

Исследование магнитных свойств гомогенных медно-марганцевых сплавов

© С.Г. Барсов, С.И. Воробьев, В.П. Коптев,
С.А. Котов, С.М. Микиртычянц, Г.В. Щербаков

Петербургский институт ядерной физики им. Б.П. Константинова Российской академии наук,
188300 Гатчина, Ленинградская обл., Россия

E-mail: vsiloa@pnpi.spb.ru

(Поступила в Редакцию 8 ноября 2006 г.
В окончательной редакции 22 февраля 2007 г.)

Впервые использован метод μ SR (Muon Spin Relaxation) для исследования магнитных характеристик гомогенных сплавов $\text{Cu}_{1-x}\text{Mn}_x$. В образцах с $0.2 < x < 0.7$ обнаружено возникновение специфической магнитной фазы, характеризующейся, по-видимому, отсутствием дальнего порядка и сильной спиновой динамикой в диапазоне температур от 10 до 330 К. Приведена полная магнитная фазовая диаграмма.

Работа выполнена при финансовой поддержке Программы ОФН РАН.

PACS: 76.75.+i, 75.20.Hg, 75.50.Lk

1. Введение

Бинарный сплав $\text{Cu}_{1-x}\text{Mn}_x$ относится к материалам, в которых имеет место явная корреляция коллективных процессов в кристаллической и магнитной подсистемах [1]. В таких материалах наблюдается тесная связь между мартенситным превращением кристаллической решетки и антиферромагнитным упорядочением моментов атомов марганца. В медно-марганцевых сплавах, например, температуры мартенситного и антиферромагнитного перехода практически совпадают, несмотря на то что они сильно зависят от концентрации Mn и степени гомогенности сплава [2].

Множество экспериментальных фактов, широко представленных в обзорной работе [1], дает основание считать, что в таких материалах мартенситное превращение (структурные переходы без диффузионного кооперативного типа) инициируется анизотропией обменного взаимодействия при температурах $T < T_N$ (T_N — температура, при которой возникает антиферромагнитное упорядочение атомов Mn). Причиной повышенного интереса к изучению структурных и магнитных переходов в бинарных сплавах ($\text{Cu}_{1-x}\text{Mn}_x$) является то обстоятельство, что такой сплав является типичным представлением материалов с памятью формы [3].

Наиболее полное изучение магнитных свойств сплава $\text{Cu}_{1-x}\text{Mn}_x$ в широком диапазоне концентраций атомов Mn ($x = 0.05-0.83$) было выполнено макроскопическими методами [4]. На основании проведенных измерений была построена магнитная фазовая диаграмма сплава $\text{Cu}_{1-x}\text{Mn}_x$ и высказано предположение о возможности существования фазы суперпарамагнетизма.

Метод мюонной спиновой релаксации (μ SR) достаточно эффективно использовался ранее для изучения разупорядоченных магнитных состояний и процессов спиновой динамики неспиноволновой природы [5,6] и активно применялся для исследования состояния спи-

нового стекла в сплавах $\text{Cu}_{1-x}\text{Mn}_x$ для $x < 0.1$ [7]. При больших концентрациях магнитных атомов Mn ($x > 0.1$) μ SR-метод был использован авторами работы [8]. Было впервые высказано предположение о существовании нового магнитного фазового перехода, предшествующего переходу в состояние спинового стекла. В данной работе были проведены измерения при большем наборе концентраций магнитных атомов Mn, особое внимание уделено измерению самих концентраций.

2. Эксперимент и результаты

В настоящей работе представлены результаты исследования магнитных свойств гомогенных медно-марганцевых сплавов $\text{Cu}_{1-x}\text{Mn}_x$, выполненного методом μ SR на синхротронном ПИЯФ РАН (Гатчина) и в PSI (Швейцария). Гомогенизацию образцов осуществляли путем закалки в воду после их выдержки в муфельной печи при температуре 1100 К в течение 100 ч.

В эксперименте измерялись как временные распределения позитронов $N_e(t)$, образовавшихся при распаде $\mu^+ \rightarrow e^+ + \nu_e + \bar{\nu}_\mu$ (время жизни мюона $\tau_\mu \approx 2.2 \mu\text{s}$), вылетевших в направлении исходной мюонной поляризации (использовались поляризованные пучки мюонов) во временном окне $\Delta t \approx 4.5\tau_\mu$ после момента остановки каждого мюона в образце, так и интегральный выход этих позитронов n_e [9]. Временные распределения аппроксимировались функцией в виде

$$N_e(t) = N_0[1 + a_0 G(t)] \exp(-t/\tau_\mu), \quad (1)$$

где нормировочная константа N_0 и максимальная асимметрия a_0 характеризуют специфические для каждого образца условия эксперимента и не зависят от процесса деполаризации мюонов. Определяемая из $N_e(t)$ функция релаксации спина мюона $G(t)$ отображает влияние локальных магнитных полей на спин мюона в месте его

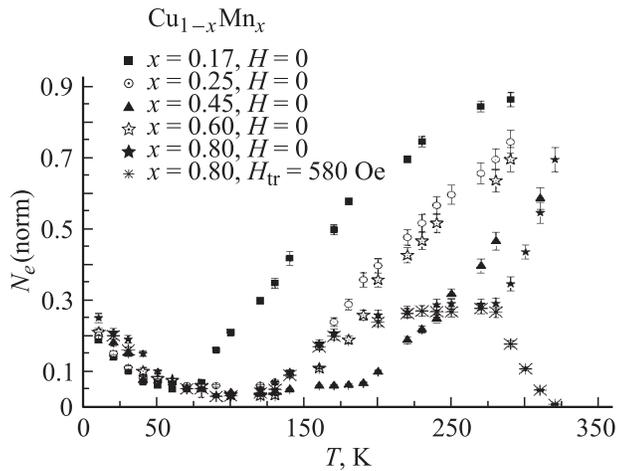


Рис. 1. Нормированный интегральный выход позитронов $N_e(\text{norm})$ для образцов с различными концентрациями магнитных атомов Mn_x .

остановки. В отсутствие деполяризации $G(t) = 1$, а для неполяризованных мюонов имеем $G(t) = 0$.

Представленный на рис. 1 нормированный интегральный выход позитронов для образцов с различной концентрацией атомов марганца $N_e(\text{norm}) = (n_e/n_0 - 1)/a_0$ не зависит от геометрии образцов, параметров μSR -установки и поляризации мюонного пучка и дает общее, модельно-независимое представление о деполяризации мюонов под действием внутренних локальных магнитных полей. Параметры n_0 , a_0 определяются при температуре, существенно превышающей температуру перехода в магнитоупорядоченную фазу.

В частности, для образца $\text{Cu}_{0.2}\text{Mn}_{0.8}$ при температурах $T > 330$ К измеренная в нулевом внешнем магнитном поле величина $N_e(\text{norm})$ стремится к единице. Это обстоятельство указывает на отсутствие деполяризации мюонов в далекой парамагнитной области, где частота осцилляций электронных моментов слишком велика ($\sim 10^{12}$ Hz), чтобы их магнитное поле заметно изменило поляризацию мюонов. На парамагнитное состояние указывает и полная деполяризация мюонов в сравнительно слабом поперечном внешнем магнитном поле ~ 580 Ое. Резкое изменение значения $N_e(\text{norm})$ в интервале температур 320–290 К с последующим выходом на уровень $\sim 1/3$ указывает на переход образца в магнитоупорядоченное состояние с изотропной (на локальном, кластерном или доменном уровне) ориентацией статических внутренних локальных магнитных полей. Это хорошо согласуется с ранее предложенной [4] фазовой диаграммой, показывающей наличие в гомогенном сплаве с $x = 0.8$ антиферромагнитного перехода с $T_N \sim 300$ К. Уровень $1/3$ для $N_e(\text{norm})$ сохраняется вплоть до $T \approx 200$ К; при дальнейшем понижении температуры наблюдается резкое уменьшение величины $N_e(\text{norm})$ почти до нуля. Данный факт указывает на то, что в этом диапазоне температур возникает силь-

ная динамическая деполяризация мюонов. Зависимость $N_e(\text{norm})$ от температуры в области 200–20 К имеет вид, характерный для фрустрированных магнетиков, испытывающих переход в низкотемпературное состояние спинового стекла через промежуточную магнитоупорядоченную фазу с дальним порядком. В этом случае причиной динамической деполяризации является перестройка магнитной структуры в области перехода [5].

На рис. 1 показано поведение $N_e(\text{norm})$ в зависимости от температуры еще для трех образцов с концентрацией $x = 0.17, 0.25, 0.45$. Для этих образцов видно резкое уменьшение $N_e(\text{norm})$ с понижением температуры, что связано с сильной деполяризацией мюонов. Тот факт, что $N_e(\text{norm})$ уменьшается почти до нуля, указывает на флуктуационный характер и довольно большую величину возникающих локальных магнитных полей. Более того, для образца с концентрацией атомов марганца $x = 0.45$ наблюдается сначала падение $N_e(\text{norm})$ до некоторой малой величины, после чего в достаточно широком температурном диапазоне (от 200 до 60 К) нормированный выход позитронов остается практически неизменным. Это в некоторой степени указывает на то обстоятельство, что в данном интервале температур для этого образца установилось вполне определенное фазовое состояние, характеризующееся сильной спиновой динамикой. По мере понижения температуры ($T < 60$ К) наблюдается постепенный рост $N_e(\text{norm})$ до $\sim 1/3$, что соответствует переходу образца в фазу изотропного магнетика со слабой спиновой динамикой.

Следует отметить еще одну особенность в поведении нормированного интеграла $N_e(\text{norm})$ в зависимости от концентрации x магнитных атомов марганца. Для всех исследованных образцов с $x = 0.17–0.6$ скорость изменения $N_e(\text{norm})$ от температуры в области высокотемпературного перехода одна и та же. Это еще раз указывает на наличие одних и тех же физических процессов в сплавах, а полученные характеристики не являются следствием определенного качества образцов. Наблюдается увеличение температуры перехода с увеличением концентрации магнитных атомов вплоть до концентрации $x = 0.45$. Затем температура перехода уменьшается. Так, для образца с концентрацией $x = 0.6$ переход наблюдается примерно при той же температуре, что и для образца с концентрацией $x = 0.25$. Аналогичную зависимость температуры перехода от концентрации x наблюдали авторы работы [4]. Такой эффект был объяснен соответствующим изменением размеров антиферромагнитных кластеров.

Анализ временных спектров $N_e(t)$ показал, что экспериментальные данные не поддаются описанию с использованием простого вида функции релаксации. В парамагнитной области эти данные достаточно хорошо описываются с использованием функции релаксации вида

$$G(t) = \exp(-\lambda t). \quad (2)$$

Однако по мере приближения к первому магнитному переходу, признаком чего является резкое увеличение λ ,

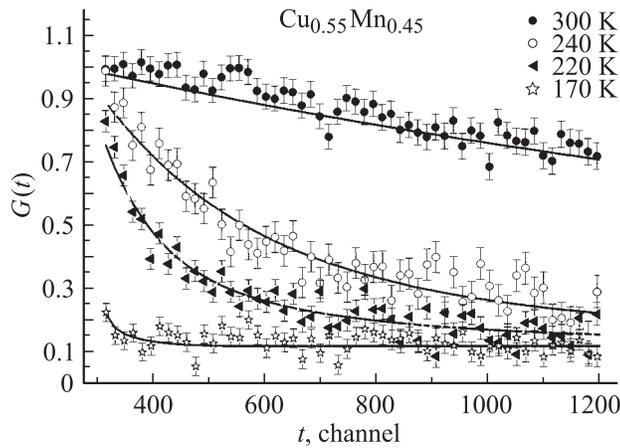


Рис. 2. Вид функций релаксации для образца $\text{Cu}_{0.55}\text{Mn}_{0.45}$ в диапазоне температур 170–300 К. По шкале времени t сдвиг на один канал соответствует 0.625 ns, начало шкалы находится в 274 канале.

для описания экспериментальных данных потребовалось использование функции релаксации в виде суммы двух экспонент

$$G(t) = a_1 \exp(-\lambda_D t) + a_2 \exp(-\lambda t), \quad (3)$$

где $a_1 + a_2 = 1$; $G(t)$ — функция релаксации, безразмерная величина, принимающая значение от 0 до 1; λ_D, λ — динамические скорости релаксации для соответствующих экспонент. Наилучшее описание данных наблюдается при фиксированных значениях параметров $a_1 = 1/3$, $a_2 = 2/3$.

При температурах образца, меньших 100 К, экспериментальные данные удается описать с использованием функции релаксации вида

$$G(t) = [1/3 + 2/3(1 - \Delta t) \exp(-\Delta t)] \exp(-\lambda_D t). \quad (4)$$

В случае, когда $\lambda_D \ll \Delta$, такой вид G -функции соответствует модели спинового стекла. В этом случае параметр λ_D отражает релаксацию, связанную с присутствием флуктуирующих случайных полей. Параметр Δ связан со статическими полями.

Более сложное выражение для функции релаксации было предложено авторами работы [7]. Однако при описании временных спектров $N_e(t)$ для больших концентраций Mn ($x > 0.2$) вид функции релаксации, представленный соотношением (4), более предпочтителен.

Поведение функций релаксации в зависимости от температуры для образца $\text{Cu}_{0.55}\text{Mn}_{0.45}$ показано на рис. 2 и 3, из которых следует, что в области температур 240–120 К наблюдается практически полная деполяризация мюонного ансамбля. Уменьшение релаксации происходит только при понижении температуры образца ниже 100 К; при температуре образца 20 К функция релаксации асимптотически приближается к величине $\sim 1/3$, что соответствует случаю изотропной ориентации квазистатических локальных магнитных полей.

На рис. 4 показано поведение параметров λ , λ_D и Δ в зависимости от температуры образца. Наблюдается два магнитных перехода; первый — при температуре образца ~ 200 К, второй — в области температур 150–130 К.

Следует отметить, что параметр статического поля Δ можно получить из обработки экспериментальных данных только при условии, что $\Delta > \lambda_D$, при этом с уменьшением λ_D растет достоверность определения параметра Δ .

Представленные результаты показывают, что в однородных сплавах $\text{Cu}_{1-x}\text{Mn}_x$ в широкой области концентраций при температурах 100–200 К существует фазовый переход в некоторое магнитное состояние. Эта фаза возникает независимо от вида более высокотемпературного состояния: пара- или антиферромагнитного. Она характеризуется значительной неоднородностью локальных полей, что связано с отсутствием дальнего магнитного порядка.

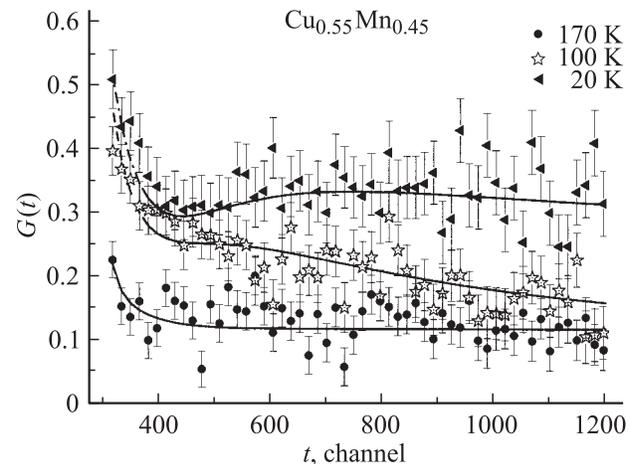


Рис. 3. Поведение функций релаксации для образца $\text{Cu}_{0.55}\text{Mn}_{0.45}$ в диапазоне температур 20–170 К. По шкале времени t сдвиг на один канал соответствует 0.625 ns, начало шкалы находится в 274 канале.

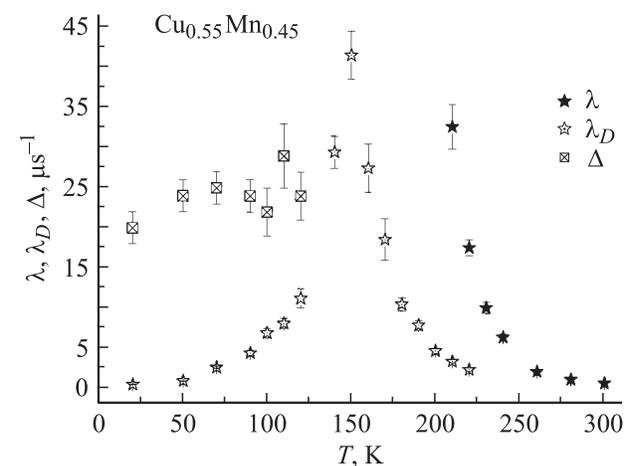


Рис. 4. Температурная зависимость динамических (λ, λ_D) и статической (Δ) скоростей релаксации.

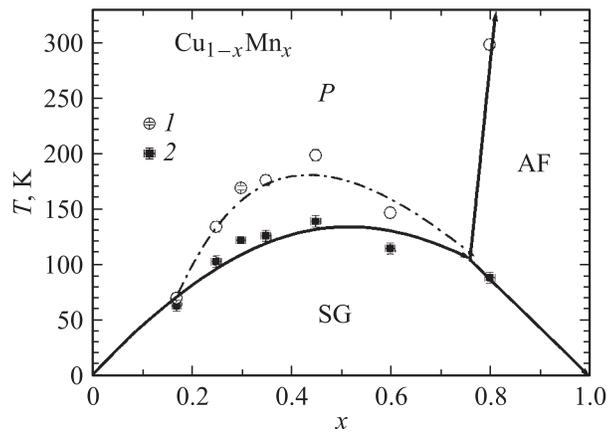


Рис. 5. Фазовая диаграмма гомогенных медно-марганцевых сплавов $\text{Cu}_{1-x}\text{Mn}_x$.

3. Заключение

Таким образом, полученные данные позволяют существенно дополнить магнитную фазовую диаграмму гомогенных медно-марганцевых сплавов $\text{Cu}_{1-x}\text{Mn}_x$ (рис. 5), которая принимает вид, характерный для систем с конкурирующим обменным взаимодействием [5].

На приведенной фазовой диаграмме сплошной линией указаны границы между состояниями парамагнетик (P)–антиферромагнетик (AF)–спиновое стекло (SG), построенные на основании известных литературных данных [1,2,4,7]. Результаты настоящей работы представлены на рис. 5 точками 1 и 2 для высокотемпературного и низкотемпературного переходов соответственно. Штриховая линия показывает условную границу существования нового фазового состояния между парамагнитной и спин-стекляной фазой. Концентрационная зависимость $T(x)$, как видно из рис. 5, не противоречит тенденции изменения температуры перехода (T_G) в состояние спинового стекла (SG), что имеет место при $x < 0.15$. Для концентраций $x \sim 0.5$ наблюдается наибольший температурный интервал между двумя переходами. Измерения показали, что новая фаза характеризуется сильной спиновой динамикой не только вблизи перехода, но и при более низких температурах вплоть до перехода в состояние спинового стекла. Анализ полученных экспериментальных данных позволяет предположить, что в бинарных сплавах $\text{Cu}_{1-x}\text{Mn}_x$ при сравнительно больших концентрациях магнитных атомов Mn в диапазоне температур от 250 до 20 К могут реализоваться две фазы магнитоупорядоченного состояния. При более высоких температурах (выше 100 К) возникает состояние с повышенной спиновой динамикой с флуктуирующими случайными полями. В этой фазе параметры λ_D и Δ одного порядка. Описать экспериментальные данные удастся только с использованием более сложного вида G -функции (соотношения (3) и (4)). При температуре ~ 70 К для всех исследованных концентраций наблюда-

ется переход в фазу спинового стекла без флуктуирующих случайных полей, т.е. в фазу обычного спинового стекла.

Список литературы

- [1] Е.З. Винтайкин, В.А. Удовенко, Д.Ф. Литвин, С.Ю. Макушев, В.Б. Дмитриев. Изв. вузов. Физика **5**, 104 (1985).
- [2] Е.З. Винтайкин, В.А. Удовенко, В.Б. Дмитриев. Физика металлов и металловедение **44**, 1023 (1977).
- [3] А.Н. Васильев, В.Д. Бучельников, Т. Такачи, В.В. Ховайло, Э.И. Эстрин. УФН **173**, 577 (2003).
- [4] A. Banerjee, A.K. Majumdar. Phys. Rev. B **46**, 8958 (1992).
- [5] S.G. Barsov, A.L. Getalov, S.L. Ginsburg, V.P. Koptev, S.P. Kruglov, L.A. Kuzmin, S.V. Maleyev, E.I. Maltsev, S.M. Mirkirtychyans, N.A. Tarasov, G.V. Shcherbakov, V.G. Grebinnik, V.N. Duginov, A.B. Lazarev, V.G. Olshevski, S.N. Shilov, V.A. Zhukov, I.I. Gurevich, B.F. Kirillov, A.I. Klimov, V.A. Nikolski, A.V. Pirogov, A.N. Ponomarev, V.A. Suetin. Hyperfine Interactions **64**, 415 (1990).
- [6] С.Г. Барсов, Г.П. Гасникова, А.Л. Геталов, В.П. Коптев, С.А. Котов, Л.А. Кузьмин, А.З. Меньшиков, С.М. Микиртычянц, Г.В. Щербаков. Письма в ЖЭТФ **57**, 651 (1993).
- [7] Y.J. Uemura, T. Yamazaki, D.R. Harshman, M. Semba, E.J. Ansaldo. Phys. Rev. B **31**, 546 (1985).
- [8] S.G. Barsov, A.L. Getalov, V.P. Koptev, S.A. Kotov, S.M. Mirkirtychyans, G.V. Shcherbakov. Physica B **289–290**, 221 (2000).
- [9] С.Г. Барсов, Ф.Л. Геталов, В.П. Коптев, Л.А. Кузьмин, С.М. Микиртычянц, Н.А. Тарасов, Г.В. Щербаков. Препринт ЛИЯФ № 1312, Гатчина (1988). 17 с.