

PACS: 71.20.Be, 75.50.Ee, 75.50.Gg, 75.10.Lp, 75.30.Kz

Б.М. Тодрис, Е.А. Дворников, Д.В. Варюхин, В.И. Вальков

## ОСОБЕННОСТИ НАМАГНИЧИВАНИЯ СПИРАЛЬНОЙ СТРУКТУРЫ В MnCoSi ПОД ДАВЛЕНИЕМ

Донецкий физико-технический институт им. А.А. Галкина НАН Украины  
ул. Р. Люксембург, 72, г. Донецк, 83114, Украина  
E-mail: [valkov@dpms.fti.ac.donetsk.ua](mailto:valkov@dpms.fti.ac.donetsk.ua)

Статья поступила в редакцию 27 июля 2010 года

*Исследовано влияние давления, температуры и сильного импульсного магнитного поля на устойчивость низкотемпературной спиральной фазы (SS) и особенности индуцированного магнитным полем превращения между спиральным и ферромагнитным (Fm) состояниями в магнитокалорическом сплаве MnCoSi. Рассчитаны из первых принципов электронные структуры и магнитные характеристики этого сплава. На базе полученных результатов предложен механизм переходов порядок-порядок SS–SS<sub>1</sub> и SS–Fm в рассматриваемом силициде.*

**Ключевые слова:** индуцированные фазовые переходы, магнитные фазовые превращения под давлением, плотность электронных состояний

### Введение

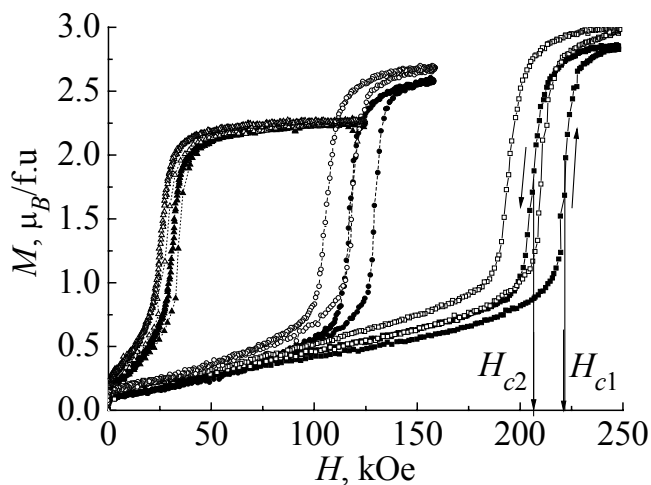
Исследование процессов намагничивания системы Mn<sub>2-x</sub>Co<sub>x</sub>Si при различных внешних воздействиях не только полезно с точки зрения оптимизации технических характеристик рабочего тела в магнитокалорических устройствах [1], но и актуально для физики сильнокоррелированных систем [2], допускающих коллективизацию носителей магнетизма на фоне проявления существенной индивидуальности локальных магнитных характеристик 3d-ионов системы. В таких системах можно ожидать противоположные тенденции в барическом изменении магнитных свойств, обусловленных локализованными корреляциями электронов на атомных центрах (создающих индивидуальные магнитные моменты Mn и Co [2]) и пространственной коллективизацией этих электронов (приводящей к сосуществующим типам магнитного порядка в системе [3]).

### Экспериментальные методики и основные результаты

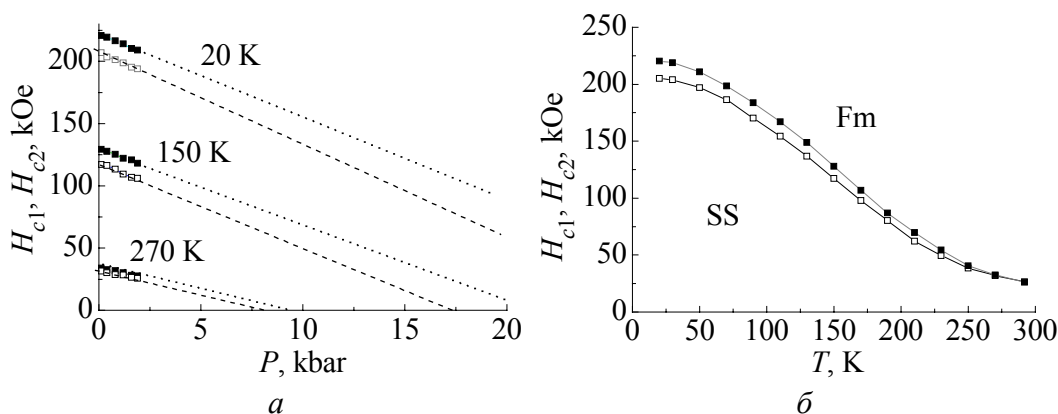
Полевые зависимости намагниченности MnCoSi измеряли с помощью индукционного магнитометра, аналогичного описанному в [4]. Образец с

микросолеоидом находился внутри контейнера высокого давления, заполненного газообразным гелием, сжатие которого до 2 kbar осуществлялось газовым компрессором. Понижение температуры контейнера от 300 до 17 К происходило в выносной ячейке гелиевого детандера. Максимальное значение напряженности магнитного поля в данной работе увеличено до 250 kOe по сравнению с аналогичными исследованиями систем  $Mn_{2-x}Co_xSi$  ( $0 \leq x \leq 0.2$ ) и  $MnCo_{1-y}Fe_ySi$  ( $0 \leq y \leq 0.2$ ) в [4]. Это позволило наблюдать индуцированные магнитным полем переходы порядок–порядок при существенно более низких температурах и значительно уменьшить влияние температурных флуктуаций параметров магнитного порядка на процессы барического изменения намагниченности насыщения индуцированных состояний.

Прежде чем перейти к основным результатам, полученным в настоящей работе, напомним, что низкотемпературное антиферромагнитное состояние в  $MnCoSi$  с орторомбической кристаллической структурой  $Co_2P$  ( $P_{nma}$ ) является длиннопериодической спиральной структурой типа SS с вектором распространения вдоль оси  $c$  [5]. Температура  $T$ , давление  $P$  и магнитное поле  $H$  стимулируют переход первого рода из антиферромагнитного спирального состояния SS в состояние с ферромагнитной компонентой магнитного момента Fm [3]. При изменении температуры переход порядок–порядок в  $MnCoSi$  наблюдается при достижении критического значения  $T_k$ . В области стабильности антиферромагнитного состояния ( $T < T_k$ ) воздействие сильного импульсного магнитного поля вызывает индуцированные переходы первого рода  $AF \rightarrow Fm$  при  $H = H_{c1}$ , что проявляется как резкое возрастание намагниченности  $M$  в относительно узком диапазоне напряженности магнитных полей  $\Delta H$  на фоне плавного нарастания ее в антиферромагнитном состоянии при  $H < H_{c1}$  (рис. 1). Последующее уплачивание полевой зависимости  $M(H)$  в области напряженности магнитных полей, превышающих критические значения ( $H > H_{c1}(T, P) > H_{c2}(T, P)$ ), соответствует стабилизации новой фазы, индуцированной  $H$ . При этом, как видно из рисунка,  $T$  и  $P$  по-разному влияют на намагниченность насыщения  $M_S$  этой фазы. Возрастание температуры



**Рис. 1.** Обратимые индуцированные магнитным полем переходы порядок–порядок в  $MnCoSi$  при различных начальных температурах, К:  $\square$ ,  $\blacksquare$  – 20;  $\circ$ ,  $\bullet$  – 150;  $\triangle$ ,  $\blacktriangle$  – 270. Зачерненные символы соответствуют атмосферному давлению, незачерненные – давлению в 1.9 kbar;  $\mu_F = 3.25\mu_B$  соответствует рассчитанному из первых принципов значению момента чистой Fm-фазы [4]

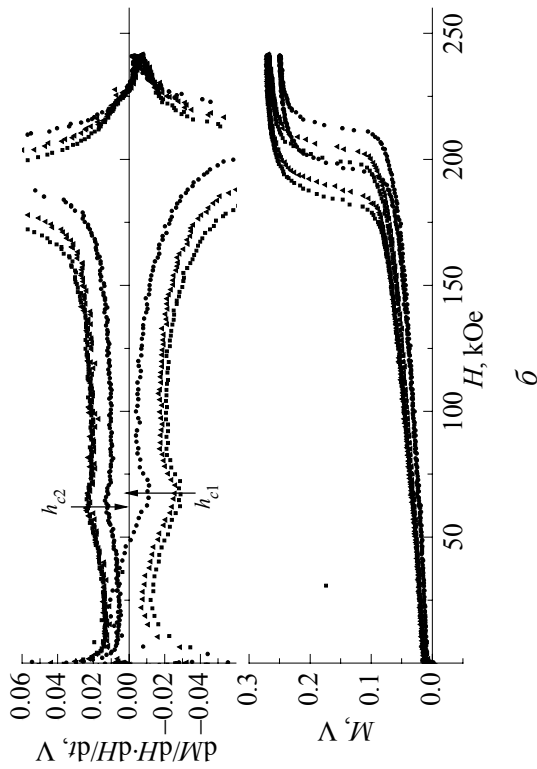


**Рис. 2.** Зависимости критических полей обратимых индуцированных магнитным полем переходов от давления (*a*) и температуры (*б*). Зачерненные символы – критические поля  $H_{c1}$  перехода в фазу Fm; незачерненные – поля  $H_{c2}$  возвращения в спиральную фазу

уменьшает не только значение первого  $H_{c1}$  и второго  $H_{c2} < H_{c1}$  критических полей, но и намагниченности насыщения индуцированной фазы (рис. 1 и 2). Напротив, увеличение давления наряду со снижением  $H_{c1}$  и  $H_{c2}$  сопровождается ростом  $M_S$  (рис. 1 и 3).

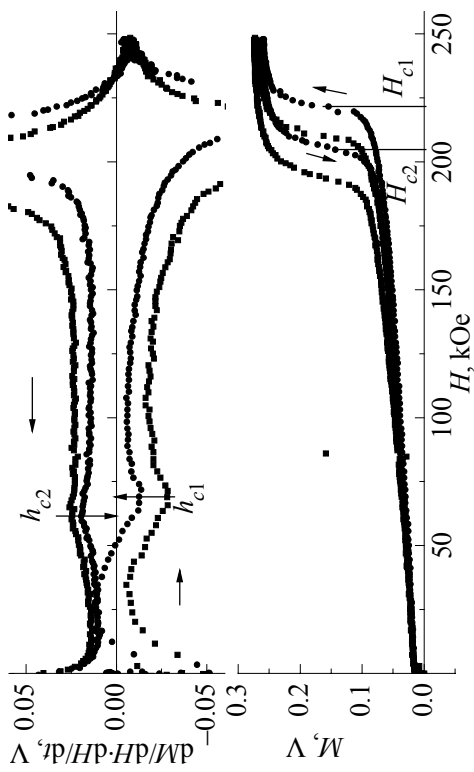
Как уже отмечалось в [4], индуцированная магнитным полем фаза может не обладать традиционной ферромагнитной структурой, а содержать антиферромагнитные компоненты. Примером таких структур могут быть модулированные структуры типа ферромагнитной (FS) или веерной ( $\tilde{S}\tilde{S}$ ) спирали [6]. Спонтанное существование и стабилизация в магнитном поле одной из таких структур (FS) применительно к MnCoSi рассмотрено нами в [7] в рамках однозонной модели, учитывающей локальное обменное взаимодействие коллективизированных  $d$ -электронов на магнитоактивном центре. Модельный подход [7], использующий плотность состояний со структурой, подобной структуре плотности электронных состояний немагнитной фазы, рассчитанной из первых принципов для MnCoSi, позволил показать, что в системе коллективизированных  $d$ -электронов может возникать неколлинеарная магнитная структура типа FS. При этом ее барические свойства согласуются со свойствами индуцированной фазы MnCoSi. Такой однозонный подход предполагает, что учет особенностей магнитной структуры реального многозонного магнетика может быть смоделирован путем использования модельной плотности электронных состояний немагнитной фазы с множеством структурных вкладов, характерных для многозонной системы  $d$ -электронов. Это приводит к качественно верному описанию поведения общей намагниченности при магнитокалорических индуцированных переходах SS–FS.

Однако более тонкие эффекты, как следует из результатов настоящей работы, в однозонном описании не могут быть интерпретированы даже на качественном уровне. Один из этих эффектов обнаружен вдали от основного перехода SS–FS ( $H \approx h_c < H_c$ ) в полях порядка 50–75 kOe. Здесь наблюдались

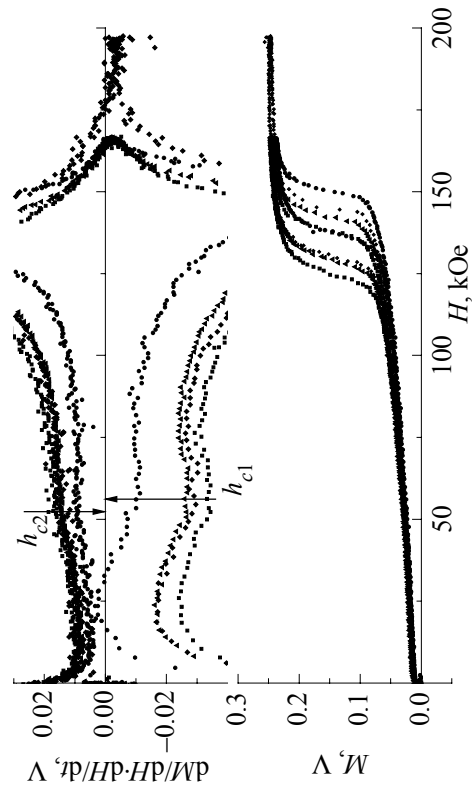


б

Рис. 3. Последовательность индуцированных переходов SS-SS<sub>1</sub> и SS-FS при температурах 20 (а), 50 (б) и 130 К (в) и различных давлениях  $P$ , кбар: ■ – 1.9, ● – 0.1, ▲ – 1.2, ◆ – 0.8. Слабые пики на изобарических полевых зависимостях производной (вверху) фиксируют переходы SS-SS<sub>1</sub>

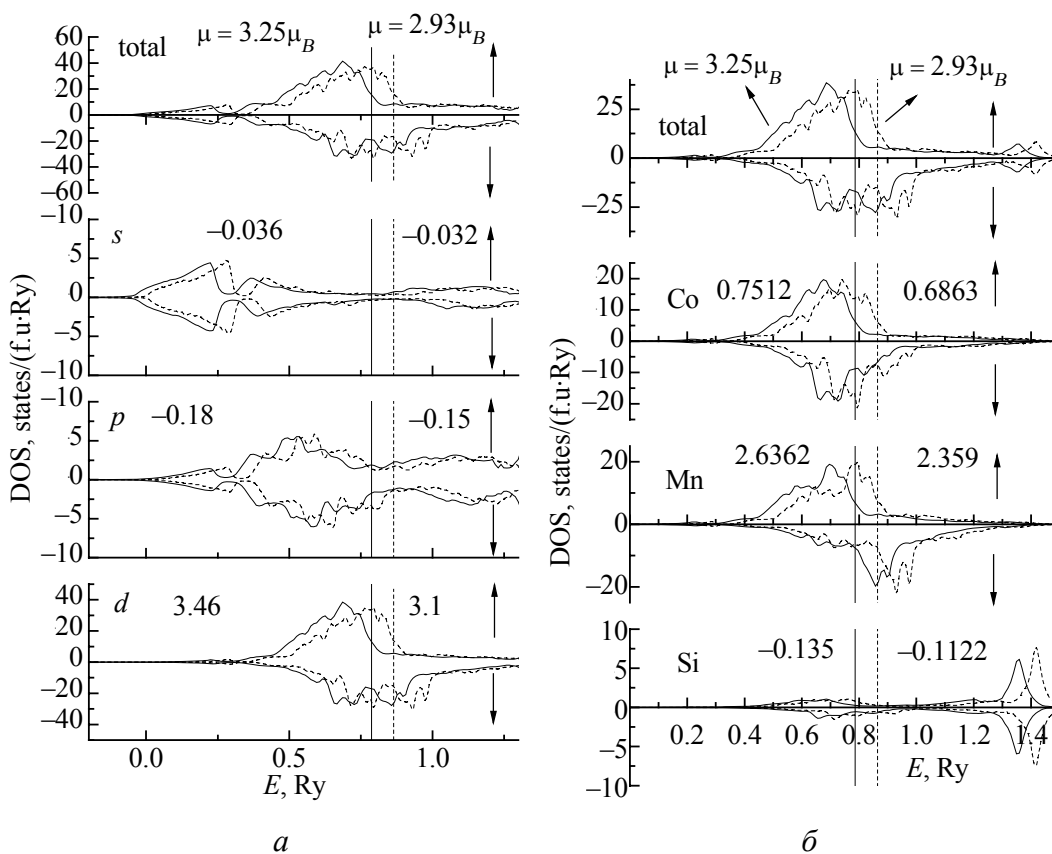


а



в

аномалии полевых зависимостей, связанные с намагничиванием спиральной фазы. Такие относительно слабые аномальные изменения удалось зафиксировать только при измерениях производной намагниченности по полю  $dM/dH$  при температурах  $T \leq 250$  К (рис. 3). При более высоких температурах эти слабые аномалии сливаются с мощными скачками намагниченности, характерными для переходов SS–FS, поскольку  $H_c \leq h_c$  при  $T \geq 250$  К. Наличие полевого гистерезиса  $\Delta h_c$  может свидетельствовать, что наблюдаемые пики на полевой зависимости  $dM/dH$  сопутствуют фазовому переходу, стимулированному магнитным полем. Данный переход отражает относительную индивидуальность спиралей, образованных магнитными моментами марганца и кобальта. Устойчивость этого перехода по отношению к давлению и температуре может свидетельствовать об устойчивом различии индивидуальных зонных характеристик Mn и Co, несмотря на вырождение по энергии парциальных плотностей электронных состояний (рис. 4). Модельный учет подобной индивидуальности в поведении спирального состояния возможен только в двухзонной модели.



**Рис. 4.** Изменение парциальных плотностей состояний (DOS) при всестороннем сжатии MnCoSi. Числами обозначены парциальные вклады в магнитный момент на формульную единицу для нормальной (сплошные линии) и сжатой ( $\Delta V/V = 0.08$ , штриховые) ячеек. Уровни Ферми обозначены вертикальными линиями [4]

### Заключение

В процессе измерений MnCoSi в импульсных магнитных полях до 250 кОе в диапазоне гидростатических давлений  $0 \leq P \leq 2$  kbar было обнаружено два участка с особенностями изменения намагниченности от поля и ее производной по полю.

1. Первую – низкополевую особенность ( $H \approx h_c < H_c$ ) можно рассматривать как индуцированный переход порядок–порядок, не изменяющий спиральный характер основного состояния MnCoSi.

2. Вторая особенность в полях  $H \approx H_c$  связана с индуцированным переходом, результатом которого является появление ферромагнитной компоненты в спиральном состоянии.

3. Наличие низкополевой особенности косвенно подтверждает относительную индивидуальность спиралей, образованных магнитными моментами марганца и кобальта.

4. Возникновение вырожденных по энергии  $d$ -зон марганца и кобальта в результате коллективизации  $d$ -электронных состояний не приводит к исчезновению индивидуальных проявлений их локальных магнитных характеристик.

Работа выполнена при финансовой поддержке ГФФИ Украины, проект № 29.1/016

1. *N.T. Trung, V. Biharie, L. Zhang et al.*, Appl. Phys. Lett. **96**, 162507 (2010).
2. *Ю.А. Изюмов, Э.З. Курмаев*, УФН **178**, 25 (2008).
3. *M. Isoda*, J. Magn. Magn. Mater. **27**, 236 (1982).
4. *В.И. Вальков, И.Ф. Грибанов, Е.А. Дворников, А.П. Сиваченко, Б.М. Тодрис, А.В. Головчан, В.И. Митюк*, ФТВД **19**, № 3, 36 (2009).
5. *S. Nizol, H. Binczycka, A. Szytula, J. Todorovic, R. Fruchart, J.P. Senateur, D. Fruchart*, Phys. Status Solidi **A45**, 591 (1978).
6. *Ю.А. Изюмов*, Дифракция нейтронов на длиннопериодических структурах, Энергоиздат, Москва (1987).
7. *В.И. Вальков, А.В. Головчан, Е.А. Дворников, Б.М. Тодрис*, ФНТ (2010) в печати.

*Б.М. Тодрис, Є.О. Дворніков, Д.В. Варюхін, В.І. Вальков*

### ОСОБЛИВОСТІ НАМАГНІЧУВАННЯ СПІРАЛЬНОЇ СТРУКТУРИ У MnCoSi ПІД ТИСКОМ

Досліджено вплив тиску, температури і сильного імпульсного магнітного поля на стійкість низькотемпературної спіральної фази (SS) та особливості індукованого магнітним полем перетворення між спіральним і ферромагнітним (Fm) станами у магнітокалоричному сплаві MnCoSi. Розраховано з перших принципів електронні структури і магнітні характеристики цього сплаву. На базі отриманих результатів

запропоновано механізм переходів порядок–порядок SS–SS<sub>1</sub> і SS–Fm у розглянутому силіциді.

**Ключові слова:** індукційовані фазові переходи, магнітні фазові перетворення під тиском, щільність електронних станів

*B.M. Todris, E.A. Dvornikov, D.V. Varyukhin, V.I. Valkov*

## PECULIARITIES OF MnCoSi SPIRAL STRUCTURE MAGNETIZATION UNDER PRESSURE

The impact of pressure, temperature and high pulsed magnetic field on low-temperature spiral phase stability and peculiarities of magnetic-field induced transformation between spiral (SS) and ferromagnetic (Fm) states in magnetocaloric MnCoSi alloy are investigated. *Ab initio* calculation of electronic structure and magnetic characteristics of this alloy is made. Based on obtained results, the mechanism of order–order SS–SS<sub>1</sub> and SS–Fm transitions in the examined silicide is proposed.

**Keywords:** induced phase transformations, magnetic phase transformation under pressure, density of electronic states

**Fig. 1.** Reversible magnetic-field induced order-order transitions in MnCoSi with different initial temperatures, K: □, ■ – 20; ○, ● – 150; △, ▲ – 270. Solid symbols correspond to atmospheric pressure, open – to a pressure of 1.9 kbar;  $\mu_F = 3.25\mu_B$  corresponds to *ab initio* calculated moment of net FM phase [4]

**Fig. 2.** Dependence of critical fields of reversible magnetic-field induced transitions on pressure (*a*) and temperature (*b*). Solid symbols – critical fields  $H_{c1}$  of transition to Fm phase; open – fields  $H_{c2}$  of return to spiral phase

**Fig. 3.** Sequence of transitions SS–SS<sub>1</sub> and SS–FS with temperatures 20 (*a*), 50 (*b*) и 130 K (*c*) and different pressures *P*, kbar: ■ – 1.9, ● – 0.1, ▲ – 1.2, ◆ – 0.8. Weak peaks on isobaric field dependences of derivative (on the top) fix the SS–SS<sub>1</sub> transitions

**Fig. 4.** Changes in partial densities of states (DOS) with uniform compression of MnCoSi. The partial contributions to the magnetic moments per formula unit for normal (solid lines) and compressed ( $\Delta V/V = 0.08$ , dotted lines) cells are signed by numbers. The Fermi levels are denoted by vertical lines [4]