

Влияние всестороннего давления на магнитные и решеточные свойства ферромагнетика $\text{La}(\text{Fe}_{0.86}\text{Si}_{0.14})_{13}$

© Э.З. Валиев¹, И.Ф. Бергер^{1,3}, В.И. Воронин¹, В.А. Глазков², А.А. Калоян², К.М. Подурец²

¹ Институт физики металлов УрО РАН,
Екатеринбург, Россия

² НИЦ „Курчатовский институт“,
Москва, Россия

³ Институт химии твердого тела УрО РАН,
Екатеринбург, Россия

E-mail: valiev@imp.uran.ru

Приведены результаты измерений температурной зависимости постоянной решетки ферромагнетика $\text{La}(\text{Fe}_{0.86}\text{Si}_{0.14})_{13}$ при различных давлениях и температурах. Определено численное значение модуля всестороннего сжатия при комнатной температуре. Измерения температурной зависимости постоянной решетки ферромагнетика $\text{La}(\text{Fe}_{0.86}\text{Si}_{0.14})_{13}$ при давлении 0 и 11.5 kbar показали, что при отсутствии давления на температурной зависимости параметра решетки наблюдается резкое уменьшение в интервале от 160 до 210 К, в то время как под давлением 11.5 kbar уменьшение происходит в интервале от 110 до 180 К. Это свидетельствует об изменении T_C под давлением от 210 до ~ 170 К. Результаты экспериментов проанализированы с помощью уравнений состояния для магнитной и упругой подсистем ферромагнетика.

Работа выполнена по плану РАН (тема № 01.2.006 13394, шифр „Импульс“), при частичной поддержке Программы фундаментальных исследований Президиума РАН (проект № 12-П-2-1019 УрО РАН), государственных контрактов № 14.518.11.7020, 16.552.11.7055 и РФФИ (гранты № 12-02-12070-офи_м и 12-02-12069-офи_м).

1. Введение

Ферромагнетик $\text{La}(\text{Fe}_{0.86}\text{Si}_{0.14})_{13}$ (кубическая решетка, структурный тип NaZn_{13}) испытывает магнитный фазовый переход первого рода, близкий к переходу второго рода. Магнитный фазовый переход (МФП) сопровождается большим изменением объема $\omega = \Delta V/V \approx 10^{-2}$ [1]. Величина линейной магнитострикции $\Delta L/L = \omega/3$, которая наблюдается в этих соединениях, больше, чем в лучших магнитострикционных материалах на основе TbFe_2 . Недавно в соединениях $\text{La}(\text{Fe}_x\text{Si}_{1-x})_{13}$ обнаружен большой магнитокалорический эффект (МКЭ) [2]. Поскольку эти соединения показывают близкие к рекордным значениям величины МКЭ и линейной магнитострикции, важно знать причины такого поведения и влияние различного рода внешних воздействий на их свойства.

С этой целью были проведены измерения постоянной решетки ферромагнетика $\text{La}(\text{Fe}_{0.86}\text{Si}_{0.14})_{13}$ в зависимости от давления при комнатной температуре в интервале давлений 0–50 kbar, а также измерения температурной зависимости постоянной решетки при давлении 0 и 11.5 kbar. Эти эксперименты необходимы также для определения численных значений некоторых физических величин для этого соединения и проведения модельных расчетов термодинамических свойств. Результаты экспериментов проанализированы с помощью уравнений состояния для магнитной и упругой подсистем ферромагнетика, которые получены в работе [3].

2. Образцы и методика эксперимента

Эксперименты по измерению структурных свойств проведены на образце $\text{La}(\text{Fe}_{0.86}\text{Si}_{0.14})_{13}$, синтезированном в ИФМ УрО РАН. Эксперименты были выполнены на двух нейтронных дифрактометрах и синхротроне. Температурные измерения без давления проведены в Заречном (дифрактометр Д7а), под давлением — в Курчатовском институте (дифрактометр ДИСК). Зависимость параметров решетки от давления при комнатной температуре получена на Курчатовском источнике синхротронного излучения (станция Медиана [4]).

3. Основные формулы и обозначения

При анализе экспериментальных данных используют формулы для расчета физических свойств ферромагнетика, поэтому рассмотрим сначала основные представления принятой модели ферромагнетика. Используем термодинамический потенциал ферромагнетика, который включает обменную энергию, энергию однородных объемных деформаций и решеточный вклад в приближении Дебая:

$$F = NJs^2m^2 - NkT \ln Z(x) + (1/2)K_0\omega^2 + P\omega + NkT [3 \ln(1 - \exp(-\Theta/T)) - D(\Theta/T)], \quad (1)$$

где $Z(x) = \text{sh}[(1 + (2s)^{-1}x)] / \text{sh}[(2s)^{-1}x]$, $x = [2\mu sH + 2s^2Jm]/kT$, $D(\Theta/T)$ — функция Дебая [5], m — приведенная намагниченность. Основной особенностью этой

модели является зависимость обменного интеграла J и температуры Дебая Θ от объема

$$J = J_0 + \gamma\omega + (1/6)\varepsilon\omega^2, \quad \Theta = \Theta_0 - \Gamma\omega. \quad (2)$$

Из выражений (1) и (2) при условиях $\partial F/\partial m = 0$, $\partial F/\partial \omega = 0$ получим равновесные уравнения состояния для магнитной и упругой подсистем

$$m = B_s(x), \quad x = (2\mu s H + 2s^2 J m)(kT)^{-1},$$

$$\omega = [Ns^2 m^2 \gamma + 3Nk(T/\Theta)\Gamma D(\Theta/T) - P]K_m^{-1},$$

$$K_m = K_0 - \varepsilon s^2 N m^2 / 3. \quad (3)$$

Здесь $B_s(x)$ — функция Бриллюэна для спина s ; k — постоянная Больцмана; μ — магнетон Бора; N — число атомов в единице объема; K_m и K_0 — модули всестороннего сжатия; P — давление; Γ и γ , ε — константа Грюнрайзена и постоянные магнитоупругого взаимодействия соответственно.

4. Результаты экспериментов и их обсуждение

На рис. 1 приведена зависимость постоянной решетки соединения $\text{La}(\text{Fe}_{0.86}\text{Si}_{0.14})_{13}$ от давления при комнатной температуре в интервале 0–180 kbar. Поскольку при давлениях, больших 20 kbar, на зависимости $a(P)$ наблюдается излом, величина модуля всестороннего сжатия K нашего образца была получена для интервала 0–20 kbar (см. вставку на рис. 1). Это значение оказалось равным $K = (1.25 \pm 0.10) \cdot 10^3 \text{ kbar} = (1.25 \pm 0.10) \cdot 10^{12} \text{ erg/cm}^3$. Отметим, что ранее в наших расчетах [3] принималось значение $K = 1.1 \cdot 10^{12} \text{ erg/cm}^3$, взятое из литературы для родственных соединений.

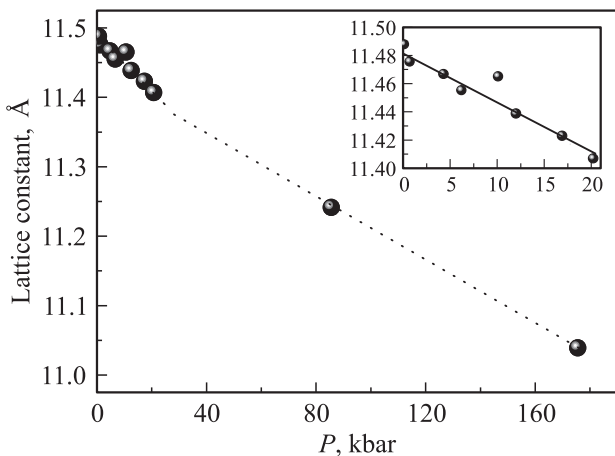


Рис. 1. Зависимость постоянной решетки a ферромагнетика $\text{La}(\text{Fe}_{0.86}\text{Si}_{0.14})_{13}$ от давления при комнатной температуре. На вставке показана линейная подгонка для определения численного значения модуля сжатия.

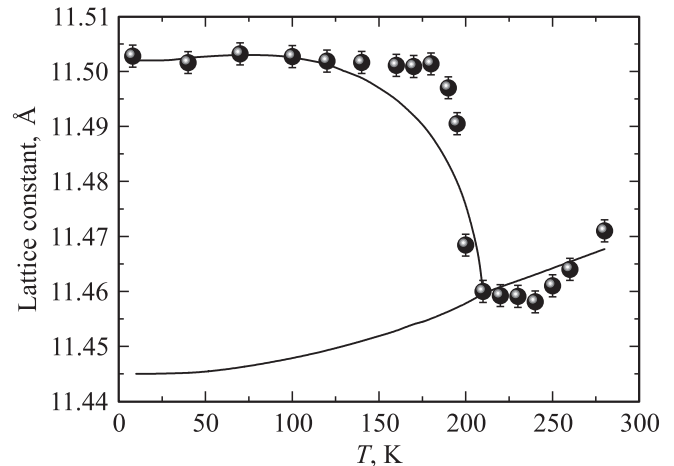


Рис. 2. Зависимость постоянной решетки образца $\text{La}(\text{Fe}_{0.86}\text{Si}_{0.14})_{13}$ от температуры для нулевого давления. Сплошные линии — расчет. Нижняя кривая — результат расчета $a(T)$ без учета спонтанной объемной магнитоэластики. Верхняя кривая — расчет полного изменения $a(T)$ по формулам (3), (4).

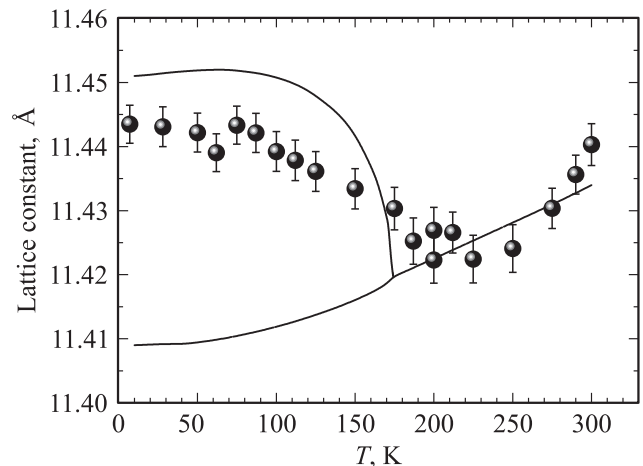


Рис. 3. Зависимость постоянной решетки образца $\text{La}(\text{Fe}_{0.86}\text{Si}_{0.14})_{13}$ от температуры при давлении 11.5 kbar. Сплошные линии — расчет. Расположение рассчитанных кривых такое же, как на рис. 2.

Измерения температурной зависимости постоянной решетки ферромагнетика $\text{La}(\text{Fe}_{0.86}\text{Si}_{0.14})_{13}$ при давлении 0 и 11.5 kbar показали, что при отсутствии давления на температурной зависимости параметра решетки наблюдается резкое уменьшение в интервале от 160 до 210 К (рис. 2), в то время как под давлением 11.5 kbar уменьшение происходит в интервале от 110 до 180 К (рис. 3). Это свидетельствует об изменении T_C под давлением от 210 до ~ 174 К. На рис. 2 и 3 сплошными линиями показан результат расчета температурной зависимости постоянных решеток.

Для наилучшей подгонки расчета к экспериментальным данным были выбраны следующие

численные значения параметров: $\gamma = 3.9 \cdot 10^{-13}$ erg, $\varepsilon = -1.5 \cdot 10^{-11}$ erg, $\Gamma = 485$ K, $\Theta = 300$ K. При расчете также приняты известные значения: $K_0 = 1.25 \cdot 10^{12}$ erg/cm³, $s = 1$, $N = 6.07 \cdot 10^{22}$ cm⁻³ и $T_C^0 = 194.5$ K, $T_C^0 = 2s(s+1)J_0/3k$ — температура Кюри без учета теплового расширения.

На рис. 2 приведены результаты расчета зависимости $a(T)$ для $P = 0$ с использованием формул (3). Из формул (3) для ω видно, что изменение объема можно представить в виде $\omega = \omega_m + \omega_L - P/K$, где ω_m (первое слагаемое в предпоследней формуле (3)) есть самопроизвольная объемная магнитострикция, а ω_L (второе слагаемое в формуле (3)) — изменение объема из-за теплового расширения в приближении Дебая–Грюнауизена, третье слагаемое учитывает влияние давления. В этом случае зависимость $a(T)$ кубического кристалла можно записать в виде

$$a(T) = a_P(0)(1 + \omega/3). \quad (4)$$

Здесь $a_P(0)$ — значение постоянной решетки, экстраполированное от экспериментальных значений $a(T)$ в парамагнитной области к 0 K. Эта экстраполяция проведена по формуле $a_P(T) = a_P(0)(1 + \omega_L/3)$.

Если для исходного образца принять численные значения параметров в формулах (3) такими, как указано выше, то получим $a_P(0) = 11.445$ Å и $\omega(0) = 3(a(0) - a_P(0))/a(0) = 1.5 \cdot 10^{-2}$. Последнее значение хорошо согласуется с данными дилатометрии [6]. Как видно из рис. 2, результат расчета удовлетворительно описывает экспериментальные данные.

На рис. 3 показан результат расчета температурной зависимости $a(T)$ при $P = 11.5$ kbar. Для образца под давлением численные значения расчетных параметров те же, что и для исходного. При этом для образца под давлением 11.5 kbar $a_P(0) = 11.404$ Å и $\omega(0) = 3(a(0) - a_P(0))/a(0) = 1.1 \cdot 10^{-2}$. Последнее значение $\omega(0)$ — величина спонтанной объемной магнитострикции для образца под давлением.

5. Заключение

Таким образом, мы установили, что давление приводит к уменьшению T_C и постоянной решетки, при этом также уменьшается величина самопроизвольной объемной магнитострикции. Результат расчета по формулам (2), (3) дает при давлении 11.5 kbar значение температуры Кюри, равное 174 K. Заметное расхождение результатов расчета постоянной решетки с экспериментом в области температур 10–150 K (рис. 3) связано, по-видимому, с тем, что при расчете для $P = 0$ и 11.5 kbar нами были приняты одни и те же значения параметров, входящих в расчетные формулы. Однако под давлением возможны изменения некоторых физических величин (магнитного момента, модуля сжатия и др.). Более детальное изучение причин указанного расхождения должно явиться предметом дальнейших исследований.

Также планируются исследования при более высоком давлении для обнаружения возможного изменения типа магнитного упорядочения.

Список литературы

- [1] A. Fujita, S. Fujieda, K. Fukamichi. Phys. Rev. B **65**, 014410 (2001).
- [2] A. Fujita, S. Fujieda, Y. Hasegava, K. Fukamichi. Phys. Rev. B **67**, 104416 (2003).
- [3] Э.З. Валиев. ЖЭТФ **135**, 314 (2009).
- [4] V.L. Aksenov, V.P. Glazkov, S.E. Kichanov, D.K. Pogoreliy, K.M. Podurets, V.A. Somenkov, B.N. Savenko, E.V. Yakovenko. Nucl. Inst. Meth. A **575**, 266 (2007).
- [5] Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. Статистическая физика. Наука, М. (1976). 583 с.
- [6] Э.З. Валиев, В.А. Казанцев. ЖЭТФ **140**, 1143 (2011).