

CeFe<sub>2-x</sub>In<sub>x</sub> 合金磁性研究与 CeFe<sub>1.95</sub>In<sub>0.05</sub> 合金磁相变临界参数分析

陈湘 赵明骅

Magnetic property of CeFe<sub>2-x</sub>In<sub>x</sub> alloys and critical parameters of magnetic phase transition of CeFe<sub>1.95</sub>In<sub>0.05</sub> alloy

Chen Xiang Zhao Ming-Hua

引用信息 Citation: [Acta Physica Sinica](#), **67**, 197501 (2018) DOI: 10.7498/aps.67.20180815

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.67.20180815>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2018/V67/I19>

---

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

[利用 Pr<sub>70</sub>Cu<sub>30</sub> 晶界扩散改善烧结钕铁硼废料矫顽力的研究](#)

Coercivity enhancement of waste Nd-Fe-B magnets by Pr<sub>70</sub>Cu<sub>30</sub> grain boundary diffusion process  
物理学报.2018, 67(6): 067502 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.67.20172551>

[La\(Fe, Si\)<sub>13</sub> 化合物的居里温度机制](#)

Curie temperature mechanism in La(Fe, Si)<sub>13</sub> compound

物理学报.2014, 63(12): 127501 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.127501>

[Pr 掺杂 DyFeO<sub>3</sub> 体系的自旋重取向相变、晶格畸变与 Raman 光谱研究](#)

The study of Raman spectrum, distortion of lattice and spin reorientation phase transition on Pr doped DyFeO<sub>3</sub> system

物理学报.2013, 62(14): 147601 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.147601>

[B 元素添加对 Co-Zr-Mo 合金薄带的磁性能及结构的影响](#)

Effects of B additive on structure and magnetic properties of Co-Zr-Mo alloys

物理学报.2012, 61(20): 207501 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.207501>

# CeFe<sub>2-x</sub>In<sub>x</sub>合金磁性研究与CeFe<sub>1.95</sub>In<sub>0.05</sub>合金磁相变临界参数分析\*

陈湘<sup>1)2)†</sup> 赵明骅<sup>1)</sup>

1) (内江师范学院物理与电子信息工程学院, 内江 641112)

2) (The Ames Laboratory, U.S. Department of Energy, Iowa State University, Ames, Iowa 50011-3020, U.S.A.)

(2018年4月26日收到; 2018年8月3日收到修改稿)

通过等温磁化曲线和等磁场变温曲线测量与标度理论, 系统研究了CeFe<sub>2-x</sub>In<sub>x</sub>合金的磁性和CeFe<sub>1.95</sub>In<sub>0.05</sub>合金的磁相变临界参数. 结果表明: 用2.5 at.%的铟替代CeFe<sub>2</sub>合金中的铁并不能使合金中的反铁磁态在低温下完全稳定, 低场下在2—80 K均能观察到反铁磁相振荡; CeFe<sub>2</sub>与CeFe<sub>1.95</sub>In<sub>0.05</sub>合金的顺磁-铁磁二级相变居里温度均在230 K附近; 在0—5 T磁场范围内, CeFe<sub>1.95</sub>In<sub>0.05</sub>合金居里温度处的最大磁熵变为3.13 J/(kg·K), 相对制冷量为151.3 J/kg. 通过不同方法得到的具有高度自洽性的磁相变标度临界参数均表明CeFe<sub>1.95</sub>In<sub>0.05</sub>合金的磁相互作用可以用基于短程相互作用的3D-Ising模型来描述.

**关键词:** CeFe<sub>1.95</sub>In<sub>0.05</sub>合金, 磁热性能, 标度理论, 临界参数

**PACS:** 75.47.Np, 76.30.Kg, 75.40.-s, 75.30.Sg

**DOI:** 10.7498/aps.67.20180815

## 1 引言

在绝大多数Laves相结构的 $REFe_2$  ( $RE =$  稀土)合金中, 稀土的4f电子和铁的3d电子分别属于局域电子和巡游电子. 在4f-3d, 3d-3d, 4f-4f相互作用中, 3d-3d的相互作用明显强于其他形式的相互作用, 这导致多数 $REFe_2$ 为伴随高居里温度( $T_C$ )的铁磁态<sup>[1,2]</sup>, 如545 K (YFe<sub>2</sub>), 525 K (PrFe<sub>2</sub>), 305 K (NdFe<sub>2</sub>), 425 K (SmFe<sub>2</sub>), 782 K (GdFe<sub>2</sub>), 694 K (TbFe<sub>2</sub>), 638 K (DyFe<sub>2</sub>), 593 K (HoFe<sub>2</sub>), 574 K (ErFe<sub>2</sub>)等. 但对于CeFe<sub>2</sub>合金而言, Eriksson等<sup>[3]</sup>研究表明Ce原子的4f电子不同于其他 $REFe_2$ 合金中的 $RE$ 元素4f局域电子, 而属于巡游电子, 这导致很多有趣的磁现象. 首先, CeFe<sub>2</sub>合金展现出低居里温度( $\approx 230$  K)和低饱和磁化强度 $M_s$  ( $\approx 2.3 \mu_B/f.u.$ )<sup>[3,4]</sup>. 其次, CeFe<sub>2</sub>合金不完全处于铁磁态, 在低温状态下( $\leq 100$  K),

合金中出现反铁磁态(AFM)振荡<sup>[5]</sup>, 即铁磁态与反铁磁态共存, Ce-4f电子和Fe-3d电子轨道杂化被认为是造成这种现象的主要原因<sup>[3]</sup>. 中子衍射表明Ce 4f-Fe 3d轨道杂化效应使得自旋波强度降低, 并导致合金出现AFM自旋振荡<sup>[6,7]</sup>. 当通过CeFe<sub>2</sub>合金中参杂而使电子浓度微量改变时, AFM可以从振荡状态过度到稳定状态. 目前的研究表明, 用其他稀土替代CeFe<sub>2</sub>合金中的Ce时, 并不能使Ce 4f-Fe 3d相互作用加强, 而出现低温反铁磁态稳定的现象; 相反会使Fe 3d-Fe 3d相互作用加强, 导致合金居里温度升高. 如用5%和10%的Gd以及10%的Ho替代Ce时, 合金的居里温度可提高至267—318 K<sup>[8]</sup>, 且饱和磁化强度 $M_s$ 下降. 在(Ce<sub>1-y</sub>Sc<sub>y</sub>)Fe<sub>2</sub> ( $y \leq 0.10$ )合金中, 随Sc含量增加,  $T_C$ 从230 K (CeFe<sub>2</sub>)可增加至270 K (Ce<sub>0.90</sub>Sc<sub>0.10</sub>Fe<sub>2</sub>), 低温 $M_s$ 也逐渐增加, 合金中仍能观察到AFM应振荡现象<sup>[9]</sup>. 但用少量的Al, Mn, Co, Ni, Ru, Ir, Re, Os元素替代Fe原子时, 会使合

\* 四川省科技厅科研基金(批准号: 2017JY0181)和四川省教育厅科研基金(批准号: 16ZB0301)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: gxucx@163.com

金中 Ce 4f-Fe 3d 轨道杂化相互作用强于 Fe 3d-Fe 3d 的交换相互作用, 低温下反铁磁态得到稳定, 即低温时合金处于反铁磁状态<sup>[9-21]</sup>. 如在 Ce(Fe<sub>1-x</sub>Co<sub>x</sub>)<sub>2</sub> (0.05 ≤ x ≤ 0.1) 合金中, 其磁状态为反铁磁(低温)-铁磁态(低于 T<sub>C</sub>)-顺磁态(高于 T<sub>C</sub>), 且随 Co 含量增加 AFM-FM 相变温度单调增加, 而 FM-PM 相变温度降低<sup>[9]</sup>. Ce(Fe<sub>0.96</sub>Al<sub>0.04</sub>)<sub>2</sub> 合金的 T<sub>C</sub> 和 T<sub>AFM-FM</sub> 分别为 200 K 和 95 K<sup>[11]</sup>. 在 Ce(Fe, 5% Ir)<sub>2</sub> 和 Ce(Fe, 7% Ru)<sub>2</sub> 合金中, T<sub>C</sub> 分别为 185 K 和 165 K, T<sub>AFM-FM</sub> 分别为 135 K 和 125 K<sup>[16]</sup>. 另外, Haldar 等<sup>[22-24]</sup> 研究发现超过某一临界量的 IIIA 族元素 Ga 和 IV 族元素 Si 替代 CeFe<sub>2</sub> 中的 Fe 时, 也观察到现象低温反铁磁态稳定的现象, Ce(Fe<sub>1-x</sub>Ga<sub>x</sub>/Si)<sub>2</sub> 合金的临界值分别为 x = 0.025 和 x = 0.05.

为进一步探究其他 IIIA 族元素替代 CeFe<sub>2</sub> 合金中的 Fe 时, 对 Fe 3d-Fe 3d 和 Ce 4f-Fe 3d 相互作用的影响而导致的磁性宏观特性, 本文研究了 CeFe<sub>2-x</sub>In<sub>x</sub> 合金的相结构、磁性. 同时, 采用标度临界参数 (β, γ, δ, n) 讨论了 CeFe<sub>1.95</sub>In<sub>0.05</sub> 合金的磁相互作用.

## 2 实验方法

实验方法 1: 原材料 Ce, Fe 和 In 的纯度分别为 99.98 wt.%, 99.95 wt.%, 99.999 wt.%, 按照考虑 Ce 质量的 3% 为熔损进行 CeFe<sub>2-x</sub>In<sub>x</sub> 合金 (x = 0, 0.05, 0.15, 0.2) 化学配比. 通过充有高纯氩气的钨极非自耗电弧炉进行样品制备 (反复熔炼 6 次). 经熔炼所得的铸锭样品密封于高真石英管内置于管式炉中进行热处理, 其热处理机制工艺是: 在 600 °C 保温 2 d, 700 °C 保温 5 d, 800 °C 保温 7 d, 850 °C 保温 2 d, 然后冰水淬火. 利用 DX-2600 射线衍射仪对制备好的样品进行结构分析.

实验方法 2: 采用美国 Ames 实验室材料制备中心制备的稀土 Ce (99.98 wt.%)、购自于 Alfa Aesar 商业级 Fe (99.95 wt.%) 和 In (99.999 wt.%), 考虑按照正常化学计量比 Ce 质量的 3% 为熔损进行 CeFe<sub>2-x</sub>In<sub>x</sub> 合金 (x = 0, 0.05) 化学配比. 通过充有高纯氩气的钨极非自耗电弧炉进行样品制备 (反复熔炼 6 次). 将样品用金属 Ta 片包裹后, 密封于充有高纯氩气的小石英管进行热处理. 经熔炼所得的铸锭样品密封于高真石英管内置于管式炉中进行热处理, 其热处理机制工艺是: 在 600 °C 保温 2d, 700 °C 保温 5 d, 800 °C 保温 7 d, 850 °C 保温

2 d, 然后冰水淬火 (不破碎石英管). X 射线衍射通过 Philips X'Pert Pro 衍射仪 (铜靶) 完成. 用超量子干涉磁性测量仪 (SQUID, MPMS XL, USA) 对其进行磁性测量, 温度范围为 2—300 K, 磁场范围为 0—7 T.

## 3 结果与讨论

### 3.1 相与结构

图 1 是通过实验方法 1 所制备的 CeFe<sub>2-x</sub>In<sub>x</sub> 样品的 X 射线粉末衍射谱. 可以看出虽然合金的主相均为 Laves 结构 CeFe<sub>2</sub> 相, 但随着 In 含量的增加, 合金中杂相含量增加, 这表明 In 替代 Fe 形成 CeFe<sub>2-x</sub>In<sub>x</sub> 替代式固溶体的固溶度是非常有限的. 图 2 是通过实验方法 2 制备的 CeFe<sub>2</sub> 和 CeFe<sub>1.95</sub>In<sub>0.05</sub> 样品的衍射图谱, 通过 Rietveld 精修对样品的相纯度和相结构进行分析. CeFe<sub>2</sub> 合金为立方结构 MgCu<sub>2</sub> 型单相, 而在 CeFe<sub>1.95</sub>In<sub>0.05</sub> 样品衍射谱中的 2θ = 30.75° 和 35.80° 处有两个杂相的衍射峰, 但衍射强度很低, 这表明该杂相的含量百分比是很低的. 在其他 Ce (Fe<sub>1-x</sub>M<sub>x</sub>)<sub>2</sub> 合金中, 如 Ce(Fe<sub>0.95</sub>Co<sub>0.05</sub>)<sub>2</sub><sup>[9]</sup>, Ce(Fe<sub>0.095</sub>Ga<sub>0.05</sub>)<sub>2</sub><sup>[22]</sup>, Ce(Fe<sub>0.0975</sub>Ga<sub>0.025</sub>)<sub>2</sub><sup>[22]</sup>, Ce(Fe<sub>0.095</sub>Si<sub>0.05</sub>)<sub>2</sub><sup>[24]</sup> 等的衍射谱中, 也能观察到 2θ = 30.75° 的衍射峰. 因为 In 的原子半径比 Fe 的大, 因此 CeFe<sub>1.95</sub>In<sub>0.05</sub> 的原子半径 (a = 7.3035 (2) Å) 比 CeFe<sub>2</sub> 的值 (a = 7.2939 (3) Å) 更大. 在 CeFe<sub>1.95</sub>In<sub>0.05</sub> 合金晶胞中各原子的占位信息列于表 1 中, Fe 和 In 占据 16 d 位置的比例分别为 97.438% 和 2.434%, 这同其分子式是符合的.

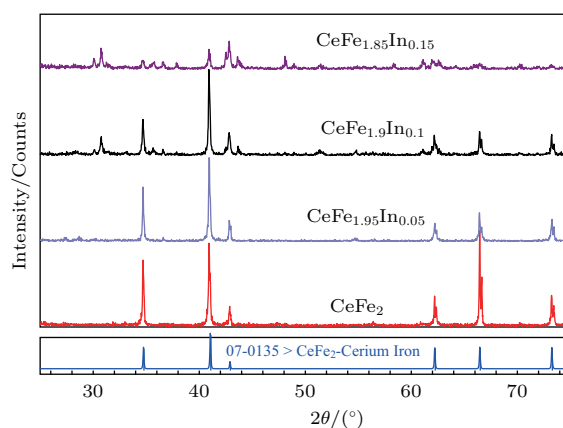


图 1 CeFe<sub>2-x</sub>In<sub>x</sub> (x = 0, 0.05, 0.1, 0.15) 样品的 X 射线粉末衍射谱

Fig. 1. The X-ray powder diffraction pattern of CeFe<sub>2-x</sub>In<sub>x</sub> (x = 0, 0.05, 0.1, 0.15) samples.

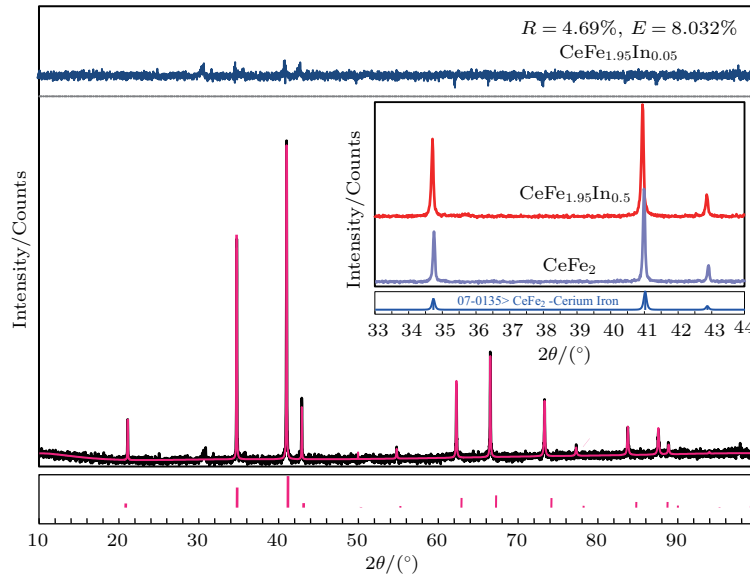


图2 CeFe<sub>2</sub>和CeFe<sub>1.95</sub>In<sub>0.05</sub>样品的室温粉末衍射图谱  
Fig. 2. The X-ray powder diffraction pattern of CeFe<sub>1.95</sub>In<sub>0.05</sub> phase.

表1 CeFe<sub>1.95</sub>In<sub>0.05</sub>合金的原子占位表  
Table 1. The lattice parameters of CeFe<sub>1.95</sub>In<sub>0.05</sub> alloy.

Atom	Site	Fill	<i>x</i>	<i>y</i>	<i>z</i>	Biso
Ce	8a	1.00036	0	0	0	0.42
Fe	16d	0.97438	5/8	5/8	5/8	0.53
In	16d	0.02434	5/8	5/8	5/8	0.97

### 3.2 磁性

图3(a)分别是CeFe<sub>1.95</sub>In<sub>0.05</sub>合金先零场冷却然后在加场升温过程中(ZFC)、加场冷却过程中(FC)、加场冷却后在升温过程中(FCW)测试的磁化强度(*M*)随温度(*T*)的变化(*M-T*)曲线。由于CeFe<sub>1.95</sub>In<sub>0.05</sub>合金中杂相含量很低,因此本文在讨论磁性相关参数时没有考虑其他磁性离子引起的误差。从图中可以看出,在0.01 T磁场下,类似于CeFe<sub>2</sub>合金中的反铁磁振荡现象在80 K仍然能被观察到,如图3(a)插图所示。从图3(b)可以观察到CeFe<sub>1.95</sub>In<sub>0.05</sub>合金中80 K以下ZFC于FCW之间的磁化强度差值比CeFe<sub>2</sub>的更大,这说明反铁磁态更加稳定,即合金中Ce 4f-Fe 3d的杂化作用加强。Ce(Fe<sub>1-x</sub>Ga<sub>x</sub>)<sub>2</sub>与Ce(Fe<sub>1-x</sub>Si<sub>x</sub>)<sub>2</sub>合金的晶格常数随Ga和Si量的增加而增大,如当*x* = 0, 0.01, 0.025, 0.05时,Ce(Fe<sub>1-x</sub>Ga<sub>x</sub>)<sub>2</sub>的晶格常数分别为7.3018(3), 7.3059(3), 7.3090(3), 7.3097(5) Å [22];在Ce(Fe<sub>1-x</sub>Si<sub>x</sub>)<sub>2</sub>合金中,当*x* = 0.01, 0.025, 0.05时,晶格常数分别为7.3020(3), 7.3033(4),

7.3054(3) Å [24]。基于Ce(Fe<sub>1-x</sub>Ga<sub>x</sub>/Si<sub>x</sub>)<sub>2</sub>合金中*x*分别达到0.025和0.05后,AFM才能在低温时处于稳定状态,可以认为Ce(Fe<sub>1-x</sub>T<sub>x</sub>)<sub>2</sub>(*T* = Ga, Si)中晶胞膨胀至某一临界值后,低温下合金的反铁磁态才能稳定存在。相比于CeFe<sub>2</sub>合金,Ce(Fe<sub>0.975</sub>In<sub>0.025</sub>)<sub>2</sub>的晶格膨胀率为1.00131(5)%,这比Ce(Fe<sub>0.975</sub>Ga<sub>0.025</sub>)<sub>2</sub>和Ce(Fe<sub>0.95</sub>Si<sub>0.05</sub>)<sub>2</sub>的1.00098(6)%与1.00049(3)%稍微大一些,由此推断Ce(Fe<sub>0.975</sub>In<sub>0.025</sub>)<sub>2</sub>中的反铁磁态应该比同等参杂量的Ce(Fe<sub>0.975</sub>Ga<sub>0.025</sub>)<sub>2</sub>更稳定。但从实验结果来看,虽然在CeFe<sub>2</sub>的中用2.5 at.%的In替代Fe,可以使得Ce 4f-Fe 3d的杂化作用得到加强,但未能到达某一临界值或强于Fe 3d-Fe 3d相互作用,而出现低温反铁磁稳定态。这也表明Ce(Fe<sub>1-x</sub>T<sub>x</sub>)<sub>2</sub>合金中低温反铁磁态的稳定存在不仅取决于晶格膨胀,还与磁电子浓度的变化有关。从图3(a)中可以看出,随着磁场的增加,低温反铁磁态会逐渐转变为铁磁态,当外场达到10 kOe时,在居里温度以下只有铁磁态存在。通过d*M*/d*T*图确定的CeFe<sub>1.95</sub>In<sub>0.05</sub>合金铁磁-顺磁相变居里温度为230.2 K,比CeFe<sub>2</sub>合金相应的相变温度227.0 K更高。这表明参杂In对决定居里温度的Fe 3d-Fe 3d磁相互作用的影响很小。

对CeFe<sub>1.95</sub>In<sub>0.05</sub>合金而言,在低场100 Oe下,顺磁区域内的磁化曲线遵循居里-外斯定律  $\frac{1}{\chi} = \frac{T - \theta_P}{C}$ ,顺磁外斯温度 $\theta_P$ 为229.8 K,居里常

数  $C = 4.98$ . 根据

$$\mu_{\text{eff}}^{\text{exp}}/\text{f.u.} = 2.83\sqrt{\chi(T - \theta_P)}k_B = 2.83\sqrt{C} \mu_B,$$

可以计算出  $\text{CeFe}_{1.95}\text{In}_{0.05}$  合金分子的有效磁矩为  $6.3 \mu_B$ . 在 10 kOe 外场下,  $\text{CeFe}_2$  合金的  $\mu_{\text{eff}}^{\text{exp}}/\text{f.u.}$  为  $3.96 \mu_B$  [9], 但对于  $\text{CeFe}_{1.95}\text{In}_{0.05}$  而言, 相同磁场下该值为  $5.28 \mu_B$ , 即  $\text{CeFe}_{1.95}\text{In}_{0.05}$  合金的磁化强度更大, 如图 3(b) 所示.

图 4(a) 是温度为 2 K 时,  $\text{CeFe}_{1.95}\text{In}_{0.05}$  和  $\text{CeFe}_2$  合金的磁化强度随外磁场 ( $H$ ) 变化回滞曲线 ( $M-H$  曲线). 为保证在测量前合金处于完全退磁状态, 样品先被加热至室温, 然后零场

冷却至 2 K, 再进行测量. 从图中可以看出, 两个合金的磁滞非常小, 这表明磁畴钉扎效应引起的矫顽力非常弱. 通过  $M-H$  曲线外推得到的  $\text{CeFe}_{1.95}\text{In}_{0.05}$  合金零场下的自发饱和磁矩为  $2.77 \mu_B/\text{f.u.}$ , 这比  $\text{CeFe}_2$  的  $2.56 \mu_B/\text{f.u.}$  要大, 这种现象在  $(\text{Ce}_{1-y}\text{Sc}_y)\text{Fe}_2$  ( $y \leq 0.10$ ) 也被观察到 [9]. 这表明在  $\text{CeFe}_2$  合金中 Fe 原子位置参杂 In 可以增加合金中 Fe 原子的有效铁磁磁矩. 图 4(b) 为  $\text{CeFe}_{1.95}\text{In}_{0.05}$  和  $\text{CeFe}_2$  合金在 227 K 的  $M-H$  曲线. 在 60 kOe 外磁场下, 磁滞几乎为零, 两种合金的饱和磁矩分别为  $1.61$  和  $1.50 \mu_B/\text{f.u.}$

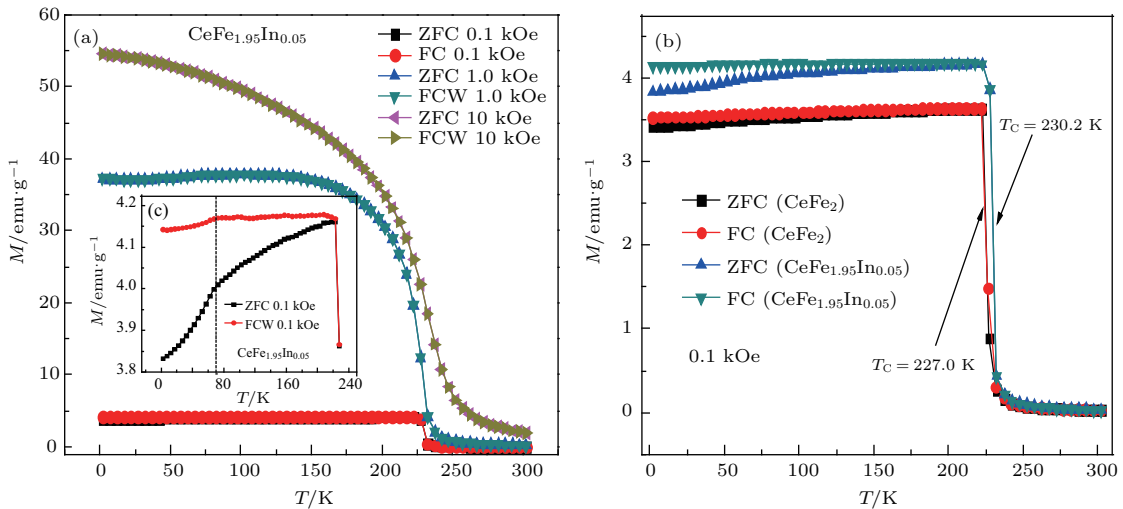


图 3 (a)  $\text{CeFe}_{1.95}\text{In}_{0.05}$  合金不同磁场下采用 ZFC, FC, FCW 测量方法测量的  $M-T$  曲线, 插图为 0.1 kOe 磁场下 2—230 K 的局部放大图; (b) 0.1 kOe 磁场下,  $\text{CeFe}_2$  和  $\text{CeFe}_{1.95}\text{In}_{0.05}$  合金不同磁场下采用 ZFC, FC 测量方法测量的  $M-T$  曲线  
Fig. 3. (a) The temperature dependence of the magnetization of  $\text{CeFe}_{1.95}\text{In}_{0.05}$  by measured ZFC, FC and FCW methods in different applied magnetic field, the inset shows magnetic field dependence of magnetization in 0.1 kOe field from 2 to 230 K; (b) the temperature dependence of the ZFC heating and field-cooled cooling (FC) magnetization of  $\text{CeFe}_{1.95}\text{In}_{0.05}$  and  $\text{CeFe}_2$  in applied magnetic field of 0.1 kOe.

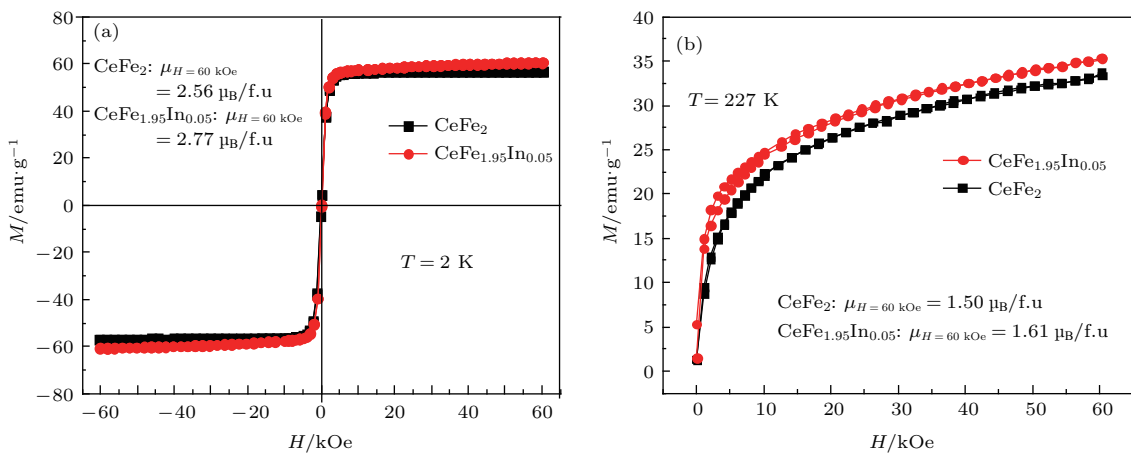


图 4 不同温度下  $\text{CeFe}_{1.95}\text{In}_{0.05}$  和  $\text{CeFe}_2$  合金的等温磁化曲线 (a) 2 K,  $-60-60$  kOe; (b) 227 K,  $0-60$  kOe  
Fig. 4. Magnetizations of  $\text{CeFe}_{1.95}\text{In}_{0.05}$  and  $\text{CeFe}_2$  as a function of applied magnetic field (a) from  $-60$  to  $60$  kOe at 2 K and (b) from  $0$  to  $60$  kOe at 227 K.

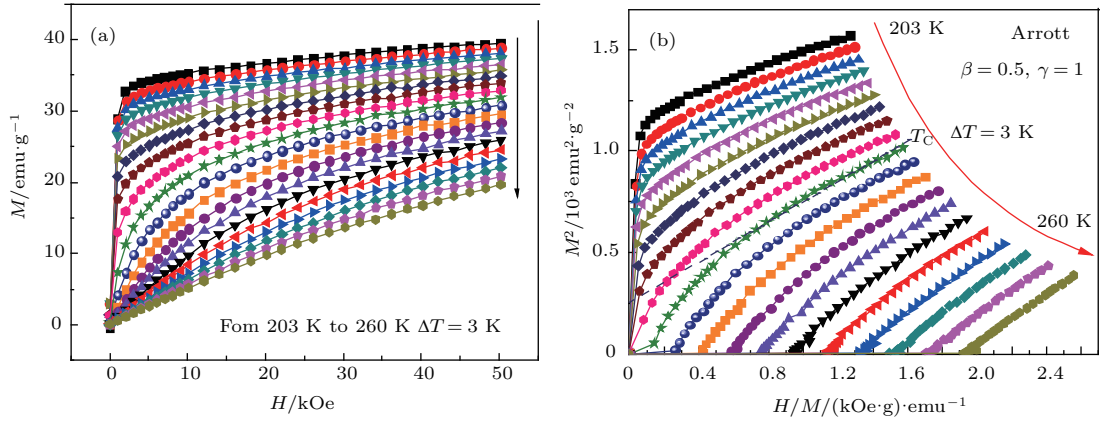


图5 (a) 0—50 kOe 外磁场范围内, CeFe<sub>1.95</sub>In<sub>0.05</sub> 合金从 203—260 K 的等温磁化曲线; (b) 用  $\beta = 0.5$  和  $\gamma = 1.0$  通过  $M^{\frac{1}{\beta}}$  vs.  $(H/M)^{\frac{1}{\gamma}}$  构建的 Arrott 图  
 Fig. 5. (a) The isothermal magnetization of CeFe<sub>1.95</sub>In<sub>0.05</sub> measured in applied magnetic fields from 0 to 50 kOe from 203 to 260 K; (b) the Arrott plots  $M^{\frac{1}{\beta}}$  vs.  $(H/M)^{\frac{1}{\gamma}}$  derived from the isothermal magnetization data with  $\beta = 0.5$  and  $\gamma = 1.0$ .

通常情况下, 磁相变类型可以通过基于长程相互作用于的平均场理论而构建的 Arrott 模型 (图) 来判断. 图 5 (a) 和图 5 (b) 是 CeFe<sub>1.95</sub>In<sub>0.05</sub> 在 203—260 K 温度范围内的等温磁化曲线 ( $M-H$ ) 和对应的 Arrott 图 ( $M^2-H/M$ ). 从图 5 (b) 中可以看出, 不同温度的 Arrott 曲线的斜率为正, 这表明该合金中居里温度处的 PM-FM 相变为二级相变 [25]. 同时, 在高场下合金的 Arrott 曲线具有很好直线关系, 但居里温度处的高场线性部分 Arrott 曲线反向延长线偏离原点较多, 这表明平均场理论不能完全描述 CeFe<sub>1.95</sub>In<sub>0.05</sub> 合金的磁相变行为 [26].

#### 4 标度理论

为进一步探究 CeFe<sub>1.95</sub>In<sub>0.05</sub> 合金居里温度附近磁相变的相关特性, 如磁相互作用类型等, 我们采用标度临界参数分析合金的磁相变行为.

目前除分子平均场理论模型 ( $\beta = 0.5, \gamma = 1.0$ ) 外, 还有 3 种其他模型描述铁磁-顺磁二级连续磁相变临界行为, 分别是 3D-Ising 模型 ( $\beta = 0.325, \gamma = 1.241$ ), 3D-Heisenberg 模型 ( $\beta = 0.365, \gamma = 1.336$ ) 和临界平均场模型 ( $\beta = 0.25, \gamma = 1.241$ ), 其中  $\beta$  和  $\gamma$  分别是与自发磁化强度随温度变化和磁化率随温度变化有关的临界指数. 因为高场下 Arrott 直线为一系列平行直线, 因此上述各种模型中不同温度下 Arrott 图直线部分的相对斜率 ( $RS = S(T)/S(T_C)$ ) 应该接近于 1 [26]. 图 6 是基于 CeFe<sub>1.95</sub>In<sub>0.05</sub> 等温磁化曲线 (图 5 (a)) 的上述四模型的 Arrott 图中高场线性部分的相对斜率随温

度的变化图. 相比而言, 短程相互作用的 3D-Ising 模型更接近于理想值 1. 这表明 3D-Ising 模型可能是决定 CeFe<sub>1.95</sub>In<sub>0.05</sub> 合金磁相变临界参数的最佳模型.

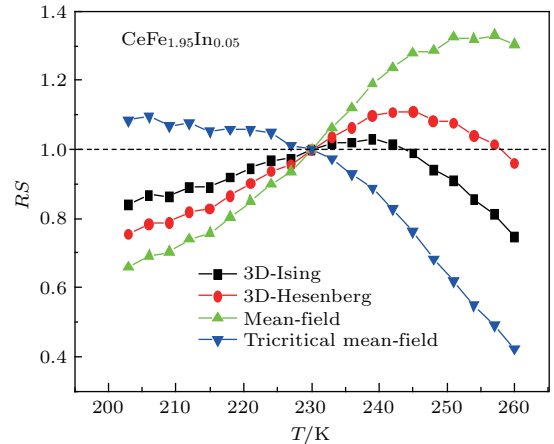


图6 四种模型参数构建的 Arrott 图线性部分相对斜率随温度的变化  
 Fig. 6. The relative slope ( $RS$ ) of 3D-Ising, 3D-Heisenberg, mean-field and tricritical mean-field models as a function temperature.

为获得 CeFe<sub>1.95</sub>In<sub>0.05</sub> 合金较为精确的相变临界参数, 首先采用基于 Arrott-Noakes 状态方程的 Modified Arrott Plots (MAP) 来进行分析相关数据. 在标度理论中, 自发饱和和磁化强度和磁化率的倒数满足如下关系 [27], 即 Arrott-Noakes 状态方程:

$$M_s(T) = \lim_{H \rightarrow 0} (M) = M_0(-\varepsilon)^\beta, \quad \varepsilon < 0,$$

$$\chi_0^{-1}(T) = \lim_{H \rightarrow 0} (H/M) = (h_0/M_0)\varepsilon^\gamma, \quad \varepsilon > 0,$$

其中  $\varepsilon = (T - T_C)/T_C$ . 因为在图 5 (b) 中的高场部分呈现很好的直线关系, 因此采用线性延长高场直线部分, 该线同纵坐标 ( $M^2$ ) 与横坐标 ( $(H/M)^{1/\gamma}$ ) 的交点分别为相应温度的  $M_s^2(T)$  和  $\chi^{-1}(T)$  [26], 图 7 (a) 为  $M_s(T)$ - $T$  与  $\chi^{-1}(T)$ - $T$  关系图. 通过上述方程, 对图 7 (a) 进行多次拟合, 直至得到稳定的临界参数  $\beta$  与  $\gamma$ , 其值分别为  $\beta = 0.3212(8)$ ,  $\gamma = 0.9357(9)$ . 图 7 (b) 是采用这组参数构建新的 Arrott 图 (MAP), 从图中可以清楚地看到高场下各直线相互平行, 且居里温度处的直线反向延长线几乎过原点. 这表明通过 MAP 得到的临界参数  $\beta = 0.3212(8)$ ,  $\gamma = 0.9357(9)$  具有较高的可信度.

为比较不同方法获得的 CeFe<sub>1.95</sub>In<sub>0.05</sub> 合金相

变临界参数之间的差异, 这里采用了 Kouvel-Fisher (KF) 关系式来讨论  $\beta$  和  $\gamma$  的值 [28]:

$$\frac{M_s(T)}{\frac{dM_s(T)}{dT}} = \frac{T - T_C}{\beta} \quad (T > T_C),$$

$$\frac{\chi_0^{-1}(T)}{\frac{d\chi_0^{-1}(T)}{dT}} = \frac{T - T_C}{\gamma} \quad (T < T_C).$$

采用 MAP 中同样的方法获得  $M_s^2(T)$  和  $\chi^{-1}(T)$  后, 通过 3 点法数值微分, 可以得到不同温度点的  $\frac{dM_s(T)}{dT}$  和  $\frac{d\chi_0^{-1}(T)}{dT}$ . 图 8 (a) 为  $M_s(T)/\frac{dM_s(T)}{dT} \propto T$  与  $\chi_0^{-1}(T)/\frac{d\chi_0^{-1}(T)}{dT} \propto T$  图.

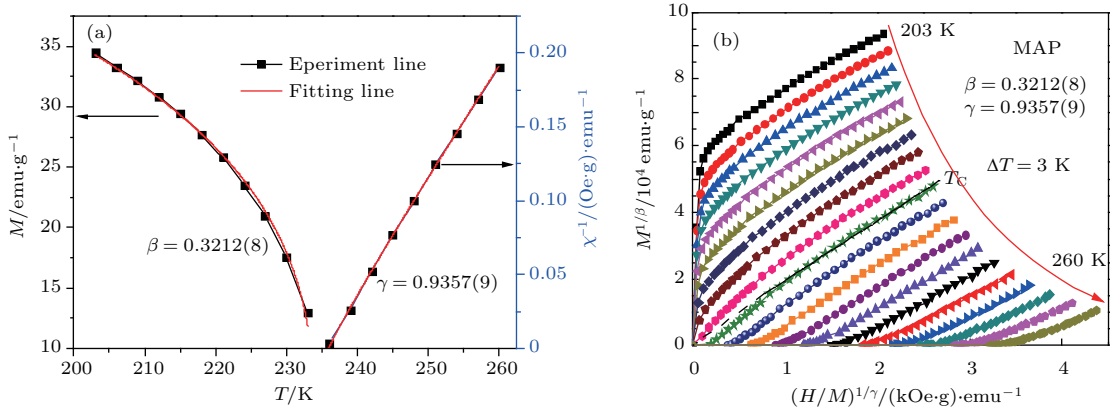


图 7 (a) 自发饱和磁化强度和磁化率的倒数随温度的变化; (b) 用  $\beta = 0.3212(8)$  和  $\gamma = 0.9357(9)$  构建的 MAP 图  
Fig. 7. (a) Temperature dependence of the spontaneous magnetization  $M_s(T)$  and the inverse initial susceptibility  $\chi^{-1}(T)$ ; (b) modified isothermal Arrott plot  $M^{1/\beta} - (H/M)^{1/\gamma}$  with  $\beta = 0.3212(8)$  and  $\gamma = 0.9357(9)$ .

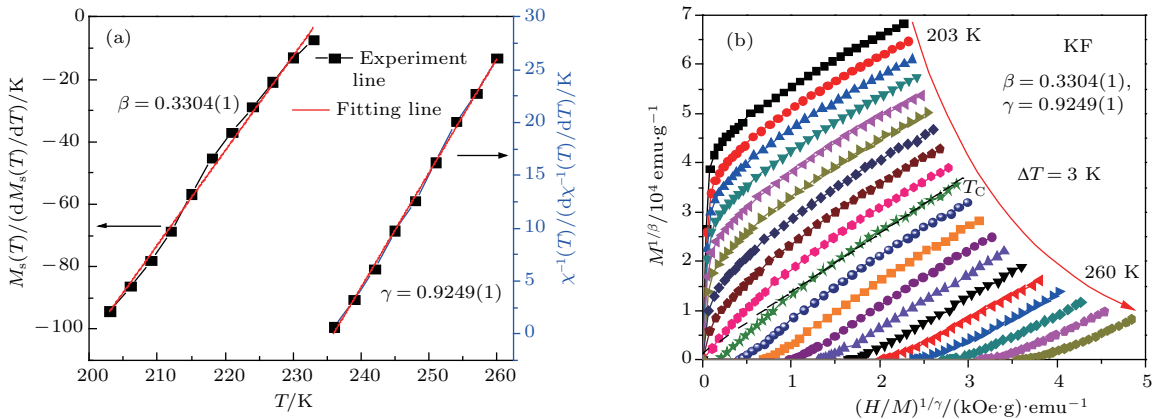


图 8 (a)  $M_s(T) \cdot \left(\frac{dM_s(T)}{dT}\right)^{-1}$  和  $\chi_0^{-1}(T) \cdot \left(\frac{d\chi_0^{-1}(T)}{dT}\right)^{-1}$  随温度的变化; (b) 基于  $\beta = 0.3304(1)$  和  $\gamma = 0.9249(1)$  构建的  $M^{1/\beta} - (H/M)^{1/\gamma}$  关系  
Fig. 8. (a) Temperature dependence of the  $M_s(T) \cdot \left(\frac{dM_s(T)}{dT}\right)^{-1}$  and  $\chi_0^{-1}(T) \cdot \left(\frac{d\chi_0^{-1}(T)}{dT}\right)^{-1}$ ; (b) modified isothermal Arrott plot  $M^{1/\beta}$  vs.  $(H/M)^{1/\gamma}$  with the critical exponents of  $\beta = 0.3304(1)$  and  $\gamma = 0.9249(1)$ .

分别对两条实验数据线进行线性拟合,可以得到各自的斜率  $1/\beta$  与  $1/\gamma$ , 对应的  $\beta = 0.3304(1)$  和  $\gamma = 0.9249(1)$ , 这与采用 MAP 方法获得  $\beta = 0.3212(8)$  和  $\gamma = 0.9357(9)$  差异很小. 图 8 (b) 是采用这组参数构建的 Arrott 图. 与图 7 (b) 相同, 高场下各直线相互平行, 且居里温度处的直线反向延长线几乎过原点, 表明该组临界参数也具有较高的可信度.

实际上, 上述两种方法获得的临界参数的可信度可以通过标度理论来判断. 根据方程 [29]:  $M(H, \epsilon) = |\epsilon|^\beta f \pm (H/|\epsilon|^{\beta+\gamma})$ ,  $M|\epsilon|^{-\beta} \propto H|\epsilon|^{-(\beta+\gamma)}$ , 相应图形中曲线应该以居里温度  $T_C$  为分界线分成两条空间曲线. 因上述两种方法获得的  $\beta$  和  $\gamma$  差异很小, 这里采用它们的平均值, 即  $\beta = 0.3258(4)$ ,  $\gamma = 0.9303(5)$  来构建  $M|\epsilon|^{-\beta} \propto H|\epsilon|^{-(\beta+\gamma)}$  图, 如图 9 所示. 可以看到曲线以居里温度为中心分成两束曲线, 这表明由前面两种方法得到的两个临界参数符合标度理论.

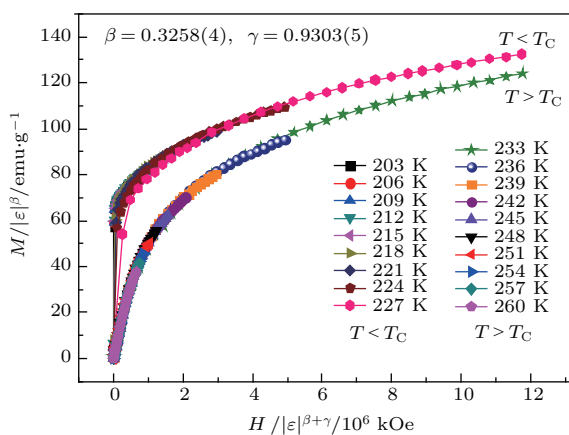


图 9 CeFe<sub>1.95</sub>In<sub>0.05</sub> 合金居里温度上下的  $M|\epsilon|^{-\beta} \propto H|\epsilon|^{-(\beta+\gamma)}$  图

Fig. 9. Scaling plots indicating universal curves below and above  $T_C$  for the CeFe<sub>1.95</sub>In<sub>0.05</sub>.

标度理论的第三个临界参数是  $\delta$ , 它满足 Widom 标度关系 [30]:  $\delta = 1 + \gamma/\beta$ . 根据前面采用 MAP 和 KF 方法得到的  $\beta$  和  $\gamma$ , 可以计算出  $\delta$ , 其值分别为 3.9132(5) 和 3.7989(4). 另外, 根据方程  $M_{T=T_C} = DH^{1/\delta}$  [27], 可以从居里温度处的等温磁化曲线得到该参数. 图 10 是 CeFe<sub>1.95</sub>In<sub>0.05</sub> 合金在 230 K 的  $\log(M)$ - $\log(H)$  关系图, 该直线的斜率就是  $1/\delta$ , 线性拟合的结果为  $\delta = 3.9810(3)$ . 这个值同通过  $\delta = 1 + \gamma/\beta$  计算的值非常接近. 这表

明以上各种方法得到临界参数之间具有很好的符合度.

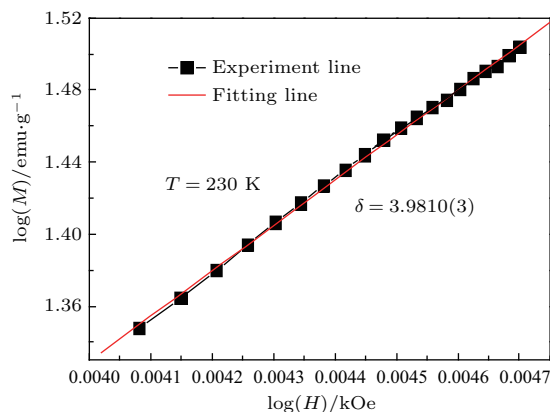


图 10 CeFe<sub>1.95</sub>In<sub>0.05</sub> 合金在 230 K 的  $\log(H)$ - $\log(M)$  关系图

Fig. 10. Critical isotherms on  $\log(H)$ - $\log(M)$  scale at  $T_C$  along with the fitting curves based on the  $M_{T=T_C} = DH^{1/\delta}$ .

从各种方法获得的临界参数来看, CeFe<sub>1.95</sub>In<sub>0.05</sub> 合金的  $\beta = 0.3258(4)$  与磁性粒子自旋短程相互作用的 3D-Ising 模型中  $\beta$  值 (0.325) 非常接近. 同时, 也可以观察到参数  $\gamma = 0.9303(5)$  与 3D-Ising 模型的标准值 1.241 之间存在差异, 该值更接近分子平均场模型的对应参数值 1.0. 这表明在 3D-Ising 模型中仅仅考虑最近邻相互作用, 但该模型存在自旋相互作用的非局域效应, 即在 3D-Ising 模型中存在类似于长程相互作用的效应. 这种现象也在其他合金系中被观察到, 如在具有 Tricritical 模型的 La<sub>1-x</sub>Ca<sub>x</sub>MnO<sub>3</sub> ( $x > 0.4$ ) 中的  $\beta = 0.25 \pm 0.03$ ,  $\gamma = 1.03 \pm 0.05$  与理论值  $\beta = 0.25$ ,  $\gamma = 1.241$  [31] 以及具有平均场模型的 Mn<sub>0.94</sub>Ti<sub>0.06</sub>CoGe 中的  $\beta = 0.61$ ,  $\gamma = 0.91$  理论值  $\beta = 0.25$ ,  $\gamma = 1.241$  等 [32] 之间均存在差异. 综合而言, CeFe<sub>1.95</sub>In<sub>0.05</sub> 合金磁相变临界行为可以用磁性粒子自旋短程相互作用的 3D-Ising 模型来描述, 这与通过各种模型的 Arrott 直线相对斜率 ( $RS = S(T)/S(T_C)$ ) 分析结果一致, 但该合金中类似于长程相互作用对合金的磁性也有一定的影响. 可以合理推测亚晶格中 Fe-Fe 之间的自旋短程相互作用对 CeFe<sub>1.95</sub>In<sub>0.05</sub> 合金 3D-Ising 模型中各格点磁性粒子的自旋取向起主导作用, 合金的净磁矩也来自于这种竞争; 而非近邻格点上的磁性粒子自旋扰动作用也应在求解 3D-Ising 模型精确解时不能忽略.

### 5 磁热效应和相关临界参数

基于等温磁化曲线, 通过麦克斯韦方程可以计算出 CeFe<sub>1.95</sub>In<sub>0.05</sub> 合金的等温磁熵变 ( $\Delta S_M(T)$ ), 不同磁场下, 其随温度变化的关系如图 11 所示. 该曲线为典型的二级相变材料的  $\Delta S_M(T)$ - $T$  曲线, 即以居里温度为中心呈对称分布. 在 1, 2, 3, 4, 5 T 外场下, CeFe<sub>1.95</sub>In<sub>0.05</sub> 合金的最大磁熵变值分别为 1.13, 1.80, 2.31, 2.74, 3.13 J/(kg·K). 在 5 T 外磁场下, Ce<sub>0.95</sub>Gd<sub>0.05</sub>Fe<sub>2</sub>, Ce<sub>0.9</sub>Gd<sub>0.1</sub>Fe<sub>2</sub>, Ce<sub>0.9</sub>Ho<sub>0.1</sub>Fe<sub>2</sub> 合金最大磁熵变 ( $\Delta S_{Max}$ ) 分别为 2.1, 1.6, 1.9 J/(kg·K) [8], 均比 CeFe<sub>1.95</sub>In<sub>0.05</sub> 合金对应磁场的最大熵变值小, 这可能源于 CeFe<sub>1.95</sub>In<sub>0.05</sub> 合金具有更大的磁化强度. 通常用相对制冷能力来描述材料的制冷功效, 其定义为  $RCP = -\Delta S_{Max} \times \delta T_{FWHM}$ , 其中磁熵变半高温宽度  $\delta T_{FWHM}$ . 在 1, 2, 3, 4, 5 T 外场下, CeFe<sub>1.95</sub>In<sub>0.05</sub> 合金的  $RCP$  值分别为 21.6, 51.3, 81.5, 115.1, 151.3 J/(kg·K), 这也高于 Ce<sub>1-x</sub>RE<sub>x</sub>Fe ( $RE = Gd, Ho$ ) [8] 和 Ce( $Fe_{1-x}S_x$ )<sub>2</sub> ( $S = Ga, Al$ ) [21,8] 合金的值.

对于二级相变材料而言, 居里温度附近的磁熵变和外加磁场之间满足如下关系:  $|\Delta S_M| \propto H^n$ , 指数  $n$  同材料的磁状态有关. 根据 1—5 T 磁场下  $-\Delta S_{Max}(T)$  与  $T$  对应的值, 通过上述公式拟合后, 得到  $n$  的值为 0.6191(8). 根据标度理论, 相对制冷量与外加磁场之间满足关系:  $RCP \propto H^{(1+1/\delta)}$ . 结合同样磁场下  $RCP$  与  $T$  对应的值, 拟合可得  $\delta$  值为 5.0559(1). 上述两个参数同 3D-Ising 模型中

的标准值 ( $n = 0.569$  和  $\delta = 4.818$ ) 比较, 可以发现虽然它们之间不完全一致, 但差异较小, 尤其是标度临界参数  $\delta$ . 这进一步证明 CeFe<sub>1.95</sub>In<sub>0.05</sub> 合金中磁性粒子自旋相互作用符合 3D-Ising 模型.

对于磁制冷材料而言, 基于实验数据的  $-\Delta S_M(T)$ - $T$  曲线进行外推后得到的归一化曲线是非常有用的. 由于二级相变磁制冷材料的  $-\Delta S_M(T)$ - $T$  曲线以居里温度为中心呈对称分布, 其归一化过程为: 首先对不同磁场下的  $-\Delta S_M(T, H)$  通过除以对应磁场下的  $-\Delta S_{Max}(T, H)$  来归一化, 即

$$\Delta S' = \frac{-\Delta S_M(T, H)}{-\Delta S_{Max}(H)}$$

然后对温度进行归一化, 并用新的温度坐标表示, 其定义为 [33]:

$$\theta = -\frac{(T - T_C)}{(T_{r1} - T_C)} \quad (T < T_C),$$

$$\theta = \frac{(T - T_C)}{(T_{r2} - T_C)} \quad (T > T_C),$$

其中  $T_{r1}$  和  $T_{r2}$  分别为  $-\Delta S_M(T)$ - $T$  图中居里温度上下磁熵变等于最大熵变的一半所对应的温度. 图 12(a) 为不同磁场下磁熵变的归一化曲线, 它们分布于一条归一化曲线的附近, 这表明将 CeFe<sub>1.95</sub>In<sub>0.05</sub> 合金的磁相变归于二级相变, 并采用上述方法处理相应数据是有效的.

为充分利用归一化曲线对材料的  $RCP$  进行评估, 还需要找出  $\Delta S'$  与  $\theta$  之间的函数关系. 由于图 12(a) 趋于一条归一化曲线, 因此可以采用

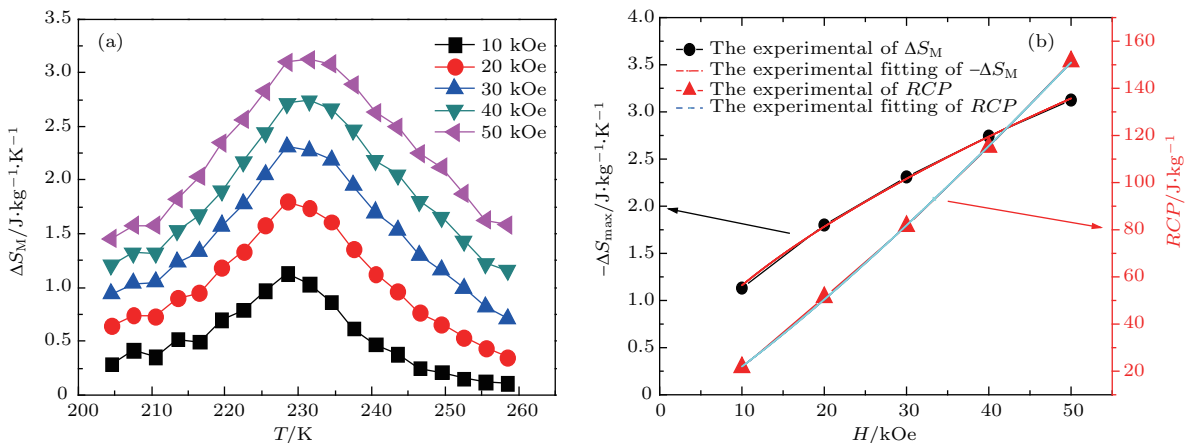


图 11 (a) CeFe<sub>1.95</sub>In<sub>0.05</sub> 合金在不同磁场下的  $-\Delta S_M$ - $T$  曲线; (b)  $RCP$ - $H$  与  $-\Delta S_{Max}$ - $H$  曲线  
 Fig. 11. (a) Temperature dependence of the magnetic entropy change ( $-\Delta S_M$ ) at different applied magnetic field change intervals for CeFe<sub>1.95</sub>In<sub>0.05</sub>; (b) field dependence of the maximum magnetic entropy change and  $RCP$ , along with the exponential fitting to determine the values of  $n$  and  $\delta$ , respectively.

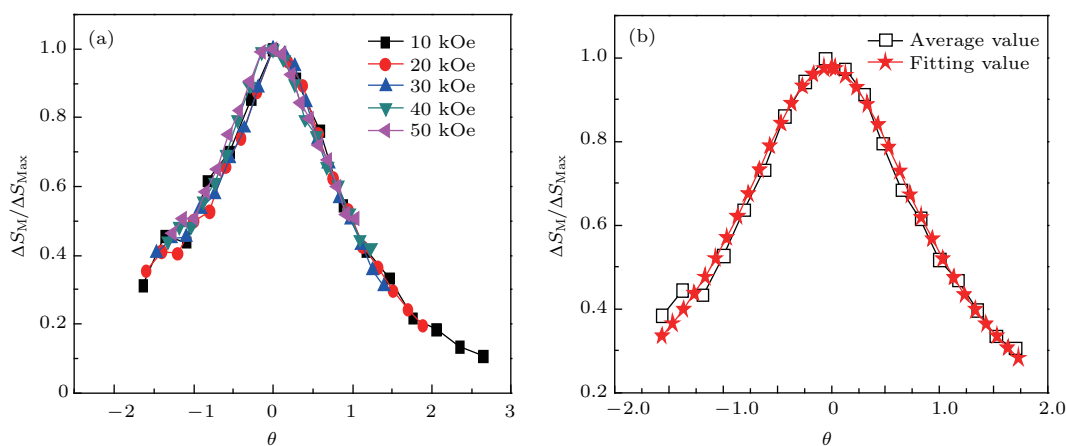


图 12 (a) CeFe<sub>1.95</sub>In<sub>0.05</sub> 合金不同磁场下的磁熵变归一化曲线; (b) CeFe<sub>1.95</sub>In<sub>0.05</sub> 合金的实验平均归一化曲线与洛伦兹拟合曲线

Fig. 12. (a) Universal behavior of the scaled entropy change curves of CeFe<sub>1.95</sub>In<sub>0.05</sub> in different applied fields; (b) the average of scaled entropy change curve and the fitting curve fitted by Lorentz function.

洛伦兹函数进行拟合 [34]:

$$\Delta S' = a/[b + (\theta - c)^2],$$

这里  $a, b, c$  分别为自由系数. 拟合结果为:  $a = 1.2284(8)$ ,  $b = 1.2580(4)$ ,  $c = 0.0214(1)$ , 对应的拟合曲线 (图 12 (b)) 与不同磁场下归一化磁熵变的平均值曲线几乎重合. 因此, 只需要给出  $T_C$  和  $\Delta S_{Max}$  以及两个参考温度  $T_{r1}$  与  $T_{r2}$  就可以求出不同条件合金的磁热性能相关参数.

## 6 结 论

综上所述, 用 2.5 at.% 的铟替代 CeFe<sub>2</sub> 合金中的铁能使 Ce-4f 电子和 Fe-3d 电子轨道杂化作用强化, 但未能达到某一临界值, 因此虽然在 CeFe<sub>1.95</sub>In<sub>0.05</sub> 合金中低温状态下能够观察到比 CeFe<sub>2</sub> 合金中更为明显的反铁磁态, 但没有观察到如 Ce (Fe<sub>1-x</sub>Ga<sub>x</sub>)<sub>2</sub> 与 Ce (Fe<sub>1-x</sub>Si<sub>x</sub>)<sub>2</sub> 合金体系的低温稳定反铁磁态存在. 在 CeFe<sub>2</sub> 合金中 Fe 原子位置参杂 In 可以增加合金中 Fe 原子的有效铁磁磁矩, 从而可以提高合金的顺磁有效磁矩和铁磁饱和磁矩. CeFe<sub>2</sub> 和 CeFe<sub>1.95</sub>In<sub>0.05</sub> 合金均为典型的二级磁相变材料, 采用标度理论的多种方法获得的相变临界参数表明 CeFe<sub>1.95</sub>In<sub>0.05</sub> 合金的磁相互作用可以用 3D-Ising 模型来进行描述, 即该合金中磁相互作用被短距离磁相互作用主宰.

本文的磁性测量工作得到美国 Ames 实验室的大力支持, 感谢 Vitalij K. Pecharsky 教授和 Y. Mudryk 教授在论文撰写过程中的帮助.

## 参考文献

- [1] Clausen K, Rhyne J J, Lebech B, Koon N C 1982 *J. Phys. C* **15** 3587
- [2] Rhyne J J 1987 *J. Magn. Magn. Mater.* **70** 88
- [3] Eriksson O, Nordström L, Brooks M S S, Börje J 1988 *Phys. Rev. Lett.* **60** 2523
- [4] Franse J J M, Radwanski R J 1993 *Handbook of Magnetic Materials* (Vol. 7) (Amsterdam: Elsevier Press) p207
- [5] Paolasini L, Dervenagas P, Vulliet P, Sanchez J P, Lander G H, Hiess A, Panchula A, Canfield P 1998 *Phys. Rev. B* **58** 12117
- [6] Paolasini L, Lander G H, Shapiro S M, Caciuffo R, Lebech B, Regnault L P, Roessli B, Fournier J M 1996 *Phys. Rev. B* **54** 7222
- [7] Paolasini L, Caciuffo R, Roessli B, Lander G H, Myers K, Canfield P 1999 *Phys. Rev. B* **59** 6867
- [8] Haldar A, Suresh K G, Nigam A K 2010 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **43** 285004
- [9] Fukuda H, Fujii H, Kamura H, Hasegawa Y, Ekino T, Kikogawa N, Suzuki T, Fujita T 2001 *Phys. Rev. B* **63** 054405
- [10] Roy S B, Coles B R 1989 *J. Phys.: Condens. Matter* **1** 419
- [11] Manekar M A, Chaudhary S, Chattopadhyay M K, Singh K J, Roy S B, Chaddah P 2001 *Phys. Rev. B* **64** 104416
- [12] Grover A K, Pillay R G, Balasubramanian V, Tandon P N 1988 *Solid State Commun.* **67** 1223
- [13] Matsuura M, Kim S H, Sakurai M, Suzuki K 1995 *Physica B* **208-209** 283
- [14] Roy S B, Coles B R 1987 *J. Phys. F: Met. Phys.* **17** L215
- [15] Fukuda H, Kamura H, Ekino T, Fujii H, Kikogawa N, Suzuki T, Fujita T 2000 *Physica B* **281-282** 92
- [16] Manekar M, Roy S B, Chaddah P 2000 *J. Phys.: Condens. Matter* **12** L409

- [17] Roy S B, Perkins G K, Chattopadhyay M K, Nigam A K, Sokhey K J S, Chaddah P, Caplin A D, Cohen L F 2004 *Phys. Rev. Lett.* **92** 147203
- [18] Roy S B, Coles B R 1989 *Phys. Rev. B* **39** 9360
- [19] Chattopadhyay M K, Manekar M A, Roy S B 2006 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **39** 1006
- [20] Rajarajan A K, Roy S B, Chaddah P 1997 *Phys. Rev. B* **56** 7808
- [21] Paolasini L, Ouladdiaf B, Bernhoeft N, Sanchez J P, Vulliet P, Lander G H, Canfield P 2003 *Phys. Rev. Lett.* **90** 057201
- [22] Haldar A, Suresh K G, Nigam A K 2008 *Phys. Rev. B* **78** 144429
- [23] Haldar A, Das A, Hoser A, Hofmann T, Nayak A K, Suresh K G, Nigam A K 2001 *J. Appl. Phys.* **109** 07E125
- [24] Haldar A, Suresh K G, Nigam A K 2010 *Intermetallics* **18** 1772
- [25] Yamada H, Fukamichi K, Goto T 2001 *Phys. Rev. B* **65** 024413
- [26] Fan J Y, Ling L S, Hong B, Zhang L, Pi L, Zhang Y H 2010 *Phys. Rev. B* **81** 144426
- [27] Sahana M, Rössler U K, Ghosh N, Elizabeth S, Bhat H L, Dörr K, Eckert D, Wolf M, Müller K H 2003 *Phys. Rev. B* **68** 144408
- [28] Kouvel J S, Fisher M E 1964 *Phys. Rev.* **136** A1626
- [29] Kaul S N 1985 *J. Magn. Magn. Mater.* **3** 5
- [30] Widom B 1965 *J. Chem. Phys.* **43** 3892
- [31] Kim D, Revaz B, Zink B L, Hellman F, Rhyne J J, Mitchell J F 2002 *Phys. Rev. Lett.* **89** 227202
- [32] Shamba P, Wang J L, Debnath J C, Kennedy S J, Zeng R, Din M F, Hong F, Cheng Z X, Studer A J, Dou S X 2013 *J. Phys.: Condens. Matter* **25** 056001
- [33] Franco V, Blázquez J S, Conde A 2006 *Appl. Phys. Lett.* **89** 222512
- [34] Dong Q Y, Zhang H W, Sun J R, Shen B G, Franco V 2008 *J. Appl. Phys.* **103** 116101

# Magnetic property of $\text{CeFe}_{2-x}\text{In}_x$ alloys and critical parameters of magnetic phase transition of $\text{CeFe}_{1.95}\text{In}_{0.05}$ alloy\*

Chen Xiang<sup>1)2)†</sup> Zhao Ming-Hua<sup>1)</sup>

1) (College of Physics and Electronic Information Engineering, Neijiang Normal University, Neijiang 641100, China)

2) (The Ames Laboratory, U.S. Department of Energy, Iowa State University, Ames, Iowa 50011-3020, USA)

( Received 26 April 2018; revised manuscript received 3 August 2018 )

## Abstract

Magnetic properties of  $\text{CeFe}_{2-x}\text{In}_x$  alloys and scaling critical behaviors of  $\text{CeFe}_{1.95}\text{In}_{0.05}$  alloy are investigated by measuring the magnetic susceptibility and isothermal magnetization. The X-ray diffraction (XRD) patterns show that the solid solubility of the In substituted for the Fe in  $\text{CeFe}_{2-x}\text{In}_x$  alloy is limited. Because the intensity diffraction peak of impurity at  $2\theta = 30.75^\circ$  and  $35.80^\circ$  in  $\text{CeFe}_{1.95}\text{In}_{0.05}$  XRD pattern are very low, the effect of impurity on magnetism is not considered in this paper. Magnetic measurements indicate that using 2.5 at.% indium to substitute for Fe in  $\text{CeFe}_2$  alloy can strengthen the orbital hybridization interaction between Ce-4f and Fe-3d, but it cannot reach the critical point to make the antiferromagnetic stable. The AFM fluctuation still keeps in a value ranging from 2 K to 80 K. The second order paramagnetic-ferromagnetic transition of  $\text{CeFe}_{1.95}\text{In}_{0.05}$  at  $T_C = 230$  K is confirmed by Arrott plot analysis. The effective ferromagnetic moment of Fe atoms can be increased by replacing part of the Fe atoms with In atoms in the  $\text{CeFe}_2$  alloy, which can increase the paramagnetic and effective magnetic moment and the magnetic saturation magnetic moment of the alloy. For a magnetic field change of 0–50 kOe, the maximum value of the magnetic entropy change  $-\Delta S_M$  is 3.13 J/(kg·K) at 230 K and  $RCP$  is 151.3 J/kg, which are higher than the values of  $\text{Ce}_{0.95}\text{Gd}_{0.05}\text{Fe}_2$ ,  $\text{Ce}_{0.9}\text{Gd}_{0.1}\text{Fe}_2$ , and  $\text{Ce}_{0.9}\text{Ho}_{0.1}\text{Fe}_2$  alloys under the same magnetic field. The high self-consistent scaling critical exponents determined by modified Arrott plot and Kouvel-Fisher methods are  $[\beta = 0.3212(8)$  and  $\gamma = 0.9357(9)]$  and  $[\beta = 0.3304(1)$  and  $\gamma = 0.9249(1)]$ , respectively. The parameter  $\delta$  obtained from the critical magnetization isotherm  $M_{T_C} = DH^{\frac{1}{\delta}}$  satisfies the Widom scaling relation  $\delta = 1 + \gamma/\beta$ . Moreover, the plot of  $M^{\frac{1}{\beta}}$  vs.  $(H/M)^{\frac{1}{\gamma}}$  constructed by the above critical parameters completely complies with the scaling hypothesis. At the same time, the critical parameters of  $n$  and  $\delta$  obtained by  $|\Delta S_M| \propto H^n$  and  $RCP \propto H^{(1+1/\delta)}$  fitting are 0.6191(8) and 5.0559(1), respectively. In all, non-local effect of spin interaction causes a certain difference between the critical parameters and 3D-Ising model standard values ( $\beta = 0.325$ ,  $\gamma = 1.241$ ,  $n = 0.569$ , and  $\delta = 4.818$ ). But these differences are small, especially for critical parameter  $\beta$ , which suggests that the magnetic interaction in  $\text{CeFe}_{1.95}\text{In}_{0.05}$  alloy is a short-range interaction.

**Keywords:**  $\text{CeFe}_{1.95}\text{In}_{0.05}$  alloy, magnetothermal properties, scaling hypothesis, critical parameter

**PACS:** 75.47.Np, 76.30.Kg, 75.40.-s, 75.30.Sg

**DOI:** 10.7498/aps.67.20180815

\* Project supported by the Scientific Research Foundation of the Science and Technology Department of Sichuan Province, China (Grant No. 2017JY0181) and the Scientific Research Foundation of the Education Department of Sichuan Province, China (Grant No. 16ZB0301).

† Corresponding author. E-mail: [gxucx@163.com](mailto:gxucx@163.com)