

## ТЕПЛОЕМКОСТЬ СОЕДИНЕНИЯ $\text{La}(\text{Fe}_{0.873}\text{Co}_{0.007}\text{Al}_{0.12})_{13}$ В АНТИФЕРРОМАГНИТНОМ И ФЕРРОМАГНИТНОМ СОСТОЯНИЯХ

*С. М. Подгорных<sup>a,\*</sup>, В. А. Казанцев<sup>a</sup>, В. И. Мяконьких<sup>b</sup>,  
Е. В. Щербакова<sup>a</sup>, А. А. Ермаков<sup>a,b</sup>*

<sup>a</sup> *Институт физики металлов Уральского отделения Российской академии наук  
620041, Екатеринбург, Россия*

<sup>b</sup> *Уральский государственный университет им. А. М. Горького  
620083, Екатеринбург, Россия*

Измерена низкотемпературная теплоемкость соединения  $\text{La}(\text{Fe}_{0.873}\text{Co}_{0.007}\text{Al}_{0.12})_{13}$  в двух состояниях: в антиферромагнитном с температурой Нееля  $T_N = 192$  К и в ферромагнитном. Ферромагнитное упорядочение в образце возникает во внешнем магнитном поле с индукцией  $B_C \geq 2.5$  Тл при  $T = 4.2$  К и сохраняется длительное время в нулевом магнитном поле вплоть до температуры  $T_C^* = 23$  К. Обнаружено, что коэффициент  $\gamma_{FM}$  низкотемпературной теплоемкости  $C = \gamma T + \beta T^3$  в ферромагнитном состоянии отличается незначительно от  $\gamma_{AFM}$  в антиферромагнитном состоянии. Обсуждается вклад в низкотемпературное поведение теплоемкости от изменения упругой и магнитоупругой энергии образца в результате магнитоstrictionных деформаций.

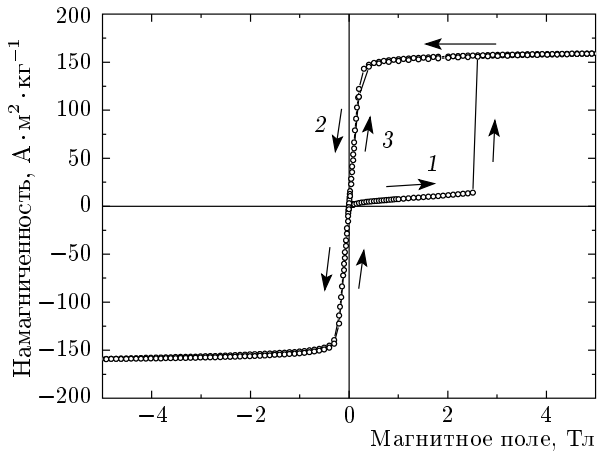
PACS: 05.70.Fh, 75.40.Cx, 75.80.+q

Соединение  $\text{La}(\text{Fe}_{0.873}\text{Co}_{0.007}\text{Al}_{0.12})_{13}$ , являющееся антиферромагнетиком (АФМ) с температурой Нееля  $T_N = 192$  К, при низких температурах может быть переведено в ферромагнитное состояние во внешнем магнитном поле с индукцией  $B_C \geq 2.5$  Тл при  $T = 4.2$  К. Этот метамагнитный переход происходит благодаря тому, что данная концентрация компонентов этого соединения близка к критической концентрации перехода  $x$  от антиферромагнетика к ферромагнетику (ФМ) в системе  $\text{La}(\text{Fe}_{0.88-x}\text{Co}_x\text{Al}_{0.12})_{13}$  [1–3]. Особенностью этого соединения с выбранной концентрацией компонентов является то, что при выключении внешнего магнитного поля состояние индуцированного полем ферромагнетика сохраняется длительное время (несколько суток), если температура образца ( $T = 4.2$  К) остается постоянной [2]. Это ферромагнитное состояние может быть разрушено нагреванием образца до температуры  $T_C^* \approx 23$  К. Выше этой температуры образец возвращается в исходное антиферромагнитное состояние, которое все-

гда формируется при охлаждении из парамагнитного состояния в нулевом магнитном поле. Температурная зависимость поля метамагнитного перехода  $B_C(T)$  является немонотонной функцией с минимумом  $B_{C\min} \geq 0.8$  Тл при  $T = 150$  К [2]. Наведенное полем ферромагнитное состояние образца может быть получено другим способом, а именно, охлаждением образца из парамагнитного состояния в небольшом магнитном поле, которое должно быть выше минимального поля метамагнитного перехода:  $B \geq B_{C\min} = 0.8$  Тл.

В настоящей работе проведено исследование низкотемпературной теплоемкости соединения  $\text{La}(\text{Fe}_{0.873}\text{Co}_{0.007}\text{Al}_{0.12})_{13}$  как в антиферромагнитном, так и в ферромагнитном состояниях. Ферромагнитное состояние образца достигалось охлаждением его в магнитном поле  $B_C = 2.5$  Тл от комнатной температуры до температуры  $T = 1.8$  К. Затем магнитное поле выключалось, а образец оставался в ферромагнитном состоянии. Такая процедура получения ферромагнитного состояния образца выбрана из-за особенностей измерения теплоемкости на установке PPMS-9 фирмы Quantum

\*E-mail: sp@imp.uran.ru

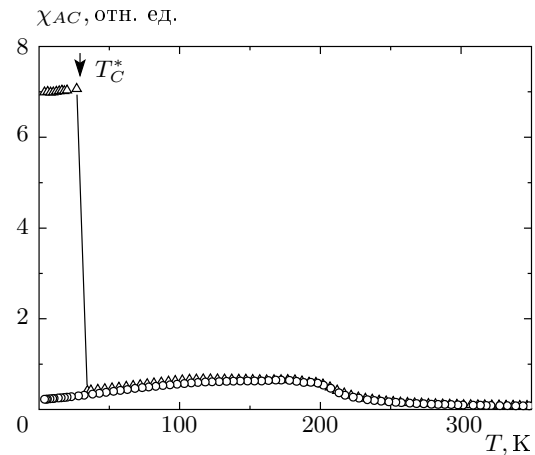


**Рис. 1.** Кривая намагничивания соединения  $\text{La}(\text{Fe}_{0.873}\text{Co}_{0.007}\text{Al}_{0.12})_{13}$  в антиферромагнитном (1) и ферромагнитном (2), (3) состояниях. Поле метамагнитного перехода для образца этого состава равно  $B_C = 2.5$  Тл,  $T = 4$  К

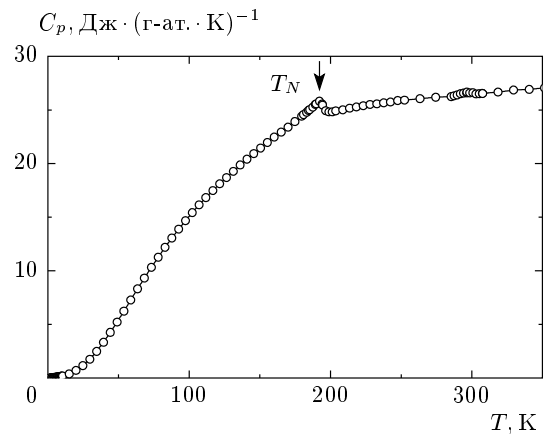
Design, для того чтобы уменьшить риск поломки измерительной ячейки с закрепленным образцом, который в большом магнитном поле становится ферромагнетиком. Магнитные измерения выполнены на СКВИД-магнитометре MPMS-5XL фирмы Quantum Design. Начальная магнитная восприимчивость измерена в переменном магнитном поле с частотой  $f = 80$  Гц и амплитудой  $B = 0.4$  мТл в нулевом статическом магнитном поле ( $B = 0$ ).

Кривая намагничивания образца соединения  $\text{La}(\text{Fe}_{0.873}\text{Co}_{0.007}\text{Al}_{0.12})_{13}$  приведена на рис. 1. Видно, что после охлаждения образца кривая первичного намагничивания (отмечена цифрой 1) соответствует антиферромагнитному состоянию. Намагничивание по кривой 1 происходит обратимо, если индукция внешнего магнитного поля не превышает  $B = 2.5$  Тл. При возрастании поля выше  $B = 2.5$  Тл образец переходит в ферромагнитное состояние, которое может сохраняться продолжительное время. Кривая намагничивания в этом наведенном поле ферромагнитном состоянии соответствует ферромагнитной кривой намагничивания. На рис. 1 показана полная петля гистерезиса для этого образца в наведенном поле ферромагнитном состоянии (цифрами 2 и 3 отмечены направления изменения поля).

Температурные зависимости начальной магнитной восприимчивости  $\chi_{AC}(T)$  этого образца в антиферромагнитном и ферромагнитном состояниях, измеренные в переменном магнитном поле и в нулевом статическом магнитном поле ( $B = 0$ ), показаны

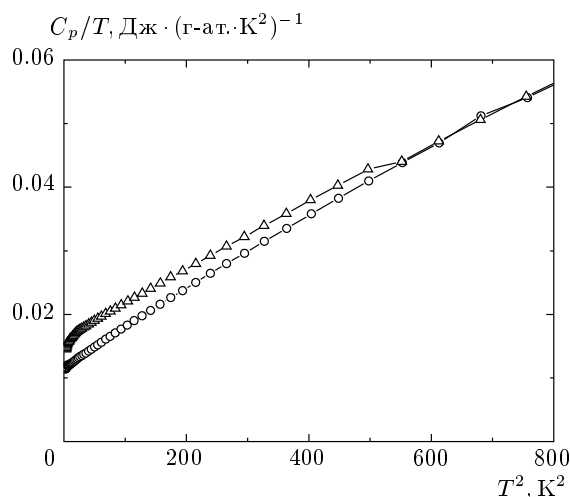


**Рис. 2.** Температурные зависимости начальной магнитной восприимчивости  $\chi_{AC}$  соединения  $\text{La}(\text{Fe}_{0.873}\text{Co}_{0.007}\text{Al}_{0.12})_{13}$  в антиферромагнитном (○) и в ферромагнитном (△) состояниях. Измерения проведены в переменном магнитном поле и нулевом статическом магнитном поле ( $B = 0$ ). Вертикальной стрелкой показана температура перехода из наведенного полем ферромагнитного состояния в антиферромагнитное состояние  $T_C^* = 23$  К



**Рис. 3.** Температурная зависимость теплоемкости  $C_p$  соединения  $\text{La}(\text{Fe}_{0.873}\text{Co}_{0.007}\text{Al}_{0.12})_{13}$  в антиферромагнитном (○) состоянии. Стрелкой показана температура Нееля  $T_N = 192$  К

на рис. 2. Видно, что выше некоторой температуры, которую мы обозначаем как  $T_C^* = 23$  К и которая соответствует переходу из ферромагнитного в антиферромагнитное состояние, кривые  $\chi_{AC}(T)$  совпадают. Это означает, что образец вернулся в исходное антиферромагнитное состояние.



**Рис. 4.** Температурные зависимости теплоемкости  $C_p$  в координатах  $C_p/T$  и  $T^2$  ниже 30 К для соединения  $\text{La}(\text{Fe}_{0.873}\text{Co}_{0.007}\text{Al}_{0.12})_{13}$  в антиферромагнитном состоянии (○) и в наведенном поле ферромагнитном (△) состоянии в нулевом внешнем магнитном поле ( $B = 0$ )

На рис. 3 показана температурная зависимость теплоемкости образца соединения  $\text{La}(\text{Fe}_{0.873}\text{Co}_{0.007}\text{Al}_{0.12})_{13}$  в антиферромагнитном состоянии. Пик теплоемкости при температуре Нееля  $T_N = 192$  К очевидно связан с фазовым переходом из антиферромагнитного в парамагнитное состояние. Ферромагнитное состояние этого образца было получено охлаждением его в магнитном поле  $B_C = 2.5$  Тл от комнатной температуры до температуры  $T = 1.8$  К без перемонтажа в калориметрической ячейке. Другими словами, наши измерения выполнены на одном и том же образце в двух состояниях: антиферромагнитном и ферромагнитном. Температурные зависимости низкотемпературной теплоемкости соединения  $\text{La}(\text{Fe}_{0.873}\text{Co}_{0.007}\text{Al}_{0.12})_{13}$  в антиферромагнитном и ферромагнитном состояниях показаны на рис. 4. Видно, что низкотемпературная теплоемкость в ферромагнитном состоянии превышает теплоемкость образца в антиферромагнитном состоянии. При повышении температуры  $T > T_C^* = 23$  К образец возвращается в исходное антиферромагнитное состояние: температурные зависимости теплоемкости выше этой температуры совпадают. Низкотемпературную теплоемкость в обоих состояниях можно аппроксимировать электронной  $\gamma T$  и решеточной  $\beta T^3$  составляющими:

$$C_p = \gamma T + \beta T^3.$$

Рассчитанные по этой формуле коэффициенты  $\gamma$  и  $\beta$ , вычисленные по формуле для свободных электронов значения плотности электронных состояний на уровне Ферми

$$g(E_F) = \frac{3\gamma}{\pi^2 N_A k_B^2}$$

и оценки температур Дебая по формуле

$$\Theta_D = \sqrt[3]{\frac{12\pi^4 N_A k_B}{5\beta}}$$

приведены в таблице. Коэффициент Зоммерфельда в ферромагнитном состоянии  $\gamma_{FM} = 15.5$  мДж·(г·ат·К²)<sup>-1</sup> немного превышает значение  $\gamma$  в антиферромагнитном состоянии  $\gamma_{AFM} = 11.6$  мДж·(г·ат·К²)<sup>-1</sup>. Однако это небольшое возрастание  $\gamma$  сопровождается заметным изменением коэффициента  $\beta$ , т.е. температуры Дебая. Электронная и решеточная составляющие теплоемкости оказываются связанными и совместно реагируют на изменение магнитного состояния.

Для того чтобы оценить изменение в коэффициенте  $\gamma$  при появлении ферромагнитного порядка в образце, было дополнительно проведено исследование образца близкого состава из ферромагнитной области концентраций  $\text{La}(\text{Fe}_{0.84}\text{Co}_{0.04}\text{Al}_{0.12})_{13}$  с температурой Кюри  $T_C \approx 200$  К [3]. Полученные значения коэффициентов  $\gamma$  и  $\beta$  для этого сплава также приведены в таблице. Различие в коэффициентах  $\gamma$  для антиферромагнетика и ферромагнетика оказалось столь незначительно, что его трудно сопоставить с выполнимостью критерия Стонера наступления ферромагнетизма. Более того, это незначительное увеличение плотности электронных состояний на уровне Ферми сопровождается изменениями в решеточной теплоемкости.

Отметим отсутствие каких-либо флуктуационных составляющих в теплоемкости вблизи температуры перехода из ферромагнитного состояния в антиферромагнитное состояние при  $T_C^* = 23$  К. В модели метамагнетизма коллективизированных электронов наведенное полем ферромагнитное состояние стабилизируется переходом уровня Ферми в локальный минимум энергии с более высокой плотностью электронных состояний по сравнению с немагнитным состоянием [4].

Наблюдаемое в настоящей работе отсутствие существенного различия между коэффициентами Зоммерфельда в антиферромагнитном и ферромагнитном состояниях означает отсутствие заметного изменения в электронной подсистеме соединения. Сле-

Коэффициенты  $\gamma$  и  $\beta$  в низкотемпературной теплоемкости  $C_p = \gamma T + \beta T^3$ , температура Дебая  $\Theta_D$  и значения плотности электронных состояний на уровне Ферми  $g(E_F)$  для исследованных соединений

Состав	Состояние	$\gamma$ , мДж/г-ат. · К <sup>2</sup>	$\beta$ , мДж/г-ат. · К <sup>4</sup>	$\Theta_D$ , К	$g(E_F)$ , эВ/ф. ед.
$\text{La}(\text{Fe}_{0.873}\text{Co}_{0.007}\text{Al}_{0.12})_{13}$	АФМ	11.6	$6.71 \cdot 10^{-5}$	307	$4.9 \cdot 14$
$\text{La}(\text{Fe}_{0.873}\text{Co}_{0.007}\text{Al}_{0.12})_{13}$	ФМ	15.5	$7.55 \cdot 10^{-5}$	295	$6.6 \cdot 14$
$\text{La}(\text{Fe}_{0.84}\text{Co}_{0.04}\text{Al}_{0.12})_{13}$	ФМ	12.4	$6.55 \cdot 10^{-5}$	309	$5.3 \cdot 14$

довательно, устойчивость ферромагнитного состояния определяется другим механизмом, который, по-видимому, связан с большими магнитоэластическими деформациями. Изменение упругой и магнитоупругой энергии образца в результате таких деформаций, как было показано в работе [5] для соединения  $\text{La}(\text{Fe}_{0.88}\text{Si}_{0.12})_{13}$  вблизи его температуры Кюри, приводит к появлению дополнительной теплоемкости в ферромагнитном состоянии. Коэффициент  $\gamma$  в низкотемпературной теплоемкости будет содержать в себе вклад от изменения энергии решетки в результате этих дополнительных упругих деформаций.

## ЛИТЕРАТУРА

1. T. T. M. Palstra, G. J. Nieuwenhuys, J. A. Mydosh, and K. H. J. Buschow, *Phys. Rev. B* **31**, 4622 (1985).
2. Ye. V. Shcherbakova, A. V. Korolyov, and S. M. Podgornykh, *J. Magn. Magn. Mater.* **237**, 147 (2001).
3. А. С. Ермоленко, Е. В. Щербакова, А. В. Андреев, Н. В. Баранов, *ФММ* **65**, 749 (1988).
4. E. P. Wohlfarth and P. Rhodes, *Phil. Mag.* **7**, 1817 (1962).
5. S. M. Podgornykh and Ye. V. Shcherbakova, *Phys. Rev. B* **73**, 184421 (2006).