

## АНОМАЛЬНОЕ ТЕПЛОВОЕ РАСШИРЕНИЕ ИЗИНГОВСКИХ МАГНЕТИКОВ В ОБЛАСТИ НИЗКИХ ТЕМПЕРАТУР

© И.Б.Крынецкий, Н.П.Колмакова, Е.В.Синицын

Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова,  
119899 Москва, Россия  
(Поступила в Редакцию 18 апреля 1995 г.)

Для сильно анизотропных (изинговских) магнетиков в области гелиевых температур обнаружено аномальное (необратимое по температуре) тепловое расширение. Природа обнаруженной аномалии связывается с возникновением метастабильного состояния магнитной подсистемы, экспериментально реализуемого за счет скачка теплопроводности жидкого гелия при его переходе из сверхтекучего состояния в нормальное.

Многочисленные исследования низкотемпературного поведения теплового расширения разных соединений со структурой искаженного перовскита ( $\text{DyFeO}_3$ ,  $\text{DyAlO}_3$ ,  $\text{TbAlO}_3$ ,  $\text{ErFeO}_3$ ,  $\text{GdAlO}_3$ ,  $\text{YAlO}_3$  и др.) показывают, что для всех этих соединений в области гелиевых температур имеются отклонения от обычных зависимостей. Вид аномалий для разных образцов различен, они имеют весьма необычный характер и гигантскую величину в случае соединений с изинговскими ионами ( $\text{Dy}^{3+}$  и  $\text{Tb}^{3+}$ ). Мы приведем результаты измерений теплового расширения и проанализируем природу обнаруженных аномалий на примере  $\text{DyAlO}_3$  и его немагнитного аналога  $\text{YAlO}_3$ .

### 1. Эксперимент

В интервале температур 1.52–4.2 К с использованием тензометрического dilatометра в магнитных полях до 28 кОе измерялось тепловое расширение монокристалла  $\text{DyAlO}_3$ . Образец с наклеенным тензодатчиком находился непосредственно в ванне жидкого  $\text{He}^4$ , ток через датчик составлял 1–2 мА, температура ванны (образца) измерялась по давлению насыщенных паров  $\text{He}^4$ . Чувствительность установки (по относительной деформации) составляла  $5 \cdot 10^{-7}$ , регистрация теплового расширения осуществлялась на двухкоординатном потенциометре.

На рис. 1 представлено тепловое расширение монокристалла  $\text{DyAlO}_3$  вдоль  $b$ -оси, измеренное как при понижении температуры от 4.2 К до 1.52 К (кривая 1), так и при повышении температуры от 1.52 К. Отметим, что в указанном интервале температур ионы  $\text{Dy}^{3+}$  упорядочиваются антиферромагнитно по моде  $A_x G_y$  при  $T_N \simeq 3.52 \text{ К}$  [1]. Из

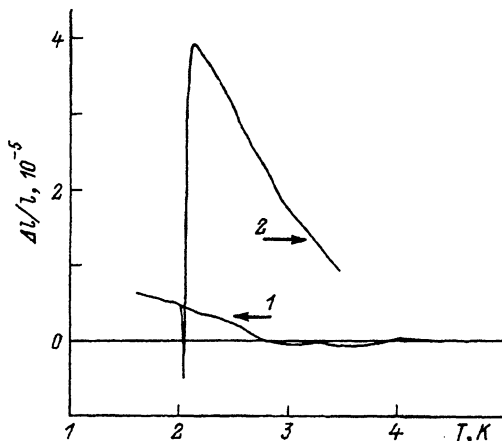


Рис. 1. Тепловое расширение монокристалла  $\text{DyAlO}_3$  вдоль  $b$ -оси.

кривой 1 видно, что при понижении температуры тепловое расширение изменяется монотонно, не проявляя никаких аномалий ни при  $T_N$ , ни в момент прохождения  $\lambda$ -точки  $\text{He}^4$  ( $T \approx 2.18 \text{ K}$ ). Из кривой 1 можно оценить коэффициент линейного теплового расширения  $\text{DyAlO}_3$  вдоль  $b$ -оси в данном температурном интервале:  $\alpha_b \approx -2 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ . При обратном ходе кривая 2 вначале практически совпадает с кривой 1. Однако в момент прохождения температуры  $T \approx 2.18 \text{ K}$  ( $\lambda$ -точка  $\text{He}^4$ ) наблюдается аномальная картина: сначала происходит резкий скачок теплового расширения в отрицательную область на  $\sim -12 \cdot 10^{-6}$ , а затем резкий скачок в положительную область деформаций на  $\sim +36 \cdot 10^{-6}$ , после которого размеры кристалла медленно релаксируют к исходному (при 4.2 K) значению.

Для выяснения природы обнаруженных аномалий теплового расширения  $\text{DyAlO}_3$  были проведены аналогичные измерения на его немагнитном аналоге  $\text{YAlO}_3$  (рис. 2). При понижении температуры размеры кристалла практически не изменяются, однако при повышении температуры при  $T \approx 2.18 \text{ K}$  вновь наблюдается аномалия, имеющая характер одиночного пика. Изменение величины тока, протекающего через тензодатчик, показало, что амплитуда одиночной аномалии возрастает с увеличением силы тока, причем эта зависимость близка к квадратичной. Сравнение результатов, полученных для  $\text{DyAlO}_3$  и для  $\text{YAlO}_3$ , позволяет сделать вывод о том, что значительная положительная аномалия, обнаруженная в ортоалюминате диспрозия (кривая 2 на рис. 1), связана с поведением его магнитной подсистемы.

## 2. Модель

Тот факт, что аномалия теплового расширения наблюдается в различных соединениях в момент прохождения  $\lambda$ -точки  $\text{He}^4$ , причем только при повышении температуры, позволяет сделать вывод о том, что важную роль играет изменение физических свойств среды, т. е. жидкого гелия. Как известно [2], при уменьшении температуры ниже  $T_\lambda$  теплопроводность  $\text{He}^4$  возрастает  $\sim$  в  $10^7$  раз в пределах малого температурного интервала  $\sim 10^{-3} \text{ K}$ . Поэтому в момент прохождения  $\lambda$ -точки

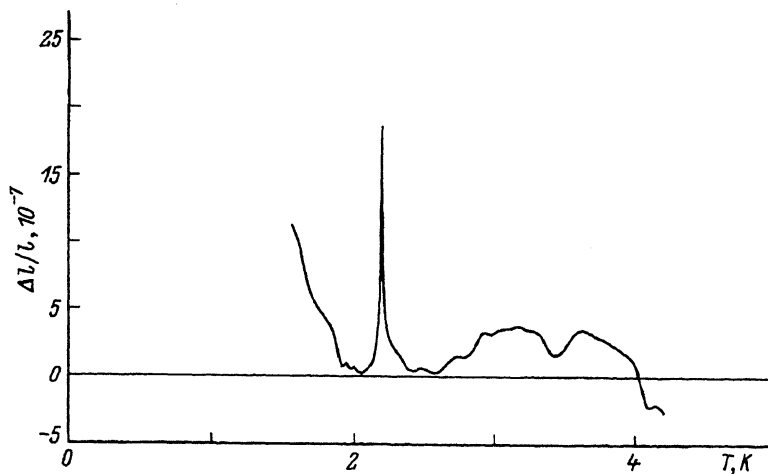


Рис. 2. Тепловое расширение монокристалла  $YAlO_3$  вдоль  $c$ -оси.

(снизу вверх) изменяются условия теплообмена, и все джоулево тепло, выделяемое в тензодатчике на образце и ранее обводимое жидким гелием, в виде своеобразного «теплого удара» подается на образец. Часть мощности забирает фоновая подсистема, приводя к повышению температуры  $DyAlO_3$  (отрицательный скачок теплового расширения на кривой 2 на рис. 1). Аналогичного вида аномалии наблюдались и для всех других исследованных соединений, причем знак и величина  $\delta$ -образного скачка определяются коэффициентом теплового расширения данного образца вдоль направления измерения. Для  $YAlO_3$  размеры и форма монокристалла позволили измерить тепловое расширение вдоль оси  $c$  (рис. 2), аномалия для этого направления отличается знаком, но качественно имеет аналогичный характер. Дальнейшее резкое возрастание теплового расширения  $DyAlO_3$  (кривая 2 на рис. 1) естественно приписать вкладу от магнитной подсистемы. Действительно, эта часть аномалии всех исследованных соединений имеется только при наличии магнитной подсистемы, причем такой характерный вид, как на кривой 2 (рис. 1), она имеет для всех изинговских систем.

При  $T > 2.18\text{ K}$  происходит постепенное уменьшение отклонения размеров образца от исходного (при  $T = 4.2\text{ K}$ ) значения, обусловленное тем, что для основного дублета  $|\pm 15/2\rangle$  изинговского иона  $Dy^{3+}$  излучательные переходы практически запрещены и времена спин-решеточной релаксации при этих температурах сравнительно велики.<sup>1</sup>

Убедительное доказательство изменения состояния магнитной подсистемы изинговского магнетика при воздействии «теплого удара» в  $\lambda$ -точке жидкого гелия было получено при измерении магнитострикции монокристалла  $TbAlO_3$  (рис. 3). На этом рисунке представлены изотермы продольной магнитострикции  $TbAlO_3$  (измеренные при  $T = 2.34\text{ K}$ ) при воздействии магнитного поля вдоль  $a$ -оси кристал-

<sup>1</sup> О затрудненности процессов релаксации в изинговских магнетиках свидетельствуют также наши результаты по аномальному магнетокалорическому эффекту в  $DyFeO_3$  [3].

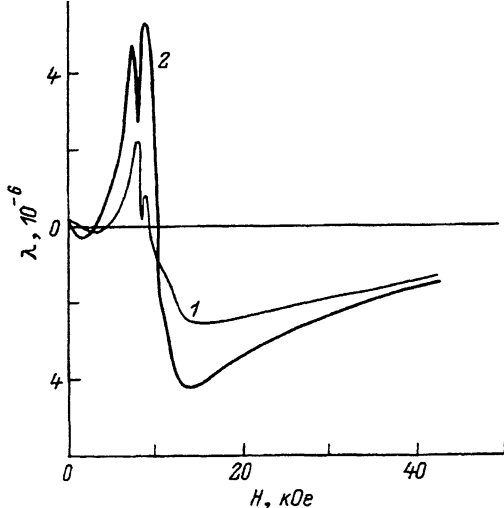


Рис. 3. Продольная магнитострикция монокристалла  $TbAlO_3$  вдоль  $a$ -оси кристалла.  $T = 2.34$  К.

ла. Характерная положительная аномалия с центром вблизи  $\sim 7$  кОе обусловлена индуцируемым магнитным полем метамагнитным переходом  $G_x A_y \rightarrow C_y F_x$  [4]. Кривая 1 соответствует термодинамически равновесному состоянию кристалла, тогда как кривая 2 измерена после воздействия на образец «теплового удара». Видно, что характер кривой качественно не изменился, однако величина аномалии значительно ( $\sim$  в 2 раза) возросла. Отсутствие достоверных данных о расщеплении кристаллическим полем основного мультиплета иона  $Tb^{3+} \ ^7F_6$  в  $TbAlO_3$ , а также неопределенные до настоящего времени магнитоупругие коэффициенты и упругие податливости  $TbAlO_3$  не позволяют сделать однозначных заключений о вызванных «тепловым ударом» изменениях состояния магнитной подсистемы образца, однако факт такого воздействия можно считать экспериментально установленным.

Для описания обнаруженных аномалий теплового расширения в изинговских магнетиках может быть предложена следующая качественная модель. В рассматриваемой области температур теплоемкость фононной подсистемы убывает  $\sim T^3$  и, как показывают оценки, может быть существенно ниже теплоемкости магнитной подрешетки ионов  $Dy^{3+}$ . Таким образом, после прохождения  $\lambda$ -точки тепло, ранее эффективно отводимое жидким гелием, начинает поглощаться преимущественно магнитной подрешеткой  $DyAlO_3$ , возбуждая последнюю. Как известно (см., например, [5]), вклад редкоземельной подсистемы в тепловое расширение является квадрупольным эффектом, т.е. он может быть представлен в виде линейной комбинации тепловых средних от квадрупольных моментов редкоземельного иона  $\hat{Q}_{ij} = a_j \left[ \frac{1}{2} (\hat{J}_1 \hat{J}_j + \hat{J}_j \hat{J}_1) - \frac{1}{3} J(J+1) \delta_{ij} \right]$ , где  $a_j$  — параметр Стевенса,  $\hat{J}$  — оператор углового момента иона  $Dy^{3+}$ . Изменение знака теплового расширения можно объяснить, если считать, что в магнитной подсистеме вследствие возбуждения происходят перераспределение насе-

ленностей основного дублета крамерсова иона  $Dy^{3+}$ , расщепленного ниже  $T_N \simeq 3.52$  К за счет  $R-R$ -взаимодействия, а также, возможно, частичное заселение более высоких энергетических уровней. Численные расчеты квадрупольных компонент иона  $Dy^{3+}$  в  $DyAlO_3$  для параметров кристаллического поля, определенных в нашей работе [6], и обменных полей [6,7] дают разнообразные температурные зависимости квадрупольных компонент ионов  $Dy^{3+}$ , находящихся в двух неэквивалентных позициях кристалла (в том числе и немонотонные, что не редкость в области температур, близких к гелиевым, для редкоземельных оксидов с низкой симметрией окружения редкоземельного иона). При этом оказывается возможным сконструировать их линейную комбинацию, которая имела бы температурную зависимость, отражающую экспериментально наблюдавшееся изменение теплового расширения. Более детальное описание температурной зависимости теплового расширения дать затруднительно, так как для  $DyAlO_3$  неизвестны ни магнитоупругие коэффициенты, ни упругие податливости.

Нами было также исследовано влияние магнитного поля на поведение теплового расширения  $DyAlO_3$ . Измерения в случае поля, приложенного вдоль оси  $b$ , показали, что влияние поля на величину и характер аномалии незначительно до полей  $\sim 10$  кОе. Поскольку поле метамагнитного перехода для этого направления составляет  $\sim 6$  кОе (при  $T \sim 2$  К) [1], мы делаем вывод о том, что обнаруженная нами аномалия теплового расширения не связана с существованием магнитной структуры и процессами намагничивания. В поле 28 кОе аномалия уменьшается на  $\sim 30\%$ . Численные расчеты полевых зависимостей квадрупольных компонент иона  $Dy^{3+}$  подтверждают такое поведение.

Представляется весьма вероятным, что образец при прохождении жидкого гелия через  $\lambda$ -точку является своеобразным генератором звуковых колебаний достаточно высокой частоты, поскольку характерный параметр, определяющий динамику процесса, достаточно велик  $\left| \frac{\partial \chi}{\partial T} \right| \sim 10^{10}$  (возможно, эти звуковые колебания также участвуют в возбуждении магнитной подсистемы).

Таким образом, мы считаем, что наблюдаемая в изинговских магнетиках аномалия теплового расширения, обусловленная изменением условий теплообмена вследствие скачка теплопроводности жидкого гелия при переходе из сверхтекучего состояния в нормальное, связана с переходом системы в метастабильное состояние, которое образуется под действием «теплового удара». Это состояние характеризуется тем, что кристаллическая решетка и магнитная подсистема не находятся в тепловом равновесии. Действительно, температура решетки равна  $\simeq 2.2$  К, тогда как магнитная подсистема имеет значительно более высокую эффективную температуру (изменение населенности основного дублета и возникновение населенности возбужденных уровней). Для выяснения механизма образования этого состояния было бы весьма полезно произвести спектроскопические и иные исследования. Медленная релаксация к основному состоянию свидетельствует о том, что время жизни метастабильного состояния может быть достаточным для таких исследований.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект №95-02-04806-А).

### Список литературы

- [1] Holmes L.M., Van Uitert L.G., Hecker R.R., Hull G.W. *Phys. Rev.* **B5**, 138 (1972).
- [2] Кеезом В.В. Гелий. М. (1949) (Amsterdam (1942)).
- [3] Крынецкий И.Б., Сивипын Е.В. *ФТТ* **31**, 5, 309 (1989).
- [4] Крынецкий И.Б., Матвеев В.М. 17 Всесоюз. конф. по физике магнитных явлений. Тез. докл. Донецк (1985). С. 358.
- [5] Morin P., Schmitt D. In: *Handbook on Ferromagnetic Materials* / Ed. E.P. Wohlfarth, K.H.J. Buschow North-Holland. Amsterdam (1990). V. 5. P. 30; Kolmakova N.P., Levitin R.Z., Orlov V.N., Snegirev V.V. *J. Magn. Magn. Mater.* **87**, 218 (1990).
- [6] Kolmakova N.P., Krynetskii I.B., Lukina M.M., Mukhin A.A. *Phys. Stat. Sol. (b)* **159**, 845 (1990).
- [7] Schuchert H., Hufner S., Faulhaber R. *Z. Phys.* **222**, 105 (1969).