

ПЕРЕХОД ИЗ ФЕРРОМАГНИТНОГО СОСТОЯНИЯ В СОСТОЯНИЕ СПИНОВОГО СТЕКЛА В УПОРЯДОЧЕННЫХ СПЛАВАХ $\text{Fe}_{0.75-x}\text{Al}_{0.25+x}$ И ТЕМПЕРАТУРНАЯ ЭВОЛЮЦИЯ МАГНИТНОЙ СТРУКТУРЫ СПЛАВА $\text{Fe}_{0.70}\text{Al}_{0.30}$

*Н. Н. Делягин**, *А. Л. Ерзинкян*, *В. П. Парфенова*, *И. Н. Розанцев*

*Институт ядерной физики им. Д. В. Скобельцына
Московского государственного университета им. М. В. Ломоносова
119992, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 30 марта 2005 г.

Магнитная структура упорядоченных сплавов $\text{Fe}_{0.75-x}\text{Al}_{0.25+x}$ ($x = 0, 0.025$ и 0.05) исследована методом мессбауэровской ^{57}Fe -спектроскопии в температурном диапазоне 5–295 К. При $T = 5$ К повышение концентрации алюминия вызывает переход от коллинеарного ферромагнетизма ($x = 0$) к магнитной структуре типа кластерного спинового стекла ($x = 0.05$). Неожиданно сильное влияние алюминия на магнитную структуру объясняется аномально высокой вероятностью образования фрустрированных магнитных конфигураций с большим числом атомов Al в ближайшем окружении атомов Fe. Эта аномалия обусловлена возникновением ближнего порядка, который является ключевым фактором, определяющим радикальное изменение магнитной структуры в узком диапазоне изменения концентрации алюминия. «Промежуточная» фаза сплава $\text{Fe}_{0.70}\text{Al}_{0.30}$ ($100 \text{ K} < T < 200 \text{ K}$) является магнитно-упорядоченной фазой смешанного типа, магнитная структура которой определяется конкуренцией обменных взаимодействий противоположного знака. Для номинально «ферромагнитной» фазы этого сплава ($T > 200 \text{ K}$) наблюдаются сильные нарушения дальнего ферромагнитного порядка, обусловленные влиянием антиферромагнитного суперобменного взаимодействия.

PACS: 75.30.Kz, 75.50.Bb, 75.50.Lk, 76.80.+y

1. ВВЕДЕНИЕ

Упорядоченные сплавы $\text{Fe}_{0.75-x}\text{Al}_{0.25+x}$ со структурой типа DO_3 проявляют интересные и неожиданные магнитные свойства в узком диапазоне концентраций $x = 0-0.05$. Сплав $\text{Fe}_{0.75}\text{Al}_{0.25}$ является коллинеарным ферромагнетиком с высокой температурой Кюри ($T_C \approx 750 \text{ K}$), однако небольшое увеличение концентрации алюминия вызывает резкий низкотемпературный переход в фазу спинового стекла (при $x = 0.05$). Магнитная фазовая диаграмма сплава $\text{Fe}_{0.70}\text{Al}_{0.30}$ включает три магнитные фазы с разными свойствами [1–4]. При температурах выше $T \sim 200 \text{ K}$ (до $T_C \sim 400 \text{ K}$) поведение магнитной восприимчивости соответствует ферромагнитному (FM) типу упорядочения. Понижение температуры от $T \approx 200 \text{ K}$ до $T \approx 100 \text{ K}$

сопровождается монотонным уменьшением намагниченности. Вблизи $T_{SG} \approx 100 \text{ K}$ наблюдался размытый пик восприимчивости, указывающий на переход в фазу спинового стекла (SG-фазу). FM-фаза ($T > 200 \text{ K}$) и SG-фаза ($T < 100 \text{ K}$) разделены широкой областью «промежуточной» фазы, магнитная природа которой остается неизвестной. Согласно предложенной фазовой диаграмме «промежуточная» фаза может являться парамагнитной (или суперпарамагнитной), однако это предположение не имеет прямого экспериментального подтверждения на микроскопическом уровне.

Недавно важные сведения о магнитных свойствах упорядоченного сплава $\text{Fe}_{0.70}\text{Al}_{0.30}$ были получены методом рассеяния нейтронов. В работе [5] методом малоуглового рассеяния нейтронов исследована медленная динамика спинов, характерная для SG-систем. Измерения проведены при темпе-

*E-mail: delyagin@srd.sinp.msu.ru

ратурах ниже 100 К (в пределах SG-фазы сплава $\text{Fe}_{0.70}\text{Al}_{0.30}$). Предложена модель, согласно которой в SG-фазе присутствуют FM-кластеры разного размера со случайной ориентацией магнитных моментов, а также области с быстро флуктуирующими магнитными моментами (парамагнитные зоны). В [6] методом неупругого рассеяния нейтронов исследованы спиновые возбуждения для SG-фазы и для FM-фазы (при температурах 18 К и 294 К). Было найдено, что динамика спинов в этих двух фазах аномальна. Для номинально ферромагнитной фазы обнаружены значительные возмущения дальнего FM-упорядочения. Особенности динамики спинов в SG-фазе объясняются формированием кластеров FM-типа, образующихся при низких температурах в результате спиновых корреляций на малых расстояниях. Результаты этих работ подчеркивают сложный характер магнитного поведения упорядоченного сплава $\text{Fe}_{0.70}\text{Al}_{0.30}$ и необходимость проведения более детальных исследований на микроскопическом уровне.

В данной работе мы представляем результаты исследования локальных спиновых конфигураций в упорядоченных сплавах $\text{Fe}_{0.75-x}\text{Al}_{0.25+x}$ ($x = 0, 0.025, 0.05$) и температурной эволюции магнитной структуры сплава $\text{Fe}_{0.70}\text{Al}_{0.30}$ методом мессбауэровской ^{57}Fe -спектроскопии. Мессбауэровская спектроскопия является эффективным методом изучения магнитных систем со сложной магнитной структурой. Эффективность метода определяется высокой чувствительностью параметров сверхтонкого взаимодействия к свойствам локальных спиновых конфигураций. Анализ функций распределения магнитных сверхтонких полей (HFD) позволяет наблюдать локальные спиновые конфигурации разного типа и классифицировать эти конфигурации по величине сверхтонкого поля и по температурным зависимостям компонент HFD. В частности, могут быть получены объективные данные о фрустрированных и парамагнитных состояниях (если таковые присутствуют в системе), о влиянии на магнитную структуру конкуренции обменных взаимодействий противоположного знака, а также о поведении магнитных конфигураций во внешнем магнитном поле.

2. ЭКСПЕРИМЕНТ

Сплавы с разной концентрацией алюминия, $\text{Fe}_{0.75}\text{Al}_{0.25}$, $\text{Fe}_{0.725}\text{Al}_{0.275}$ и $\text{Fe}_{0.70}\text{Al}_{0.30}$, были приготовлены дуговой плавкой в аргоне с использованием металлов чистотой не хуже 99.98. Слитки

гомогенизировались в течение недели при 1200 К. Для получения сплавов в упорядоченном состоянии порошки, приготовленные из слитков, отжигались в течение недели при 400 К; затем в течение еще одной недели температура постепенно понижалась до 300 К. Спектры мессбауэровского поглощения для ^{57}Fe измерялись в диапазоне температур 5–295 К, который охватывает все три упомянутые выше магнитные фазы сплава $\text{Fe}_{0.70}\text{Al}_{0.30}$. Для повышения величины эффекта резонансного поглощения и разрешающей способности для детектирования мессбауэровского излучения использовались резонансные детекторы. При анализе мессбауэровских спектров использовались две разные процедуры. Для всех спектров HFD-функции были рассчитаны гистограммным методом [7]. При расчете учитывались возможные различия изомерных сдвигов для конфигураций с разными величинами сверхтонкого поля. Методика расчета HFD-функций позволяла использовать процедуру прямой минимизации χ^2 -функционала, исключаящую неопределенности, связанные с процедурой сглаживания. Для анализа спектров с хорошо разрешенной структурой применялась также процедура аппроксимации спектров суперпозицией дискретных магнитных субспектров.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ

На рис. 1 показана кристаллическая структура сплава $\text{Fe}_{0.75}\text{Al}_{0.25}$ для случая идеального упорядочения типа DO_3 (пространственная группа $Fm\bar{3}m$). Элементарная ячейка состоит из двух взаимопроникнувших кубов.

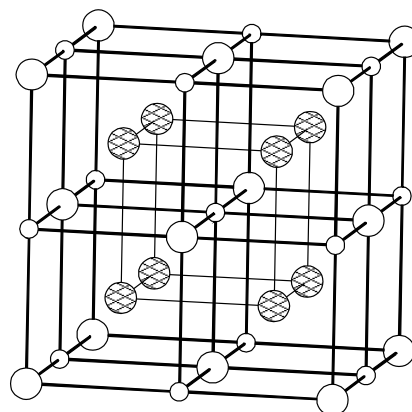


Рис. 1. Кристаллическая структура упорядоченного сплава $\text{Fe}_{0.75}\text{Al}_{0.25}$. Большие светлые кружки — атомы Fe-I, кружки со штриховкой — атомы Fe-II, малые кружки — атомы Al

никающих подрешеток, одна из которых содержит только атомы Fe (Fe-II узлы с координатами $(1/4, 1/4, 1/4)$), а вторая — атомы Fe (Fe-I узлы $(0, 0, 0)$) и атомы Al (узлы $(1/2, 0, 0)$). При идеальном упорядочении отношение заселенностей узлов Fe-I/Fe-II равно 0.5. Атомы Fe-I и Fe-II имеют в своем ближайшем окружении соответственно 8 и 4 атомы Fe (конфигурации Fe(8) и Fe(4)). Магнитный момент атома Fe существенно зависит от числа соседних атомов Fe и равен примерно $2.5\mu_B$ для узла Fe-I и приблизительно $1.50\mu_B$ для узла Fe-II [8]. Согласно данным, полученным методом дифракции нейтронов [2], при отклонении от стехиометрии ($x > 0$) избыточные атомы Al локализуются преимущественно в Fe-I/Al подрешетке.

3.1. Мессбауэровские спектры сплавов $\text{Fe}_{0.75}\text{Al}_{0.25}$, $\text{Fe}_{0.725}\text{Al}_{0.275}$ и $\text{Fe}_{0.70}\text{Al}_{0.30}$ при температурах 5 К и 295 К

На рис. 2 показаны спектры мессбауэровского поглощения для трех сплавов $\text{Fe}_{0.75-x}\text{Al}_{0.25+x}$ ($x = 0, 0.025, 0.05$), измеренные при температурах 5 К и 295 К. Хорошо видно, что небольшое увеличение концентрации алюминия сильно влияет на структуру спектра. При $T = 5$ К дискретная структура спектров наблюдается для всех трех сплавов, однако для сплавов с $x > 0$ происходит резкое уменьшение интенсивности высокополевых компонент спектров. При этом для сплавов $\text{Fe}_{0.75}\text{Al}_{0.25}$ и $\text{Fe}_{0.725}\text{Al}_{0.275}$ дискретная структура спектра сохраняется и при $T = 295$ К, тогда как для сплава $\text{Fe}_{0.70}\text{Al}_{0.30}$ при $T = 295$ К такая структура не наблюдается и интенсивность низкополевых компонент (центральная часть спектра) резко возрастает. Эти результаты ясно показывают, что замещение даже небольшой части узлов Fe атомами Al сопровождается сильным возмущением ферромагнитной структуры, характерной для сплава $\text{Fe}_{0.75}\text{Al}_{0.25}$. Результаты аппроксимации спектров сплавов $\text{Fe}_{0.75}\text{Al}_{0.25}$ и $\text{Fe}_{0.725}\text{Al}_{0.275}$ суперпозицией магнитных субспектров при $T = 5$ К приведены в таблице. Для стехиометрического сплава $\text{Fe}_{0.75}\text{Al}_{0.25}$ около 96 % всей интенсивности определяются четырьмя субспектрами (A, B, C и D), что соответствует высокой степени упорядочения сплава. Наиболее интенсивные субспектры с величинами магнитных сверхтонких полей (B_{hf}) 33.5 и 23.9 Тл соответствуют узлам Fe-I и Fe-II, имеющим соответственно 8 и 4 ближайших соседних атомов Fe (конфигурации Fe(8)

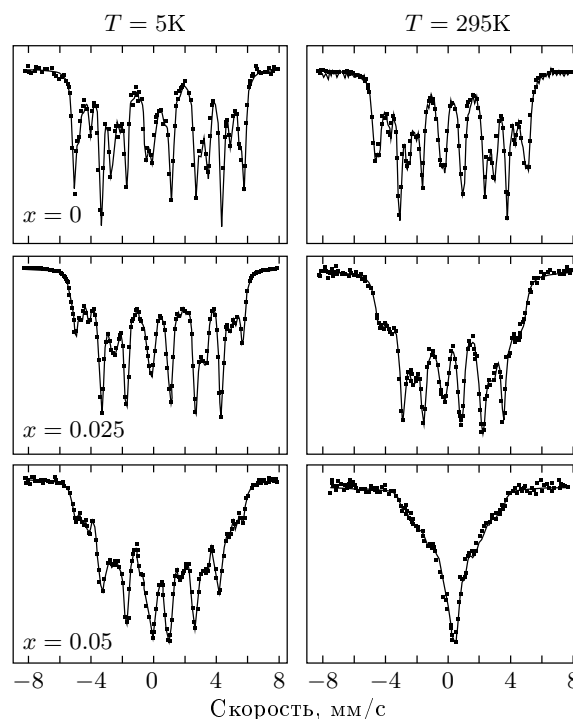


Рис. 2. Мессбауэровские спектры сплавов $\text{Fe}_{0.75-x}\text{Al}_{0.25+x}$ ($x = 0, 0.025$ и 0.05), измеренные при $T = 5$ К (слева) и $T = 295$ К (справа). Сплошные линии — результат аппроксимации спектров суперпозицией магнитных субспектров или функцией распределения магнитных сверхтонких полей

и Fe(4), см., например, [9, 10]). Присутствие субспектров B и C указывает на слабое нарушение идеального дальнего атомного порядка (известно, что в сплаве $\text{Fe}_{0.75}\text{Al}_{0.25}$ идеальное атомное упорядочение никогда не достигается). Небольшая часть атомов Al локализуется в узлах подрешетки Fe-II; соответствующая часть атомов Fe-II перемещается в Al-узлы подрешетки Fe-I/Al. Результатом этого является возникновение конфигураций Fe(7) (субспектр B) и Fe(5) (субспектр C). Слабые субспектры E и F соответствуют узлам Fe-II в конфигурациях Fe(3) и Fe(2); их происхождение будет рассмотрено ниже.

В спектре сплава $\text{Fe}_{0.725}\text{Al}_{0.275}$ при $T = 5$ К появляются новые субспектры и резко возрастает интенсивность субспектров, соответствующих узлам Fe-II с $B_{hf} \approx 18$ и 14 Тл. Как видно в таблице, интенсивность субспектра F (конфигурация Fe-II(2)) практически равна интенсивности субспектра E (конфигурация Fe-II(3)). Этот результат нельзя объяснить в рамках предположения о статистическом харак-

Результаты аппроксимации мессбауэровских спектров сплавов $\text{Fe}_{0.75}\text{Al}_{0.25}$ и $\text{Fe}_{0.725}\text{Al}_{0.275}$ суперпозицией магнитных субспектров при $T = 5$ К. B_{hf} — магнитное сверхтонкое поле, I — относительная интенсивность субспектра (при обработке данных относительные интенсивности нормируются на 100%). Ошибки определения B_{hf} и I равны соответственно 0.1 Тл и 1–2 %

	$x = 0$		$x = 0.025$	
	B_{hf} , Тл	I , %	B_{hf} , Тл	I , %
A	33.5	26	33.3	11
B	31.6	13	31.5	10
C	27.9	14	29.8	4
D	23.9	43	23.9	37
E	18.5	3	22.6	10
F	14.0	1	14.0	8

тере замещения узлов Fe атомами Al. Даже если принять (в соответствии с данными работы [2]), что все избыточные атомы Al локализуются в подрешетке Fe-I/Al, вероятность возникновения конфигураций Fe-II(2), ожидаемая на основании биномиального распределения, оказывается в несколько раз меньше наблюдаемой. Интерпретация этой аномалии имеет определяющее значение для выяснения механизма влияния концентрации алюминия на магнитные свойства сплавов Fe–Al, поскольку формирование низкополевых конфигураций непосредственно отражает процесс фрустрации обменных связей, сопровождающий переход в состояние с магнитной структурой SG-типа.

Для сплава $\text{Fe}_{0.70}\text{Al}_{0.30}$ при $T = 5$ К наблюдается резкое увеличение числа низкополевых компонент НФД и их относительных интенсивностей. Суммарная интенсивность компонент с $B_{hf} < 20$ Тл превышает 40 %, появляются компоненты с $B_{hf} < 10$ Тл (с суммарной интенсивностью около 20 %). Важно отметить, однако, что при $T = 5$ К функция НФД не содержит компонент с нулевым сверхтонким полем; минимальная наблюдаемая величина B_{hf} равна примерно 2.5 Тл. В то же время со значительной вероятностью наблюдаются компоненты, соответствующие FM-типу упорядочения. В частности, относительные интенсивности компонент, соответствующих невозмущенным конфигурациям Fe-I(8) и Fe-II(4), в сплаве $\text{Fe}_{0.70}\text{Al}_{0.30}$ равны

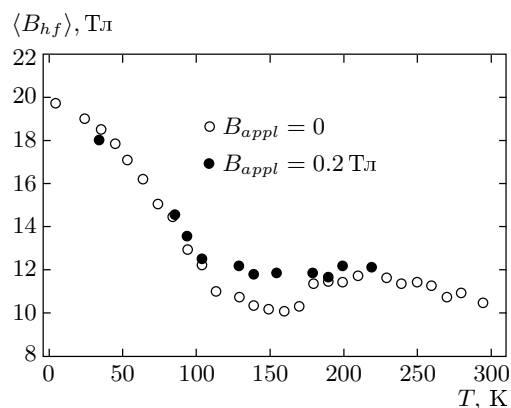


Рис. 3. Температурная зависимость средней величины магнитного сверхтонкого поля $\langle B_{hf} \rangle$ для сплава $\text{Fe}_{0.70}\text{Al}_{0.30}$. Светлые кружки — без внешнего магнитного поля, темные кружки — в магнитном поле $B_{appl} = 0.2$ Тл

примерно соответственно 5 % и 17%. Такая структура НФД соответствует магнитной структуре типа кластерного спинового стекла, в которой образуются FM-кластеры, разделенные границами с высокой концентрацией фрустрированных узлов. Результаты показывают, что FM-кластеры составляют не менее 40–50 % объема сплава, а для узлов на границах раздела характерно широкое распределение обменных полей.

3.2. Температурная зависимость среднего сверхтонкого поля и изомерный сдвиг

Для сплавов с $x = 0$ и 0.025 температурные зависимости сверхтонкого поля (как средней величины поля, так и отдельных компонент НФД) не обнаруживают каких-либо существенных особенностей и являются типичными для систем с FM-упорядочением. Температурная зависимость средней величины сверхтонкого поля $\langle B_{hf} \rangle$ для упорядоченного сплава $\text{Fe}_{0.70}\text{Al}_{0.30}$ показана на рис. 3. Эта зависимость проявляет характерные особенности, отражающие температурную эволюцию магнитной структуры сплава. В области SG-фазы ($T < 100$ К) при повышении температуры наблюдается быстрое уменьшение среднего сверхтонкого поля. При дальнейшем повышении температуры вариации среднего поля становятся более плавными и не превышают примерно 2 Тл во всем диапазоне от 100 К до 295 К. В окрестности

$T \approx 150$ К наблюдается хорошо выраженный широкий минимум $\langle B_{hf} \rangle$. Как видно на рис. 3, этот минимум исчезает при приложении слабого магнитного поля ($B_{appl} = 0.2$ Тл). Вне пределов этого минимума такое магнитное поле не оказывает заметного влияния на величину $\langle B_{hf} \rangle$.

Поведение $\langle B_{hf} \rangle$ в области SG-фазы сходно с температурной зависимостью $\langle B_{hf} \rangle$, характерной для реентрантных спиновых стекол (RSG) (см., например, [11]), в которых при $T = T_{SG}$ происходит переход из SG-фазы в FM-фазу. Однако ситуация для сплава $Fe_{0.70}Al_{0.30}$ кардинально отлична от ситуации для обычных RSG, поскольку при T_{SG} реализуется переход не в FM-фазу, а в состояние с иной магнитной структурой («промежуточная» фаза). Величина $\langle B_{hf} \rangle$ в области «промежуточной» фазы остается значительной, хотя и существенно меньшей, чем в случае FM-упорядочения. Очевидно, что эта фаза не является ни ферромагнитной, ни парамагнитной, а представляет собой «смешанную» фазу, магнитная структура которой формируется в результате конкуренции сравнимых по величине ферромагнитного и антиферромагнитного (AFM) обменных взаимодействий. Широкий минимум температурной зависимости $\langle B_{hf} \rangle$ в окрестности $T \approx 150$ К означает, что обменные FM- и AFM-взаимодействия имеют разную температурную зависимость и концентрация фрустрированных узлов, возникающих в результате конкуренции FM- и AFM-взаимодействий, при $T \approx 150$ К максимальна. Поскольку такие узлы характеризуются сильными тепловыми флуктуациями магнитного момента, возрастает доля атомов Fe с малым сверхтонким полем. Фрустрация Fe-узлов сопровождается формированием широкого распределения обменных полей. Для некоторой доли Fe-узлов обменные поля оказываются близкими к нулю (что определяет появление низкополевого максимума в функции распределения сверхтонких полей, см. разд. 3.3). Занимающие эти узлы атомы Fe частично выстраиваются в слабом внешнем магнитном поле, что объясняет исчезновение минимума $\langle B_{hf} \rangle$ в поле 0.2 Тл (рис. 3).

Из температурной зависимости магнитной восприимчивости следует, что по мере повышения температуры роль ферромагнитного обмена должна возрастать. Ожидается, что соответствующее изменение баланса конкурирующих взаимодействий должно сопровождаться увеличением $\langle B_{hf} \rangle$. Как видно на рис. 3, некоторый рост $\langle B_{hf} \rangle$ в области перехода из «промежуточной» фазы в номинально FM-фазу (в температурном диапазоне 180–220 К) наблюдается, однако увеличение $\langle B_{hf} \rangle$ весьма ма-

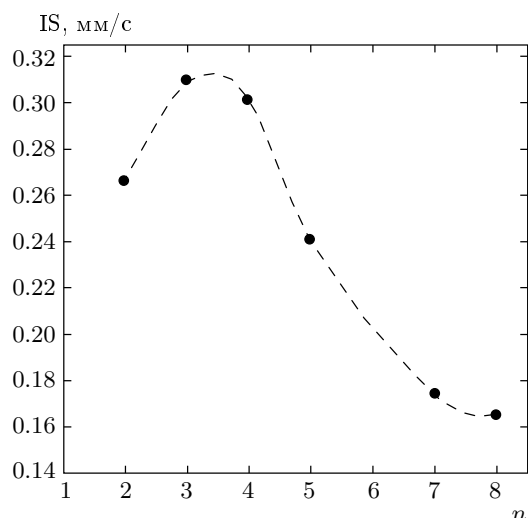


Рис. 4. Зависимость изомерного сдвига мессбауэровской линии от числа атомов Fe в ближайшем окружении

ло (не более 10%). Следует предположить, что AFM-компонента обменного взаимодействия в широком диапазоне температур не мала и не исчезает в области номинально FM-фазы ($T > 200$ К), поэтому переход между двумя фазами осуществляется плавно, без резких изменений распределения обменных полей. Это предположение подтверждается результатами анализа температурной эволюции HFD (см. разд. 3.3).

На рис. 4 показана зависимость изомерного сдвига (IS) мессбауэровской линии от числа n ближайших соседних атомов Fe. (Данные получены в результате аппроксимации мессбауэровских спектров суперпозицией магнитных субспектров для сплавов с $x = 0$ и 0.025.) Видно, что IS быстро возрастает при уменьшении числа соседних атомов Fe от 7 до 4. (Это позволяет, в частности, надежно идентифицировать компоненты HFD, соответствующие конфигурациям Fe-I с большим числом соседних атомов Fe.) Такое поведение IS соответствует теоретической модели межатомного взаимодействия Fe–Al, согласно которой это взаимодействие имеет локальный характер и определяется гибридизацией $3d(Fe) - 3p(Al)$ [12]. С увеличением числа соседних атомов Al возрастает экранирующее влияние гибридизованных электронов на s -компоненту электронной волновой функции, что вызывает уменьшение электронной плотности в области ядра (и, как следствие, увеличение величины IS).

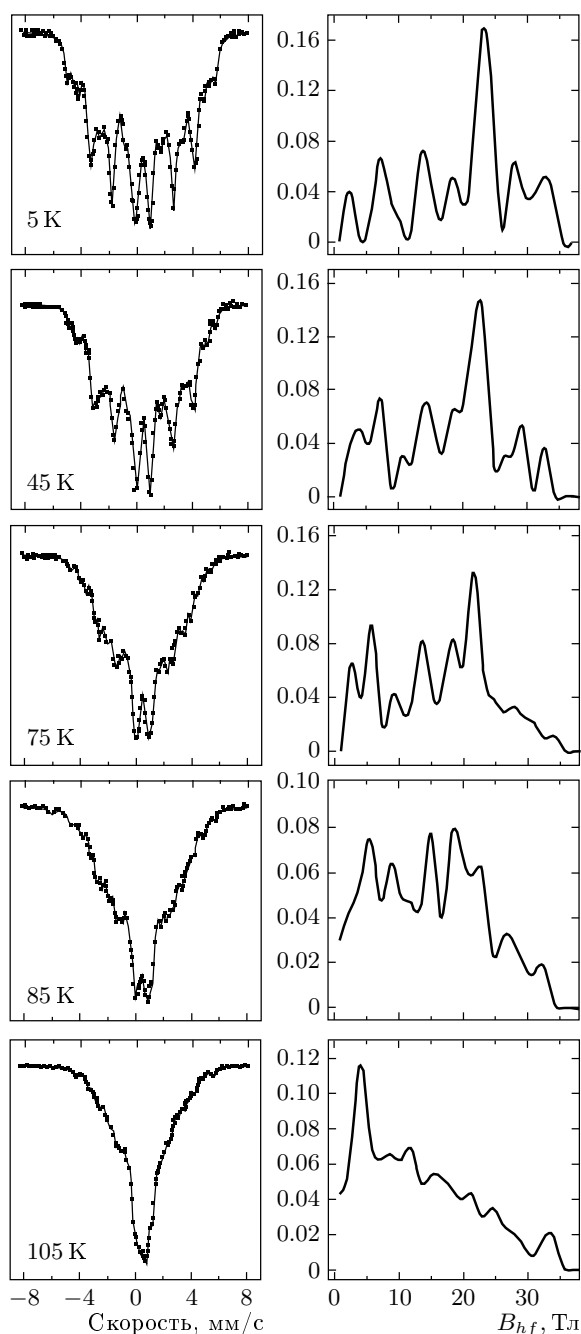


Рис. 5. Мессбауэровские спектры сплава $Fe_{0.70}Al_{0.30}$ при нескольких температурах в области SG-фазы (слева) и соответствующие функции распределения сверхтонких полей (справа)

3.3. Функции распределения сверхтонких полей для сплава $Fe_{0.70}Al_{0.30}$

На рис. 5 показаны мессбауэровские спектры сплава $Fe_{0.70}Al_{0.30}$ при нескольких температурах в области SG-фазы и соответствующие функции рас-

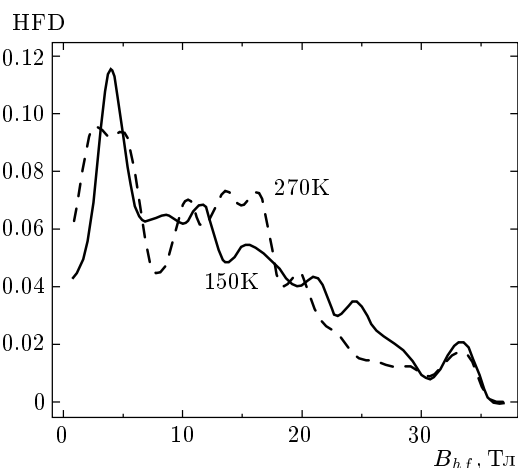


Рис. 6. Сравнение функций распределения сверхтонких полей для сплава $Fe_{0.70}Al_{0.30}$ при $T = 150$ К (сплошная линия) и $T = 270$ К (штриховая линия)

пределения сверхтонких полей. При температурах ниже примерно 50 К сохраняется хорошо разрешенная дискретная структура HFD. При температурах выше 50 К происходит размытие дискретной структуры HFD, причем особенно быстро уменьшается интенсивность высокополевых компонент в области $B_{hf} = 20-35$ Тл. Соответственно интенсивность низкополевых компонент возрастает; при $T = 85$ К относительная интенсивность компонент с $B_{hf} \leq 7$ Тл близка к 25%. Очевидно, что наблюдаемые изменения структуры HFD являются следствием быстрого роста тепловых флуктуаций магнитного момента для узлов Fe с ослабленным обменным полем. Как видно на рис. 5, при $T = 105$ К формируется локальный максимум HFD в области $B_{hf} = 3-5$ Тл, соответствующий узлам с максимальной степенью фрустрации. Ослабление обменных связей приводит к распаду кластерной SG-структуры, однако значительная доля узлов Fe остается в состояниях с хорошо определенным магнитным моментом и величинами B_{hf} , превышающими 10 Тл. Можно констатировать, что фаза, возникающая при температурах выше температуры SG-перехода, не является парамагнитной и содержит области с FM-типом упорядочения.

Неожиданным оказалось поведение функции HFD при высоких температурах. Согласно предложенной магнитной фазовой диаграмме [1-4], сплав $Fe_{0.70}Al_{0.30}$ при $T > 180-200$ К ферромагнитен. Естественно было ожидать, что по мере повышения температуры будет происходить постепенное формирование структуры HFD, характерной для

системы с FM-типом упорядочения. (Такая трансформация HFD ожидается, если с повышением температуры обменное AFM-взаимодействие убывает значительно быстрее, чем FM-взаимодействие.) Экспериментальные данные не подтвердили этого предположения. Во всем диапазоне температур, соответствующем «промежуточной» фазе (100–200 К), функция HFD претерпевает лишь небольшие изменения, связанные с вариацией интенсивности низкополюсного максимума в области 3–5 Тл. Конкурирующие обменные взаимодействия имеют разные зависимости от температуры, но это различие не столь велико, как ожидалось. Более того, функция HFD мало меняется и при переходе в номинально «ферромагнитную» фазу ($T > 200$ К). На рис. 6 сопоставлены функции HFD при температурах 150 К и 270 К. Видно, что два распределения весьма сходны. Основные различия связаны с некоторым изменением формы низкополюсного максимума и увеличением интенсивности в области $B_{hf} \approx 15$ Тл при $T = 270$ К. Это соответствует весьма малому изменению $\langle B_{hf} \rangle$ при переходе из области «промежуточной» фазы в номинально «ферромагнитную» фазу (рис. 3). Высокополюсная часть HFD ($B_{hf} > 10$ Тл) представлена широким распределением сверхтонких полей и не имеет выраженной структуры, которая могла бы указывать на преимущественное формирование определенных спиновых конфигураций FM-типа. Результаты ясно демонстрируют, что роль AFM-обмена весьма существенна во всем исследованном диапазоне температур. При $T > 200$ К ферромагнитное обменное взаимодействие доминирует, однако нарушение дальнего FM-порядка в номинально «ферромагнитной» фазе велико и магнитная структура этой фазы в значительной степени определяется конкуренцией обменных взаимодействий противоположного знака.

4. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ И ВЫВОДЫ

4.1. Зависимость магнитной структуры сплавов при $T = 5$ К от концентрации алюминия

Согласно общепринятому предположению вариации магнитных свойств сплавов Fe–Al определяются конкуренцией обменных взаимодействий противоположного знака: прямого FM-взаимодействия между соседними атомами Fe и косвенного (суперобменного) AFM-взаимодействия через атомы Al (Fe–Al–Fe) [3, 13, 14]. Повышение концентрации алю-

миния увеличивает число обменных AFM-связей, что должно приводить к ослаблению результирующего обменного взаимодействия и к постепенной трансформации FM-структуры в AFM-структуру или структуру SG-типа. Этот процесс может быть рассмотрен, например, в рамках статистической модели распределения обменных полей, основанной на теории перколяции [15]. Однако для исследованных нами сплавов изменение магнитной структуры происходит в очень узком диапазоне концентраций, что трудно объяснить в рамках статистического подхода. Согласно теоретическим оценкам (см. [3] и ссылки в этой работе), отношение констант конкурирующих обменных взаимодействий, $-J_{AFM}/J_{FM}$, близко к 0.3. Нетрудно видеть, что в этом случае для формирования фрустрированных узлов необходимо, чтобы из восьми обменных связей шесть были бы антиферромагнитными (конфигурация Fe(2)). Такая конфигурация исключается для узлов Fe-I, но возможна для узлов Fe-II (которые при стехиометрическом составе $Fe_{0.75}Al_{0.25}$ уже имеют четыре связи AFM-типа). Однако при статистическом распределении атомов Al в узлах подрешетки Fe-I/Al нестехиометрических сплавов вероятность образования конфигурации Fe-II(2) весьма мала (~ 0.05 при $x = 0.025$ и ~ 0.15 при $x = 0.05$). Эти оценки находятся в резком противоречии с экспериментальными данными, согласно которым вероятности образования фрустрированных узлов Fe-II ($B_{hf} < 18$ Тл) примерно втрое больше (~ 0.15 при $x = 0.025$ и ~ 0.45 при $x = 0.05$). Аномально высокую вероятность фрустрации узлов Fe-II следует рассматривать как основную причину сильного влияния атомов Al на магнитную структуру. Этой аномалии можно дать простую физическую интерпретацию. Мы полагаем, что единственной возможностью объяснения является предположение о возникновении ближнего атомного порядка (SRO), в результате которого существенно увеличивается вероятность образования конфигураций узлов Fe-II с большим числом соседних атомов Al (конфигураций Fe(2) в сплаве с $x = 0.025$ и конфигураций Fe(2), Fe(1) в сплаве с $x = 0.05$). Этот механизм следует рассматривать как следствие сильного межатомного взаимодействия Fe–Al, обусловленного образованием гибридных электронных орбиталей $3d(Fe) - 3p(Al)$ [12]. Можно отметить, что тенденция к возникновению SRO наблюдается уже в стехиометрическом сплаве $Fe_{0.75}Al_{0.25}$ (в форме малого нарушения правильного чередования атомов Fe и Al в подрешетке Fe-I/Al). В нестехиометрических сплавах с повышенной концентрацией алюминия SRO становится

ключевым фактором, определяющим быстрый переход от ферромагнетизма к магнитной структуре типа спинового стекла. Анализ относительных интенсивностей компонент HFD, соответствующих конфигурациям Fe-II(3), Fe-II(2) и Fe-II(1), позволяет получить некоторую информацию о характере распределения атомов Al при формировании SRO. Для объяснения высокой вероятности образования конфигураций Fe-II(2) и Fe-II(1) необходимо предположить, что в плоскостях подрешетки Fe-I/Al формируются протяженные области с высокой локальной концентрацией алюминия, размер которых составляет несколько постоянных решетки. Образование таких областей объясняет наблюдаемое отношение интенсивностей $I(\text{Fe}(2))/I(\text{Fe}(3))$ (которое возрастает при увеличении эффективного радиуса обогащенных алюминием областей). При случайном распределении избыточных атомов Al это отношение должно быть равно 0.17 (при $x = 0.025$) и 0.36 (при $x = 0.05$), тогда как экспериментально наблюдаются значения примерно равные соответственно 0.9 и 2.0.

Если предположить (в соответствии с данными работы [2]), что в подрешетке Fe-II атомы Al практически отсутствуют, то для узлов Fe-I в сплаве $\text{Fe}_{0.70}\text{Al}_{0.30}$ все обменные связи остаются ферромагнитными (Fe-I-Fe-II). Однако при найденной экспериментально высокой концентрации фрустрированных узлов Fe-II большинство атомов Fe-I (около 60 %) имеют среди своих ближайших соседей не менее четырех фрустрированных атомов Fe-II с ослабленным обменным полем и малой величиной магнитного момента. Ослабление обменных связей FM-типа меняет баланс конкурирующих взаимодействий и приводит к деструкции дальнего ферромагнитного порядка в областях с повышенной локальной концентрацией алюминия. Эти области формируют границы между кластерами, тогда как в областях с меньшей локальной концентрацией алюминия сохраняется упорядочение FM-типа. Данные мессбауэровской спектроскопии подтверждают результаты, полученные методом рассеяния нейтронов, согласно которым низкотемпературная фаза сплава $\text{Fe}_{0.70}\text{Al}_{0.30}$ является кластерным спиновым стеклом [2, 4–6]. Однако, наши данные не подтверждают модель [5], согласно которой при низких температурах FM-кластеры разделены обширными парамагнитными зонами, содержащими атомы Fe с быстро флуктуирующими магнитными моментами. Таким областям должны были бы соответствовать состояния атомов Fe с нулевым сверхтонким полем, однако таких состояний при низких температурах не наблюдалось.

4.2. Температурная эволюция магнитной структуры сплава $\text{Fe}_{0.70}\text{Al}_{0.30}$

Как следует из анализа температурной зависимости HFD, при температурах выше 50 К происходит быстрое разрушение кластерной SG-структуры сплава $\text{Fe}_{0.70}\text{Al}_{0.30}$. Этот процесс обусловлен, в первую очередь, поведением атомов Fe на границах раздела между кластерами. Для узлов Fe с ослабленным обменным полем повышение температуры влечет за собой увеличение тепловых флуктуаций магнитного момента (и уменьшение величины наблюдаемого сверхтонкого поля). Следствием этого является быстрое уменьшение величины $\langle B_{hf} \rangle$ (рис. 3) и увеличение интенсивности низкополевых компонент HFD (рис. 5).

Наши результаты не подтверждают гипотезы, согласно которой «промежуточная» фаза сплава $\text{Fe}_{0.70}\text{Al}_{0.30}$ (диапазон 100–200 К) является парамагнитной. Высокая относительная интенсивность компонент с большими сверхтонкими полями (близкими к величинам сверхтонких полей в ферромагнитной фазе) ясно указывает на присутствие дальнего магнитного упорядочения. При температурах выше $T_{SG} \approx 100$ К относительная интенсивность компонент HFD с нулевым сверхтонким полем не превышает 10 %, а суммарная интенсивность низкополевых компонент с $B_{hf} = 3\text{--}5$ Тл не превышает 30 %. Также нет оснований утверждать, что FM-кластеры, определяющие свойства низкотемпературной SG-фазы, сохраняются при $T > 100$ К. Поскольку в области «промежуточной» фазы HFD не имеет разрешенной дискретной структуры, наши данные не позволяют получить детальных сведений о магнитной структуре этой фазы. В то же время эти данные не оставляют сомнения в том, что «промежуточная» фаза является магнитно-упорядоченной, а не парамагнитной. Можно предположить, что при $T > 100$ К формируется сетка спинов, взаимная ориентация которых случайным образом определяется балансом обменных FM- и AFM-связей на локальном уровне. Вполне вероятно, что при этом многие из локальных спиновых конфигураций неколлинеарны. Это непосредственно из экспериментальных данных не следует, но позволяет объяснить отсутствие дискретной структуры высокополевой части HFD.

Неожиданным оказалось поведение HFD при переходе в номинально «ферромагнитную» фазу ($T > 200$ К). Из рассмотренных выше результатов (разд. 3.3) следует, что этот переход не сопровождается

ется кардинальным изменением структуры HFD и, следовательно, магнитная структура «ферромагнитной» фазы отличается от структуры «промежуточной» фазы не столь сильно, как это ожидалось. Также при переходе в «ферромагнитную» фазу не наблюдалось ожидаемого существенного увеличения $\langle B_{hf} \rangle$ (рис. 3). Эти результаты заставляют сделать вывод, что нарушения FM-порядка, найденные ранее методом рассеяния нейтронов, велики и магнитная структура сплава $\text{Fe}_{0.70}\text{Al}_{0.30}$ при $T > 200$ К далека от ожидаемой для коллинеарного ферромагнетика. Это означает, в частности, что роль конкурирующего обменного АФМ-взаимодействия, хотя и убывает с повышением температуры, но остается весьма существенной во всем исследованном диапазоне температур.

ЛИТЕРАТУРА

1. R. D. Shull, H. Okamoto, and P. A. Beck, *Sol. St. Comm.* **20**, 863 (1976).
2. J. W. Cable, L. David, and R. Parra, *Phys. Rev. B* **16**, 1132 (1977).
3. P. Shukla and M. Wortis, *Phys. Rev. B* **21**, 159 (1980).
4. K. Motoya, S. M. Shapiro, and Y. Muraoka, *Phys. Rev. B* **28**, 6183 (1983).
5. K. Motoya, K. Hioki, and J. Suzuki, *J. Phys. Soc. Jpn.* **72**, 3212 (2003).
6. W. Bao, S. Raymond, S. M. Shapiro, K. Motoya, B. Fak, and R. W. Erwin, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 4711 (1999).
7. V. P. Parfenova, N. N. Delyagin, A. L. Erzinkyan, and S. I. Reyman, *Phys. Stat. Sol. B* **42**, 1465 (2000).
8. D. Satula, L. Dobrzynski, J. Waliszewski и др., *J. Magn. Magn. Mat.* **169**, 240 (1997).
9. T. J. Burch, K. Raj, P. Jena, J. I. Budnick, V. Niculescu, and W. B. Muir, *Phys. Rev. B* **19**, 2933 (1979).
10. H. Chacham, E. Galvao da Silva, D. Guenzburger, and D. E. Ellis, *Phys. Rev. B* **35**, 1602 (1987).
11. B. Hock and J. Hesse, *J. Magn. Magn. Mat.* **78**, 247 (1989).
12. G. P. Das, B. K. Rao, P. Jena, and S. C. Deevi, *Phys. Rev. B* **66**, 184203 (2002).
13. G. S. Grest, *Phys. Rev. B* **21**, 165 (1980).
14. B. V. Reddy, S. C. Deevi, F. A. Reuse, and S. N. Khanna, *Phys. Rev. B* **64**, 132408 (2001).
15. G. Aeppli, S. M. Shapiro, R. J. Birgeneau, and H. S. Chen, *Phys. Rev. B* **28**, 5160 (1983).