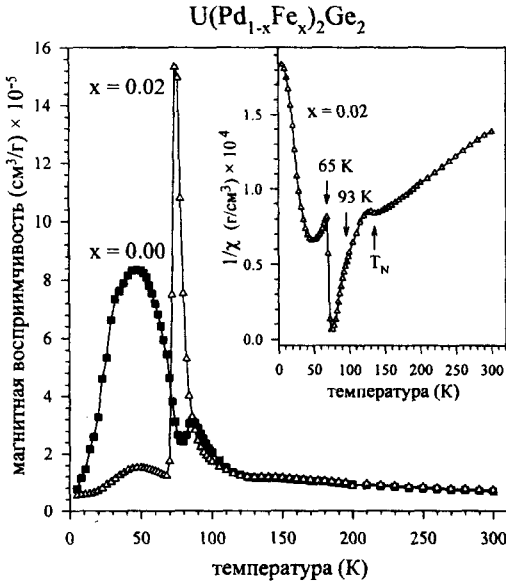


Рис.1. Температурная зависимость магнитной восприимчивости в поле $H = 2$ кЭ для чистого UPd_2Ge_2 и допированного железом $U(Pd_{0.98}F_{0.02})_2Ge_2$. На вставке показана обратная восприимчивость для $U(Pd_{0.98}F_{0.02})_2Ge_2$

имеют противоположные направления в точках $(0,0,0)$ и $(1/2,1/2,1/2)$ и, как следствие этого, магнитные пики с $h+k+1 \neq 2n$ видны в низкотемпературных дифракционных спектрах.

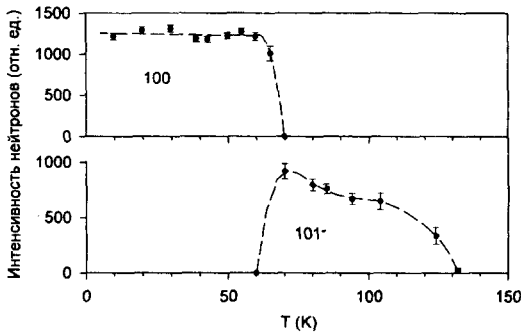


Рис.2. Температурная зависимость интенсивности магнитных брэгговских пиков 100 и 101^- . Пик 100 исчезает при $T \approx 65$ К, тогда как пик 101^- появляется при той же температуре

На рис.2 показаны температурные изменения интенсивности магнитных пиков (100) и (101^-) , относящихся, соответственно, к соразмерной и несообразной фазам. Формально переход к несообразной структуре при $T = 65$ К проявляется в резком уменьшении z -компоненты волнового вектора k от 1 до 0.76 (в единицах c^*) (см. рис.3). При $T > 65$ магнитная структура $U(Pd_{0.98}F_{0.02})_2Ge_2$ представляет собой несообразную продольную волну спиновой плотности (LSDW) с синусоидальной модуляцией. В очень узком температурном интервале около 65 К фазы AF и LSDW сосуществуют.

Мы наблюдали еще один любопытный эффект: выше 65 К, по мере того, как волновой вектор медленно уменьшается (рис.3), его величина проходит через "соразмерное" значение $3/4$ при 93 К. Таким образом, $k_z > 3/4$ при $65 < T < 93$ К и $k_z < 3/4$ при $93 < T < T_N$.

Температурная зависимость магнитного момента урана в образце $U(Pd_{0.98}F_{0.02})_2Ge_2$ показана на рис.4. С увеличением температуры величина момента почти постоянна в районе $0 < T < 65$ К. Затем она скачком уменьшается при 65 К, и на пути к температуре Нееля $T_N = 135$ К проходит через дополнительную аномалию около 93 К. Эта температура совпадает с точкой, где k_z становится равным "соразмерному" значению $3/4$.

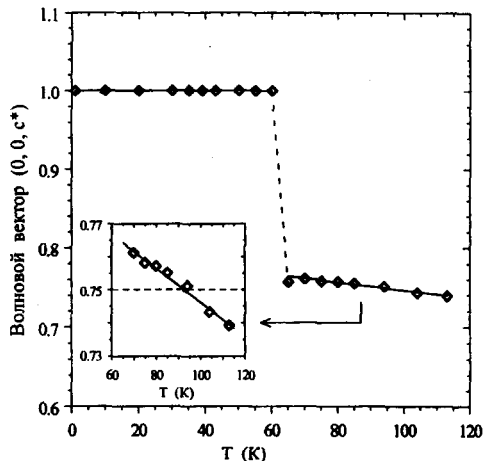


Рис.3. Температурная зависимость компоненты k_z магнитного волнового вектора k для $U(Pd_{0.98}F_{0.02})_2Ge_2$. На вставке показан переход вектора k_z через "соразмерное" значение ($k_z = 0.75$) при $T = 93$ К

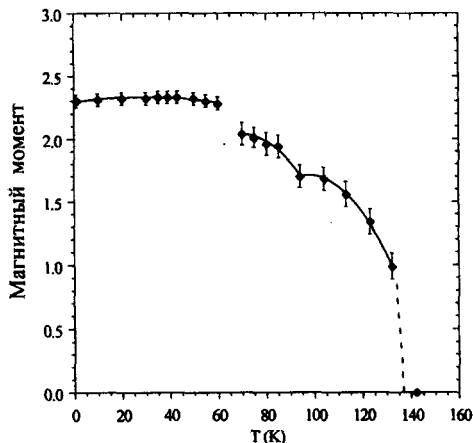


Рис.4. Температурная зависимость магнитного момента урана (в единицах μ_B) в $U(Pd_{0.98}F_{0.02})_2Ge_2$

Итак, нейтронографические эксперименты показывают, что магнитная структура UPd_2Ge_2 радикально меняется даже при очень небольшом допировании железом. Низкотемпературная LSDW фаза чистого UPd_2Ge_2 с "квадратной" модуляцией ($k_z = 3/4$) преобразуется в простую AF ($k_z = 1$) структуру после допирования его лишь 2% Fe. С повышением температуры магнитный переход от соразмерной в несоизмерную фазу в UPd_2Ge_2 сопровождается резким уменьшением величины волнового вектора k_z [6], тогда как в допированном образце вектор k_z гладко меняется во всем диапазоне температур от 65 К до 135 К. Создается впечатление, что в $U(Pd_{0.98}F_{0.02})_2Ge_2$ волновой вектор, меняясь от значения $k_z > 3/4$ к $k_z < 3/4$ при 93 К, вообще не "чувствует" эту температуру как точку фазового перехода. Однако аномалия величины магнитного момента урана при $T \approx 93$ К (рис.4) подтверждает наличие магнитного перехода. Следует отметить, что резкое изменение волнового вектора k и величины магнитного момента урана в точке перехода при $T = 65$ К коррелирует с аномалией параметров решетки a и c при этой температуре.

Температуры магнитных переходов 65 и 93 К, найденные для $U(Pd_{0.98}F_{0.02})_2Ge_2$ в дифракционном эксперименте, не совпадают с положением максимумов магнитной восприимчивости (50 и 74 К, рис.1), однако они соответствуют началу подъема (67 К) к концу спада (94 К) восприимчивости в пике при T_{m1} . Из рис.1 видно, что $\chi(T)$ резко возрастает в точке $T = 67$ К, которая, согласно нейтронным данным, является температурой перехода $AF \Rightarrow LSDW$. На вставке к рис.1 также видно, что значение

$1/\chi$ возрастает в интервале 74–135 К, при этом кривая $1/\chi$ меняет наклон как раз в точке $T = 93$ К. Таким образом, магнитная восприимчивость тоже (как и магнитный момент урана) чувствительна к переходу $k_z > 3/4 \Rightarrow k_z < 3/4$.

Известно, что несколько кристаллов со структурой типа ThCr_2Si_2 имеют простую АФ структуру при низких температурах: например, UNi_2Si_2 при $53 < T < 103$ К [10], UPd_2Si_2 при $T < 108$ К [11], UNi_2Ge_2 при $T < 80$ К [12], однако эта структура не обнаружена в чистом UPd_2Ge_2 [6]. Теперь мы нашли, что низкотемпературная фаза UPd_2Ge_2 , допированного железом, обладает простой АФ структурой.

Чтобы связать нейтронографические данные с результатами магнитных измерений, следует принять предположение [3, 4] о мультифазном состоянии соединения $\text{U}(\text{Pd}_{0.98}\text{F}_{0.02})_2\text{Ge}_2$ ниже T_N . Сосуществование различных фаз и конкуренция между ними приводят к фрустрациям магнитного порядка, что ведет к появлению SG и FM фаз в небольших объемах образца. Примесь железа усиливает фрустрации, меняет магнитную анизотропию материала и сильно модифицирует магнитные свойства UPd_2Ge_2 . По-видимому, развитие магнитных состояний в $\text{U}(\text{Pd}_{0.98}\text{F}_{0.02})_2\text{Ge}_2$ с температурой определяется температурной зависимостью энергии анизотропии [3]. В нейтронографических экспериментах не были замечены фазы SG и FM. Для проверки их присутствия мы планируем провести исследования этих соединений методом μSR -спектроскопии.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований и фонда ИНТАС-РФФИ.

-
1. H.Ptasiewicz-Bak, J.Leciejewicz, and A.Zygmunt, J. Phys. F **11**, 1225 (1981).
 2. C.Tien, C.S.Wur, H.M.Duh et al., Solid State Comm. **89**, 171 (1994).
 3. H.M.Duh, I.S.Lyubutin, and K.D.Lain, Phys. Rev. B **52**, 4294 (1995).
 4. H.M.Duh, I.S.Lyubutin, I.M.Jiang et al., J. Magn. Magn. Mat. **153**, 86 (1996).
 5. H.M.Duh, I.S.Lyubutin, C.S.Wur et al., J. of Physics: Cond. Mat. **7**, 2165 (1995).
 6. G.Andre, F.Bouree, A.Oles et al., Solid State Comm. **97**, 923 (1996).
 7. A.J.Dirkmaat, T.Endstra, E.A.Knetsch et al., J. Magn. Magn. Mat. **84**, 143 (1990).
 8. V.B.Zlokazov and V.V.Chernyshev, J.Appl. Ctyst. **25**, 591 (1992).
 9. J.Rodriguez-Carvajal, Physica B **192**, 55 (1993).
 10. H.Lin, L.Rebelsky, M.F.Collins et al., Phys. Rev. B **43**, 13232 (1991).
 11. B.Shemirani, H.Lin, M.F.Collins et al., Phys. Rev. B **47**, 8672 (1993).
 12. Z.Zolnierec and J.Mulak, J. Magn. Magn. Mat. **140-144**, 1393 (1995).