

СЛАБЫЙ ФЕРРОМАГНЕТИЗМ В КРИСТАЛЛАХ С ПЕРЕМЕННОЙ ВАЛЕНТНОСТЬЮ ЦЕРИЯ $CeMn_{2-x}Si_{2+x}$

Е.М.Левин, А.В.Пустовит, А.А.Марковский

Львовский государственный университет им. И.Я.Франко

Поступила в редакцию 9 июля 1991 г.

Наблюдалось одновременное возникновение слабого ферромагнетизма в антиферромагнитной подрешетке марганца и изменение параметров электронной структуры кристалла вблизи уровня Ферми за счет $4f$ -состояний валентно-нестабильного церия в сплавах переменного состава $CeMn_{2-x}Si_{2+x}$ при замещении $Mn \rightleftharpoons Si$.

К числу наиболее интересных сложных редкоземельных соединений в настоящее время можно отнести тернарные соединения церия типа $CeMn_2X_2$ ($X = Si, Ge$), а также твердые растворы на их основе, в которых наряду с магнитным упорядочением марганца возможно существование состояний переменной валентности (ПВ) или концентрированной кондо-системы (ККС) церия ^{1,2}.

В соединении $CeMn_2Si_2$ температура Нееля для подрешетки марганца составляет $T_N = 380K$ ³; для ионов Ce с помощью рентгеновской L_{III} -спектроскопии установлено существование состояния ПВ с эффективной валентностью $v_{eff} = 3,13$ ⁴. С целью выяснения влияния взаимного замещения $Mn \rightleftharpoons Si$ на параметры электронного состояния Ce и магнитного состояния подрешетки Mn синтезированы сплавы $CeMn_{2-x}Si_{2+x}$, в которых содержание Ce составляло 20 ат.%, а содержание Mn и Si изменялось таким образом, что суммарно оно составляло 80 ат.%. Измерения электронных транспортных и магнитных свойств проведены с помощью автоматизированного комплекса, созданного на базе ДВК-3М/2, крейта КАМАК и вибромагнетометра.

Установлено, что параметры тетрагональной решетки a и c синтезированных сплавов $CeMn_{2-x}Si_{2+x}$ от состава практически не зависят, что может быть объяснено близостью атомных радиусов Mn и Si. В то же время при замещении $Si \rightarrow Mn$ происходит смещение положительного пика дифференциальной термоэдс $T_{\alpha_{max}}$, обусловленного нахождением Ce в состоянии ПВ ², в область высоких температур более чем на 40 К (рис. 1), т.е. несмотря на стабильность решеточных параметров сплавов происходит существенное изменение их электронной структуры вблизи уровня Ферми ϵ_F . При этом несколько неожиданным является появление в образцах, содержащих менее 40 ат.% Si, низкотемпературного ($T_{\alpha_{min}} = 45 K$) пика термоэдс (аналогичного пику в ККС $CeCu_2Si_2$), для выяснения природы которого требуется проведение дополнительных экспериментов.

Рост $T_{\alpha_{max}}$ и наблюдающееся увеличение эффективной валентности v_{eff} церия (v_{eff} определена с помощью рентгеновской L_{III} -абсорбционной спектроскопии) от 3,08 (45 ат.% Si) до 3,16 (38 ат.% Si) позволяют считать, что замещение $Si \rightarrow Mn$ приводит к увеличению ширины f -резонанса Γ_f (рис.1). Расчет энергетического зазора между уровнем Ферми и f -резонансом $|\epsilon_F - \epsilon_f|$, проведенный в рамках модели локальной ферми-жидкости ⁶, показал его увеличение при замещении $Si \rightarrow Mn$ от 37 до 49 мэВ (f -резонанс находится выше ϵ_F). При этом также падает плотность электронных состояний на уровне Ферми от 38 до 28 сост./эВ · элем. яч.

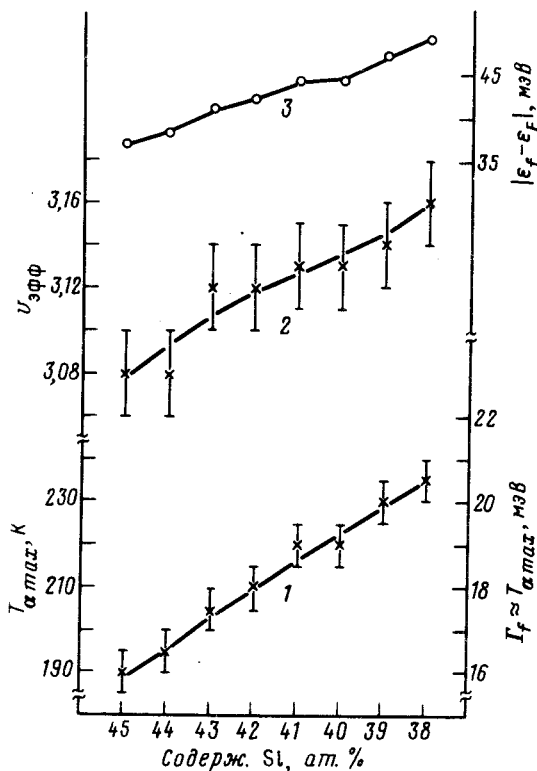


Рис. 1. Зависимости ширины f -резонанса $\Gamma_f \approx T_{\alpha_{max}}$ (1), эффективной валентности ν_{eff} (2), и энергетического зазора $|\epsilon_f - \epsilon_f|$ (3) в сплавах $CeMn_{2-x}Si_{2+x}$ от содержания кремния

Характер температурных зависимостей удельной намагниченности насыщения $\sigma_{нас}$ указывает на то, что при замещении $Mn \rightarrow Si$ происходит смена зависимостей, типичных для антиферромагнетиков (кривые 1, 2) на зависимости, типичные для ферромагнетиков (кривые 3 - 5) (рис.2). Выше температур магнитных переходов Кюри и Нееля, совпадающих по величине (380 К), магнитная восприимчивость изменяется по обычному закону Кюри - Вейсса с величиной эффективного магнитного момента на атом Mn в пределах 2,5 - 3,1 μ_B .

В кристаллах с ФМ свойствами величина удельной намагниченности насыщения прямо пропорциональна степени замещения $Mn \rightarrow Si$. Величина эффективного магнитного момента, приходящегося на один замещенный атом Si составляет $\approx 0,35 \mu_B$. Полевые зависимости показали наличие обычной петли гистерезиса с остаточной намагниченностью 0,3 - 1,5 эме/г при $T = 77$ К и коэрцитивной силой $H_c = 500 - 1400$ Э. Для сравнения в соединении $LaMn_2Si_2$ с обычным ферромагнетизмом $H_c < 12$ Э.

Наблюдаемый характер перехода АФМ \rightleftharpoons ФМ для интерметаллических соединений является достаточно необычным и естественно должен связываться с изменением результирующей намагниченности в подрешетке Mn .

Магнитная структура кристаллов данного типа образуется слоями атомов Mn , расположенных перпендикулярно оси z на расстоянии $\approx 0,5$ нм. При этом упорядочение локализованных магнитных моментов (ЛММ) атомов Mn , расположенных в одном слое всегда ферромагнитное, а в различных слоях в зависимости от состава может быть ферро- или антиферромагнитное¹.

Известно⁷, что в магнитных кристаллах наряду с изотропным обменным взаимодействием электростатического типа возможно появление анизотропного

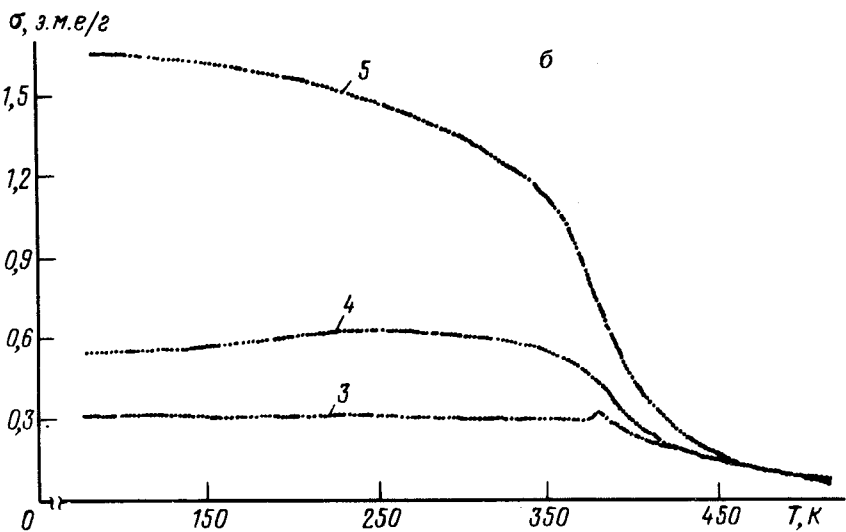
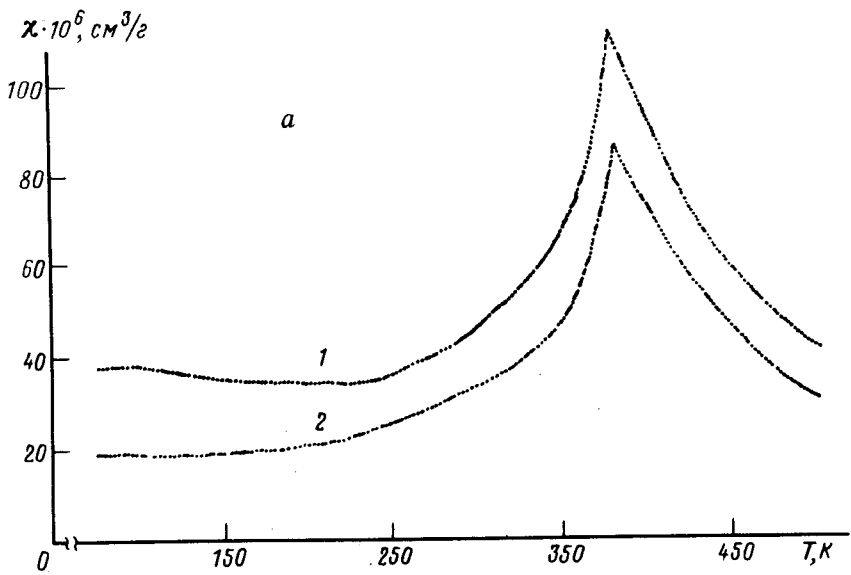


Рис. 2. Температурные зависимости магнитной восприимчивости (а) и намагниченности (б) сплавов $\text{CeMn}_{2-x}\text{Si}_{2+x}$: 1 - 38, 2 - 39, 3 - 41, 4 - 43, 5 - 45 ат.% Si

взаимодействия, следствием чего в одноосных антиферромагнетиках с тетрагональной симметрией может быть изменение взаимной ориентации магнитных подрешеток и появление слабого ферромагнетизма.

Объяснение факта появления ферромагнитной составляющей в антиферромагнитной подрешетке марганца в сплавах $\text{CeMn}_{2-x}\text{Si}_{2+x}$ возможно только в том случае, если предположить появление неколлинеарности ЛММ части атомов Mn вследствие возникновения анизотропных сил в плоскости, перпендикулярной оси z . Причиной возникновения этих сил может быть изменение характера химических связей Mn - Si вблизи атома Si, занявшего позицию Mn.

Детальное рассмотрение вариантов магнитной структуры подрешетки Mn указывает на возможность суммирования векторов магнитных моментов атомов Mn с неколлинеарными ЛММ, находящихся в различных слоях, по осям x и y при одновременной взаимной компенсации магнитных моментов по оси z . Оценка угла отклонения векторов магнитного момента атомов Mn вблизи замещающего атома Si от оси z (проведена с учетом величин эффективного магнитного момента, приходящегося на один замещенный атом в ферромагнитных сплавах ($\approx 0,35\mu_B$), и магнитного момента атома Mn по данным нейтронной дифракции ($2,3\mu_B$)¹, дает 3 - 4°.

Таким образом, в кристаллах соединения переменного состава $CeMn_{2-x}Si_{2+x}$ при замещении $Si \rightleftharpoons Mn$ происходит изменение не только параметров состояния переменной валентности Ce , но и поведения результирующей намагниченности слоистой подрешетки Mn , т. е. химический состав влияет на состояние одновременно двух (f и d) электронных подсистем. Подобные кристаллы представляют большой интерес для исследования взаимосвязи внутрикристаллических магнитных полей и эффектов переноса в металлических системах с резонансными электронными состояниями вблизи уровня Ферми, а также локальных корреляционных эффектов.

Авторы выражают признательность Стецю И.Н. за исследование рентгеновских L_{III} -абсорбционных спектров.

-
1. Shytula A., Szott I. Solid State Comm., 1981, 40, 199.
 2. Левин Е.М., Мороховский Б.С. ФТТ, 1990, 32, 116.
 3. Liang G., Perez I., DiMarzio D. et al. Phys. Rev. B, 1989, 37, 5970.
 4. Финкельштейн Л.Д., Самсонова Н.Д., Левин Е.М. ФММ, 1985, 59, 1036.
 5. Newsn D.M., Newsn A.S. J. Phys. F: Metal Phys., 1981, 10, 2429.
 6. Мощалков В.В., Брандт Н.Б. УФН, 1986, 19, 585.
 7. Туров Е.А. Физические свойства магнитоупорядоченных кристаллов. Изд. АН СССР, 1969.