

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^a, В. И. Воронин^a, В. П. Глазков^b, А. Г. Кучин^a, Л. А. Максимов^b,
В. А. Соменков^b, С. П. Платонов^a, Н. В. Проскурнина^{a, *}, М. Н. Шушунов^b

^aФГБУН Институт физики металлов имени М.Н. Михеева УрО РАН,
620108 Россия, Екатеринбург, ул. С. Ковалевской, 18

^bНИЦ “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 Д7а (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-

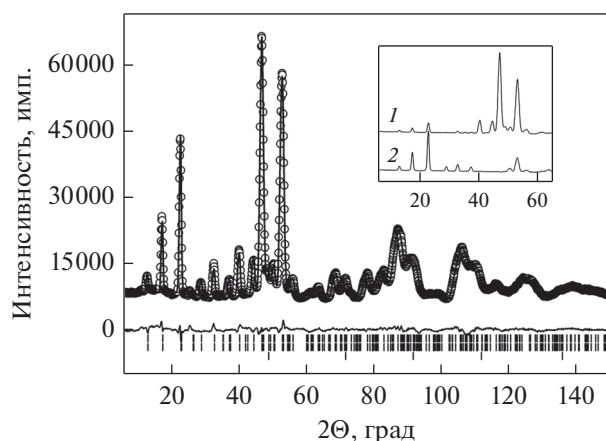


Рис. 1. Нейтронограмма Tm_2Fe_{18} при $T = 3$ К. Эксперимент – кружки, расчет – огибающая, разность – нижняя линия. Штрихи – рефлексы кристаллической (верхние) и магнитной (средние) фаз, α -Fe (нижние). Вставка – фрагмент нейтронограмм: 1 – кристаллической, 2 – магнитной фаз.

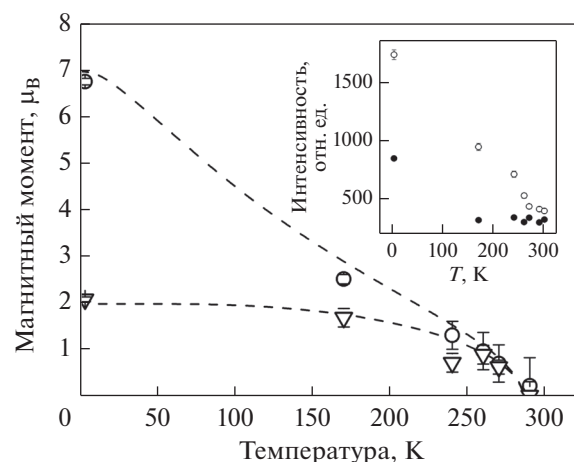


Рис. 2 Температурная зависимость модулей магнитных моментов Tm (кружки) и Fe (треугольники) в Tm_2Fe_{18} . Значки – экспериментальные данные. Линий – теоретический расчет. На вставке – изменение интенсивности рефлексов: (100) – закрытые, (110) + (002) открытые кружки.

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 ~ 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.

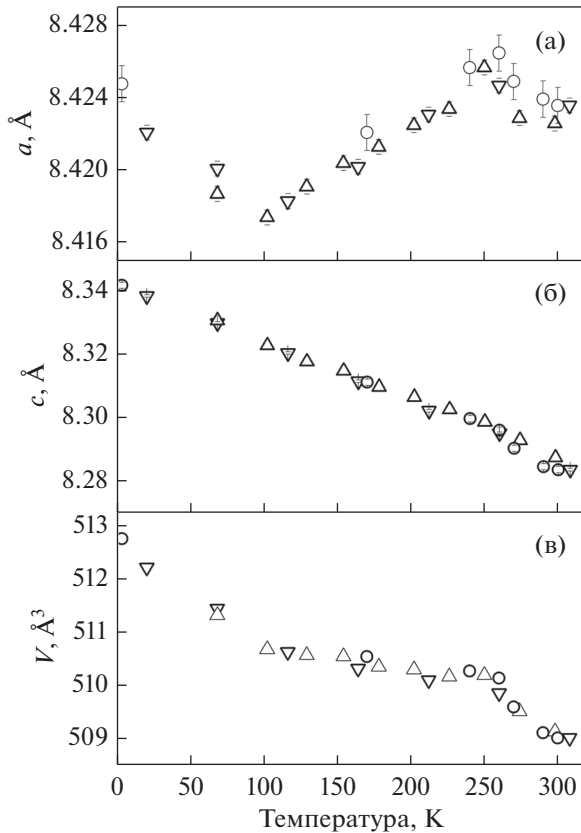


Рис. 3. Зависимость параметров решетки и объема Tm_2Fe_{18} от температуры. Треугольники вниз – охлаждение, вверх – нагрев (СИ), кружки – нейтроны.

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-

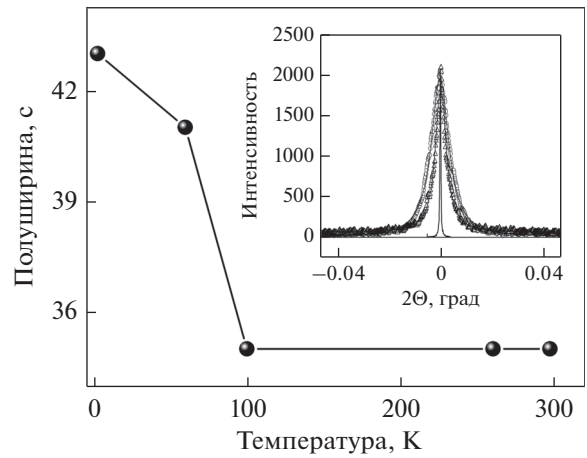


Рис. 4. Зависимость полуширины малоуглового рефлекса рассеяния нейтронов на образце Tm_2Fe_{18} от температуры. На вставке – малоугловой рефлекс при $T = 3$ и 100 К в сравнении с аппаратным пиком (сплошная узкая линия).

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, μ_F – магнитный момент иона железа при температуре T в единицах магнетона Бора (μ_B) и μ_R – магнитный момент редкоземельного иона. Параметр $d = N_A\mu_B\rho/A$, где N_A – число Авогадро, ρ – 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 приблизительно 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); θ_R и θ_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 θ_R и θ_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; θ_R и θ_F – углы, образованные магнитными моментами подрешеток с гексагональной осью кристалла.

Условие минимума термодинамического потенциала (7) по θ_R и θ_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 (θ_R , $\theta_F \neq 0$, $\pi/2$, π , $3\pi/2$), 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/см³, $T_0 = 232$ К которые использованы при решении уравнений (9). Таким образом, имеем: $K_R(0) = 8.6$ эрг/см³; $K_F(0) = -3.95 \times 10^7$ эрг/см³.

Для сравнения, эти константы для Tm_2Fe_{17} имеют значения того же порядка: $K_R(0) = 6.27 \times 10^7$ эрг/см³; $K_F(0) = -2.43 \times 10^7$ эрг/см³ [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 (~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, δ – 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, μ – магнитный момент нейтрона, $B = 4\pi M$ – магнитная индукция, M – намагниченность образца, E – энергия нейтрона, знак \pm определяется взаимной ориентацией μ 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 R_2Fe_{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 R_2Fe_{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 R_2Fe_{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 R_2Fe_{17} compounds // *JMMM.* 1987. V. 68. № 2. P. 190–198.
8. *Воронин В.И., Бергер И.Ф., Кучин А.Г.* Исследование методом нейтронной дифракции Y_2Fe_{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 R_6Fe_{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 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 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.