

## ЭЛЕКТРИЧЕСКИЕ И МАГНИТНЫЕ СВОЙСТВА

УДК 537.611.4:537.638.5

### НЕЙТРОНОГРАФИЧЕСКИЕ ИССЛЕДОВАНИЯ ТРАНСФОРМАЦИИ МАГНИТНОЙ И ДОМЕННОЙ СТРУКТУРЫ ПРИ СПИН-ПЕРЕОРИЕНТАЦИОННОМ ПЕРЕХОДЕ В ФЕРРИМАГНЕТИКЕ $Tm_2Fe_{18}$

© 2019 г. Э. З. Валиев<sup>a</sup>, В. И. Воронин<sup>a</sup>, В. П. Глазков<sup>b</sup>, А. Г. Кучин<sup>a</sup>, Л. А. Максимов<sup>b</sup>,  
В. А. Соменков<sup>b</sup>, С. П. Платонов<sup>a</sup>, Н. В. Проскурнина<sup>a, \*</sup>, М. Н. Шушунов<sup>b</sup>

<sup>a</sup>ФГБУН Институт физики металлов имени М.Н. Михеева УрО РАН,  
620108 Россия, Екатеринбург, ул. С. Ковалевской, 18

<sup>b</sup>НИЦ “Курчатовский институт”, 123182 Россия, Москва, пл. Академика Курчатова 1

\*e-mail: proskurnina@imp.uran.ru

Поступила в редакцию 02.07.2018 г.

После доработки 04.09.2018 г.

Принята к публикации 23.10.2018 г.

Кристаллическая и магнитная структура нестехиометрического интерметаллического соединения  $Tm_2Fe_{18}$  была исследована в температурном интервале от 3 до 300 К. Были применены методы нейтронной дифракции, синхротронного излучения и ультрамалоуглового рассеяния нейтронов. Дана теоретическая интерпретация спин-переориентационного перехода и определены величина и температурная зависимость первых констант магнитной анизотропии для подрешеток железа и тулия. По результатам эксперимента и теоретической интерпретации малоуглового рассеяния нейтронов сделан вывод о перестройке доменной структуры при спин-переориентационном фазовом переходе.

*Ключевые слова:* интерметаллиды, магнитная структура, кристаллическая структура, нейтронная дифракция, синхротронная дифракция

DOI: 10.1134/S0015323019040156

#### ВВЕДЕНИЕ

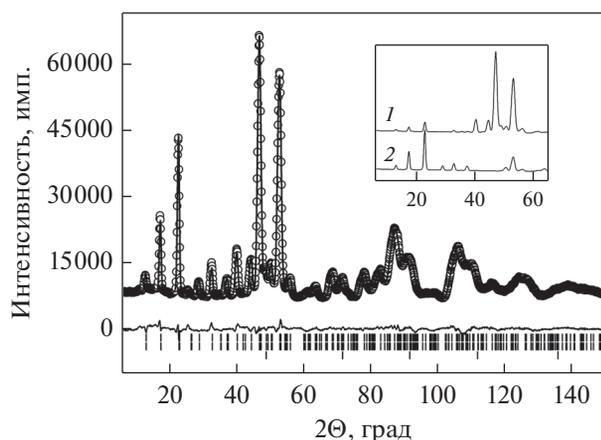
Магнитные рефрижераторы, основанные на магнитокалорическом эффекте (МКЭ), вызывают возрастающий интерес вследствие высокой эффективности, надежности и экологичности. Интерметаллические соединения  $R_2Fe_{17}$  являются многообещающими магнитокалорическими материалами вследствие большой намагниченности, низкой стоимости основного компонента, легкости приготовления, магнитного упорядочения в “легкой” базисной плоскости в районе комнатной температуры и отсутствия гистерезиса перемагничивания. В статье [1] нами было показано, что хладоемкость соединения  $Tm_2Fe_{18}$  соизмерима или даже превосходит значения для материалов с гигантским МКЭ благодаря близким температурам двух магнитных фазовых переходов “ферри-магнетик–геликоидальный антиферромагнетик–парамагнетик”.

В данной работе мы исследовали структурное и магнитное состояние соединения  $Tm_2Fe_{18}$  методами дифракции нейтронов, малоуглового рассе-

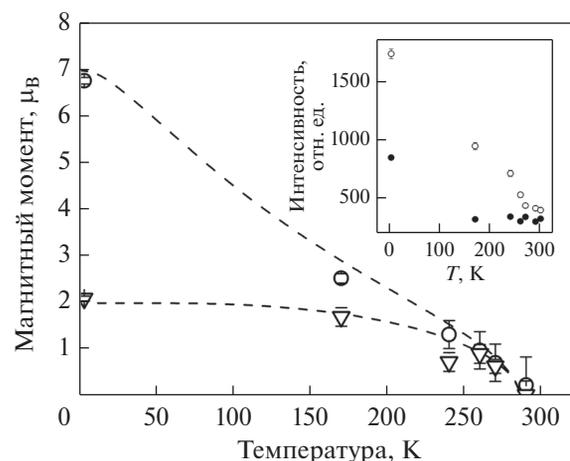
яния тепловых нейтронов и с помощью синхротронного излучения в интервале температур 3–300 К.

#### ОБРАЗЦЫ И МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЯ

Синтез образцов  $Tm_2Fe_{17+x}$  описан в работе [2]. Кристаллическая структура  $Tm_2Fe_{18}$  при комнатной температуре была аттестована методом нейтронографии на дифрактометре D7a (г. Екатеринбург), длина волны  $\lambda = 1.5230 \text{ \AA}$ . Исследование магнитной структуры при низких температурах было выполнено на нейтронном дифрактометре “Диск” Научно-исследовательского центра (НИЦ) “Курчатовский институт”, длина волны  $\lambda = 1.6750 \text{ \AA}$  (г. Москва). Температурные зависимости параметров решетки получены на источнике синхротронного излучения “Desy”, длина волны  $\lambda = 0.6880 \text{ \AA}$  (г. Гамбург, Германия). С помощью нейтронного спектрометра “СТОИК”, длина волны  $\lambda = 1.5400 \text{ \AA}$  (НИЦ “Курчатовский институт”, г. Москва) проведено изучение ультрамалоуглового рассеяния. Обработку дифрак-



**Рис. 1.** Нейтронограмма  $Tm_2Fe_{18}$  при  $T = 3$  К. Эксперимент – кружки, расчет – огибающая, разность – нижняя линия. Штрихи – рефлексы кристаллической (верхние) и магнитной (средние) фаз,  $\alpha$ -Fe (нижние). Вставка – фрагмент нейтронограмм: 1 – кристаллической, 2 – магнитной фаз.



**Рис. 2** Температурная зависимость модулей магнитных моментов Tm (кружки) и Fe (треугольники) в  $Tm_2Fe_{18}$ . Значки – экспериментальные данные. Линий – теоретический расчет. На вставке – изменение интенсивности рефлексов: (100) – закрытые, (110) + (002) открытые кружки.

ционных данных осуществляли с использованием компьютерной программы FullProf [3].

### ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

Анализ экспериментальной нейтронограммы на дифрактометре Д7а подтвердил разупорядоченную модель кристаллической структуры типа  $Th_2Ni_{17}$ . [2, 4–10]: вакансии в подрешетке тулия (узлы  $2b$  и  $2d$ ), частичное заполнение позиции  $2c$  и обмен позициями двух “гантельных” атомов Fe и Tm (пр. гр.  $R\bar{6}_3/mmc$ ). Для низкотемпературных исследований мы использовали дифрактометр “Диск”. При температуре 3 К набор рефлексов не изменился, подтверждая сохранение типа кристаллической решетки. Однако интенсивности рефлексов в ближних углах увеличились, указывая на дополнительный вклад от магнитного рассеяния. На рис. 1 показана нейтронограмма  $Tm_2Fe_{18}$  при температуре 3 К. Расчетный профиль (огибающая точки линия) и разностная кривая (нижняя) показывают хорошее согласие с экспериментом. Мы использовали модель магнитной структуры, предложенной в работах [10, 11]: ферримагнитная решетка с магнитными моментами атомов железа и тулия, лежащими вдоль гексагональной оси  $c$ . На вставке рис. 1 приведены рассчитанные из экспериментальных данных нейтронограммы ядерного и магнитного рассеяния. На ней видны магнитные рефлексы, первый пик (100) при  $2\theta = 13.1^\circ$  и третий пик (110) + (002) при  $2\theta = 23.2^\circ$ . В первый пик дают вклад только магнитные моменты, ориентированные вдоль оси  $c$ . В третий пик – лежащие как вдоль оси  $c$ , так и в базисной плоскости. Их величины (рис. 2, вставка) уменьшаются при нагреве, но если  $I_{100}$  при  $T \sim 170$  К

(возможно, раньше) перестает уменьшаться, то для  $I_{110+002}$  уменьшение продолжается. Такое поведение можно трактовать как переориентацию направления магнитного момента от гексагональной оси в базисную плоскость, что подтверждается анализом нейтронограмм. Резкий спад интенсивности  $I_{110+002}$  в интервале 245–270 К соответствует переходу сплава в геликоидальное антиферромагнитное состояние при этих температурах, согласно магнитным измерениям [2].

На рис. 2 представлено температурное изменение модулей магнитных моментов атомов тулия и железа. Подробное изменение параметров решетки при различных температурах было получено нами с использованием синхротронного излучения (рис. 3), дополненное данными нейтронной дифракции. Наблюдается монотонное уменьшение параметра  $c$  при повышении температуры (рис. 3б). Параметр  $a$  (рис. 3а) показывает немонотонное поведение: при низких температурах он уменьшается до  $T \sim 100$  К, затем возрастает и при температуре  $\sim 250$  К снова слегка уменьшается. Т.е. явно видны магнитоэстропические эффекты в сплаве. Это отражается и на поведении объема элементарной ячейки сплава с температурой (рис. 3в).

Далее было проведено изучение ультрамалоуглового рассеяния на  $Tm_2Fe_{18}$  при изменении температуры (рис. 4). На вставке показан малоугловой рефлекс при  $T = 3$  К и 100 К в сравнении с аппаратным пиком. Видно значительное уменьшение полуширины малоуглового рефлекса при увеличении температуры от 3 до 100 К в области спин-переориентационного перехода.

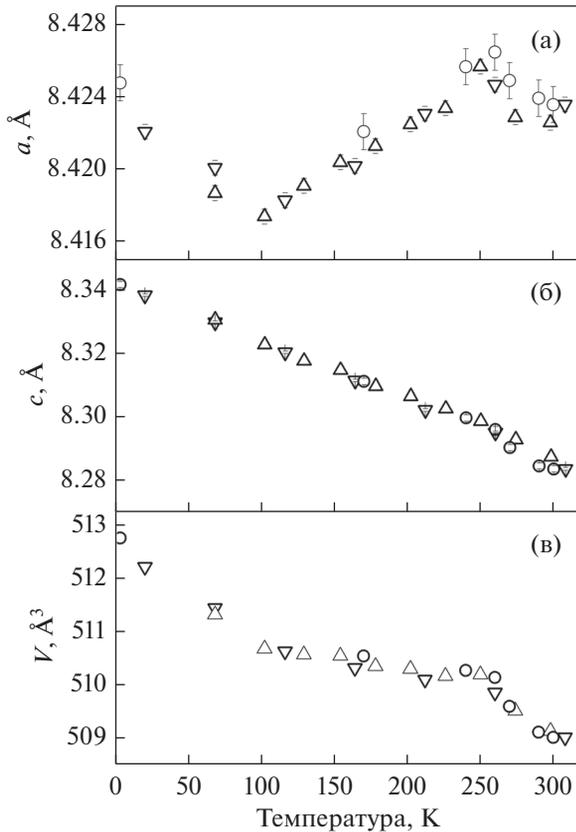


Рис. 3. Зависимость параметров решетки и объема  $Tm_2Fe_{18}$  от температуры. Треугольники вниз – охлаждение, вверх – нагрев (СИ), кружки – нейтроны.

ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

**Температурная зависимость намагниченности подрешеток в  $Tm_2Fe_{18}$ .** Спин-переориентационный (СП) переход происходит в результате изменения констант магнитной анизотропии редкоземельной и  $3d$ -подрешеток с температурой. Известно [2], что в  $Tm_2Fe_{18}$  ферримагнитное упорядочение подрешеток железа и тулия существует в интервале температур от 0 К до 245 К. При  $T \geq 245$  К до  $T \approx 270$  К, это соединение является геликоидальным антиферромагнетиком с  $T_N \approx 270$  К. В дальнейшем будем предполагать, что высокотемпературное антиферромагнитное состояние практически не влияет на температурную зависимость намагниченности подрешеток железа и тулия в области СПП (50–90 К). Эффективную температуру Кюри ферримагнитной фазы  $T_C^*$  примем равной  $T_N \approx 270$  К.

Для расчета температурной зависимости намагниченности подрешеток тулия (R) и железа (F) в соединении  $Tm_2Fe_{18}$  используем метод молекулярного поля. Так же, как в работе [12], рассмотрим модель, в которой на подрешетки ато-

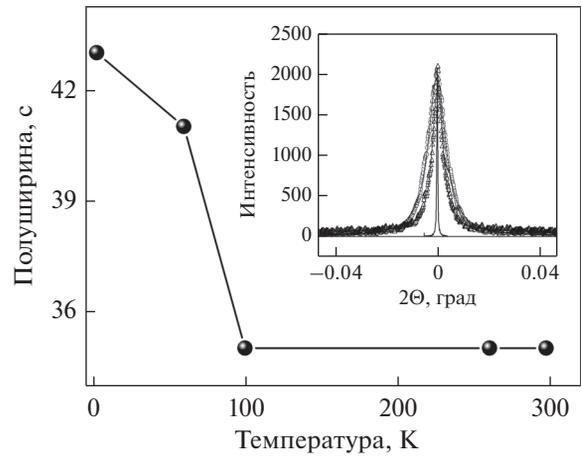


Рис. 4. Зависимость полуширины малоуглового рефлекса рассеяния нейтронов на образце  $Tm_2Fe_{18}$  от температуры. На вставке – малоугловой рефлекс при  $T = 3$  и 100 К в сравнении с аппаратным пиком (сплошная узкая линия).

мов редкой земли и железа действуют различные молекулярные поля:

$$H_R(T) = H + d[2n_{RR}\mu_R(T) + 18n_{RF}\mu_F(T)]; \quad (1)$$

$$H_F(T) = H + d[18n_{FF}\mu_T(T) + 2n_{RF}\mu_R(T)]. \quad (2)$$

В этих уравнениях  $H$  – внешнее магнитное поле,  $\mu_F$  – магнитный момент иона железа при температуре  $T$  в единицах магнетона Бора ( $\mu_B$ ) и  $\mu_R$  – магнитный момент редкоземельного иона. Параметр  $d = N_A\mu_B\rho/A$ , где  $N_A$  – число Авогадро,  $\rho$  – плотность в  $г/см^3$ ,  $A$  – вес формульной единицы. С этими определениями  $H$ ,  $H_R$  и  $H_F$  измеряются в гауссах, а коэффициенты молекулярного поля  $n_{RR}$ ,  $n_{FF}$  и  $n_{RF}$ , описывающие обменные взаимодействия  $R-R$ ,  $Fe-Fe$  и  $R-Fe$ , соответственно, безразмерны. Температурные зависимости магнитных моментов подрешеток получаются из системы уравнений:

$$\mu_R(T) = \mu_R(0)B_{J_R}[\mu_B\mu_R(0)H_R(T)/kT]; \quad (3)$$

$$\mu_F(T) = \mu_F(0)B_{J_F}[\mu_B\mu_F(0)H_F(T)/kT]. \quad (4)$$

Здесь  $B_J(x)$  – функция Бриллюэна,  $J_R$  и  $J_F$  – полные угловые моменты ионов. Магнитный момент R-иона  $\mu_R(0) = g_R J_R$ . Заметим, что из экспериментальных данных следует значение  $\mu_F(0)$ , близкое к  $2\mu_B$ . Поэтому будем использовать  $g_F = 2$ ,  $J_F = 1$  и  $\mu_F(0) = 2$ . При оценке аргументов функции Бриллюэна предполагаем, что  $\mu_R(T)$  и  $\mu_F(T)$  строго антипараллельны (ферримагнитное упорядочение) и  $n_{RR} \geq 0$ ,  $n_{FF} > 0$ ,  $n_{RF} < 0$ . Для нашего образца из экспериментальных данных следует:  $g_R = 7/6$ ,  $J_R = 6$ ,  $J_F = S_F = 1$ ,  $\mu_F(0) = 2$ ,  $\mu_R(0) = 7$ ,  $d = 36.2$  Гаусса.

Численные значения коэффициентов молекулярного поля  $n_{RR}$ ,  $n_{FF}$  и  $n_{RF}$  определим следующим образом. Известно [13], что в соединениях  $R_2Fe_{17}$  коэффициент  $n_{RR}$  является наименьшим по абсолютной величине из трех вышеперечисленных. Поэтому приближенно примем  $n_{RR} = 0$ . Определенная разными методами величина микроскопической константы обменного взаимодействия между атомами редкой земли и железа  $I_{RF}$  в интерметаллидах  $R_2Fe_{17}$  и карбидах, нитридах на их основе приближительно постоянна. В зависимости от состава,  $I_{RF}$  изменяется в интервале  $(0.8-1) \times 10^{-15}$  эрг. Несложно установить связь между  $I_{RF}$  и  $n_{RF}$ . В приближении теории молекулярного поля обменная энергия  $R$ -иона в молекулярном поле  $H_R$  равна  $E_{ex}^R = -\mu_B \mu_R H_R(T)$  или, учитывая выражение (1) при  $H = 0$  и  $n_{RR} = 0$ ,  $E_{ex}^R = -18d\mu_B \mu_R \mu_F |n_{RF}|$ . С другой стороны, по определению имеем  $E_{ex}^R = -2z_{RF} |I_{RF}| S_R S_F$ . Приравняв приведенные выше выражения для  $E_{ex}^R$ , получим  $n_{RF} = z_{RF} I_{RF} \frac{(g_R - 1)}{18d\mu_B g_R}$ . Здесь  $z_{RF} = 19 -$  число атомов железа в окружении атома тулия. Подставляя в выражение для  $n_{RF}$  значение  $I_{RF} = -0.8 \times 10^{-15}$  эрг, имеем  $n_{RF} \cong -378.4$ .

Система уравнений (3), (4) описывает температурную зависимость магнитных моментов подрешеток тулия и железа. Раскладывая функцию Бриллюэна  $B_j(x)$  в степенной ряд при  $x \ll 1$ , можно получить систему двух линейных однородных уравнений для вычисления  $\mu_R(T)$  и  $\mu_F(T)$ . Условие существования ненулевых решений этой системы дает выражение для температуры Кюри:

$$A(n_{FF} - B) + n_{RF}^2 = 0, \quad (5)$$

$$\text{где } A = 3kT_C^* J_R / (2J_R + 1) \mu_B \mu_R^2(0)d; \quad B = 3kT_C^* J_F / (18(J_F + 1) \mu_B \mu_F^2(0)d).$$

Подставляя в (5)  $n_{RF} = -378.4$ ,  $T_C^* = 270$  К, получим  $n_{FF} = 2300$ .

На рис. 2 линии представляют результат расчета намагниченности из уравнений (3) и (5). Как видно, наблюдается удовлетворительное согласие расчета с экспериментом. Сильное различие в температурных зависимостях намагниченностей подрешеток тулия и железа объясняется тем, что их атомы имеют разный магнитный момент и на подрешетки действуют различные по величине молекулярные поля.

**Спин-переориентационный фазовый переход в  $Tm_2Fe_{18}$ .** Из экспериментальных данных по температурной зависимости рефлексов (100) и (110) + (200) (рис. 2, вставка) следует, что при низких темпера-

турах намагниченность подрешеток тулия и железа направлена вдоль оси  $c$  гексагонального кристалла  $Tm_2Fe_{18}$ . При температурах выше 100 К интенсивность рефлекса (100) постоянна, т.е. магнитный вклад в интенсивность этого рефлекса равен нулю. Этот факт указывает на разворот векторов магнитных моментов от оси  $c$  в плоскость базиса.

Рассмотрим СП фазовый переход на основе модели, впервые предложенной в работе [14] (см. также [10, 11, 15, 16]). Эта модель применима к двухподрешеточным магнетикам, в которых энергии одноионной анизотропии подрешеток сравнима с энергией изотропного обменного взаимодействия между подрешетками. Как показано в [14], если первые константы анизотропии ионов подрешеток имеют разные знаки, то в результате конкуренции обменного взаимодействия и магнитной анизотропии в некотором интервале температур возникает неколлинеарная магнитная структура даже при нулевых вторых константах магнитной анизотропии. Термодинамический потенциал единицы объема кристалла, учитывающий обменную энергию и энергию магнитной анизотропии, можно представить в следующем виде

$$F = -M_R H_R(T) - M_F H_F(T) + K_R \sin^2 \theta_R + K_F \sin^2 \theta_F. \quad (6)$$

Здесь  $M_R = \mu_B N_R \mu_R(T)$ ,  $M_F = \mu_B N_F \mu_F(T)$  – магнитные моменты единицы объема подрешеток редкой земли и железа соответственно;  $N_R = 2N$  и  $N_F = 18N$  – число ионов R и Fe в единице объема соответственно;  $N$  – число формульных единиц в единице объема;  $H_R$  и  $H_F$  – молекулярные поля из (1), (2);  $\theta_R$  и  $\theta_F$  – углы, образованные магнитными моментами подрешеток с гексагональной осью кристалла;  $K_R$  и  $K_F$  – первые макроскопические константы одноионной анизотропии ионов R и Fe.

Если оставить в (6) только слагаемые, зависящие от углов  $\theta_R$  и  $\theta_F$ , то выражение для термодинамического потенциала будет выглядеть как

$$F = 2A_{RF} \sigma_R(T) \sigma_F(T) \cos(\theta_R - \theta_F) + K_R \sin^2 \theta_R + K_F \sin^2 \theta_F \quad (7)$$

$A_{RF} = -2 \times 18d n_{RF} \mu_B \mu_R(0) \mu_F(0) N$  – макроскопическая константа обменного взаимодействия между подрешетками,  $\sigma_R(T) = \mu_R(T) / \mu_R(0)$ ;  $\sigma_F(T) = \mu_F(T) / \mu_F(0)$  – приведенные намагниченности подрешеток;  $\theta_R$  и  $\theta_F$  – углы, образованные магнитными моментами подрешеток с гексагональной осью кристалла.

Условие минимума термодинамического потенциала (7) по  $\theta_R$  и  $\theta_F$  дает:

$$2A_{RF} \sigma_R(T) \sigma_F(T) \sin(\theta_R - \theta_F) + K_R \sin 2\theta_R = 0; \quad (8a)$$

$$-2A_{RF} \sigma_R(T) \sigma_F(T) \sin(\theta_R - \theta_F) + K_F \sin 2\theta_F = 0. \quad (8b)$$

В [14] показано, что система уравнений (8) имеет тривиальное решение  $\sin(\theta_R - \theta_F) = 0$ ;  $\theta_F = 0$ ,  $\pi/2$ ;  $\theta_R = \pi$ ,  $-\pi/2$ , соответствующее расположению векторов намагниченности подрешеток  $\mathbf{M}_R$  и  $\mathbf{M}_F$  антипараллельно друг другу вдоль оси  $c$  или в плоскости базиса. Кроме того, имеется решение с  $\sin(\theta_R - \theta_F) \neq 0$ , соответствующее неколлинеарной магнитной структуре.

Границы существования неколлинеарной фазы (НКФ) можно получить из условия существования ненулевых решений для линейаризованной системы уравнений (8). Систему линейных уравнений получим, раскладывая в степенные ряды по  $x$  и  $y$  все функции углов  $\theta_F = 0 + x$ ,  $\theta_R = \pi + y$  в уравнениях (8) и ограничиваясь линейными по  $x$  и  $y$  слагаемыми. Вторую границу существования НКФ получим, проводя аналогичную процедуру для углов  $\theta_F = \pi/2 + x$ ,  $\theta_R = -\pi/2 + y$ . Приравнявая к нулю определитель полученной таким образом системы линейных однородных уравнений, имеем

$$\pm(K_R + K_F) = -(K_R K_F / A_{RF} \sigma_R \sigma_F). \quad (9)$$

Знаки  $\pm$  относятся к границе перехода легкая ось – НКФ и НКФ – легкая плоскость соответственно.

Выражение (9) было получено в работе [14] другим способом. Обобщение формулы (9) на случай  $H \neq 0$  рассмотрено в работе [10]. Таким образом, изменение направления магнитных моментов подрешеток происходит путем двух фазовых переходов второго рода через промежуточную угловую фазу ( $\theta_R$ ,  $\theta_F \neq 0$ ,  $\pi/2$ ,  $\pi$ ,  $3\pi/2$ ), которая является еще и НКФ.

Из (9) можно получить численные значения  $K_R(0)$  и  $K_F(0)$ , если известны температуры начала  $T_i$  и конца  $T_f$  спин-переориентационного перехода.

В соединении  $Tm_2Fe_{18}$  при  $T < 100$  К первые константы анизотропии  $K_R > 0$  и  $K_F < 0$ , причем  $K_R + K_F > 0$ . Отсюда следует, в согласии с экспериментом, что направлением легкого намагничивания является ось  $c$ . Согласно выражению (7), движущей силой СП-перехода при повышении температуры является изменение знака величины  $K_R + K_F$ . Это изменение связано с различной температурной зависимостью констант  $K_R$  и  $K_F$ , что следует из результатов измерений и расчета  $\mu_R(T)$  и  $\mu_F(T)$  (рис. 2). Видно, что  $\mu_R(T)$  практически не меняется в температурном интервале от 0 до 100 К, т.е. для этого интервала можно принять  $K_F(T) = K_F(0) = \text{const}$ . Для расчета температурной зависимости  $K_R(T)$  используем формулу [16]:

$$K_R(T) = K_R(0)[3J \langle \sigma_R^2 \rangle - (J + 1)] / (2J - 1). \quad (10)$$

Здесь  $\langle \sigma_R^2 \rangle = B_J^2(T_0/T) + B'_J(T_0/T)$ ,  $J \equiv J_R$ ,  $B'_J(x)$  – производная функции Бриллюэна.

При расчете по формуле (10) предполагаем, что редкоземельный ион находится в молекулярном поле, созданном атомами железа, и, в соответствии с предыдущим изложением,  $T_0 = 18d|n_{RF}|\mu_R(0)\mu_F(0)\mu_B/k$ . Из формул (3), (4) видно, что  $\sigma_R(T) = B_J(T_0/T)$  совпадает в интервале  $\Delta T = (0-100)$  К со значением  $\sigma_R(T)$ , полученным при решении системы уравнений (3, 4), так как в этом интервале температур  $\sigma_F \approx 1$ .

Подставив в (9) известные значения температур  $T_i = 55$  К и  $T_f = 85$  К [2] для переходов легкая ось – НКФ и НКФ – легкая плоскость, соответственно, определим численные значения  $K_R(0)$  и  $K_F(0)$  из системы уравнений (9).

Для температурной зависимости  $K_R(T)$  используем формулу (10),  $\sigma_R(T)$  и  $\sigma_F(T)$  рассчитаем по формулам (3), (4) с указанными выше значениями параметров. Приведем численные значения  $A_{RF} = 2.5 \times 10^8$  эрг/см<sup>3</sup>,  $T_0 = 232$  К которые использованы при решении уравнений (9). Таким образом, имеем:  $K_R(0) = 8.6$  эрг/см<sup>3</sup>;  $K_F(0) = -3.95 \times 10^7$  эрг/см<sup>3</sup>.

Для сравнения, эти константы для  $Tm_2Fe_{17}$  имеют значения того же порядка:  $K_R(0) = 6.27 \times 10^7$  эрг/см<sup>3</sup>;  $K_F(0) = -2.43 \times 10^7$  эрг/см<sup>3</sup> [9].

Расчет температурной зависимости констант  $K_R(T)$  и  $K_F(T)$  показал, что они равны по абсолютной величине на середине температурного интервала СП перехода ( $\sim 70$  К).

**Изменение доменной структуры в  $Tm_2Fe_{18}$  при спин-переориентационном переходе.** На рис. 4 показано изменение полуширины рефлекса хорошо коллимированного пучка нейтронов после прохождения через исследуемый образец от температуры. Так как образец состоит из набора малых магнитных частиц линейного размера  $R \sim 10$  мкм ( $10^{-3}$  см), то можно предположить, что уширение пучка нейтронов вызвано многократным магнитным и ядерным рассеянием нейтронов на частицах образца [18]. Магнитный вклад в рассеяние должен исчезать при  $T = T_C^* \approx 270$  К. По результатам эксперимента (рис. 4) он исчезает при  $T \approx 100$  К.

Согласно [18], форма рефлекса пучка нейтронов, прошедших через образец с размером частиц  $R/\lambda \gg 1$ , является гауссовой, а его полная ширина на половине высоты равна

$$\omega = bn^{1/2}\delta \quad (11)$$

$b$  – коэффициент, зависящий от формы образца,  $n = (L/R)d$  – число частиц, пересекаемое пучком нейтронов,  $L$  – размер образца,  $d$  – плотность упаковки частиц,  $\delta$  – величина, определяющая коэффициент преломления нейтронов из-за ядерного и магнитного взаимодействия нейтронов.

$$\delta = (Na\lambda^2/2\pi) \pm (\mu B/2E). \quad (12)$$

Здесь  $N$  – число ядер в единице объема,  $a$  – средняя амплитуда когерентного рассеяния нейтронов,  $\mu$  – магнитный момент нейтрона,  $B = 4\pi M$  – магнитная индукция,  $M$  – намагниченность образца,  $E$  – энергия нейтрона, знак  $\pm$  определяется взаимной ориентацией  $\mu$  и  $B$ .

Для нашего образца  $\lambda = 1.54 \text{ \AA}$ ,  $N = 7.88 \times 10^{22} \text{ см}^{-3}$ ,  $a = 0.921 \times 10^{-12} \text{ см}$ ,  $E = 5.54 \times 10^{-14} \text{ эрг}$ ,  $B = 1.011 \times 10^4 \text{ Гс}$ . Поэтому  $\delta_n = Na\lambda^2/2\pi = 2.74 \times 10^{-6}$  и  $\delta_M = \mu B/2E = 0.88 \times 10^{-6}$ . Рассчитаем уширение по формулам (11), (12). Будем считать, что при  $T = 300 \text{ К}$  магнитного вклада нет, т.е.

$$\begin{aligned} \omega &= bn^{1/2}\delta_n = 1.7 \times 10^{-4}; \\ \omega_n &= b2.74 \times 10^{-6} (L/R)^{1/2} d^{1/2} = \\ &= 1.7 \times 10^{-4} = 35''. \end{aligned} \quad (13)$$

У нас  $L = 0.5 \text{ см}$ ,  $d = 0.5 \text{ см}$ . Равенство (13) выполняется при  $b = 3.92 \approx 4$ . Это значение совпадает с величиной  $b$ , принятой в работах [19, 20], что подтверждает справедливость нашей оценки.

Для  $T = 3 \text{ К}$  экспериментальное значение уширения больше. Для объяснения этого факта учтем магнитный вклад из-за рефракции на магнитных доменах. Будем считать частицы однодоменными. В этом случае

$$\begin{aligned} \omega &= b(\delta_n + \delta_M)(L/R)^{1/2} d^{1/2} = \\ &= b(2.74 \times 10^{-6} + 0.88 \times 10^{-6})(L/R)^{1/2} d^{1/2} = \\ &= 2.3 \times 10^{-4} = 47.6''. \end{aligned} \quad (14)$$

Величина уширения в (14) удовлетворительно согласуется с экспериментально измеренным значением  $\omega = 43''$ . Т.е. вклад многократного магнитного рассеяния исчезает не при температуре магнитного упорядочения  $T \sim 270 \text{ К}$ , а при температуре поворота намагниченности типа “легкая ось – легкая плоскость”  $T \sim 100 \text{ К}$ .

В связи с этим фактом отметим, что точное (последовательное) рассмотрение многократной рефракции на магнитных доменах [19, 20] приводит к формуле для уширения  $\omega_M \sim \delta_M (Lv/R)^{1/2}$ , где  $v$  – вероятность изменения спинового состояния нейтрона при переходе между соседними доменами [19, 20]. Эта вероятность равна нулю для оптически однородной в магнитном отношении среды и максимальна, когда намагниченность в соседних доменах имеет противоположные направления. В образце  $\text{Tm}_2\text{Fe}_{18}$  при  $T < 55 \text{ К}$  ось легкого намагничивания совпадает с гексагональной осью кристалла и, по-видимому, между направлениями намагниченности в соседних доменах имеется корреляция ( $v \neq 0$ ). Поэтому пик широкий при  $T < 55 \text{ К}$  (рис.4). При  $T > 100 \text{ К}$  ось легкого намагничивания лежит в плоскости базиса, кристалл становится магнитно-изотропным ( $v \approx 0$ ) и за уширение пучка нейтронов ответ-

ственно только ядерное рассеяние. Этим объясняется отсутствие гистерезиса по полю и температуре для намагниченности сплава  $\text{Tm}_2\text{Fe}_{18}$  и всех сплавов типа  $\text{R}_2\text{Fe}_{17}$  с осью легкого намагничивания в базисной плоскости. Таким образом, наши расчеты (см. также [20]) объясняют экспериментальные данные, приведенные на рис. 4.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Методами нейтронной дифракции, синхротронного излучения и ультрамалоуглового рассеяния нейтронов была исследована кристаллическая, магнитная и доменная структуры интерметаллического соединения  $\text{Tm}_2\text{Fe}_{18}$  в температурном интервале от 3 до 300 К. Сделан вывод, что при низких температурах реализуется ферромагнитная структура с ориентацией оси легкого намагничивания вдоль гексагональной оси. С повышением температуры наблюдается спин-переориентационный переход типа легкая ось – легкая плоскость, сопровождающийся магнитоэлектрическим поведением параметра  $a$  и объема решетки. Показано, что спиновая переориентация происходит путем двух фазовых переходов второго рода через промежуточную неколлинеарную фазу, которая существует в интервале между температурами  $T_i$  и  $T_f$  для переходов типа легкая ось – НКФ и НКФ – легкая плоскость, соответственно. Как показывают вычисления, изменение знака суммы первых констант магнитной анизотропии редкоземельной и железной подрешеток приходится на середину температурного интервала СП-перехода ( $\sim 70 \text{ К}$ ), что и является движущей силой этого фазового перехода. Методом малоуглового рассеяния нейтронов получены данные, дающие представление о трансформации доменной структуры при спин-переориентационном переходе. Результаты работы демонстрируют возможность метода рассеяния нейтронов под ультрамалым углом для диагностики спин-переориентационных фазовых переходов в ферри- и ферромагнетиках.

Работа выполнена в рамках РФФИ грант № 16-12-10065 и государственного задания по теме “Поток” № АААА-А18-118020190112-8.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Kuchin A.G., Iwasieczko W., Platonov S.P.* The magnetocaloric effect in  $\text{R}_2\text{Fe}_{17}$  intermetallics with different types of magnetic phase transition // *Low Temp. Phys.* 2015. V. 41. P. 985.
2. *Kuchin A.G., Platonov S.P., Korolyov A.V., Volegov A.S., Voronin V.I., Berger I.F., Elokhina L.V., Makarova G.M., Belozherov E.V.* Magnetism and structure of near-stoichiometric  $\text{Tm}_2\text{Fe}_{17+\delta}$  compounds // *J. Alloys and Compounds.* 2014. V. 599. P. 26–31.
3. *Rodriges-Carvajal J.* The Programs for Rietveld Refinement // *Physica B.* 1993. V. 192. № 1. P. 55.

4. *Givord D., Lemaire R., Moreau J.M., Roudaut E.* X-ray and neutron determination of a so-called  $\text{Th}_2\text{Ni}_{17}$ -type structure in the lutetium-iron system // *J. Less-Common Met.* 1972. V. 29. № 4. P. 361–369.
5. *Elemans J.B.A.A., Buschow K.H.J.* The Magnetic Structure of  $\text{Tm}_2\text{Fe}_{17}$  // *Phys. Stat. Sol. (a)* 1974. V. 24. № 2. P. K125–K127.
6. *Givord D., Lemaire R.* Magnetic transition and anomalous thermal expansion in  $\text{R}_2\text{Fe}_{17}$  compounds // *IEEE Trans. Magn.* 1974. V. Mag-10. № 2. P. 109–113.
7. *Averbuch-Pouchot M.T., Chenalier R., Deportes J., Kebe B., Lemaire R.* Anisotropy of the magnetization and of the iron hyperfine field in  $\text{R}_2\text{Fe}_{17}$  compounds // *JMMM*. 1987. V. 68. № 2. P. 190–198.
8. *Воронин В.И., Бергер И.Ф., Кучин А.Г.* Исследование методом нейтронной дифракции  $\text{Y}_2\text{Fe}_{17}$  // *ФММ*. 2000. V. 89. № 5. P. 88–92.
9. *Andreev A.V., Rafaja D., Kamarád J., Arnold Z., Homma Y., Shiokawa Y.* Magnetic properties of  $\text{Lu}_2\text{Fe}_{17}$  crystals // *J. Alloys Compounds*. 2003. V. 361. № 1–2. P. 48–53.
10. *Park J., Jo Y., Park J.-G., Prokeš K., Welzel S., Lee C.H., Kudrevatykh N., Valiev E., Pirogov A., Sheptyakov D.* Magnetization anisotropy of the Tm- and Fe-subsystems in  $\text{Tm}_2\text{Fe}_{17}$  // *JMMM* 2001. V. 237. № 2. P. 158–168.
11. *Валиев Э.З., Воронин В.И.* Кристаллическая структура, намагниченности подрешеток и спин-перориентационный переход в соединении  $\text{Er}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_{2.18}$  // *ФТТ*. 2010. Т. 52. №. 5. С. 870–873.
12. *Herbst J.F. and Croat J.J.* Magnetization of  $\text{R}_6\text{Fe}_{23}$  intermetallic compounds: Molecular field theory analysis // *J. Appl. Phys.* 1984. V. 55. P. 3023.
13. *Buschow K.H.J.* New developments in hard magnetic materials // *Rep. Prog. Phys.* 1991. V. 54. № 9. P. 1123.
14. *Ирхин Ю.П., Розенфельд Е.В.* Феноменологическая теория магнитной анизотропии соединений  $\text{RCO}_5$  // *ФТТ*. 1974. Т. 16. С. 485–489.
15. *Ермоленко А.С., Розенфельд Е.В., Ирхин Ю.П., Келарев В.В., Розда А.Ф., Сидоров С.К., Пирогов А.Н., Вохмянин А.П.* Влияние магнитной анизотропии на температурную зависимость намагниченности некоторых соединений типа  $\text{RCO}_5$  // *ЖЭТФ*. 1975. Т. 69. С. 1743–1752.
16. *Белов К.П., Звездин А.К., Кадомцева А.М., Левитин Р.З.* Ориентационные переходы в редкоземельных магнетиках. М.: Наука, 1979. 317 с.
17. *Callen E.R., Callen H.B.* Anisotropic magnetization // *J. Phys. Chem. Solids* 1960. V. 16. № 3–4. P. 310–328.
18. *Weiss R.J.* Small angle scattering of neutrons // *Phys. Rev. B*. 1951. V. 83. № 2. P. 379–389.
19. *Шильштейн С.Ш., Соменков В.А., Каланов М.* Рефракция нейтронов на индивидуальных доменных границах в ферромагнетиках // *ЖЭТФ*. 1972. Т. 63. С. 2214–2220.
20. *Shushunov, V. Glazkov, V. Voronin, E. Valiev, A. Kuchin, L. Maksimov, S. Platonov, and V. Somenkov* International Conference on Neutron Scattering 2017. July 9–13. 2017. DCC. Daejeon Korea P. MoP-127.