

УДК 537.312.62 + 538.945 + 548 : 537.611.45

© 1992

## МАГНИТНАЯ АНИЗОТРОПИЯ ПРИ СТРУКТУРНОМ ФАЗОВОМ ПЕРЕХОДЕ В МОНОКРИСТАЛЛЕ $\text{DyBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.2}$

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

Экспериментально изучены магнитные свойства монокристалла  $\text{DyBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  тетрагональной модификации. В области температур около 2.4 К на температурных зависимостях параллельной  $\chi_{\parallel}$  и перпендикулярной  $\chi_{\perp}$  (относительно оси С) восприимчивости обнаружены скачки, соответствующие структурному фазовому переходу. Исследованные полевые зависимости температуры перехода и скачка восприимчивости существенно различаются для разных кристаллографических направлений.

При изучении магнитных и электрических свойств керамических образцов  $\text{Dy}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  ( $\delta \approx 1$ ,  $0.7 \leq x \leq 1.0$ ) при температуре  $T_{\text{п}} \approx 2.2\text{—}2.4$  К были обнаружены скачки на температурной зависимости магнитной восприимчивости в магнитном поле и изломы на кривых зависимости электросопротивления и магнитосопротивления от температуры [1, 2]. Скачок восприимчивости  $\chi(T_{\text{п}})$  с ростом магнитного поля становился четко выраженным, достигая максимального значения в поле  $H \approx 7\text{—}8$  кЭ.

Существенное сходство в поведении  $\chi(T_{\text{п}})$   $\text{Dy}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  и соединений  $\text{DyAsO}_4$ ,  $\text{DyVO}_4$  [3, 4],  $\text{Dy}_x\text{Y}_{1-x}\text{VO}_4$  и  $\text{Dy}_x\text{Gd}_{1-x}\text{VO}_4$  [4, 5] позволило сделать предположение о том, что наблюдаемые особенности  $\chi(T_{\text{п}})$  связаны со структурным фазовым переходом (СФП), обусловленным кооперативным эффектом Яна—Теллера (КЭЯТ).

Температурный гистерезис на зависимости  $\chi(T_{\text{п}})$  в окрестности  $T_{\text{п}}$  и скачки на термограммах свидетельствуют о том, что обнаруженный СФП является фазовым переходом первого рода.

К сожалению, несмотря на наличие в литературе данных по исследованию рассеяния нейтронов [6, 7] при низких температурах (вплоть до 170 мК), отсутствуют тщательные измерения структуры выше и ниже  $T_{\text{п}}$ , что позволило бы судить о характере структурных изменений при СФП. Отметим, что, согласно результатам измерения теплоемкости [8], парамагнитной релаксации  $\text{Dy}^{3+}$  [9], спектров рассеяния нейтронов [6] при  $T > T_{\text{п}}$ , расстояние между возбужденным и нижним крамерсовским дублетом составляет  $\sim 40$  К, т. е. в основном состоянии находится сильно анизотропный дублет и, следовательно, нет оснований для предложения и КЭЯТ. Кроме того, теплоемкость С (Т)  $\text{DyBaCuO}$  как в тетра-, так и в ортофазе не проявляет особенностей в окрестности температур вблизи  $T_{\text{п}} \approx 2.4$  К [8, 10–12].

Перечисленные выше экспериментальные результаты по исследованию  $\text{DyBaCuO}$  были получены на керамических образцах. В настоящей работе с целью изучения характера СФП в  $\text{DyBaCuO}$  были исследованы температурные зависимости магнитной восприимчивости монокристалла  $\text{DyBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.2}$  в направлениях вдоль и перпендикулярно оси С.

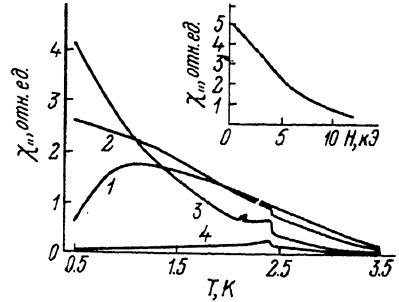
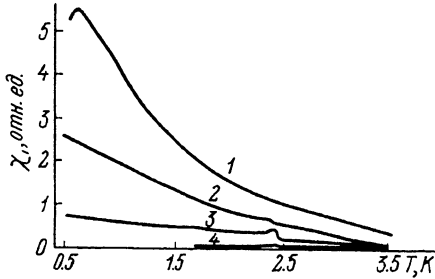


Рис. 1. Температурная зависимость магнитной восприимчивости монокристалла  $\text{DyBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.2}$  в постоянном магнитном поле  $H \perp C$ .

$H$ , кЭ: 1—0, 2—2.0, 3—5.0, 4—7.2.

Рис. 2. Температурная зависимость магнитной восприимчивости монокристалла  $\text{DyBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.2}$  в постоянном магнитном поле  $H \parallel C$ .

$H$ , кЭ: 1—0, 2—3.3, 3—7.2, 4—12. На вставке показана полевая зависимость магнитной восприимчивости  $\chi_{\parallel}$  при  $T = 4.2$  К.

Объемные монокристаллы  $\text{DyBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$  выращены из раствора в расплаве  $\text{CuO}-\text{BaO}$  эвтектического состава в стандартных алундовых тиглях. В выращенных монокристаллах при  $T < 30$  К наблюдался диамагнитный отклик восприимчивости, который препятствовал измерению парамагнитной части восприимчивости. Диамагнетизм был устранен с помощью термической обработки образца, в результате чего его кислородный индекс составлял  $\approx 6.2$ . Исследуемый образец имел форму диска  $\varnothing \approx 2$  мм толщиной  $\approx 1.5$  мм. Проведенные рентгеноструктурные измерения показали, что исследуемый монокристалл имел тетрагональную структуру, направление оси  $C$  было перпендикулярно плоскости образца.

Измерения магнитной восприимчивости проводились в кристате  $\text{He}^3$  в диапазоне температур 0.5—4.2 К и магнитных полей  $0 \leq H < 20$  кЭ. В эксперименте использовался индукционный метод измерения магнитной восприимчивости на переменном токе. Направление измерительного поля  $\vec{h}$  ( $f = 300$  Гц,  $h_0 \approx 5$  Э) совпадало с полем сверхпроводящего соленоида. Образец выставлялся так, чтобы магнитное поле было направлено перпендикулярно плоскости ( $\parallel$  оси  $C$ ) или вдоль нее ( $\perp$  оси  $C$ ).

На рис. 1 и 2 представлены температурные зависимости магнитной восприимчивости, измеренной в постоянных магнитных полях в направлениях перпендикулярном оси  $C$  и параллельном ей. Восприимчивость измеряли следующим образом: при  $T \approx 4.2$  К устанавливали заданное магнитное поле, а затем компенсировали сигнал до шумов. Измеряемое значение магнитной восприимчивости равнялось разнице действительного значения при данной температуре и ее значения при  $T = 4.2$  К.

Поведение  $\chi_{\perp}(T)$  (рис. 1), в отличие от  $\chi_{\parallel}(T)$  (рис. 2), в парамагнитной области температур качественно согласуется с зависимостью  $\chi(T)$  для керамических образцов [1, 2, 13].

Зависимость  $\chi_{\parallel}(T)$  при  $H = 0$  имеет широкий максимум при  $T_{\text{max}} \approx 1.2$  К, который, по-видимому, связан с квазидвумерным характером магнитного упорядочения подрешетки  $\text{Dy}^{3+}$  (подобный ход  $\chi_{\parallel}$  с  $T_{\text{max}} \approx 2.6$  К наблюдался в антиферромагнетике  $\text{GdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$  с  $T = 2.2$  К) [14].

Происхождение максимума  $\chi_{\perp}(T)$  в нулевом поле при  $T \approx 0.60$  К остается неясным, так как переход в АФМ фазу в керамике происходит при  $T_N \approx 0.95$  К. При этом большая величина поперечной восприимчивости при низких температурах свидетельствует о неприменимости для описания магнитных свойств монокристалла  $\text{DyBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$  простой модели Изинга, успешно использовавшейся для описания магнитных свойств керамики [13].

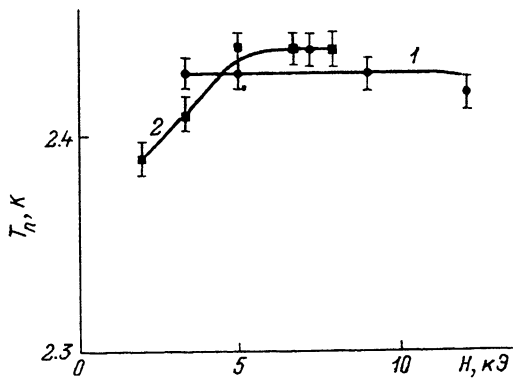


Рис. 3. Зависимость температуры перехода от магнитного поля: 1 —  $H \perp C$ , 2 —  $H \parallel C$ .

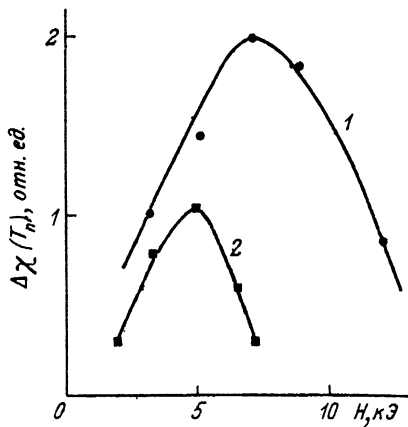


Рис. 4. Зависимость скачка магнитной восприимчивости от магнитного поля: 1 —  $\chi_{\perp}$ , 2 —  $\chi_{\parallel}$ .

Как видно из рис. 1 и 2, в монокристалле  $\text{DyBaCuO}$  при  $T \approx 2.4$  К также имеет место скачок восприимчивости, наблюдавшийся у керамических образцов [1, 2]. Однако поведение его в поле имеет некоторые отличия.

Так, скачок  $\Delta\chi_{\perp}(T_n)$  появляется лишь в поле  $H \approx 2$  кЭ при  $T = 2.39$  К (для керамических образцов при  $T = 2.2$  К), амплитуда его при увеличении магнитного поля до 5 кЭ растет, а затем уменьшается (рис. 3, кривая 1). Скачок на зависимости  $\chi_{\perp}(T)$  в полях  $H > 8$  кЭ экспериментально обнаружить не удастся. Максимальное же значение  $\Delta\chi_{\parallel}(T_n)$ , которое достигается в полях 7—8 кЭ, почти в 2 раза больше максимального значения  $\Delta\chi_{\perp}(T_n)$ .

Если рассматривать керамику как совокупность кристаллитов с произвольной ориентацией кристаллографической оси  $C$  относительно оси цилиндрического керамического образца, то общая восприимчивость керамики должна быть суперпозицией  $\chi_{\parallel}$  и  $\chi_{\perp}$ , а именно  $\chi_{\text{кер}} = 1/3 \chi_{\parallel} + 2/3 \chi_{\perp}$ . Положение  $\Delta\chi_{\text{max}}$  в керамике при  $H \approx 7-8$  кЭ [1, 2], по-видимому, обусловлено тем, что в процессе прессования давлением  $\sim 1$  ГПа возникла текстура с предпочтительной ориентацией оси  $C$  кристаллитов вдоль оси цилиндрического образца и весовой вклад  $\chi_{\parallel}$  становился существенно большим. Этим может объясняться схожесть полевой зависимости скачка восприимчивости  $\Delta\chi_{\parallel}$  в монокристалле  $\text{DyBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.2}$  и керамике.

Полевые зависимости температуры СФП  $T_n$ , как видно из рис. 4, сильно зависят от ориентации магнитного поля относительно кристаллографических осей. Если поле  $H$  направлено перпендикулярно оси  $C$ , температура  $T_n$  с ростом магнитного поля до 5 кЭ возрастает от 2.39 до 2.44 К, а при  $H = 5$  кЭ практически не изменяется. В поле  $H \parallel C$  температура  $T_n$  не зависит от поля.

В керамических образцах изменение  $T_n$  в магнитном поле качественно согласуется с зависимостью  $T_n(H)$  для монокристалла в случае, когда поле  $H \perp C$ .

При СФП изменяется структура кристаллической решетки, происходит скачок магнитной восприимчивости. Так как  $\chi_i \sim g_i^2$ , то, поскольку  $\Delta\chi_{\parallel} > \Delta\chi_{\perp}$ , скачок  $g$ -фактора  $\Delta g_{\parallel} > \Delta g_{\perp}$ . Как известно [6],  $g$ -фактор в  $\text{DyBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$  резко анизотропен,  $g_x = 0.9$ ,  $g_y = 0.6$ ,  $g_z = 7.1$ , т. е.  $g_z \gg g_x g_y$ ; изменение  $g$ -фактора при СФП также оказывается существенно анизотропным. Для получения численных значений изменения  $g$ -факторов при СФП, т. е.  $\Delta g_{\parallel}$  и  $\Delta g_{\perp}$ , необходимо проведение магниторезонансных исследований. Также необходимым представляется проведение исследования по рассеянию рентгеновских лучей или нейтронов выше и ниже  $T_n$  для образцов  $\text{DyBaCuO}$  в тетра- и ортофазах, что дало бы возможность выяснить структуру низкотемпературной фазы и построить адекватную теоретическую модель для описания СФП.

В работе [2] для керамических образцов  $\text{DyBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$  из измерений термомограмм и  $\chi(T)$  были обнаружены сильное поглощение тепла при СФП и гистерезис на температурной зависимости магнитной восприимчивости, что свидетельствовало о первом роде СФП. Такое же поведение магнитных свойств проявляется и в монокристаллических образцах  $\text{DyBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ .

Из-за сильного экранирующего эффекта что-либо сказать о проявлении СФП в монокристаллическом образце в сверхпроводящем состоянии по данным измерения магнитной восприимчивости не представляется возможным, но мы не исключаем его присутствия в сверхпроводящем образце  $\text{DyBaCuO}$ , для обнаружения которого необходимо использовать другие экспериментальные методики.

Таким образом, в работе установлено, что структурный фазовый переход 1-го рода в монокристалле  $\text{DyBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.2}$  носит анизотропный характер, выражающийся в различной зависимости от магнитного поля величин, характеризующих СФП его температуры  $T_n$  и скачка восприимчивости вдоль разных кристаллографических направлений.

Работа поддерживается Научным советом по проблеме ВТСП и выполнялась в рамках проектов № 619 и № 91203 Государственной программы «Высокотемпературная сверхпроводимость».

#### Список литературы

- [1] Дорошенко Н. А., Дьяконов В. П., Левченко Г. Г., Маркович В. И., Свистунов В. М., Фита И. М. // ФТТ. 1990. Т. 32. № 6. С. 1862—1864.
- [2] Дьяконов В. П., Левченко Г. Г., Маркович В. И., Ревенко Ю. Ф., Фита И. М. // ФТТ. 1991. Т. 33. № 6. С. 1816—1820.
- [3] Hudson R. P., Mangum B. W. // Phys. Lett. A. 1971. V. 36. N 3. P. 157—158.
- [4] Harley R. T., Hayes W., Perry A. M., Smith R. P., Elliott. P. J., Saville I. D. // J. Phys. C: Sol. State Phys. 1974. V. 7. N 17. P. 3145—3160.
- [5] Bingham D., Morgan M. J., Gashion J. D. // Sol. State Communs. 1982. V. 44. N 4. P. 517—520.
- [6] Allenpach P., Furrer A., Hulliger F. // Phys. Rev. B. 1989. V. 39. N 4. P. 2226—2232.
- [7] Fisher P., Kakurai K., Steiner M., Clausen K. N., Lebeck B., Hulliger F., Ott H. R., Bruesch P., Unternahrer P. // Physica C. 1988. V. 152. N 1. P. 145—153.
- [8] Danlap B. D., Slaski M., Hinks D. G., Soderholm L., Beno M., Zhang K., Segre C., Crabtree G. W., Kwok W. K., Malik S. K., Schuller I. K., Jorgensen J. D., Sungaila Z. // J. Magn. and Magn. Mat. 1987. V. 68. N 2. P. 139—144.
- [9] Hodges J. A., Imbert P., Marimon da Cunha J. B., Hammann J., Vincent E., Sanchez J. P. // Physica C. 1988. V. 156. N 1. P. 143—156.
- [10] Maple M. B., Dalichaouch Y., Ferreira J. M., Hake R. R., Lee B. W., Neumeier J. J., Torikachvili M. S., Yang K. N., Zhov H. // Physica B. 1987. V. 148B. P. 155—162.
- [11] Nakazawa Y., Ishikawa M., Takalatae T. // Physica B. 1987. V. 148. P. 404—407.
- [12] Ramirez A. P., Shneemeyer L. F., Waszczak J. V. // Phys. Rev. B. 1987. V. 36. N 13. P. 7145—7147.
- [13] Дьяконов В. П., Левченко Г. Г., Маркович В. И., Свистунов В. М., Фита И. М. // СФХТ. 1990. Т. 3. № 7. С. 90—96.
- [14] Dyakonov V. P., Zubov E. E., Kozeeva L. P., Levchenko G. G., Markovich V. I., Pavlyuk A. A., Fita I. M. // Physica C. 1991. V. 178. N 1—3. P. 221—224.