УДК 536.42

# КЛАСТЕРНОЕ СПИНОВОЕ СТЕКЛО В КОНЦЕНТРИРОВАННЫХ СПЛАВАХ

А. Дж. ГЕЗАЛЯН

Ереванский государственный университет, Армения

(Поступила в редакцию 18 мая 2007 г.)

Исследованы спиновое стекло и структурное состояние сплавов систем Ni–Mn, Ni $_3$ Mn–Ni $_3$ V и Ni $_3$ Mn–Ni $_2$ Cr. Температуры "замерзания" спинового стекла  $T_g$  и Кюри  $T_c$  определены по температурным зависимостям дифференциальной магнитной восприимчивости  $T_a$ 0. Структурное состояние сплавов изучено методом нейтроноструктурного анализа. Установлен кластерный механизм образования спинового стекла.

## 1. Введение

Исторически изучение состояния спинового стекла (СС) началось с исследования разбавленных сплавов 3d-переходных металлов (Fe, Mn) в матрице благородных элементов (Ag, Au, Cu, Pt). Впоследствии состояние СС было обнаружено во многих металлических, диэлектрических и полупроводниковых системах. Широкий класс неупорядоченных магнетиков представляют концентрированные СС, в которых все атомы сплава являются магнитными. Такими являются сплавы на основе Ni–Mn.

Спиновое стекло в системе Ni–Mn образуется вблизи стехиометрического состава Ni<sub>3</sub>Mn при  $T < 100~\rm K$  и зачастую трактуется [1,2] как результат конкурирующего обменного взаимодействия пар атомов с обменными интегралами разных знаков. Сильная зависимость магнитных состояний Ni<sub>3</sub>Mn от атомного упорядочения [3,4] заставляет предположить кластерную природу СС в этой системе.

Известно [5], что в ГЦК сплавах Ni–Mn взаимодействие ближайших соседей Mn–Mn является антиферромагнитным ( $\Phi$ M), а Mn–Ni и Ni–Ni – ферромагнитным ( $\Phi$ M). Кроме того, взаимодействие Mn–Mn во второй координационной сфере также ферромагнитно. А наличие конкурирующего взаимодействия и разупорядоченность сплава являются необходимым условием образования состояния обычного СС. Разупорядоченное состояние сплавов обычно получается закаливанием. Однако к разрушению атомного порядка может привести и легирование при определенной концентрации легирующего элемента в отожженных сплавах.

C этой точки зрения представляет интерес возможность образования CC в сплавах на основе Ni–Mn после различных термообработок.

## 2. Методика исследований и образцы

Структурное состояние сплавов определялось с помощью нейтроно- структурного анализа. Нейтронограммы образцов были получены на дифрактометре с длиной волны нейтронов  $\lambda=0.128$  нм; вклад в интенсивность  $\lambda/2$  нейтронов составлял 1,5%.

Магнитное состояние изучалось методом измерения дифференциальной магнитной восприимчивости  $\chi_{ac}$ . Температурные зависимости магнитной восприимчивости  $\chi_{ac}$  измерялись с помощью дифференциального трансформатора на частотах от 200 до 500  $\Gamma$ ц в полях с амплитудой 0,5  $\Im$ .

Все поликристаллические сплавы после выплавки прошли гомогенизирующий отжиг в течение 24 ч при  $1000^{\circ}$ С, а затем, как исходное состояние, закаливались в воде. Сплавы концентрационного разреза Ni<sub>3</sub>Mn–Ni<sub>2</sub>Cr изучались как после закалки, так и после ступенчатого отжига в вакууме, для получения возможного упорядочения по следующему режиму:  $500^{\circ}$ C – 72 ч, 480(C – 100 ч,  $460^{\circ}$ C – 100 ч,  $440^{\circ}$ C – 100 ч,  $420^{\circ}$ C – 100 ч,  $400^{\circ}$ C – 100 ч. Составы образцов приведены на рисунках.

## 3. Результаты измерений и их обсуждение

На рис.1 представлены температурные зависимости магнитной восприимчивости х₃с закаленных с 1000(С сплавов Ni-Mn, Ni<sub>3</sub>Mn-Ni<sub>2</sub>Cr и Ni<sub>3</sub>Mn- Ni<sub>3</sub>V. На основании результатов измерений ҳас на рис.2 построена магнитная фазовая диаграмма закаленных сплавов. Из вида кривых следует, что там, где отмечены температура "замерзания" СС  $\mathit{T}_{g}$  и температура Кюри  $T_{c_3}$  в температурном интервале  $T < T_{fg}$  сосуществуют две фазы — магнитно-неупорядоченное СС и ФМ фаза. СС, которое сосуществует с ФМ порядком, часто называют возвратным спиновым стеклом [6-8] (FSG, рис.2). Кривые, которые имеют только острый максимум, соответствуют температурному переходу парамагнетик (ПМ) – СС. В этом случае СС рассматривается как обычное СС. О возникновении такого состояния свидетельствует острый максимум низкополевой магнитной восприимчивости (рис.1а, образцы 3,4 и рис.1b, 1-4). В области 25% ≤ смп ≤ 30% (всюду атомные проценты) в сплавах Ni-Mn ланжевеновский ПМ "замораживается" при температуре  $T_{8}$ , переходя в состояние нормального СС (рис.1а). А сплавы 1 и 2, охлаждаясь, сначала переходят в  $\Phi$ М фазу при точках Кюри  $T_c$  = 246 К и 182 К, а затем в фазу возвратного СС при  $T_{ig} = 53 \; \mathrm{K}$  и 66 K, соответственно, где СС сосуществует с  $\Phi \mathrm{M}$ фазой (рис.2, область FSG). ФМ фаза представляется в виде конечных феррокластеров в этой области.

На рис.2 показана низкотемпературная диаграмма магнитных состояний вышеупомянутых закаленных сплавов, на которой видны области обычного и возвратного СС ( $T_{\rm fg}$ ). При этом для системы Ni–Mn всюду наблюдается ближний атомный порядок, свидетельствующий об образовании атомных кластеров типа Ni<sub>3</sub>Mn [8].

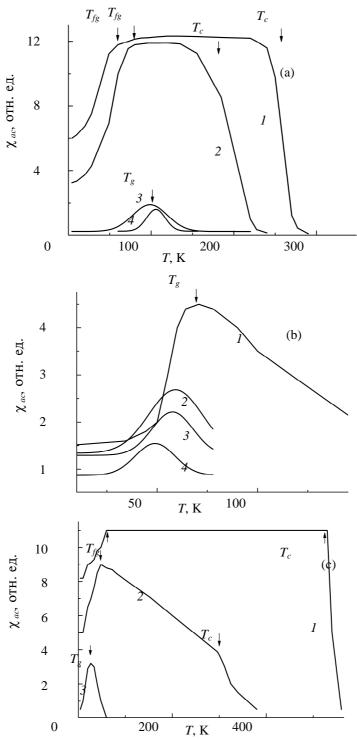


Рис.1. Температурные зависимости дифференциальной магнитной восприимчивости  $\chi_{ac}$ 

закаленных сплавов: a) Ni–Mn; I – 21,2% Mn, 2 – 23,1% Mn, 3 – 25,2% Mn, 4 – 27,6% Mn; b) Ni<sub>3</sub>Mn – Ni<sub>2</sub>Cr; I – 2,5% Cr, 23,25% Mn, 74,25% Ni; 2 – 5,0% Cr, 20,5% Mn, 74,5% Ni; 3 – 7,5% Cr, 19,25% Mn, 73,25% Ni; 4 –10,0% Cr, 17,5% Mn, 72,5% Ni; c) Ni<sub>3</sub>(Mn<sub>1-x</sub>V<sub>x</sub>); I – 10% V, I – 12,5% V, I – 15% V.

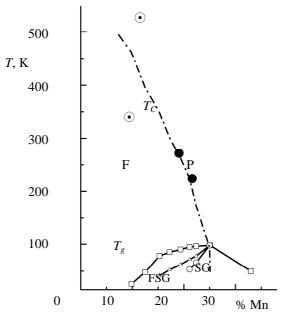


Рис.2. Магнитная фазовая диаграмма закаленных сплавов:  $\circ$ ,  $\bullet$  − Ni–Mn,  $\Delta$  − Ni<sub>3</sub>Mn−Ni<sub>2</sub>Cr,  $\Box$ ,  $\Box$  − Ni<sub>3</sub>Mn−Ni<sub>3</sub>V.

При замене атомов Mn на атомы Cr или V число пар атомов Mn–Mn уменьшается, но ближний порядок либо сохраняется, либо развивается в дальний, что приводит и к дальнему магнитному порядку с определенными значениями  $T_c$  и  $T_g$  (рис.1). Таким образом, V и Cr до определенных концентраций стимулируют образование кластеров типа Ni<sub>3</sub>Mn и формирование CC. При этом области CC сдвигаются к меньшим концентрациям Mn, а в случае легирования V прослеживаются состояния от обычного CC (10% Mn) до возвратного CC (12,5% и 15% Mn) через состояние суперпарамагнетизма (20% Mn, рис.1c).

На рис.3 представлены температурная зависимость магнитной восприимчивости χ₃с и нейтронограммы сверхструктурных отражений (100) отожженных сплавов Ni<sub>3</sub>Mn-Ni<sub>2</sub>Cr. Из рис. 3b видно, что интенсивности сверхструктурных отражений (100) уменьшаются с увеличением концентрации Cr, т.е. происходит концентрационное разупорядочение. Это означает, что при полном образовании дальнего порядка (рис.3b, образец 1, 10% Сг) одновременно формируется ферромагнитная фаза (рис.За, образец 1), тем самим исключая переход в СС состояние при охлаждении. И наоборот, при наличии только ближнего порядка (рис.3b, образец 4) размеры образовавшихся феррокластеров настолько малы, что имеем только температурный переход ПМ-СС (рис.За, образец 4). С ростом дальнего порядка на фоне ближнего (рис.36, образцы 2÷4) мелкие кластеры, объединяясь в более крупные феррохаотических кластеры, приводят возникновению конкурирующих обменных

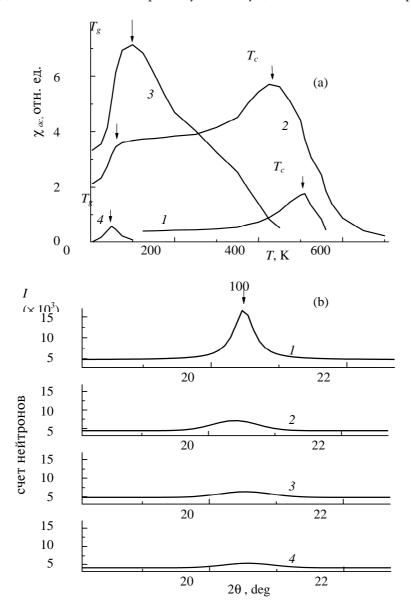


Рис.3. Температурная зависимость магнитной восприимчивости  $\chi_{ac}$  (a) и нейтронограммы сверхструктурных отражений (100) отожженных сплавов системы Ni<sub>3</sub>Mn–Ni<sub>2</sub>Cr (b): I-10.0% Cr, 17,5% Mn, 72,5% Ni; 2-12.5% Cr, 16,0% Mn, 71,5% Ni; 3-15.0% Cr, 13,8% Mn, 71,2% Ni; 4-17.5% Cr, 12,0% Mn, 70,5% Ni.

В длительно отожженных Ni–Mn сплавах [4] с совершенным атомным порядком СС образуется только вблизи порога образования сверхструктуры Ni $_3$ Mn.

Таким образом, образование низкотемпературного СС обусловлено формированием сверхструктуры Ni<sub>3</sub>Mn: при промежуточных степенях дальнего порядка реализуется

возвратное СС и наблюдается переход ПМ–  $\Phi$ М–СС, при ближнем порядке – переход ПМ–СС. Автор благодарен В.И. Гоманькову за обсуждение результатов работы.

#### ЛИТЕРАТУРА

- 1. Ю.П.Гребенюк, М.В.Гавриленко, А.М.Двоеглазов и др. Препринт ИМФ, Киев, 1989.
- 2. W.Abdul-Razzaq, M.Wu. J. Appl. Phys., 69, 5078 (1991).
- 3. **Д.Ф.Литвин, В.А.Удовенко, Е.З.Винтайкин**. ДАН СССР, **198**, 1316 (1971).
- 4. В.И.Гоманьков, А.Дж.Гезалян, Б.Н. Третьяков и др. ФММ, № 12, 49 (1990).
- 5. J.W.Cable, H.R.Child. Phys. Rev. B, 10, 4607 (1974).
- 6. W.Abdul-Razzaq, J.S.Kouvel. J. Appl. Phys., 57, 3467 (1985).
- 7. **А.Дж.Гезалян, С.В.Шульпекова**. Письма в ЖЭТФ, **54**, 48 (1991).
- 8. **А.Дж.Гезалян, А.А.Саакян**. Изв. НАН Армении, Физика, **39**, 402 (2004).

## ԿԼԱՍՏԵՐԱՅԻՆ ՍՊԻՆԱՅԻՆ ԱՊԱԿԻՆ ԽԻՏ ՀԱՄԱՁՈՒԼՎԱԾՔՆԵՐՈՒՄ

#### Ա.Ջ. ԳՅՈԶԱԼՅԱՆ

Հետազոտված են Ni–Mn, Ni $_3$ Mn–Ni $_3$ V և Ni $_3$ Mn–Ni $_2$ Cr համակարգերի համաձուլվածքների կա-nուցվածքային վիճակներն ու սպինային ապակին։ Դիֆերենցիալ մագնիսական ընկալունակության  $\chi_{ac}$  ջերմաստիճանային կախվածության միջոցով որոշված են սպինային ապակու "սառեցման"  $T_g$  և Կյուրիի  $T_c$  ջերմաստիճանները։ Նեյտրոնակառուցվածքային անալիզի մեթոդով ուսումնասիրված են համաձուլվածքների կառուցվածքային վիճակները։ Հաստատված է սպինային ապակու ձևավորման կլաստերային մեխանիզմը։

## CLUSTER SPIN GLASS IN CONCENTRATED ALLOYS

#### A.J. GYOZALYAN

Spin glass and structural states of Ni–Mn, Ni<sub>3</sub>Mn–Ni<sub>3</sub>V and Ni<sub>3</sub>Mn–Ni<sub>2</sub>Cr systems of alloys are investigated. The "freezing" temperature  $T_{\rm g}$  of spin glass and Curie temperatures are obtained from the temperature dependence of the differential magnetic susceptibility  $\chi_{\rm ac}$ . The structural states of alloys are studied by the neutron diffraction technique. The cluster mechanism of spin glass formation is established.