

## Рентгеновское и мессбауэровское исследования разбавленных фаз Лавеса $\text{Nd}(\text{Fe}_{1-x}\text{Al}_x)_2$

А. С. Илюшин, А. А. Опаленко, А. И. Фиров, Е. В. Солодов, З. С. Умхаева

При высоком давлении синтезированы сплавы  $\text{Nd}(\text{Fe}_{1-x}\text{Al}_x)_2$  (с концентрациями  $x = 0 - 1$ ). Определены фазовый состав и кристалло-структурные характеристики сплавов в зависимости от состава. Методом мессбауэровской спектроскопии исследованы сверхтонкие магнитные взаимодействия в интервале от 90 до 400 К и установлены температурные и концентрационные зависимости магнитных характеристик сплавов.

**Ключевые слова:** рентгено-структурный анализ, параметры решетки, Мессбауэровский спектр, фазовый переход, сверхтонкое магнитное поле, фазы Лавеса.

In work is carried out synthesis of alloys of quasibinary system  $\text{Nd}(\text{Fe}_{1-x}\text{Al}_x)_2$  at pressure to 8GPa for  $x = 0 - 1$ . It has been established the phase structure, atomic-crystal structure in dependence of parameter  $x$ . By the method of mossbauer spectroscopy were studied the hyperfine magnetic interactions in temperature range 100 – 450K. As a result of experiment the contribution to the magnetic field at different configuration of surrounding the iron atom was determined.

**Keywords:** X – ray structure analysis, lattice parameter  $a$  (and  $c$ ), Mossbauer spectra, phase transition, hyperfine magnetic field, Laves phase.

### Введение

Редкоземельные интерметаллические соединения со структурой фаз Лавеса [1] обладают замечательными магнитными свойствами. Разработанные на их основе магнитные материалы уже нашли широкое применение в качестве магнитоотрикатов [2]. В последние годы интерес у металловедов вызывают многокомпонентные системы на основе редкоземельных фаз Лавеса, в частности при разбавлении их немагнитными атомами [3 – 6].

Цель настоящей работы — синтез сплавов, представляющих собой разбавленные фазы Лавеса в квазибинарной системе  $\text{Nd}(\text{Fe}_{1-x}\text{Al}_x)_2$ , и изучение их структурных и магнитных свойств.

### Эксперимент

Сплавы  $\text{Nd}(\text{Fe}_{1-x}\text{Al}_x)_2$  были синтезированы при давлении 8 ГПа в аппарате типа “тороид” путем закалки из расплава при пропускании электрического тока через наковальни с образцом. Аппаратура и методика синтеза подробно описана в [7]. Рентгеновское исследование проводили на порошковых образцах на

дифрактометре ДРОН-3М. Съемку вели в автоматическом режиме на фильтрованном  $\text{Fe } K_{\alpha}$ -излучении.

Мессбауэровские спектры измеряли на спектрометре MS 1104Em с низкотемпературным криостатом. Обработку данных осуществляли по программе Univem MS.

В результате проведенного рентгеноструктурного анализа было установлено, что в области концентраций  $0 \leq x < 0,1$  сплавы  $\text{Nd}(\text{Fe}_{1-x}\text{Al}_x)_2$  являются однофазными и изотипными кубической фазе Лавеса типа C15. При дальнейшем увеличении концентрации алюминия в системе на дифрактограммах наблюдается уширение рефлексов, соответствующих кубической решетке, что свидетельствует о начале превращения атомно-кристаллической структуры сплавов. На дифрактограммах сплавов в области концентраций  $0,2 < x < 0,5$  присутствуют рефлексы, однозначно индицирующиеся в гексагональной сингонии, характерной для структуры фазы Лавеса типа C14. Последующее замещение атомов железа атомами алюминия приводит к формированию в системе двухфазной области ( $0,5 < x < 0,8$ ), состоящей из фаз с гексагональной (C14) и кубической (C15) структурами. Наконец, в

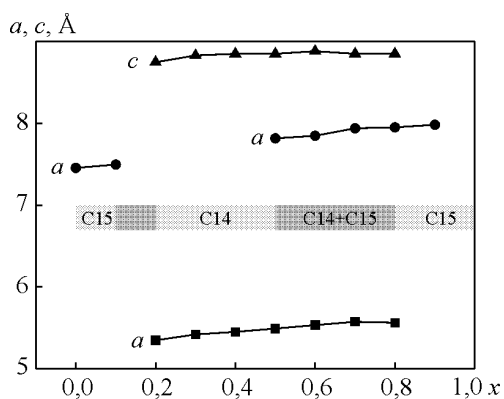


Рис. 1. Диаграмма фазового состава сплавов системы  $\text{Nd}(\text{Fe}_{1-x}\text{Al}_x)_2$  и параметры элементарных ячеек в диапазоне концентраций  $x = 0 - 1$ .

области  $0,8 < x \leq 1$  формируется кубическая структура C15. На рис. 1 представлены диаграмма фазового состава сплавов и параметры элементарных ячеек в зависимости от концентрации.

Образцы полученных мессбауэровских спектров для концентрации  $x = 0,1$  приведены на рис. 2.

### Результаты и обсуждение

Мессбауэровские спектры были обработаны по программе Univem MS в виде суперпозиции секстетов, отвечающих за магнитоупорядоченное состояние, и дублетов, характеризующих парамагнитное состояние.

Известно, что исходное соединение  $\text{NdFe}_2$  представляет собой ферромагнетик с направлением оси

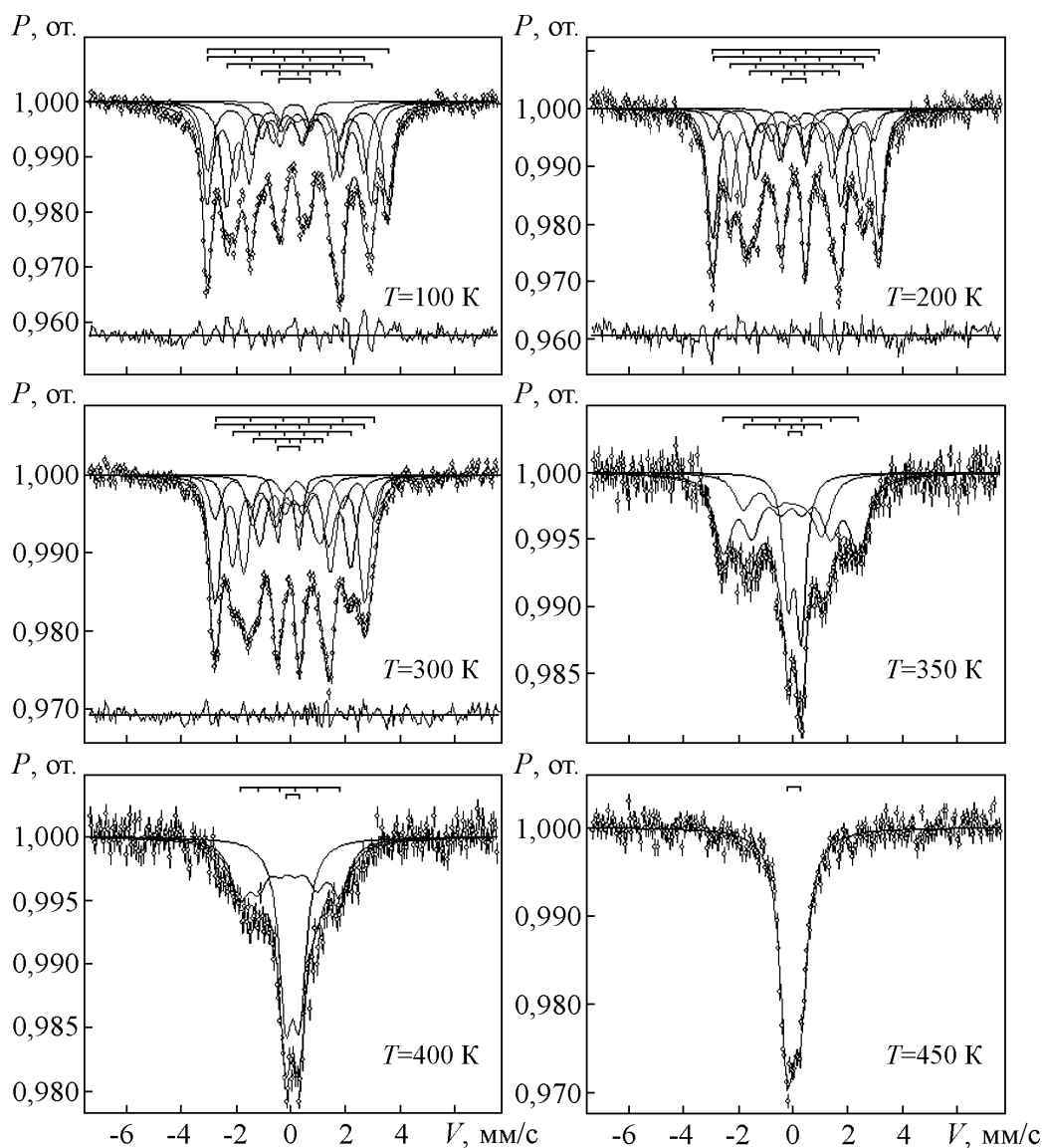


Рис. 2. Мессбауэровские спектры сплава  $\text{Nd}(\text{Fe}_{0,9}\text{Al}_{0,1})_2$  при температурах 100 – 450 К.

легкого намагничивания вдоль кристаллографической оси [111]. Для соединения  $\text{NdFe}_2$  величины сверхтонких магнитных полей на ядре  $\text{Fe}^{57}$  и значение температуры Кюри хорошо известны из литературы [8]. Атомы железа в этом соединении находятся в двух магнитонезэквивалентных положениях, причем соотношение этих атомов 3:1. Это, в свою очередь, приводит к появлению в мессбауэровском спектре двух парциальных спектров с отношением интенсивностей 3:1.

Спектр образца  $\text{Nd}(\text{Fe}_{0,9}\text{Al}_{0,1})_2$ , приведенный на рис. 2, может быть представлен в виде суммы нескольких секстетов, отвечающих разным атомным конфигурациям. Известно, что в кубической решетке фазы Лавеса типа С15 каждый атом железа имеет в ближайшем окружении 6 атомов железа [9]. При однородном распределении атомов примеси в кубической решетке С15 по формуле биномиального распределения  $P_6^m(x) = C_6^m x^m (1-x)^{6-m}$  вероятность нахождения  $m$  атомов алюминия в ближайшем окружении атома железа для состава  $x = 0,1$  должна быть равна 53% для  $m = 0$ , 35% — для  $m = 1$  и 9,8% — для  $m = 2$ . Такое же соотношение в этом случае должно быть между площадями соответствующих трех парциальных секстетов в суммарном мессбауэровском спектре сплава. Однако, вследствие магнитной неэквивалентности четырех атомов железа в тетраэдре структуры С15 спектр соединения при значении  $m = 0$ , аналогично чистому соединению  $\text{NdFe}_2$ , должен содержать два секстета с соотношением интенсивностей 3:1. Поэтому магнитоупорядоченное состояние этого сплава должно характеризоваться четырьмя секстетами мессбауэровского спектра.

Предполагаемое из расчета соотношение площадей основных секстетов в пределах точности эксперимента (3%) было найдено в спектре при температуре 100 К, а при 300 К в спектре появляется ощутимый вклад от парамагнитного дублета (доля от площади спектра  $\approx 7\%$ ). При дальнейшем нагревании образца разрешение спектра ухудшается, уменьшается величина сверхтонкого магнитного поля, а вклад парамагнитного дублета нарастает и при 450 К образец становится парамагнитным.

Проведенная нами обработка мессбауэровских спектров для сплава состава  $x = 0,1$  показала, что для локальной конфигурации, в которой в ближайшем окружении атома железа отсутствуют атомы алюминия ( $m = 0$ ), величина сверхтонкого поля при  $T = 100$  К составила  $H = 200$  кЭ. Для локальной конфигурации с одним атомом алюминия вблизи атома железа ( $m = 1$ ) величина поля составляет 160 кЭ, и для двух атомов алюминия из шести атомов ближайшего окружения ( $m = 2$ ) поле равно 110 кЭ. На

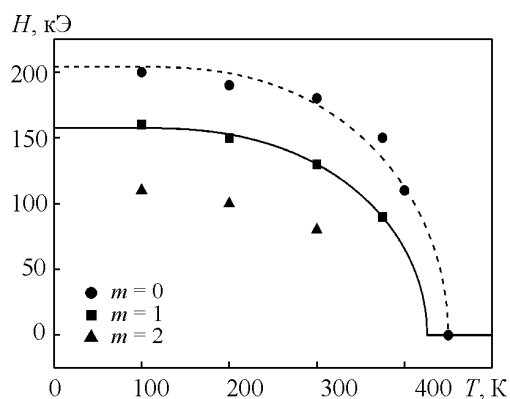


Рис. 3. Температурная зависимость величины сверхтонкого магнитного поля для трех основных конфигураций окружения атома железа в сплаве  $\text{Nd}(\text{Fe}_{0,9}\text{Al}_{0,1})_2$ .

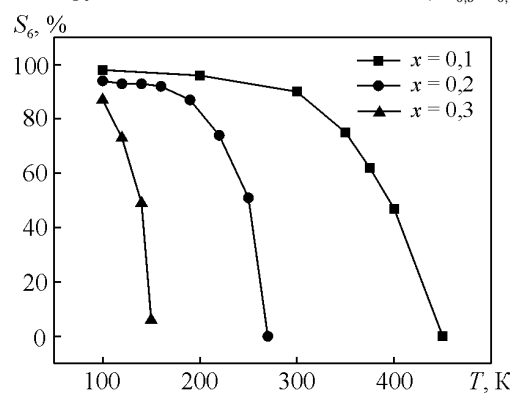


Рис. 4. Относительная площадь секстетов  $S_6$  в спектрах сплавов в зависимости от температуры.

рис. 3 мы построили найденные в эксперименте величины сверхтонких магнитных полей на ядре  $\text{Fe}^{57}$  сплава  $\text{Nd}(\text{Fe}_{0,9}\text{Al}_{0,1})_2$  для разных конфигураций окружения:  $m = 0, 1$  и  $2$  в зависимости от температуры. Кривые аналогичны кривым Нееля для намагниченности насыщения, однако наши кривые позволяют судить о температуре Кюри для каждого конфигурационного окружения.

Для сплавов составов  $x = 0,2$  и  $0,3$  трансформация мессбауэровских спектров в зависимости от температуры происходит подобным образом, и при температурах 270 К для  $x = 0,2$  и 150 К для  $x = 0,3$  спектры трансформируются в дублеты, что свидетельствует о переходе сплавов в парамагнитное состояние.

Если суммарную площадь секстетов в спектре образца принять за характеристику его магнитоупорядоченного состояния и построить относительную площадь секстетов  $S_6$  в зависимости от температуры (рис. 4), то получится кривая, аналогичная кривой Нееля и может быть определена точка Кюри для каждого образца. На основании этих данных была построена зависимость точек Кюри от концентрации алюминия — рис.5.

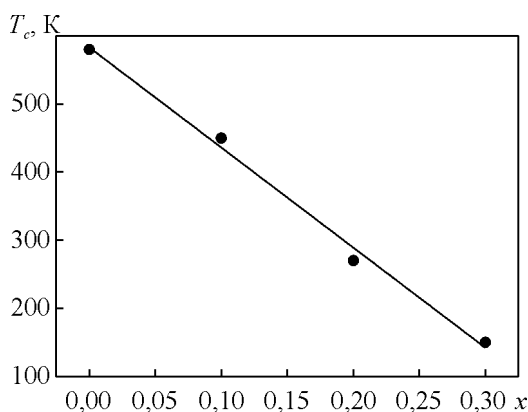


Рис. 5. Полученные значения точек магнитных фазовых переходов для концентраций  $x = 0,1; 0,2$  и  $0,3$ .

## Выводы

В работе впервые при высоких давлениях синтезированы сплавы квазибинарной системы  $\text{Nd}(\text{Fe}_{1-x}\text{Al}_x)_2$  при концентрациях  $x = 0 - 1$ , выявлены области существования кубической фазы со структурой C15 и гексагональной фазы со структурой C14 и определены параметры элементарных ячеек.

Определены величины сверхтонких магнитных полей на ядре  $\text{Fe}^{57}$  для разных конфигураций окружения атома железа в сплаве состава  $x = 0,1$ . Установлены температуры фазовых переходов типа "порядок – беспорядок" и показано, что температуры Кюри в данной системе линейно убывают в зависимости от количества немагнитной компоненты.

## Литература

1. Лавес Ф. Факторы, определяющие кристаллическую структуру. В сб. Интерметаллические соединения. М.: Металлургия, 1970, с. 139 – 161.
2. Белов К.П. Магнитострикционные явления и их приложения. М.: Наука, 1987, 250 с.
3. Илюшин А.С., Никитин С.А., Нгуен В.Н., Опаленко А.А., Терешина И.С., Фиров А.И. Рентгеновское и мессбауэровское исследование сплавов системы  $\text{Tb}_{0,3}\text{Dy}_{0,7}\text{Fe}_{2-x}\text{Co}_x$ . Вестник Московского Университета, 2007, № 4, с. 35 – 37
4. Терешина И.С., Никитин С.А., Туляков А.П., Опаленко А.А., Фиров А.И., Палевски Т. Структурные, магнитные и магнитострикционные свойства соединений  $\text{Tb}_{0,35}\text{Dy}_{0,45}\text{Er}_{0,2}\text{Fe}_{2-x}\text{Co}_x$ . Перспективные материалы, 2008, спец. выпуск, с. 96 – 100.
5. Терешина И.С., Никитин С.А., Политова Г.А., Опаленко А.А., Терешина Е.А., Телегина И.В. Магнитострикция и намагниченность интерметаллических соединений  $\text{RFe}_{2-x}\text{Co}_x$  ( $\text{R} = \text{Tb}, \text{Dy}, \text{Er}$ ) со скомпенсированной магнитной анизотропией, ФТТ, 2009, т. 51, № 1, с. 85 – 90.
6. Опаленко А.А., Илюшин А.С., Фиров А.И., Солодов Е.В., Умхаева З.С. Структурные и магнитные фазовые превращения в разбавленных фазах Лавеса  $\text{Pt}(\text{Fe}_{1-x}\text{Al}_x)_2$ . ФТТ, 2011, т. 53, № 10, с. 1963 – 1968.
7. Khvostantsev L.G., Vereshchagin L.F., Novikov A.P., Device of toroid type for high pressure generation. High temp-high press., 1977, v. 9, p. 637 – 639.
8. Kirchmayr H.B., Burzo E. Magnetic properties of metals: compounds between rare earth elements and 3d, 4d or 5d elements. In Landolt-Bornstein Numerical Data and Functional Relationship in Science and Technology, New series, vol.III/19D2, H.P.J. Wijn, Springer-Verlag, 1990, p. 106.
9. Илюшин А.С. Основы структурной физики редкоземельных интерметаллических соединений. М.: Изд. МГУ, 2005, 176 с.

Статья поступила в редакцию 14.06.2011 г.

**Илюшин Александр Сергеевич** — Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова, Физический факультет, доктор физико-математических наук, профессор. Специалист в области физики конденсированного состояния.

**Опаленко Анатолий Архипович** — Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова, Физический факультет, доктор физико-математических наук, ведущий научный сотрудник. Специалист в области физики конденсированного состояния. E-mail: tellur125@mail.ru.

**Фиров Александр Иванович** — Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова, Физический факультет, ведущий электроник. Специалист в области физики конденсированного состояния.

**Солодов Евгений Викторович** — Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова, Физический факультет, инженер. Специалист в области физики конденсированного состояния.

**Умхаева Зарган Сайпудиновна** — Чеченский государственный университет (г. Грозный), кандидат физико-математических наук, профессор. Специалист в области физики магнитных явлений.