Письма в ЖЭТФ, том 101, вып. 10, с. 777 – 780 © 2015 г. 25 мая

Квазидвумерный характер магнитного перехода порядок–беспорядок в YMn_6Sn_6

А. А. Быков[+*1)], *Ю. О. Четвериков*[*], *А. Н. Пирогов*[×∘], *С. В. Григорьев*[+*]

[+]*С.-Петербургский государственный университет, 199034 С.-Петербург, Россия*

[*]*Петербургский институт ядерной физики им. Константинова, 188300 Гатчина, Россия*

[×]*Институт физики металлов им. Михеева УрО РАН, 620990 Екатеринбург, Россия*

[∘]*Уральский федеральный университет им. Ельцина, 620002 Екатеринбург, Россия*

Поступила в редакцию 16 января 2015 г.
После переработки 9 апреля 2015 г.

Методом малоуглового рассеяния нейтронов исследована магнитная структура гелимагнетика YMn_6Sn_6 в температурном диапазоне от 25 до 360 К. На зависимостях интенсивности нейтронного рассеяния от переданного импульса наблюдаются два пика с центрами в 1.7 и 0 нм$^{-1}$. С ростом температуры интенсивность первого пика уменьшается, а второго увеличивается. Наряду с этим происходит изменение формы пика с центром в 1.7 нм$^{-1}$ из гауссова в лоренцеву. Последнее можно объяснить тем, что в интервале 250–360 К в YMn_6Sn_6 происходит магнитный переход типа порядок–беспорядок из гелимагнетика в состояние с пространственными ферромагнитными флуктуациями. Для пика с центром в 1.7 нм$^{-1}$ наблюдается анизотропия формы вдоль переданного импульса. Это, а также согласованное изменение ширины на полувысоте пика с центром в 1.7 нм$^{-1}$ и его интенсивности при изменении температуры говорит о квазидвумерном характере происходящего магнитного перехода.

DOI: 10.7868/S0370274X15100094

Свойства соединений типа RMn_6X_6, где R – редкоземельный элемент, а X – металл с незаполненной p-оболочкой, хорошо известны [1]. Однако разнообразие видов магнитного упорядочения в данных составах затрудняет понимание физических механизмов, порождающих эти свойства. Соединения RMn_6X_6 имеют гексагональную слоистую структуру, слои которой расположены перпендикулярно оси [001]. Между плоскостями, сформированными магнитными атомами Mn с координатами 3/4 и 5/4, находятся комплексы элементов X–X–X, а между плоскостями, образованными из атомов Mn в узлах 1/4 и 3/4, – комплексы R–X [2, 3]. В этой структуре можно выделить три типа обменных взаимодействий вдоль оси [001]: ферромагнитный обмен через X–X–X-плоскости J_1, антиферромагнитный обмен через R–X-плоскости J_2 и ферромагнитный обмен между следующими за ближайшими плоскостями Mn J_3, природа которого определяется РККИ-взаимодействием (последний приводит к спиральной магнитной структуре с волновым вектором вдоль направления [001] в соединениях с R = Dy, Ho, Y [4, 5]). Ферромагнитный обмен J_0 в Mn-плоскостях приводит к тому, что ориентации магнитных моментов атомов Mn в плоскостях сонаправлены. Соотношение J_1 и J_2 таково, что моменты атомов Mn в плоскостях, между которыми расположены атомы X–X–X, сонаправлены, в то время как магнитные моменты атомов Mn в плоскостях, между которыми находятся R–X-комплексы, направлены противоположно друг другу [2]. Основной мотив магнитного поведения таких структур – серия магнитных переходов при изменении температуры, концентрации и т.д. Так, например, в соединениях системы $Tb_{1-x}Y_xMn_6Sn_6$ с $x < 0.6$ при низких температурах моменты Mn упорядочиваются вдоль легкой оси [001] антиферромагнитно между плоскостями, разделенными R–X-комплексами. С ростом температуры происходит спин-переориентационный переход типа легкая ось – легкая плоскость и магнитные моменты становятся параллельными плоскости [001] [6, 7].

В этой системе большое внимание исследователей привлекает интерметаллид YMn_6Sn_6, поскольку немагнитный Y, замещающий в нем редкоземельный ион, заметно упрощает изучение магнитной структуры. Данная работа направлена на исследование спонтанного магнитного перехода типа порядок–

[1)]e-mail: redi87@bk.ru

беспорядок в YMn_6Sn_6 методом малоуглового рассеяния нейтронов (МУРН).

Образцы YMn_6Sn_6 были выплавлены из высокочистых металлов в индукционной печи в атмосфере аргона. Гомогенизирующий отжиг проводился при 800 °C в течение 48 ч. Согласно результатам рентгенографических измерений образцы имели гексагональную структуру типа $HfFe_6Ge_6$ (пространственная группа $P\,6/mmm$, ионы Y занимают позицию $1a$, атомы Mn – $6i$, а атомы Sn находятся в узлах $2c$, $2d$ и $2e$). Эксперимент МУРН проводился на установке SANS-2 исследовательского реактора в г. Геесхахте (Германия). В данном случае преимуществом МУРН является возможность изучить крупномасштабные пространственные спиновые флуктуации ферромагнитного типа в диапазоне малых переданных импульсов Q с лучшим разрешением по сравнению с дифракционными экспериментами [3, 4].

На рис. 1a изображена характерная карта распределения интенсивности рассеянных нейтронов при

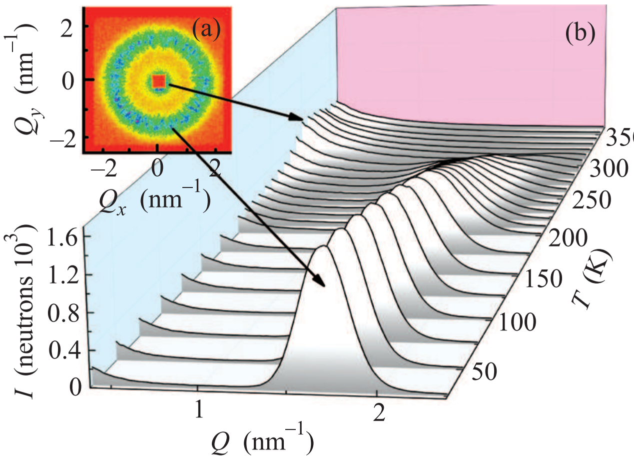

Рис. 1. Типичная карта интенсивности МУРН при температуре 260 K (a) и зависимость интенсивности рассеяния нейтронов от переданного импульса Q при различных значениях температуры (b)

$T = 260$ K. На нем наблюдается кольцо интенсивности дифракционного рефлекса с максимумом при $Q \approx 1.7\,нм^{-1}$. Оно указывает на наличие модулированной магнитной структуры в согласии с результатами предыдущих исследований [4]. Кольцо интенсивности состоит из отдельных рефлексов необычной формы. Они вытянуты вдоль радиального направления, т.е. ширина рефлекса вдоль вектора рассеяния W_L существенно больше его ширины в направлении перпендикулярном вектору рассеяния W_T. На рис. 1b представлена зависимость интенсивности рассеяния нейтронов I от переданного импульса Q, полученная усреднением карты МУРН по кругу с центром в $Q = 0$. Интенсивность брэгговского пика в диапазоне температур от 25 до 250 K плавно уменьшается, а затем довольно резко спадает при $T > 250$ K. Кроме того, при $T = 250$ K в центре кольца возникает рассеяние, интенсивность которого демонстрирует максимум при $T = 310$ K.

Полученные данные были проанализированы в рамках модели спиновой спирали, сформированной на основе ферромагнитных плоскостей Mn. Если положение брэгговского пика k соответствует конечному вектору распространения $k \neq 0$, то это указывает на модуляцию спиновой структуры с периодом $d_s = 2\pi/k$, а в случае $k = 0$ – на наличие ферромагнитного порядка. Из ширины пика W можно вычислить когерентную длину спиновой структуры: $L_{\rm coh} = 2\pi/W$. Анализ формы пиков позволяет охарактеризовать состояние магнитной системы: лоренцева форма пика соответствует флуктуациям магнитной структуры, а гауссова – доменам с резкой границей (см., например, [8]).

Зависимость интенсивности рассеяния от переданного импульса $I(Q)$ аппроксимировалась суммой двух вкладов: гауссианом и лоренцианом (псевдовойтом). Отметим, что лоренцева форма центрального пика при $Q = 0$ имеет на порядок лучший критерий совпадения для всех температур по сравнению с гауссовой формой. Пример аппроксимации кривой рассеяния при $T = 270$ K приведен на рис. 2. В результате аппроксимации данных было получено 6 параметров: интегральные интенсивности обоих пиков при $Q = 0$ и На рис. 3a отложены нормированные на максимум температурные зависимости при $Q = k$,

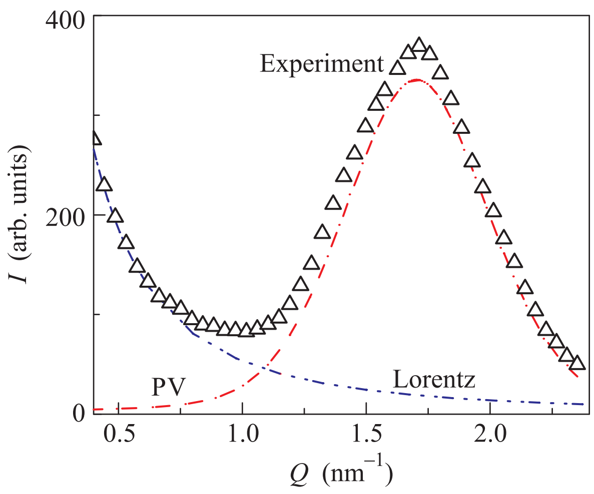

Рис. 2. Пример аппроксимации кривой рассеяния $I(Q)$ при $T = 270$ K

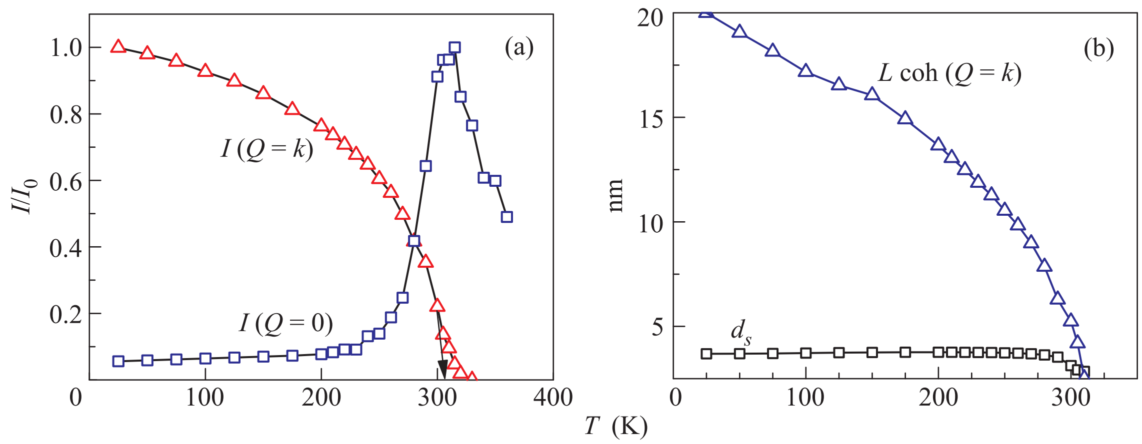

Рис. 3. (a) – Нормированные температурные зависимости интегральной интенсивности брэгговского пика и пика с центром в $Q = 0$. (b) – Температурные зависимости периода d_s и длины когерентности магнитного геликоида $L_{\rm coh}$ вдоль переданного импульса (b)

ширина брэгговского пика W_L и ширина пика при $Q = 0$, положение брэгговского пика k и вес лоренцева вклада в брэгговский пик α.

интегральной интенсивности пиков при $Q = 0$ и k, а на рис. 3b – температурные зависимости периода и длины когерентности магнитного геликоида вдоль переданного импульса. Экстраполяция интегральной интенсивности брэгговского пика в область высоких температур на рис. 3a дает критическую температуру $T_c = 310$ K. При той же температуре происходит пересечение кривых на рис. 3b. Следовательно, когерентная длина спирали уменьшилась до размера ее периода. Это, а также падение интенсивности брэгговского пика указывает на то, что при $T = 310$ K происходит полное исчезновение геликоида. В то же время наблюдается рост интенсивности пика с центром в $Q = 0$ (рис. 3a), т.е. по мере исчезновения гелимагнитной структуры появляется другой тип магнитного порядка или его флуктуаций.

На рис. 4 представлены лоренцевский вклад α и позиция брэгговского пика k в зависимости от температуры. В интервале от 25 до 250 K, т.е. вдали от критической области k мало меняется с температурой. В области перехода ($T > 250$ K) модуль волнового вектора резко увеличивается, что говорит об уменьшении периода спирали при приближении к 300 K. Похожим образом ведет себя и α (увеличение вклада Лоренца в брэгговский пик при $T = 310$ K). Это указывает на переход к новому магнитному порядку, сопровождаемому пространственными флуктуациями магнитной спирали.

При исследовании температурной эволюции формы брэгговского пика вдоль (W_L) и поперек (W_T) переданного импульса было выяснено, что значение

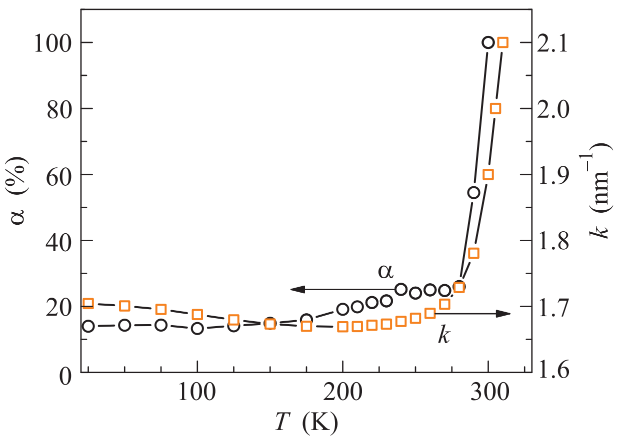

Рис. 4. Температурные зависимости позиции брэгговского пика (квадраты) и веса лоренцевского вклада в брэгговский пик (кружки)

W_L сильно зависит от температуры (см. рис. 3b). В то же время W_T не изменяется с температурой и определяется, по-видимому, разрешением установки. Температурные изменения ширины брэгговского пика W_L вдоль переданного импульса k и неизменность ширины W_T в поперечном k направлении говорят о том, что W_T и W_L – не связанные величины. Отметим, что хотя достигнутое разрешение не позволяет сделать однозначного вывода об эволюции W_T, учитывая, что W_L существенно больше W_T, можно считать, что вклад в интенсивность пиков от рассеяния, перпендикулярного переданному импульсу, несущественен. С другой стороны, температурные зависимости интенсивности брэгговского пика $I(Q = k)$ и когерентная длина $L_{\rm coh}(Q = k)$ коррелируют (рис. 3a и b). Это свидетельствует о том, что $L_{\rm coh}(Q = k)$

характеризует когерентный размер геликоида в направлении [001] и образующиеся некогерентные друг с другом области линзообразной формы в плоскости (001), когда поперечная длина вдоль оси [001] гораздо меньше, чем когерентная длина в плоскости (001).

Возникающая при $T = 250$ K магнитная структура характеризуется рефлексом с центром при $Q = 0$. Следовательно, она ферромагнитна (флуктуации парамагнитного состояния возникают на месте образования магнитных пиков, центральное рассеяние имеет место только в ферромагнетиках). Кроме того, рефлекс описывается лоренцевой формой пика, а значит, эта магнитная структура флуктуирует. Поскольку же увеличение интенсивности пика с центром в $Q = 0$ происходит согласованно с увеличением вклада Лоренца в брэгговский пик (рис. 2 и 3), можно сказать, что в области магнитного перехода ($T = 310$ K) флуктуации спинового геликоида переходят во флуктуации ферромагнитного состояния.

Согласно теореме Мермина–Вагнера дальний магнитный порядок в двумерных спиновых системах не формируется. Поэтому мы предполагаем, что по мере преобладания энергии тепловых колебаний над энергией связи Mn-плоскостей система приобретает двумерный характер, который, однако, нестабилен. Можно предположить, что при $T = 310$ K результирующее ферромагнитное взаимодействие между плоскостями Mn преобладает над антиферромагнитным взаимодействием следующих за ближайшими плоскостей и трехмерный геликоид переходит в квазидвумерный флуктуирующий ферромагнетик.

Известное из литературы [1, 2] увеличение электрического сопротивления вдоль оси [001] при температурах, близких к магнитному переходу, и меньшее изменение сопротивления в плоскости (001) теперь можно объяснить спин-зависимым транспортом на границе ферромагнитных флуктуаций.

Отметим также, что экстраполируя интенсивность центрального пика (см. рис. 3a) и вес лоренцевого вклада в брэгговский пик (см. рис. 4) в область низких температур, можно обнаружить, что флуктуации системы не прекращаются даже при температурах, близких к нулю, т.е. флуктуации являются квантовыми. Обычно такие флуктуации возникают в системах либо с очень малым магнитным моментом на ионе, либо с пониженной размерностью. В данном случае, скорее всего, реализуется вторая ситуация (так как магнитный момент марганца в плоскости составляет около $3.6\mu_B$ [1]), в связи с чем дальний магнитный порядок оказывается невозможным даже при температуре, стремящейся к нулю.

Таким образом, нами обнаружен квазидвумерный магнитный фазовый переход из гелимагнитного состояния в парамагнитное через ферромагнитные флуктуации. При низких температурах весь объем образца находится в гелимагнитном состоянии с длиной когерентности спирали, превышающей ее период в 10 раз. По мере приближения к температуре фазового перехода длина когерентности спирали падает. При 260 K в системе возникают ферромагнитные флуктуации. Поскольку система сильно анизотропна, моменты, составляющие спираль, и флуктуирующие моменты лежат в плоскости (001). Спираль распадается на флуктуирующие ферромагнитные плоскости, придавая происходящему магнитному фазовому переходу квазидвумерный характер. При температуре 310 K гелимагнитное упорядочение полностью исчезает. С последующим ростом температуры система переходит из состояния ферромагнитных флуктуаций в парамагнитное состояние.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант # 14-22-01073). Авторы благодарны Гельмгольц-центру г. Геестхахт (Германия) за гостеприимство.

1. A. Szytula, *Handbook of Crystal Structures and Magnetic Properties of Rare Earth Intermetallics* (1994).
2. F. Canepa, R. Duraj, C. Lefèvre, B. Malaman, A. Mar, T. Mazet, M. Napoletano, A. Szytula, J. Tobola, G. Venturini, and A. Vernière, J. Alloys Compd. **383**, 10 (2004).
3. T. Mazet, O. Isnard, and B. Malaman, J. Phys. Cond. Mat. **17**, 1547 (2005).
4. G. Venturini, D. Fruchart, and B. Malaman, J. Alloys Compd. **236**, 102 (1996).
5. P. Schobinger-Papamantellos, G. André, J. Rodriguez-Carvajal, H. G. Duijn, and K. H. Buschow, J. Alloys Compd. **306**, 47 (2000).
6. N. K. Zajkov, N. V. Mushnikov, E. G. Gerasimov, V. S. Gaviko, M. I. Bartashevich, T. Goto, and V. I. Khrabrov, J. Alloys Compd. **363**, 40 (2004).
7. С. Г. Богданов, Н. В. Мушников, П. Б. Терентьев, Е. Г. Герасимов, С. В. Григорьев, А. И. Окороков, Ю. О. Четвериков, Г. Екерлебе, К. Пранзас, and А. Н. Пирогов, Физика металлов и металловедение **114**, 617 (2013).
8. Дж. Каули, *Физика дифракции* (1979).