

## Особенности теплоемкости квазиодномерного магнетика $\beta\text{-TeVO}_4$

Ю.А. Савина<sup>1</sup>, А.Н. Блудов<sup>1</sup>, В.А. Пащенко<sup>1</sup>, С.Л. Гнатченко<sup>1</sup>,  
Т. Zajarniuk<sup>2</sup>, М.У. Gutowska<sup>2</sup>, А. Szewczyk<sup>2</sup>, Р. Lemmens<sup>3</sup>, Н. Berger<sup>4</sup>

<sup>1</sup>Физико-технический институт низких температур им. Б.И. Веркина НАН Украины  
пр. Ленина, 47, г. Харьков, 61103, Украина  
E-mail: vpashchenko@ilt.kharkov.ua

<sup>2</sup>Institute of Physics of PAS, Warsaw, Poland

<sup>3</sup>Institute for Condensed Matter Physics, TU Braunschweig, Braunschweig D-38106, Germany

<sup>4</sup>Institute for Condensed Matter and Complex Systems, EPFL, Lausanne CH-1015, Switzerland

Статья поступила в редакцию 23 июля 2015 г., опубликована онлайн 25 сентября 2015 г.

Изучена температурная зависимость теплоемкости  $C_p(T)$  квазиодномерной магнитной системы  $\beta\text{-TeVO}_4$  в нулевом магнитном поле в температурном интервале  $0,1 \text{ K} \leq T \leq 300 \text{ K}$ . На зависимости  $C_p(T)$  обнаружены фазовые переходы при температурах 4,65, 3,28 и 2,32 К. Установлено, что при температуре  $T_N = 4,65 \text{ K}$  происходит фазовый переход из парамагнитного в антиферромагнитное состояние. Проведено теоретическое описание температурной зависимости теплоемкости.

Вивчено температурну залежність теплоємності  $C_p(T)$  квазіодновимірної магнітної системи  $\beta\text{-TeVO}_4$  в нульовому магнітному полі в температурному інтервалі  $0,1 \text{ K} \leq T \leq 300 \text{ K}$ . На залежності  $C_p(T)$  було виявлено фазові переходи при температурах 4,65, 3,28 та 2,32 К. Встановлено, що при температурі  $T_N = 4,65 \text{ K}$  відбувається фазовий перехід з парамагнітного в антиферомагнітний стан. Проведено теоретичний опис температурної залежності теплоємності.

PACS: 65.40.Ba Теплоемкость;

65.40.-b Тепловые свойства кристаллических твердых тел;

75.50.Ee Антиферромагнетики.

Ключевые слова: квазиодномерный магнетик, теплоемкость, температура Дебая, температура фазового перехода.

На протяжении последних десятилетий интерес к одномерным магнитным системам не ослабевает как у теоретиков, так и у экспериментаторов. Особенно привлекательными для исследователей объектами являются соединения, в которых магнитные цепочки построены из частиц со спином  $S = 1/2$  (например, ионы  $\text{V}^{4+}$  или  $\text{Cu}^{2+}$ ) [1–3]. Один из ярких представителей этого класса соединений —  $\beta\text{-TeVO}_4$ . Подробное описание кристаллической структуры данного монокристалла представлено в работе [4]. Ранее нами было проведено исследование магнитных свойств монокристалла  $\beta\text{-TeVO}_4$  в широком интервале температур 1,9–300 К в магнитных полях  $H \leq 0,1 \text{ Тл}$  [5]. При температурах ниже 5 К на температурных зависимостях магнитной восприимчивости обнаружены три аномалии ( $T = 4,65, 3,28$  и  $2,32 \text{ К}$ ).

Сделано предположение, что указанные особенности являются проявлениями магнитных фазовых переходов, происходящих в образце. При  $T_N = 4,65 \text{ К}$  происходит фазовый переход в упорядоченное антиферромагнитное (АФ) состояние  $\beta\text{-TeVO}_4$  с последующей модификацией АФ фазы при понижении температуры. Обнаруженные нами особенности на зависимостях  $\chi(T)$  имели достаточно слабую амплитуду, что может ставить под сомнение само их существование.

Исследование теплоемкости является наиболее информативной методикой для изучения фазовых переходов (магнитных, сверхпроводящих, структурных и т.д.) в материалах. Кроме того, в некоторых случаях, это единственный способ определения, являются ли наблюдаемые особенности физических свойств фазо-

выми переходами или нет. Изучение магнитного вклада в теплоемкость — это источник информации для дополнения результатов, полученных из измерений магнитной восприимчивости.

В настоящей работе представлены экспериментальные результаты исследования тепловых свойств монокристалла  $\beta\text{-TeVO}_4$  в температурном интервале  $0,1 \text{ K} \leq T \leq 300 \text{ K}$  в нулевом магнитном поле на установке PPMS (Quantum Design) (Польша).

На рис. 1 показана температурная зависимость теплоемкости  $\beta\text{-TeVO}_4$  в нулевом магнитном поле [6]. Как видно на рисунке, зависимость  $C_P(T)$  носит монотонный характер и не демонстрирует каких-либо аномалий в высокотемпературной области ( $T > 30 \text{ K}$ , см. вставку рис. 1). В низкотемпературной области на температурной зависимости теплоемкости наблюдается четкая  $\lambda$  аномалия при температуре  $T = 4,65 \text{ K}$ , что свидетельствует о переходе системы из парамагнитного в магнитоупорядоченное состояние, и два небольших пика при температурах  $3,2$  и  $2,3 \text{ K}$ . В отличие от температурных зависимостей магнитной восприимчивости все три особенности хорошо определяются и их температурные положения подтверждают полученные ранее данные.

При температуре около  $11 \text{ K}$  на температурной зависимости теплоемкости существует точка перегиба (вторая производная теплоемкости по температуре обращается в нуль). То есть при уменьшении температуры скорость изменения теплоемкости (первая производная по температуре) уменьшается, достигая своего минимального значения при  $\sim 11 \text{ K}$ , а затем увеличивается вплоть до температур, близких к температуре первого фазового перехода. Такой перегиб на температурной зависимости теплоемкости не может быть обеспечен только вкладом решеточной составляющей теплоемкости в этой области температур. Кроме того, следует помнить, что магнитный вклад представляет

собой широкий асимметричный максимум, температурное положение которого связано с величиной обмена в однородной АФ гейзенберговской цепочке ( $S = 1/2$ ) следующим соотношением [7]:

$$T_{\max} = 0,48 \cdot |J_{1D}| / k_B, \quad (1)$$

где  $J_{1D}$  — константа АФ обменного взаимодействия,  $k_B$  — постоянная Больцмана. На суммарной теплоемкости максимума как такового нет, однако он проявляется в виде точки перегиба в окрестности температуры максимума. Подставив температуру перегиба в это соотношение, приближенно оценим величину обмена в цепочке:  $J_{1D} = (22 \pm 2) \text{ K}$ .

Полную теплоемкость системы  $\beta\text{-TeVO}_4$  можно описать суммой двух вкладов: решеточного  $C_{\text{latt}}(T)$  и магнитного  $C_{\text{mag}}(T)$ , связанного со спиновой системой.

$$C_P(T, H) = C_{\text{latt}}(T) + C_{\text{mag}}(T, H). \quad (2)$$

Первый вклад не зависит от магнитного поля и доминирует при высоких температурах, тогда как второй вклад зависит как от температуры, так и от магнитного поля и становится существенным при температурах  $\sim 1/2J/k_B$ . Таким образом, надежная оценка решеточной теплоемкости при низких температурах ( $< 30 \text{ K}$ ) имеет решающее значение для определения магнитного вклада. Для описания теплоемкости решетки мы применили модель Дебая [8]:

$$C_{\text{latt}}(T) = 9nN_A k_B \left( \frac{T}{\theta_D} \right)^3 \int_0^{\theta_D/T} \frac{y^4 e^y}{(e^y - 1)^2} dy, \quad (3)$$

где  $n$  — число атомов на формульную единицу,  $N_A$  — число Авогадро,  $\theta_D$  — температура Дебая.

Для расчета магнитного вклада в теплоемкость  $C_{\text{mag}}(T)$  была использована модель, предложенная Джонстоном с соавторами в работе [7] для одномерной гейзенберговской антиферромагнитной цепочки спинов  $S = 1/2$ . Наилучшее описание экспериментальной зависимости  $C_P(T)$  получено для параметров  $\theta_D = 165 \text{ K}$  и  $J/k_B = 20,5 \text{ K}$ . Результат теоретического описания теплоемкости в рамках предложенной модели показан на рис. 2. Экспериментальные данные — точки на графике, сплошная линия — теоретический расчет, пунктирная и штрихпунктирная линии — решеточный и магнитный вклады в теплоемкость. Как видно на рисунке, получено хорошее описание экспериментальных данных в рамках простой модели для одномерной цепочки спинов  $S = 1/2$ . Полученные параметры хорошо согласуются с результатами, опубликованными в работе [9], в которой для описания температурной зависимости  $C_P(T)$  в области температур до  $30 \text{ K}$  использована более сложная модель с учетом двух констант обменного взаимодействия.

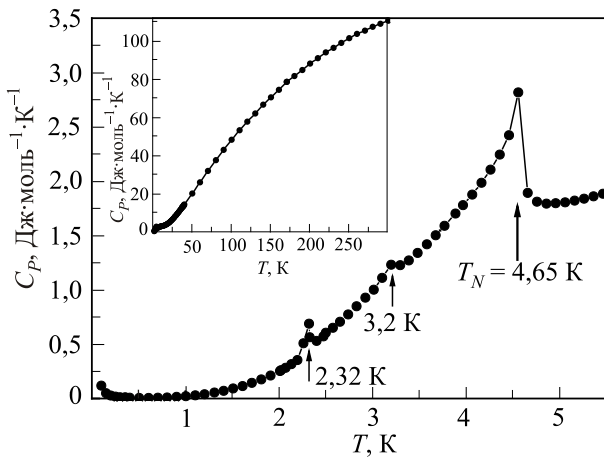


Рис. 1. Низкотемпературные особенности теплоемкости монокристалла  $\beta\text{-TeVO}_4$ . На вставке показана температурная зависимость теплоемкости  $\beta\text{-TeVO}_4$  монокристалла в нулевом магнитном поле в температурном интервале от 0 до  $300 \text{ K}$ .

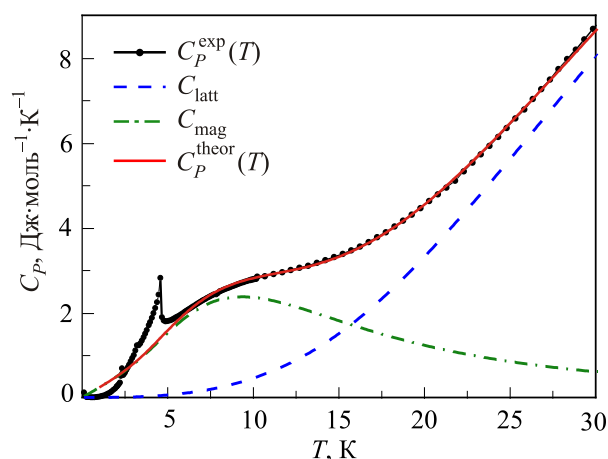


Рис. 2. (Онлайн в цвете) Температурная зависимость теплоемкости  $\beta$ -TeVO<sub>4</sub> в нулевом магнитном поле в интервале температур до 30 К. Черные кружки — экспериментальные точки, пунктир — решеточный вклад в теплоемкость, штрихпунктир — магнитный вклад в теплоемкость, сплошная линия — теоретическое описание теплоемкости в рамках одномерной модели.

Таким образом, результаты исследования температурной зависимости теплоемкости  $\beta$ -TeVO<sub>4</sub> полностью подтвердили, что наблюдаемые на температурных зависимостях магнитной восприимчивости особенности являются фазовыми переходами при температурах 4,65, 3,28 и 2,32 К. В рамках предложенной модели получено удовлетворительное описание экспериментальных данных. Определенная константа обменного взаимодействия  $J/k_B = 20,5$  К близка к значению  $J/k_B = 21,4$  К, полученному из анализа магнитных экспериментов.

Авторы выражают благодарность В.И. Фомину за плодотворное обсуждение экспериментальных результатов и полезные советы.

1. S. Das, A. Niazi, Y. Mudryk, V.K. Pecharsky, and D.C. Johnston, *Phys. Rev. B* **81**, 104432 (2010).
2. Y. Singh, R. McCallum, and D.C. Johnston, *Phys. Rev. B* **76**, 174402 (2007).
3. N. Maeshima, M. Hagiwara, Y. Narumi, K. Kindo, T.C. Kobayashi, and K. Okunishi, *J. Phys.: Condens. Matter* **15**, 3607 (2003).

4. G. Meunier, J. Darriet, and J. Galy, *J. Solid State Chem.* **6**, 67 (1973).
5. Yu. Savina, O. Bludov, V. Pashchenko, S. Gnatchenko, P. Lemmens, and H. Berger, *Phys. Rev. B* **84**, 104447 (2011).
6. O. Bludov, *Specific Heat of Quasi-one-Dimensional Antiferromagnet  $\beta$ -TeVO<sub>4</sub>* /O. Bludov, Yu. Savina, V. Pashchenko, S. Gnatchenko, A. Szewczyk, P. Lemmens, H. Berger // Abstract on International Conference for Young Scientists «Low Temperature Physics» ICYS-LTP-2011, 2011.-p.82
7. D.C. Johnston, R.K. Kremer, M. Troyer, X. Wang, A. Klümper, S.L. Bud'ko, A.F. Panchula, and P.C. Canfield, *Phys. Rev. B* **61**, 9558 (2000).
8. P. Debye, *Ann. Phys.* **334**, 789 (1912).
9. M. Pregelj, A. Zorko, O. Zaharko, H. Nojiri, H. Berger, L.C. Chapon, and D. Arçon, *Nat. Commun.* **6**, 7255 (2015).

### Heat capacity features of quasi-one-dimensional magnet $\beta$ -TeVO<sub>4</sub>

Yu.O. Savina, O.M. Bludov, V.A. Pashchenko, S.L. Gnatchenko, T. Zajarniuk, M.U. Gutowska, A. Szewczyk, P. Lemmens, and H. Berger

Temperature dependence of specific heat  $C_p(T)$  of quasi-one-dimensional magnetic system  $\beta$ -TeVO<sub>4</sub> at zero magnetic field in the temperature range  $0.1 \text{ K} \leq T \leq 300 \text{ K}$  is studied. The phase transitions on dependence  $C_p(T)$  at temperatures 4.65, 3.28 and 2.32 K have been detected. It was found, the phase transition from the paramagnetic to the antiferromagnetic state occurs at  $T_N = 4.65$  K. The theoretical description of the temperature dependence of the specific heat has been obtained.

PACS: 65.40.Ba Heat capacity;  
**65.40.-b** Thermal properties of crystalline solids;  
 75.50.Ee Antiferromagnetics.

Keywords: quasi-one-dimensional magnet, heat capacity, Debye temperature, phase transition temperature.