

$R_2\text{Fe}_{17-x}\text{Al}_x$ 化合物中 R - T 交换耦合常量的计算*

郝延明

(河北工业大学磁技术与磁材料研究中心, 天津 300130)

(2000 年 3 月 29 日收到)

讨论了利用分子场近似结合中子衍射或 X 射线衍射的实验结果计算 $R_2\text{Fe}_{17}$ 型稀土过渡族化合物中稀土磁矩与过渡族磁矩之间交换耦合常量的方法, 并据此计算了 $R_2\text{Fe}_{17-x}\text{Al}_x$ ($R = \text{Tb}, \text{Dy}, \text{Ho}, \text{Er}, \text{Gd}$, $x = 7$ 或 8) 化合物中稀土磁矩与过渡族磁矩之间的交换耦合常量, 计算结果与实验值符合较好.

关键词: $R_2\text{Fe}_{17-x}\text{Al}_x$ 化合物, 交换耦合常量

PACC: 7550B, 7530C

1 引 言

一般认为, 在稀土过渡族金属间化合物中, 稀土 (R) 磁矩与过渡族 (T) 磁矩的交换作用是稀土原子的 $4f$ 电子通过其 $5d$ 电子与过渡族原子的 $3d$ 电子之间产生的间接交换作用所导致的^[1], 这种交换作用的强弱通常用 R - T 交换耦合常量 (J_{RT}) 来描述. 由于这种间接交换作用的结果是将磁晶各向异性相对较强的稀土离子与磁晶各向异性相对较弱的过渡族离子的磁矩耦合在一起, 因此这种间接交换作用无论是对稀土过渡族化合物的磁晶各向异性还是对其居里温度都有一定的影响. 二元稀土过渡族化合物 ($R_2\text{Fe}_{17}$) 由于室温下易面化和居里温度较低而不能成为实用永磁材料, 但近年来的研究结果表明^[2-4], 通过添加间隙原子以及用其他原子 (如 Al , Ga 等) 替换一部分 Fe 后, 其居里温度和磁晶各向异性都有很大变化, 因此 $R_2\text{Fe}_{17}$ 化合物又重新引起了人们对它的极大兴趣.

在对 $R_2\text{Fe}_{17-x}\text{Al}_x$ 化合物的研究中, 人们希望得到 R - T 交换耦合常量 (J_{RT}) 值, 以便获取 J_{RT} 对化合物磁性能影响的有关信息. 但 J_{RT} 值一般难于得到. 实际上, 对于替代量较大的 $R_2\text{Fe}_{17-x}\text{Al}_x$ 化合物中的极少数, 人们可以通过 20T 以上的高场磁化曲线的测量中得到其 J_{RT} 值^[5]; 对于有些存在抵消点的该类化合物, 也可以从其抵消点附近的磁化曲

线上得到 J_{RT} 值^[6]. 本文试图找到一种方法, 从而只通过一般低场下的磁性测量就可较准确地得到 J_{RT} 的信息. 一个简单的想法就是从分子场理论出发, 利用 X 射线衍射或中子衍射的结果更细致地考虑一些替代的细节, 来计算 R - T 交换耦合常量.

2 计 算 方 法

一般情况下, 稀土 (R) 与过渡族金属 (T) 磁矩的磁交换作用可以用一个有效交换作用来描述, 这个有效交换作用的哈密顿量可以表示为^[1,7]

$$H_{\text{exch}} = - \sum 2J_{RT}(i, j) S_R(i) S_T(j), \quad (1)$$

式中 i, j 分别为 R 与 T 的晶位. 在双格子模型的分子场近似中可以导出这项交换作用的能量为

$$E = - n_{RT} M_R M_T, \quad (2)$$

式中 $-n_{RT} M_T$ 可以看作是作用在 R 磁矩上的分子场. n_{RT} 为分子场常量, 其值与 $Z_{RT} J_{RT}$ 成正比. J_{RT} 即为交换耦合常量, 它用来表示稀土次晶格和过渡族次晶格之间的交换作用的强弱. Z_{RT} 为与一个 R 原子近邻的 T 原子的数目. 同样, 也可以把 $n_{TR} M_R$ 看作是作用在过渡族金属磁矩上的分子场, 这个分子场常量 n_{TR} 正比于 J_{TR} 和 Z_{TR} , Z_{TR} 为与一个 T 原子近邻的 R 原子的数目, 很明显, $n_{RT} = n_{TR}$. 根据文献 [7] 有

$$N_{RT} = n_{TR} = \frac{1}{N_T} Z_{RT} J_{RT} \frac{(g_R - 1)}{g_R \mu_B}. \quad (3)$$

* 天津市教育委员会高校发展基金资助的课题.

如果认为居里(Curie)-外斯(Weiss)定律对于两个次晶格都成立 ,则可以导出^[7]

$$\chi_R = \frac{N_R g_R^2 J_R (J_R + 1) \mu_B^2}{3k (T - T_R)}, \quad (4)$$

$$\chi_T = \frac{N_T 4 S_T (S_T + 1) \mu_B^2}{3k (T - T_T)}. \quad (5)$$

由于 $\chi_R \chi_T n_{RT} n_{TR} = 1^{[8]}$,所以可得

$$J_{RT}^2 = \frac{9k^2 (T - T_R) (T - T_T) N_T}{N_R J_R (J_R + 1) (g_R - 1)^2 4 S_T (S_T + 1) Z_{RT}^2}.$$

(6)

根据文献 [6, 7] 有 $Z_{TR} N_T = N_R Z_{RT}$ 成立 ,将该式代入(6)式 ,可得

$$J_{RT}^2 = \frac{9k^2 (T - T_R) (T - T_T)}{4 J_R (J_R + 1) (g_R - 1)^2 S_T (S_T + 1) Z_{RT} Z_{TR}}, \quad (7)$$

式中 $(g_R - 1)^2 J_R (J_R + 1)$ 为稀土原子的 De Gennes 因子 ,考虑到过渡族原子的轨道角动量淬灭 , $g_T = 2$, $J_T = S_T$,因此 $S_T (S_T + 1)$ 为过渡族原子(T)的 De Gennes 因子 .

对于 $R_2\text{Fe}_{17-x}\text{Al}_x$ 化合物 ,由于 Al 无磁性 ,因此稀土次晶格与过渡族次晶格的交换作用实际上就是稀土次晶格与 Fe 次晶格间的交换作用 ,这样 T 晶格的有效自旋 S_T 为

$$S_T = S_{\text{Fe}} = \frac{1}{2} \frac{M_{\text{Fe}}}{(17 - x) \mu_B}, \quad (8)$$

式中 M_{Fe} 为 Fe 次晶格的饱和磁矩 ,它可由 $R_2\text{Fe}_{17-x}\text{Al}_x$ 化合物的饱和磁矩和稀土离子的磁矩近似得到 ,即

$$M_{\text{Fe}} = M_S - M_R, \quad (9)$$

M_R 为稀土离子的磁矩 ,它可由洪特(Hund)规则求

得 ,即

$$M_R = g_R \sqrt{J_R (J_R + 1)} \mu_B. \quad (10)$$

T 次晶格的居里温度 $T_T = T_{\text{Fe}}$,其值可由对具有相同结构的 $\text{Y}_2\text{Fe}_{17-x}\text{Al}_x$ 化合物的磁测量中近似得到 . $Z_{RT} = Z_{TR}$,它可由 X 射线衍射或中子衍射确定 . 设 $y_{\text{Fe},i}$ 表示 i 晶位上 Fe 原子的分数占有率 ,则有

$$Z_{\text{RFe}} = 1 \times y_{\text{Fe},6c} + 3 \times y_{\text{Fe},9d} + 6 \times y_{\text{Fe},18f} + 9 \times y_{\text{Fe},18h}, \quad (11)$$

再由 $Z_{\text{Fe}R} Z_{\text{Fe}} = Z_{\text{RFe}} N_R$ 可得

$$Z_{\text{Fe}R} = Z_{\text{RFe}} N_R / N_{\text{Fe}}, \quad (12)$$

式中 $N_R = 2$ 为每单胞中的 R 原子数 , $N_{\text{Fe}} = 17 - x$ 为每单胞中的 Fe 原子数 .

3 一些 $R_2\text{Fe}_{17-x}\text{Al}_x$ 化合物的计算结果

利用上述方法对一些已有磁测量结果的 $R_2\text{Fe}_{17-x}\text{Al}_x$ 化合物的稀土次晶格与 Fe 次晶格的交换耦合常量进行了计算 ,其中由洪特规则计算得到的稀土离子的磁矩分别为 $M_{\text{Dy}} = 10.63 \mu_B$, $M_{\text{Tb}} = 9.72 \mu_B$, $M_{\text{Gd}} = 7.94 \mu_B$, $M_{\text{Er}} = 9.59 \mu_B$, $M_{\text{Ho}} = 10.60 \mu_B$. 考虑到文献 [6] 中对 $\text{Gd}_2\text{Fe}_{17-x}\text{Al}_x$ 近似将 Gd 次晶格的 T_{Gd} 估计为 50K ,计算中对于其他稀土原子也粗略认为 $T_R = 50\text{K}$. 由于 $R_2\text{Fe}_{17-x}\text{Al}_x$ 化合物的结构对于不同的 R 基本相同 ,所以对于 $R_2\text{Fe}_{17-x}\text{Al}_x$ 化合物中的 Fe 在各晶位的占有率直接采用 $\text{Tb}_2\text{Fe}_{17-x}\text{Al}_x$ 中子衍射的测量结果^[9] ,如表 1 所示 . J_{RFe} 的计算结果及磁测量结果如表 2 所示 .

表 1 $\text{Tb}_2\text{Fe}_{17-x}\text{Al}_x$ ($x = 7, 8$) 化合物中 Fe 在各晶位的分数占有率 $y_{\text{Fe},i}$ 及 Z_{RT} , Z_{TR} 的计算结果(其中 $y_{\text{Fe},i}$ 来自文献 [9])

化合物	$y_{\text{Fe},9d}/\%$	$y_{\text{Fe},6c}/\%$	$y_{\text{Fe},18f}/\%$	$y_{\text{Fe},18h}/\%$	Z_{RFe}	$Z_{\text{Fe}R}$
$\text{Tb}_2\text{Fe}_{10}\text{Al}_7$	1	37.6	42.4	62.4	11.44	2.29
$\text{Tb}_2\text{Fe}_9\text{Al}_8$	1	6.0	31.2	64.8	10.76	2.39

表 2 $R_2\text{Fe}_{17-x}\text{Al}_x$ 化合物的磁性参量及 J_{RFe} 的计算结果

化合物	T_C/K	$T_{\text{Fe}}/\text{K}^{(b)}$	$M_T/(\mu_B/\text{f. u.})$	$M_S/(\mu_B/\text{f. u.})$	S_T	$(-J_{\text{RFe}}/k) \text{ K}(\text{calc})$	$(-J_{\text{RFe}}/k) \text{ K}(\text{expt})$
$\text{Tb}_2\text{Fe}_{10}\text{Al}_7$	273 ^{a)}	163	18.34	1.1 ^{a)}	0.92	10.66	10.35 ^{a)}
$\text{Dy}_2\text{Fe}_{10}\text{Al}_7$	237 ^{a)}	163	18.96	2.3 ^{a)}	0.95	9.52	10.1 ^{a)}
$\text{Dy}_2\text{Fe}_9\text{Al}_8$	210 ^{a)}	105	17.56	3.7 ^{a)}	0.97	10.42	10.9 ^{a)}
$\text{Ho}_2\text{Fe}_{10}\text{Al}_7$	209 ^{b)}	163	15.20	6.0 ^{b)}	0.76	10.20	9.04 ^{b)}
$\text{Er}_2\text{Fe}_{10}\text{Al}_7$	197 ^{a)}	163	17.38	1.8 ^{a)}	0.87	10.27	8.13 ^{a)}
$\text{Gd}_2\text{Fe}_{10}\text{Al}_7$	299 ^{c)}	163	17.48	1.6 ^{c)}	0.87	10.65	10.1 ^{c)}

注 : a) 取自文献 [5] ; b) 取自文献 [6] ; c) 取自文献 [10] .

从表 2 可以看出对于化合物 $Tb_2Fe_{10}Al_7$, $Dy_2Fe_{10}Al_7$, $Dy_2Fe_9Al_8$ 和 $Gd_2Fe_{10}Al_7$ 的计算结果与实验测量值符合得很好, 差别仅在 5% 左右, 但对于化合物 $Er_2Fe_{10}Al_7$ 和 $Ho_2Fe_{10}Al_7$, 计算结果与实验测量值之间差别较大, 估计造成这种差别主要是由于在计算中对这两种化合物的 T 晶格的交换作用(T_{Fe})估计不准, 即 $Er_2Fe_{10}Al_7$ 和 $Ho_2Fe_{10}Al_7$ 这两种化合物的 T 晶格的交换作用(T_{Fe})与化合物 $Y_2Fe_{10}Al_7$ 的交换作用(T_T)之间存在较大的差别.

4 结 论

从分子场理论出发, 利用 X 射线衍射或中子衍射的结果更细致地考虑一些替代的细节, 计算稀土过渡族化合物中的稀土(R)磁矩与过渡族(T)磁矩之间的交换耦合常量是一种可取的方法.

[2] H. Sun , J. M. D. Coey , Y. Otani , D. P. F. Hurley , *J. Phys. : Condens. Matter* , **2** (1990) 6465.
[3] B. G. Shen , F. W. Wang , L. S. Kong , L. Cao , *J. Phys. : Condens. Matter* , **5** (1993) 1685.
[4] B. G. Shen , Z. H. Cheng , H. Y. Gong , B. Liang , Q. W. Yan , W. S. Zhan , *Solid State Commun.* , **95** (1995) 813.
[5] T. H. Jacobs , K. H. J. Buschow , G. F. Zhou , F. R. de Boer , *Physica* , **B179** (1992) 177.
[6] T. H. Jacobs , K. H. J. Buschow , G. F. Zhou , X. Li , F. R. de Boer , *J. Magn. Magn. Mater.* , **116** (1992) 220.
[7] P. E. Brommer , *Physica* , **B173** (1991) 227.
[8] R. J. Radwanski , X. P. Zhong , F. R. de Boer , K. H. J. Buschow , *Physica* , **B164** (1990) 131.
[9] G. K. Marasinghe , S. Mishra , O. A. Pringle , G. J. Long , Z. Hu , W. B. Yelon , F. Grandjean , D. P. Middleton , K. H. J. Buschow , *J. Appl. Phys.* , **76** (1994) 6731.
[10] T. H. Jacobs , K. H. J. Buschow , G. F. Zhou , J. P. Liu , X. Li , F. R. de Boer , *J. Magn. Magn. Mater.* , **104—107** (1992) 1275.

[1] E. Belorizky , M. A. Fremy , J. P. Gavigan , D. Givord , H. S. Li , *J. Appl. Phys.* , **61** (1987) 199.

A CALCULATION OF THE EXCHANGE INTERACTION CONSTANT
BETWEEN THE R -SUBLATTICE AND THE 3d-SUBLATTICE IN
 $R_2Fe_{17-x}Al_x$ COMPOUNDS*

HAO YAN-MING

(Centre of Magnetic Technology and Magnetic Materials , Hebei University of Technology , Tianjin 300130 , China)

(Received 29 March 2000)

ABSTRACT

A calculation of the exchange interaction constant between the R moment and the T moment in rare-earth(R) transition-metal(T) compounds of the type R_2Fe_{17} has been discussed using molecular field theory combining with the results of neutron diffraction or X-ray diffraction. The calculated values for $R_2Fe_{17-x}Al_x$ ($R = Tb$, Dy , Ho , Er and Gd , $x = 7$, 8) have been given and they are in agreement with the experimental results .

Keywords : $R_2Fe_{17-x}Al_x$ compounds , exchange interaction constant

PACC : 7550B , 7530C

* Project supported by the Foundation for College Development of Education Commission of Tianjin , China.