

МАГНИТНОЕ УПОРЯДОЧЕНИЕ ПОДРЕШЕТКИ Dy^{3+} В ТЕТРАГОНАЛЬНОМ МОНОКРИСТАЛЛЕ $DyBa_2Cu_3O_{6.2}$

В. П. Дьяконов, Э. Е. Зубов, Л. П. Козеева, Г. Г. Левченко,
В. И. Маркович, А. А. Павлюк, И. М. Фита

УДК 537.312.62+538.945+548 : 537.611.45

© 1992

Экспериментально исследовано магнитное упорядочение ионов Dy^{3+} в тетрагональном монокристалле $DyBa_2Cu_3O_{6.2}$. Измерена восприимчивость в направлениях \parallel и \perp оси C кристалла в нулевом и внешнем магнитном поле до 15 кЭ при низких температурах до 0.05 К. Данные восприимчивости указывают на сложную неколлинеарную магнитную структуру моментов Dy при $T \sim 0$, фазовый переход по полю наблюдается в обоих направлениях (как вдоль, так и \perp оси C); таким образом, магнитное поведение подрешетки Dy отлично от просто изинговского, как интерпретировалось поведение керамики $DyBaCuO$. Установлена магнитная $T-H$ фазовая диаграмма $DyBa_2Cu_3O_{6.2}$.

В керамических образцах $DyBa_2Cu_3O_{7-x}$ ниже $T_N=0.95$ К имеет место антиферромагнитное упорядочение моментов Dy^{3+} вдоль кристаллической C -оси [1], причем температура Нееля практически совпадает в орторомбической и тетрагональной структурных фазах [2]. Намагниченность системы ионов Dy при низких температурах не достигает насыщения даже в полях ~ 300 кЭ [3], что свидетельствует о наличии сильной анизотропии, возникающей, видимо, вследствие сильного расщепления мультиплета ${}^6H_{15/2}$ в кристаллическом поле [4]. Согласно данным измерений теплоемкости [5], парамагнитной релаксации Dy^{3+} (и в орто-, и тетрафазах) [2], спектров нейтронного рассеяния [4], расстояния между возбужденным и нижним крамерсовским дублетами составляет ~ 40 К; таким образом, при очень низких температурах в основном состоянии находится сильноанизотропный дублет, определяющий изинговское поведение системы спинов [6]. Характерный для изинговской системы метамгнитный фазовый переход АФМ \rightarrow ФМ при $T < T_N$ во внешнем магнитном поле исследован в работах [7, 8] на тетрагональной керамике $DyBa_2Cu_3O_{7-x}$ (переход АФМ \rightarrow ФМ здесь имеет место лишь в тех кристаллитах образца, ось C которых ориентирована по полю). Гидростатическое давление до 8 кбар не изменяет характер магнитного упорядочения и топологию магнитной $T-H$ фазовой диаграммы $DyBa_2Cu_3O_{7-x}$ [9].

Перечисленные здесь экспериментальные результаты получены на керамических образцах. В настоящей работе с целью изучения характера магнитного упорядочения впервые исследованы температурные и полевые зависимости восприимчивости монокристалла $DyBa_2Cu_3O_{6.2}$ в направлениях вдоль и перпендикулярно оси C при низких температурах до 0.05 К.

Объемные монокристаллы $DyBa_2Cu_3O_{7-x}$ выращивались из раствора в расплаве $CuO-BaO$ эвтектического состава из стандартных алундовых тиглей. В выращенных кристаллах при температурах ниже 30 К наблюдался слабый диамагнитный отклик восприимчивости, который маскировал парамагнитную восприимчивость Dy^{3+} . Диамагнетизм устранялся посредством термической обработки образца, и в результате его кислородный индекс составлял ~ 6.2 .

Исследуемый образец имел форму диска $\varnothing 1.8$ мм толщиной 1.3 мм. Согласно рентгеноструктурным измерениям, исследуемый монокристалл $\text{DyBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.2}$ имел тетрагональную структуру с осью C , направленной перпендикулярно плоскости образца.

Магнитные измерения проводились в рефрижераторе растворения $^3\text{He}-^4\text{He}$ [10], в котором температура стабилизировалась в диапазоне 4.2—0.05 К при помощи нагревателей и термометров сопротивления ТСУ ВНИИФТРИ

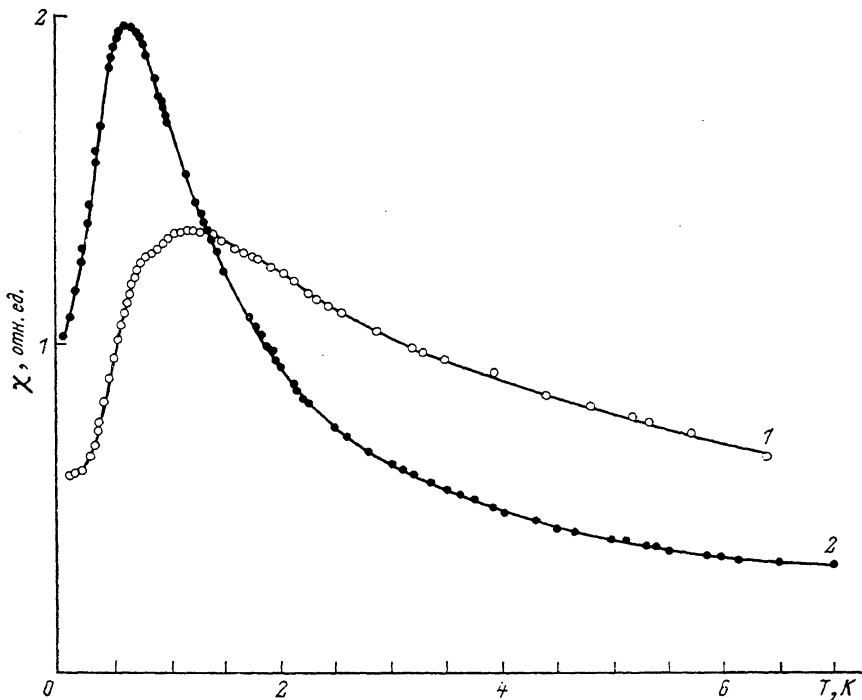


Рис. 1. Температурная зависимость восприимчивости монокристалла $\text{DyBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.2}$ в направлениях $\parallel C$ (1) и $\perp C$ (2), измеренная в нулевом поле ($\tilde{h} \sim 2$ Э, $f=300$ Гц).

и Speer 200 Ом, а в диапазоне 30—4.2 К — дрейфовала с заданной скоростью в режиме охлаждения. В эксперименте использовался индукционный метод измерения восприимчивости на переменном токе. Измерительное поле \tilde{h} ($f=300$ Гц, $h_0 \sim 2$ Э) совпадало по направлению с полем сверхпроводящего соленоида H . Образец ориентировался так, что магнитное поле было направлено по нормали к плоскости образца (\parallel оси C) или вдоль его плоскости (\perp оси C).

На рис. 1 представлена температурная зависимость восприимчивости $\text{DyBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.2}$, измеренная в нулевом поле $H=0$ в направлениях вдоль и перпендикулярно оси C . Восприимчивость оказывается существенно анизотропной. В температурной области 7.5—2.5 К восприимчивость следует закону Кюри—Вейсса $\chi=C/(T-\Theta)$ с константами $\Theta_{\parallel} \approx -3.9$, $\Theta_{\perp} \approx -1.3$ К, которые значительно отличаются от значения $\Theta=-8$ К, полученного для керамического образца [7]. Неожиданностью является сильное возрастание компоненты χ_{\perp} при низких температурах. Так, ниже 4 К изменение χ_{\perp} в 3 раза превышает изменение χ_{\parallel} , а ниже 1 К величина χ_{\perp} больше χ_{\parallel} . Наблюдаемое поведение компонент $\chi_{\parallel}(T)$ и $\chi_{\perp}(T)$ отлично от температурной зависимости восприимчивости керамического образца $\text{DyBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$, которая показывает довольно острый максимум при $T_N=0.95$ К [2, 7]. Широкий максимум при $T \sim 1.2$ К на кривой $\chi_{\perp}(T)$ можно интерпретировать как проявление квазидвумерного

характера магнитного упорядочения подрешетки Dy^{3+} (заметим, что подобный максимум χ_{\parallel} в районе ~ 2.6 К наблюдался в антиферромагнетике $GdBa_2Cu_3O_{7-x}$ с $T_N = 2.2$ К [11]). Происхождение максимума χ_{\perp} при ~ 0.62 К неясно; возможно, он связан с переходом в новую низкотемпературную неколлинеарную АФМ фазу (с появлением в базисной плоскости магнитного момента). Во всяком случае аномально большая величина поперечной восприимчивости χ_{\perp} при низких температурах свидетельствует о непригодности здесь простой модели Изинга, которая успешно использовалась для описания магнитных свойств керамики $DyBa_2Cu_3O_{7-x}$.

Сложную магнитную структуру моментов Dy^{3+} демонстрируют полевые зависимости $\chi_{\parallel}(H)$ и $\chi_{\perp}(H)$ (рис. 2), измеренные при 0.06 К. Когда поле H

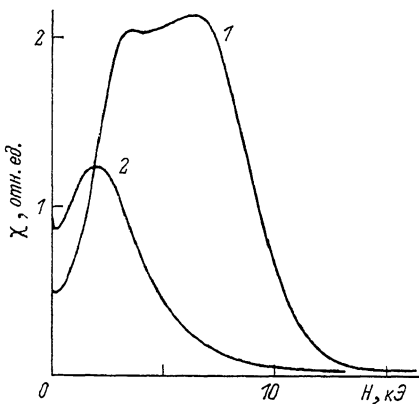


Рис. 2. Полевые зависимости восприимчивости $DyBa_2Cu_3O_{6.2}$ в направлениях $\parallel C$ (1) и $\perp C$ (2) при $T=0.06$ К.

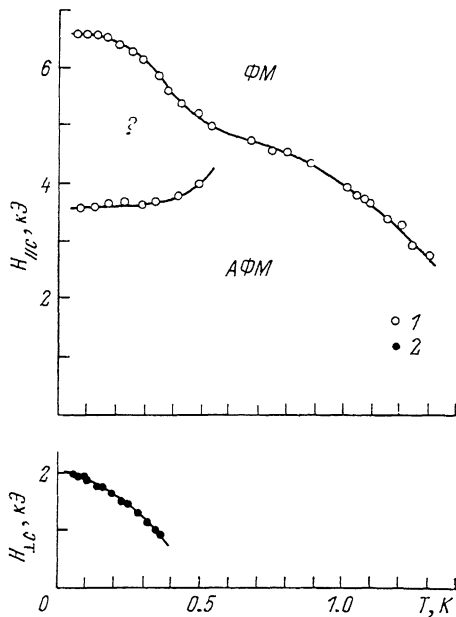


Рис. 3. Магнитная $T-H$ диаграмма $DyBa_2Cu_3O_{6.2}$.

1 — фазовый переход при ориентации магнитного поля $H \parallel C$, 2 — при ориентации $H \perp C$.

приложено вдоль оси C (кривая 1), восприимчивость при $H > 1$ кЭ возрастает, как обычно, в антиферромагнетике в направлении легкой оси и уменьшается до нуля при насыщении намагниченности в ферромагнитной фазе. Переход в ФМ фазу проходит через два фазовых перехода, на что указывают два максимума на $\chi_{\parallel}(H)$. Заметим, что нет оснований интерпретировать переход в ФМ фазу как обычный метамагнитный ФП I рода через промежуточное состояние, поскольку восприимчивость не достигает постоянной максимальной величины $1/4\pi N$ (N — размагничивающий фактор образца) и с понижением температуры возрастает в районе поля фазового перехода. В направлении \perp оси C восприимчивость χ_{\perp} также имеет максимум (но в меньшем поле ~ 2 кЭ) и уменьшается с дальнейшим ростом H более медленно, чем χ_{\parallel} .

Кривые $\chi_{\parallel}(H)$ и $\chi_{\perp}(H)$ (рис. 2) дают представление о намагничивании $DyBa_2Cu_3O_{6.2}$ в направлениях \parallel и \perp оси C при $T \approx 0.06$ К (намагниченность

в поле H оценивается как $\int_0^H \chi dH$ при условии, что χ изотермическая). Так,

если поле величиной ~ 15 кЭ направлено вдоль оси C , продольная намагниченность M_{\parallel} уже близка к намагниченности насыщения, а при ориентации этого поля \perp оси C величина M_{\perp} значительно меньше. Отсюда следует, что ось C действительно является легкой осью для спинов Dy^{3+} , несмотря на пре-

обладание χ_{\perp} при низких температурах (рис. 1). Соотношение величин M_{\perp} и M_{\parallel} указывает на существенно неколлинеарную магнитную структуру Dy^{3+} при $T \sim 0$; следовательно, АФМ упорядочение в $DyBa_2Cu_3O_{6.2}$ значительно сложнее, чем просто изинговское. Отметим, что описанные здесь особенности на полевых зависимостях $\chi_{\parallel}(H)$ и $\chi_{\perp}(H)$ в точности наблюдались и на монокристаллах $DyBa_2Cu_3O_{7-\sigma}$, выращенных в виде тонких пластинок (толщиной ~ 0.15 мм). Это обстоятельство, а также отсутствие двойников в исследуемом образце придают уверенность в достоверности экспериментальных данных.

Температурная зависимость полей максимумов $\chi_{\parallel}(H)$ и $\chi_{\perp}(H)$ отображена на $T-H$ плоскости (рис. 3): точки 1 соответствуют направлению \parallel оси C , точки 2 — $\perp C$. Из $T-H$ диаграммы видно, что сложная магнитная структура существует лишь при $T < 0.5$ К: в этой области температур имеет место фазовый переход, когда $H \perp C$, и наблюдаются две фазовые границы при ориентации $H \parallel C$. При температурах выше 0.5 К вплоть до 1.3 К на зависимости $\chi_{\parallel}(H)$ имеется лишь один максимум, соответствующий переходу АФМ \rightarrow ФМ. Тот факт, что максимум на $\chi_{\parallel}(H)$ существует и при $T > T_N$, не вызывает удивления, поскольку подобное поведение мы наблюдали уже в $GdBa_2Cu_3O_{7-\sigma}$ [11]; возможно, это есть проявление флуктуаций магнитного порядка при $T \sim T_N$ в этих квазидвумерных кристаллах.

Отметим корреляцию температуры максимума $\chi_{\perp}(T)$, температуры раздвоения линии максимумов $\chi_{\parallel}(H)$ и температуры появления максимума на $\chi_{\perp}(H)$. Это позволяет предполагать, что при $T < 0.5$ К на АФМ порядок в $DyBa_2Cu_3O_{6.2}$ накладывается другой магнитный порядок, который и приводит к наблюдаемой в эксперименте неколлинеарности магнитных подрешеток. Природа такого поведения, возможно, связана со свойствами самого иона Dy^{3+} . Сильное расщепление в кристаллическом поле мультиплета основного состояния с орбитальным моментом $L \neq 0$ может приводить к существованию заметного негейзенберговского обмена (например, антисимметричного или биквадратичного обмена) [12], что значительно усложняет магнитное поведение кристалла. Расщепление мультиплета ${}^6H_{1/2}$ может быть причиной и структурного фазового перехода при 2.3 К, обнаруженного нами ранее в $DyBa_2Cu_3O_{7-\sigma}$ [7]. На существование дополнительных обменных членов в гамильтониане может указывать и значительное отличие парамагнитной температуры Θ от температуры Нееля.

Однако для выяснения столь сложного характера магнитного упорядочения в $DyBa_2Cu_3O_{6.2}$ необходимы другие эксперименты для идентификации магнитных фаз, обозначенных на $T-H$ диаграмме на основании данных восприимчивости.

Работа поддерживается Научным советом по проблеме ВТСИ и выполнялась в рамках проекта № 619 Государственной программы «Высокотемпературная сверхпроводимость».¹

Список литературы

- [1] Fischer P., Kakurai K., Steiner M., Clausen K. N., Lehech B., Hulliger F., Ott H. R., Bruech P., Unternahrer P. // Physika C. 1988. V. 152. N 1. P. 145—153.
- [2] Hodges J. A., Imbert P., Marimon da Cuncha J. B., Hammann J., Vincent E., Sanchez J. P. // Physika C. 1988. V. 156. N 1. P. 143—156.
- [3] Noguchi S., Okuda K., Sugiyama K., Yamaguchi A., Date M. // Physika B. 1989. V. 155. P. 182—185.
- [4] Allenspach P., Furrer A., Hulliger F. // Phys. Rev. B. 1989. V. 39. N 4. P. 2226—2232.
- [5] Dunlap B. D., Slaski M., Hinks D. G., Soderholm L., Bena M., Zhang K., Segre C., Grabtree G. W., Kwok W. K., Malik S. K., Schuller I. K., Jorgenson J. D., Sugaila A. // J. Magn. and Magn. Mat. 1987. V. 68. N 2. P. 139—144.
- [6] Dirken M. W., de Jongh L. J. // Sol. St. Commun. 1987. V. 64. N 9. P. 1201—1202.

¹ Авторы выражают благодарность М. А. Оболенскому за предоставление монокристаллических пластинок $DyBaCuO$.

- [7] Дьяконов В. П., Левченко Г. Г., Маркович В. И., Свистунов В. М., Фита И. М. // СФХТ. 1990. Т. 3. № 7. С. 90—96.
- [8] Левченко Г. Г., Маркович В. И., Свистунов В. М., Фита И. М. // ФТТ. 1990. Т. 32. № 2. С. 620—622.
- [9] Дьяконов В. П., Левченко Г. Г., Маркович В. И., Фита И. М. // ФТТ. 1990. Т. 32. № 11. С. 3443—3445.
- [10] Дьяконов В. П., Фита И. М. // ПТЭ. 1984. № 6. С. 238.
- [11] Dyakonov V. P., Zubov E. E., Kozeeva L. P., Levchenko G. G., Markovich V. I., Pavlyuk A. A., Fita I. M. // Physika S. 1991. V. 178. N 1—3. P. 221—224.
- [12] Нагаев Э. Л. Магнетики со сложными обменными взаимодействиями. М., 1988. 232 с.

Донецкий физико-технический институт
АН Украины

Поступило в Редакцию
27 августа 1991 г.
