

Низкотемпературное квазиadiaбатическое перемангничивание редкоземельных изинговских метамагнетиков

© И.Б. Крынецкий, В.М. Матвеев*, В.В. Матвеев*

Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова,
119899 Москва, Россия

*ФГУП „Научно-исследовательский институт физических проблем им. Ф.В. Лукина“,
124460 Москва, Зеленоград, Россия

(Поступила в Редакцию в окончательном виде 26 ноября 2004 г.)

Обнаружено необычное поведение намагниченности и магнитоиндуцированных упругих деформаций редкоземельных изинговских антиферромагнетиков $DyAlO_3$ и $TbAlO_3$ при низкотемпературных метамагнитных фазовых переходах. При квазистатическом вводе и выводе внешнего магнитного поля состояние магнитной системы этих соединений изменяется вдоль совершенно различных траекторий на фазовой $H-T$ -диаграмме, а малые знакопеременные динамические вариации величины поля индуцируют обратимые „переключения“ магнитной системы между этими траекториями (с соответствующими резкими скачками намагниченности и упругих деформаций). Показано, что причиной наблюдаемых аномалий является ярко выраженный квазиadiaбатический характер процессов намагничивания в рассматриваемых соединениях. Это приводит к необходимости использования более адекватной интерпретации экспериментальных данных по измерениям намагниченности и магнитострикции изинговских антиферромагнетиков при низкотемпературных метамагнитных переходах. В экспериментальном плане квазиadiaбатическое намагничивание позволяет очень точно определять критические поля метамагнитных переходов, а также исследовать участки фазовой $H-T$ -диаграммы, соответствующие температурам, которые существенно меньше минимальной температуры гелиевой ванны и недостижимы в чисто изотермических условиях.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 02-02-16704).

1. Введение

Редкоземельные оксиды $DyAlO_3$ и $TbAlO_3$ являются четырехподрешеточными антиферромагнетиками, имеющими искаженную структуру перовскита [1]. Редкоземельные ионы в этих соединениях упорядочиваются ниже температур Нееля $T_N = 3.52\text{ K}$ ($DyAlO_3$) и $T_N = 3.8\text{ K}$ ($TbAlO_3$) в ab -плоскости кристалла, образуя антиферромагнитную (AF) структуру Γ_5 — „антиферромагнитный крест“, показанный на рис. 1, a [2,3]. При этом ионы Dy и Tb можно рассматривать как чисто изинговские ионы, оси анизотропии которых лежат в ab -плоскости под углами 57° (Dy) и 35° (Tb) к a -оси, а величины магнитных моментов близки к максимально возможным для этих ионов значениям $10\mu_B$ и $9\mu_B$ соответственно.

Наши исследования показали, что на качественном уровне поведение этих соединений в магнитном поле практически одно и то же с точностью до изменения ориентации поля на 90° (в частности, картина наблюдаемых аномалий одна и та же при $H \parallel a$ для $TbAlO_3$ и $H \parallel b$ для $DyAlO_3$). Поэтому далее речь будет идти только об ортоалюминате диспрозия (за исключением рис. 3), к которому и будут относиться все проводимые экспериментальные и теоретические результаты и для которого в действительности было выполнено наибольшее число измерений. Принимался во внимание тот факт, что ортоалюминат диспрозия — чисто дипольный модельный метамагнетик, все параметры которого точно рассчитываются и могут варьироваться путем изменения

формы кристалла [4]. Это позволяет избежать всех неопределенностей при выяснении причины наблюдаемых аномалий и их теоретической интерпретации, что являлось основной целью проведенных исследований.

В случае ортоалюмината диспрозия полное внутреннее магнитное поле H_m , действующее при нулевой температуре на магнитные моменты ионов Dy в структу-

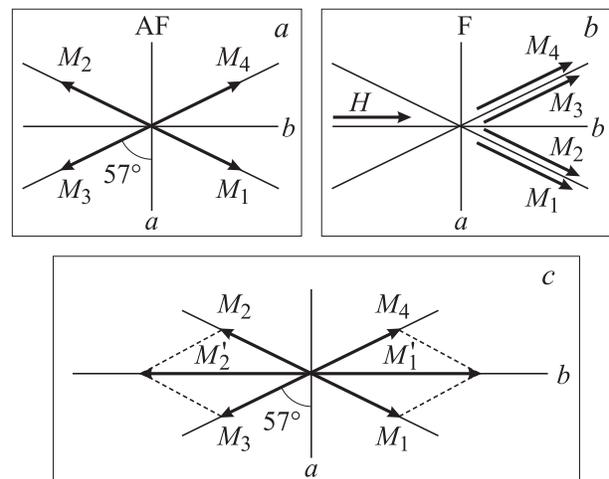


Рис. 1. Магнитные структуры ионов Dy^{3+} в ортоалюминате диспрозия. a — антиферромагнитная структура Γ_5 в нулевом магнитном поле, b — высокополевая ферромагнитная структура в поле $H > H_m / \cos 33^\circ$, приложенном вдоль оси b кристалла, c — модельная двухподрешеточная структура: $M'_1 = (M_1 + M_4) \cos 33^\circ$, $M'_2 = (M_2 + M_3) \cos 33^\circ$.

ре G_5 , равно 5.6 Т, что с высокой точностью соответствует наблюдаемой температуре Нееля $T_N = 3.5$ К [4]. Это поле рассчитывается путем прямого суммирования дипольных полей, создаваемых всеми магнитными ионами кристалла в месте расположения каждого отдельно взятого иона. Что касается величин внутри- и междодрешеточных полей H_{ij} (i, j — номера подрешеток), при расчете которых суммируются только величины дипольных полей магнитных моментов подрешетки i , действующих на каждый магнитный момент в подрешетке j , то они зависят от формы образца и могут изменяться в широких пределах вплоть до изменения знака взаимодействия в некоторой паре подрешеток (конечно, при условии постоянства величины $H_m = H_{11} + H_{12} + H_{13} + H_{14}$). Это приводит к очень сильной модификации фазовой $H-T$ -диаграммы метамагнетика. Внешнее магнитное поле, приложенное в ab -плоскости кристалла, индуцирует метамагнитные переходы (одно- или двухступенчатые) из исходной АФ-конфигурации в высокополевую ферромагнитную (F) конфигурацию [1]. Например, магнитное поле $H > H_m / \cos 33^\circ$, приложенное вдоль b -оси кристалла, приводит к одноступенчатому перемагничиванию подрешеток 2 и 3 вдоль соответствующих изинговских осей, в результате чего осуществляется метамагнитный переход к F-конфигурации с одинаково ориентированными и равными по величине магнитными моментами подрешеток 2 и 1, а также 4 и 3 (рис. 1, б).

Метамагнитные переходы в редкоземельных изинговских антиферромагнетиках исследовались различными методами [4–6], и практически всегда наблюдаемые при этих переходах изменения магнитных характеристик (намагниченности, вращающих моментов и т.д.) удавалось объяснить в рамках традиционных моделей изотермического перемагничивания двух- или четырехподрешеточного метамагнетика. При измерении полевых зависимостей упругих деформаций в DyAlO_3 (и TbAlO_3) мы впервые получили результаты, которые никак не вписывались в существующие модели изменения магнитострикции редкоземельных ионов при переходе от АФ-к F-структуре.

2. Эксперимент

Необычное поведение магнитоиндуцированных упругих деформаций при метамагнитных переходах было сначала обнаружено в серии экспериментов по измерению полевой зависимости магнитострикции ортоалюмината диспрозия при различных ориентациях внешнего магнитного поля в ab -плоскости кристалла. Измерения проводились в интервале температур 1.5–4.2 К в магнитных полях до 4 Т с целью определения величин магнитоупругих констант редкоземельных ионов. Поскольку аномальное поведение деформаций наиболее ярко проявлялось при намагничивании кристалла вдоль b -оси, в дальнейшем для максимального упрощения интерпретации экспериментальных данных использовалась именно такая симметричная ориентация поля, обеспечивающая

возможность использования двухподрешеточной модели изинговского антиферромагнетика. При этом измерения проводились на кристалле определенной формы, для которой обеспечивалось приблизительное равенство величин внутри- и междодрешеточных взаимодействий в двухподрешеточной модели, что существенно упрощает математическое описание магнитной системы и ее изменений в магнитном поле (разд. 3).

Измерения магнитоиндуцированных упругих деформаций проводились с помощью тензометрического дилатометра, работающего по мостовой схеме. Использовались проволочные тензодатчики, изготовленные из сплава с низким гальваномагнитным эффектом. Для регистрации магнитоиндуцированных деформаций в процессах ввода и вывода внешнего магнитного поля использовался двухкоординатный самописец. Скорость изменения магнитного поля, создаваемого сверхпроводящей системой, варьировалась от 0.05 до 0.5 кОе/с, максимальная величина поля составляла 4.3 Т. Чувствительность экспериментальной установки по деформации была не хуже $5 \cdot 10^{-7}$.

Измеренные кривые полевых зависимостей магнитоиндуцированных упругих деформаций вдоль b -оси кристалла DyAlO_3 при различных температурах в интервале 1.5–4.2 К представлены на рис. 2. На них были обнаружены следующие аномалии.

1) Как следует из теории (разд. 3), в двухподрешеточном изинговском антиферромагнетике при изотермическом намагничивании метамагнитный переход не может сопровождаться более чем однократным изменением знака производной магнитострикции по полю. Наши измерения показывают, что эта производная дважды меняет знак как при вводе, так и при выводе поля.

2) Кривые магнитоиндуцированных упругих деформаций, получаемые при вводе поля и его выводе, совершенно отличны друг от друга и в некоторой степени зеркально-симметричны относительно оси абсцисс. В случае TbAlO_3 эта зеркальная симметрия проявляется еще ярче (рис. 3).

3) Обращение знака изменения величины поля в любой точке как на прямой (ввод поля), так и на обратной (вывод поля) ветвях кривой магнитоиндуцированных деформаций приводит к быстрому переходу магнитной системы кристалла на другую ветвь. При этом очень малые динамические вариации величины поля (индуцируемые многократными переключениями направления изменения величины тока в соленоиде) приводят к обратимому „переключению“ деформаций.

4) При уменьшении температуры от $T = T_N$ в области упорядочения ионов Dy величины наблюдаемых аномалий сначала быстро возрастают, а затем, начиная с температуры $T \simeq 2.2$ К, так же быстро уменьшаются и при самой низкой достигнутой в наших экспериментах температуре (около 1.5 К) практически полностью исчезают.

Дополнительные эксперименты с изменением максимальной величины поля в цикле ввода-вывода (рис. 4)

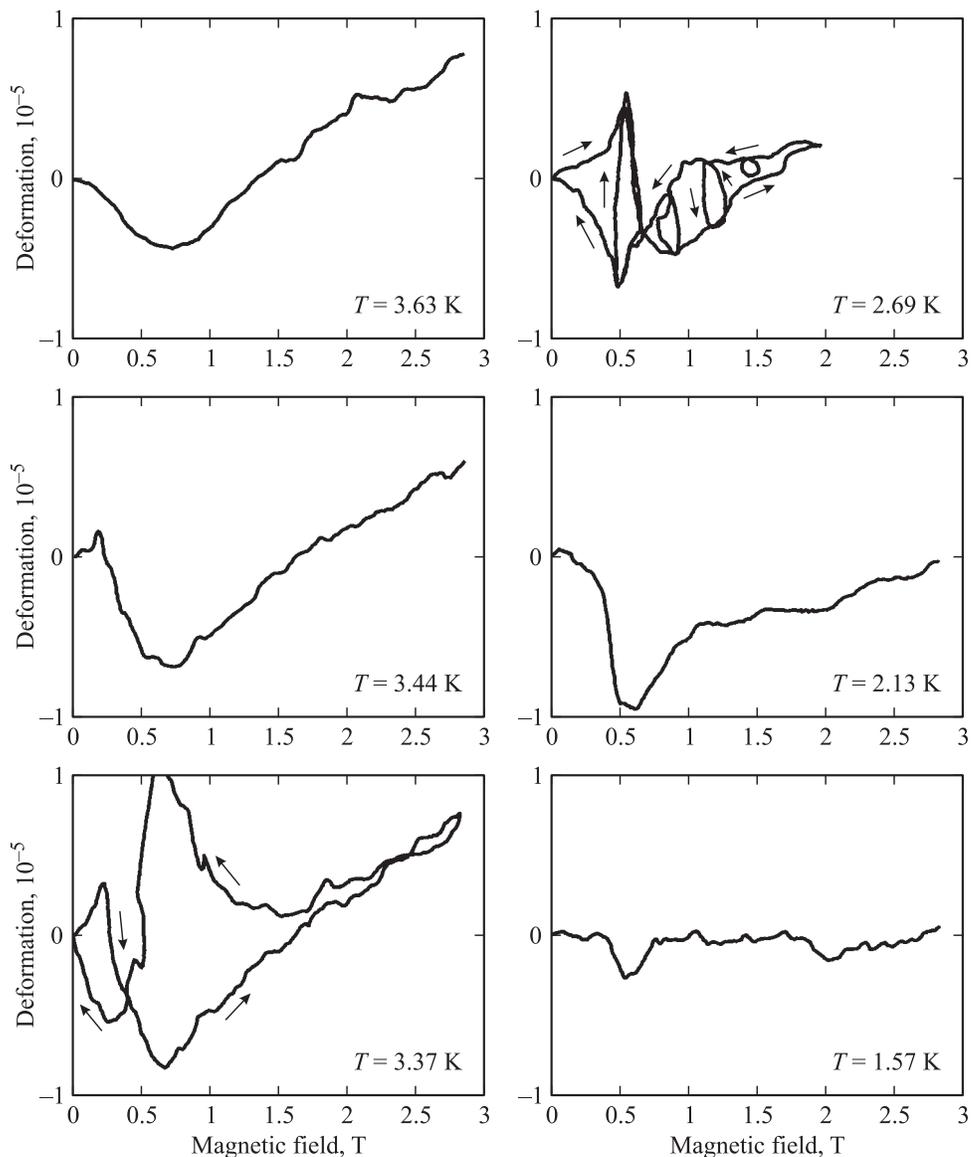


Рис. 2. Полевые зависимости магнитоиндуцированных деформаций в DyAlO_3 при разных температурах. Стрелки указывают направление процесса намагничивания (увеличение или уменьшение внешнего магнитного поля).

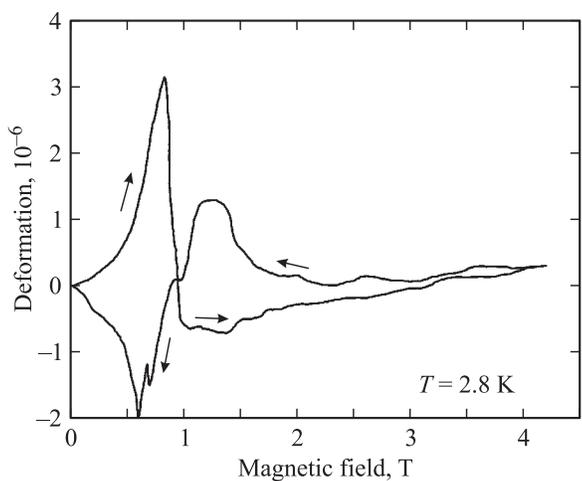


Рис. 3. Полевая зависимость магнитоиндуцированных деформаций в TbAlO_3 .

показали, что существенное различие упругих деформаций при вводе и выводе поля не связано с возможным существованием каких-либо метастабильных состояний магнитной системы. При любой максимальной величине вводимого поля (практически начиная со сколь угодно малых его значений) смена знака изменения величины этого поля, т.е. его уменьшение, сразу же переводит систему на обратную ветвь полной кривой (т.е. кривой, получающейся для максимально достижимых в эксперименте магнитных полей 4.3 Т).

Было замечено, что аналогичный эффект изменения магнитного состояния наблюдался в „жестких“ сверхпроводниках 2-го рода с сильным пиннингом [7]. Поэтому предварительная теоретическая интерпретация наблюдаемых аномалий базировалась на предположении, что природа эффекта связана с мезоскопической струк-

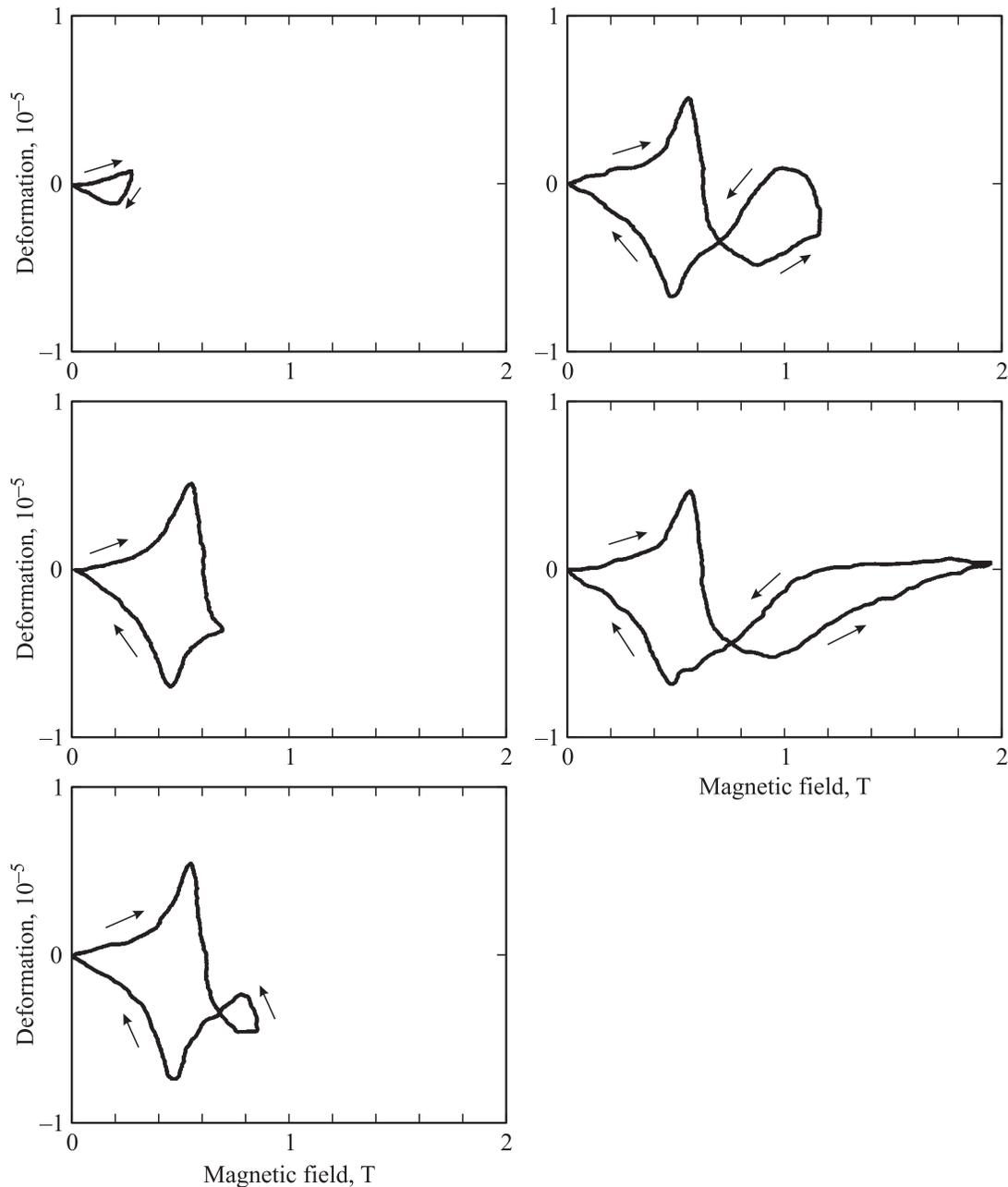


Рис. 4. Изменение магнитоиндуцированных деформаций в DyAlO_3 циклах ввода-вывода магнитного поля для различных значений величины максимального вводимого поля. Температура гелиевой ванны $T = 2.69$ К.

турой исследуемого антиферромагнитного соединения во всей области упорядочения системы изинговских ионов Dy. При этом магнитокалорический эффект всегда принимался во внимание, но возможность квазиadiaбатичности процессов намагничивания казалась невозможной, поскольку скорости ввода и вывода внешнего магнитного поля были неизмеримо меньше тех величин, которые реализуются при экспериментах в импульсных полях, когда магнитокалорический эффект действительно играет принципиально важную роль.

Выбор адекватной интерпретации обнаруженных аномалий был сделан на основании измерений кривых

намагниченности (рис. 5), а также кривых магнитоиндуцированных деформаций при различных скоростях ввода поля (рис. 6). Как видно из рис. 5, кривые намагниченности также имеют аномальный характер. Полевые зависимости намагниченности при вводе и выводе поля совершенно различны, причем как на прямой, так и обратной ветвях выделяется точка излома, в которой происходит смена характера изменения намагниченности кристалла. Например, при вводе поля намагниченность до этой точки ведет себя так, как будто она измеряется при существенно более низкой температуре, чем температура гелиевой ванны, а выше этой точки —

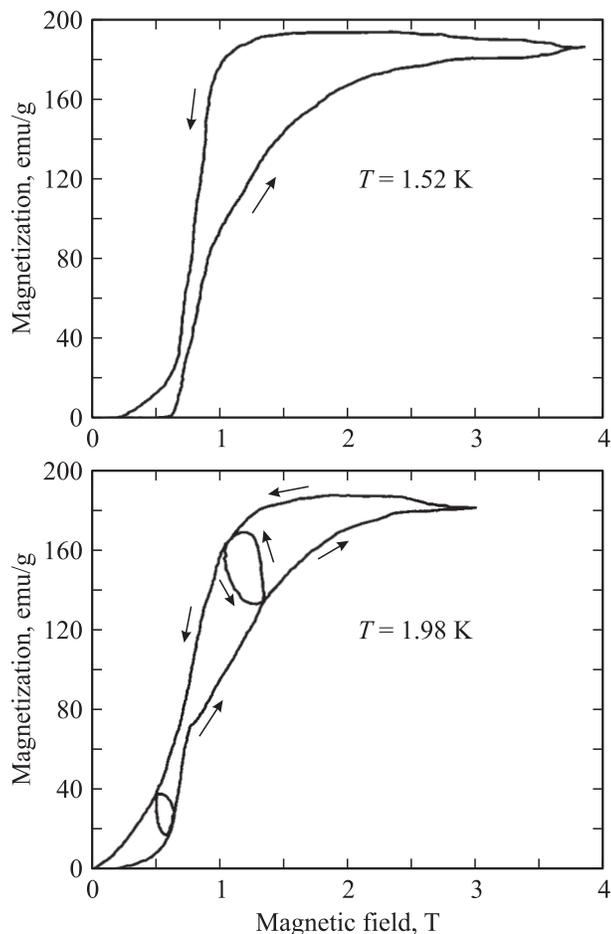


Рис. 5. Петли намагниченности DyAlO_3 в циклах ввода–вывода магнитного поля.

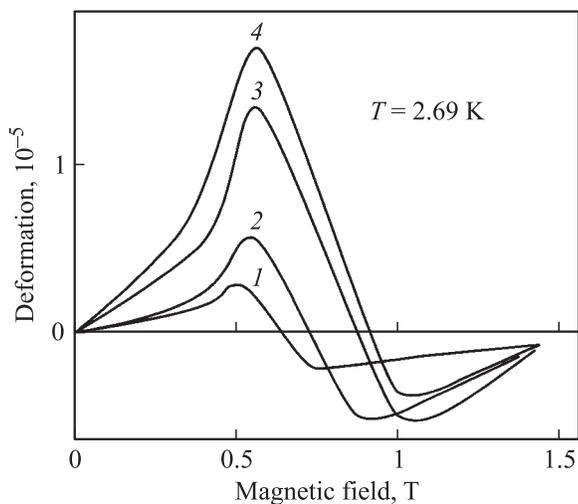


Рис. 6. Кривые магнитоиндуцированных деформаций при различных скоростях ввода поля. $dH/dt = 0.84$ (1), 1.5 (2), 4.2 (3), и 9.1 kOe/min (4).

как при значительно более высоких температурах (и как следствие ее насыщение наблюдается в полях, намного больших расчетных полей насыщения при изотермическом намагничивании кристалла). При выводе поля наблюдается обратная ситуация, причем уменьшение поля в области насыщения сначала приводит даже к небольшому увеличению намагниченности. Но самое главное, как и в случае деформационных кривых, наблюдаются „переключения“ между обратной и прямой ветвями при малых вариациях величины поля, причем уменьшение поля на прямой ветви приводит к положительному скачку намагниченности, а увеличение поля на обратной ветви — к отрицательному. Отсюда следует, что все эти процессы не являются изотермическими и должны рассматриваться как квазиadiaбатические.

Дополнительное подтверждение необходимости интерпретации наблюдаемых процессов намагничивания как квазиadiaбатических было получено при изменении зависимости кривых магнитоиндуцированных упругих деформаций при различных скоростях ввода и вывода поля. Как видно из рис. 6, увеличение скорости ввода поля, т.е. возрастание степени aдиабатичности процессов намагничивания, приводит к заметному увеличению аномалий на этих кривых (то же самое наблюдается и при выводе поля).

3. Теория

С учетом конкретной геометрии эксперимента и полученных результатов теоретическая интерпретация обнаруженных аномалий процессов намагничивания при метамагнитном переходе AF-F в изинговском антиферромагнетике DyAlO_3 основывалась на следующих предположениях.

1) Справедлива двухподрешеточная модель изинговского антиферромагнетика, в которой одна подрешетка получается путем объединения реальных подрешеток 1 и 4, а другая — подрешеток 2 и 3 (рис. 1, c). Фактически это предположение эквивалентно условию точной ориентации внешнего магнитного поля вдоль оси b кристалла, поскольку в этом случае исходная четырехподрешеточная модель ортоалюмината, диспрозия автоматически сводится к двухподрешеточной модели (при тех фактических параметрах межподрешеточных взаимодействий, которые устанавливались выбором формы образцов). Очевидно, что в двухподрешеточной модели „изинговской“ осью рассматриваемого антиферромагнетика является ось b кристалла.

2) При низких температурах магнитные ионы Dy^{3+} в ортоалюминате диспрозия можно рассматривать как двухуровневые квантовомеханические системы, поскольку основной кramerсовский дублет иона отделен от возбужденных уровней значительным энергетическим интервалом (порядка 50 cm^{-1}).

3) В силу пока еще не вполне понятного замедления передачи тепла от спиновой системы исследуемого объекта к гелию (термостату) процесс намагничивания

изинговского антиферромагнетика даже в весьма медленно изменяющемся магнитном поле является квазиadiaбатическим.

4) Существует относительно слабая тенденция приближения температуры спиновой системы к температуре гелиевой ванны, определяемая единственным эмпирическим интегральным параметром — коэффициентом теплообмена между спиновой системой и термостатом (гелиевой ванной).

5) Справедлива стандартная квантово-феноменологическая модель магнитоупругости редкоземельных ионов (см., например, [1], гл. 12).

Основываясь на предположениях (1) и (2), неравномерный термодинамический потенциал ортоалюмината диспрозия во внешнем магнитном поле $H \parallel b$ в расчете на один ион можно записать в виде [1]

$$\Phi(m_1, m_2) = \Phi_0 + \frac{1}{3} \left\{ -\frac{1}{2} \lambda_{11} M_0'^2 (m_1^2 + m_2^2) + \lambda_{12} M_0'^2 m_1 m_2 - H M_0' (m_1 + m_2) - T [S(m_1) + S(m_2)] \right\}, \quad (1)$$

где Φ_0 — немагнитная часть потенциала; $m_{1,2} = M'_{1,2}/M'_0$ — приведенные магнитные моменты подрешеток модельной двухподрешеточной системы; величины $M'_{1,2}$ определены в подписи к рис. 1; $M'_0 = M'_{1,2}(T=0)$; λ_{11} и λ_{12} — точно рассчитываемые параметры внутри- и межрешеточного взаимодействий, которые считаются положительными (ферромагнитный характер взаимодействия внутри подрешеток 1 и 2 и антиферромагнитный характер межподрешеточного взаимодействия учтен в самом термодинамическом потенциале); $S(m)$ — энтропия двухуровневой системы, определяемая хорошо известной формулой

$$S(m) = \ln 2 - \int_0^m \operatorname{arth} m \, dm = \ln 2 - \frac{1}{2} (1+m) \ln(1+m) - \frac{1}{2} (1-m) \ln(1-m). \quad (2)$$

Введем безразмерные величины ферро- и антиферромагнитного моментов $m = (m_1 + m_2)/2$ и $l = (m_1 - m_2)/2$, магнитного поля $h = H/H_m$ и температуры $t = T/T_N$, а также безразмерный параметр $\tau_c = \lambda_{11}/(\lambda_{11} + \lambda_{12})$, определяющий соотношение величин внутри- и межподрешеточного взаимодействий. Как уже отмечалось, в нашем случае $H_m = 5.6$ Т, $T_N = 3.5$ К. Поскольку $T_N = M'_0 H_m = M_0'^2 (\lambda_{11} + \lambda_{12})$, из (1) для магнитной части потенциала получаем

$$\frac{\Phi_m(m_1, m_2)}{T_N} = -mh - \frac{1}{2} (2\tau_c - 1) m^2 - \frac{1}{2} l^2 - \frac{1}{2} t [S(m+l) + S(m-l)]. \quad (3)$$

В наших экспериментах использовались образцы с $\tau_c = 0.5-0.7$. Поскольку в этом интервале значений

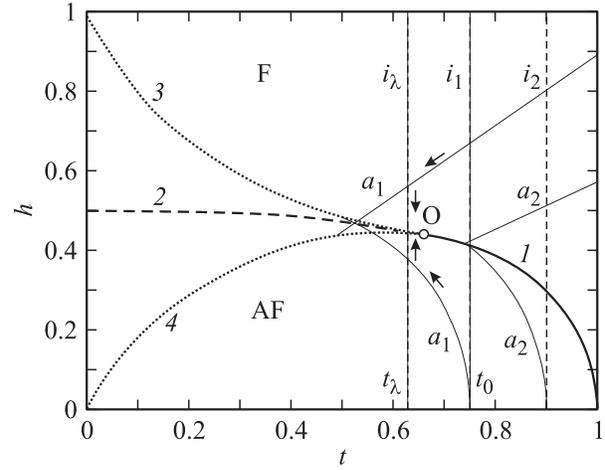


Рис. 7. Фазовая H - T -диаграмма исследуемого образца DyAlO_3 . Используются приведенные значения магнитного поля и температуры. 1 — линия фазового перехода 2-го рода; 2 — линия фазового перехода 1-го рода; 3 и 4 — линии потери устойчивости AF- и F-фазы соответственно; $i_\lambda, i_{1,2}$ — изотермы, $a_{1,2}$ — изоэнтропы (адиабаты); O — трикритическая точка; t_0 — температура гелиевой ванны; t_λ — λ -точка Не.

параметра τ_c вид фазовой H - T -диаграммы качественно не изменяется, для упрощения изложения все иллюстративные теоретические выкладки представлены далее в аналитическом виде для наиболее простого случая $\tau_c = 0.5$. При этом значении параметра τ_c второе слагаемое в термодинамическом потенциале (3) обращается в нуль. Реальные расчеты для конкретных образцов выполнялись на ПК с использованием численных методов.

При $\tau_c = 0.5$ минимизация термодинамического потенциала (3) по m и l дает следующие уравнения для определения равновесных значений этих параметров:

$$\begin{aligned} \operatorname{arth}(m+l) + \operatorname{arth}(m-l) &= 2h/t, \\ \operatorname{arth}(m+l) - \operatorname{arth}(m-l) &= 2l/t. \end{aligned} \quad (4)$$

Эти уравнения можно записать и в более наглядной эквивалентной форме

$$m_1 = \operatorname{th}(h_1/t), \quad m_2 = \operatorname{th}(h_2/t),$$

где h_1 и h_2 — эффективные внутренние магнитные поля, действующие на подрешетки 1 и 2 соответственно

$$h_1 = 0.5(m_1 - m_2) + h, \quad h_2 = 0.5(m_2 - m_1) + h.$$

При этом должно выполняться условие устойчивости

$$(m+l)^2 + (m-l)^2 < 2(l-t). \quad (5)$$

Соответствующая фазовая H - T -диаграмма изинговского антиферромагнетика представлена на рис. 7. Равновесные значения m и линия потери устойчивости ферромагнитной фазы $h_F = H_F(t)$ определяются из (4)

и (5) в явном виде

$$m = \text{th}(h/t), \quad h_F = \text{tarth}(1-t)^{1/2}. \quad (6)$$

Выше линии потери устойчивости (кривая 1 на рис. 7) система эффективно ведет себя как обычный парамагнетик, что является следствием условия $\tau_c = 0.5$, т.е. следствием равенства абсолютных величин внутри- и междошрешеточного взаимодействий в F -фазе и, следовательно, полной компенсации воздействия соответствующих внутренних дипольных полей на магнитные моменты.

Для АФ-фазы ($l \neq 0$) уравнения (4) можно привести к виду

$$h = \text{tarth} \left(\frac{\text{th}(l/t) - l}{\text{th}(l/t) - l \text{th}^2(l/t)} \right)^{1/2},$$

$$m = \text{th}(h/t)[1 - l \text{th}(l/t)], \quad (7)$$

так что в этом случае равновесные значения m и l определяются „полуявно“: при заданных l и t из первого уравнения находится значение h , а затем из второго уравнения — значение m .

На фазовой диаграмме имеется трикритическая точка с координатами $t_c = 2/3$, $h_c = (2/3)\text{arth}(1/\sqrt{3}) = 0.44$. При $t > t_c$ и индуцируемый внешним полем метамагнитный переход АФ–F является фазовым переходом 2-го рода. Линия фазового перехода описывается вторым уравнением в (6). При $t < t_c$ метамагнитный переход АФ–F есть фазовый переход 1-го рода. Линия фазового перехода 1-го рода (кривая 2) почти параллельна оси температур. Отметим, что при увеличении параметра τ_c трикритическая точка сдвигается в область более высоких температур и более низких полей, а линия устойчивости ферромагнитной фазы пересекает ось температур, т.е. при самых низких температурах F -фаза становится устойчивой (метастабильной) даже в нулевом поле.

Вообще говоря, в подобных магнитных системах при $t < t_c$ внутри области фазовой H – T -диаграммы, ограниченной линиями потери устойчивости антиферромагнитной и ферромагнитной фаз (кривые 3 и 4 на рис. 7 соответственно), возникает промежуточное состояние: кристалл разбивается на области (домены) сосуществующих антиферромагнитной и ферромагнитной фаз. Такое разбиение обеспечивает минимизацию магнито-статической энергии образца, которая обычно не учитывается в исходном термодинамическом потенциале. В нашем случае чисто дипольного антиферромагнетика эта энергия учтена автоматически: вид фазовой H – T -диаграммы определяется только диполь-дипольным взаимодействием для конкретной формы образца, и в дипольных полях, действующих на ионы Ду, естественным образом учитывается вклад полей размагничивания. Тем не менее есть основания считать, что в указанной области переход из низкополевой АФ-конфигурации в высокополевую F-конфигурацию может осуществляться через промежуточное состояние, представляющее смесь сосуществующих слоистых многоподрешеточных, т.е.

фактически микромагнитных, мезоскопических в перпендикулярном к слоям направлении (c -ось кристалла) структур. Такое неоднородное состояние оказывается энергетически выгодным, но для его теоретического анализа необходим выход за рамки двухподрешеточной модели изинговского антиферромагнетика и вообще модели антиферромагнетика с определенным числом подрешеток. Поскольку это отдельная весьма сложная задача и, кроме того, предполагается непосредственная проверка полученных теоретических выводов в экспериментах по магнитному рассеянию нейтронов, будем использовать приведенное выше утверждение просто как гипотезу, которая не противоречит полученным результатам по характеру проявления аномалий магнитоиндуцированных деформаций, но совсем не обязательна для объяснения этих аномалий (см. далее).

В соответствии с предположением (3) о квази-адиабатичности процессов намагничивания исследуемой системы на H – T -диаграмме показаны изоэнтропы $S(h, t) = \text{const}$, рассчитанные с использованием приведенных выше уравнений, и изотермы $t = \text{const}$. Как и следовало ожидать, при фиксированной температуре гелиевой ванны траектория адиабатического процесса намагничивания изинговского антиферромагнетика на H – T -диаграмме (изоэнтропа) сначала резко уходит в область самых низких температур (существенно меньших температуры гелия), а в полях выше критического поля фазового перехода — в область высоких температур, превышающих температуру гелия. Действительно, в АФ-фазе изотермическое намагничивание сопровождается размагничиванием одной из подрешеток (m_2) и увеличением энтропии. Таким образом, для сохранения энтропии в чисто адиабатическом процессе температура спиновой системы должна уменьшаться (адиабатическое размагничивание). В F-фазе при изотермическом намагничивании энтропия уменьшается, поэтому адиабатическое намагничивание должно сопровождаться увеличением температуры спиновой системы. Смена знака изменения энтропии (на изотерме) или температуры спиновой системы (на изоэнтропе) происходит в точке фазового перехода АФ–F. Ясно, что во втором случае речь идет о фазовом переходе, который реализуется при температурах, существенно меньших температуры гелиевой ванны.

Отметим также одно важное для дальнейшего анализа обстоятельство. С помощью формулы (2) нетрудно убедиться, что постоянство полной энтропии $S(m, l) = [S(m+l) + S(m-l)]/2$ означает приближительное постоянство величины $m^2 + l^2$. В F-фазе на изоэнтропах точно $m = \text{const}$, и поэтому из (6) следует, что в этой фазе изоэнтропы — прямые линии: $h = \text{const} \cdot t$ (рис. 7). Что касается АФ-фазы, то здесь условие

$$m^2(h, t) + l^2(h, t) = l_0^2 \quad (8)$$

для изоэнтроп, где $l_0 = l(0, t_0)$ и t_0 — температура гелиевой ванны, выполняется с точностью порядка 5% относительно того, что дает использование точного условия $S(m, l) = S(0, l_0)$.

В соответствии с предположением (4) всегда существует тенденция приближения температуры спиновой системы к температуре гелиевой ванны, в силу которой реальные траектории процесса намагничивания будут отличаться от чистых изоэнтроп. Для учета и формального математического описания этой тенденции использован единственный эмпирический параметр — коэффициент теплообмена α между спиновой системой и термостатом (гелиевой ванной). Этот параметр позволяет описать зависимость температуры от магнитного поля на квазиadiaбате с помощью дифференциального уравнения

$$\frac{dt}{dh} = \left(\frac{dt}{dh} \right)_s \mp \frac{\alpha}{v_H} (t - t_0) = \frac{(\partial S / \partial h)_t}{(\partial S / \partial t)_h} \mp \alpha' (t - t_0), \quad (9)$$

где v_H — скорость изменения магнитного поля, $\alpha' = (\alpha / v_H)$, t_0 — температура гелиевой ванны, знак „минус“ перед вторым слагаемым соответствует вводу (увеличению) магнитного поля, знак „плюс“ — выводу.

При изменении магнитного поля в F-фазе с учетом постоянства намагниченности на изоэнтропе из (9) получаем простое линейное уравнение

$$\frac{dt}{dh} = t/h \mp \alpha' (t - t_0). \quad (10)$$

Для AF-фазы приближенное дифференциальное уравнение для квазиadiaбат можно получить в явном виде только для температур, близких к температуре Нееля (при малых значениях величин m , l , h , $1 - t$). С помощью уравнений (7) нетрудно убедиться, что в этом случае изоэнтропы приближенно описываются уравнением $t = t_0 - (2/3)h^2$, поэтому при квазиadiaбатическом процессе

$$\frac{dt}{dh} = \frac{4}{3}h \mp \alpha' (t - t_0). \quad (11)$$

На рис. 8 представлены типичные траектории на фазовой $H-T$ -диаграмме, вдоль которых меняется магнитное состояние системы в различных ситуациях изменения магнитного поля, рассчитанные с использованием уравнения (10) и более точных аналогов уравнения (11).

Во-первых, следует отметить, что теоретически рассчитанные изменения температуры спиновой системы относительно температуры гелиевой ванны с точностью до знака воспроизводят почти все экспериментально обнаруженные аномалии на кривых магнитоиндуцированных деформаций: полное отличие и квазисимметричный характер прямой и обратной ветвей деформационных кривых, наличие резких максимумов на этих ветвях и резкое переключение деформаций при обращении знака изменения величины поля при его вводе и выводе (что обусловлено скачкообразным переходом от ситуации, в которой знаки изменения температуры в процессах адиабатической генерации тепла и теплообмена, описываемых первым и вторым слагаемыми в уравнении (9), не совпадают, к ситуации совпадения знаков изменения температуры в этих процессах), возрастание аномалий при увеличении скорости изменения поля и уменьшении аномалий в области самых низких температур из-за „обрезания“ квазиadiaбат.

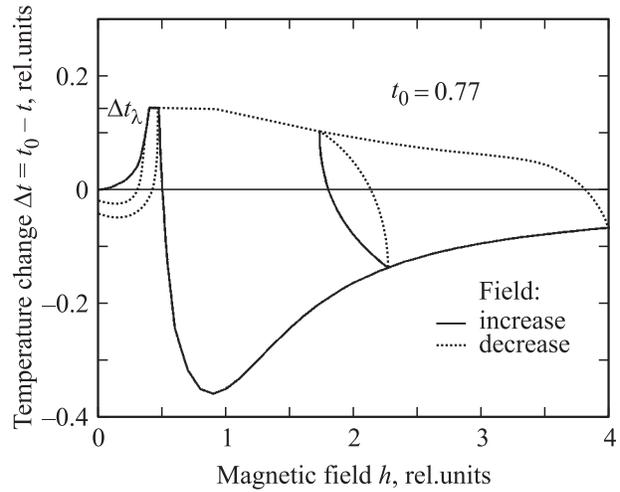


Рис. 8. Типичные траектории квазиadiaбатического процесса намагничивания на фазовой $H-T$ -диаграмме DyAlO_3 (расчет для $\alpha' = 2$).

Последнее утверждение требует отдельного пояснения. Дело в том, что многократное увеличение коэффициента теплопроводности гелия при температурах ниже λ -точки гелия (2.18 K) должно приводить к резкому увеличению коэффициента теплообмена α и переходу траектории в этой точке от квазиadiaбаты к квазиизотерме, как это показано стрелками на рис. 7 для адиабаты a_1 и изотермы i_λ (см. также рис. 8). Образно говоря, при увеличении (или уменьшении) магнитного поля квазиadiaбатическая траектория изменения магнитного состояния системы „упирается“ в почти непроницаемую стену, за которой находится область сверхтекучести гелия, и начинает движение вдоль этой стены. В результате при уменьшении исходной температуры гелиевой ванны ниже температуры Нееля квазиadiaбатические изменения температуры спиновой системы (и связанные с ним аномалии магнитоупругих деформаций) сначала возрастают, а затем, когда в λ -точке гелия начинает проявляться указанный эффект „обрезания“ квазиadiaбат, уменьшаются и практически полностью исчезают при самых низких температурах. Наличие этого эффекта объясняет также значительный разнос деформационных пиков на прямой и обратной ветвях полевой зависимости магнитоиндуцированных деформаций (см., например, кривые на рис. 2 для $T = 3.37$), соответствующих точкам излома траектории при $t = t_\lambda$.

Заметим, что эффект обрезания квазиadiaбат при низких (но разных) температурах мог бы наблюдаться и на границах области промежуточного состояния, о котором говорилось выше (границы этой области подобны линиям потери устойчивости AF- и F-фаз на $H-T$ -диаграмме рис. 7). Однако, во-первых, это предположение требует прямого экспериментального подтверждения, во-вторых, более простое и очевидное предположение о резком изменении коэффициента теплообмена α в λ -точке уже позволяет описать с достаточной точностью наблюдаемые аномалии.

Поскольку коэффициент теплового расширения ортоалюмината диспрозия при низких температурах отрицателен, с учетом характера рассчитанных траекторий напрашивается вывод о том, что наблюдаемые деформации — это просто тепловое расширение кристалла, обусловленное тепловыми вариациями в квазиadiaбатических (или на отдельных участках квазиизотермических) процессах намагничивания, а вклад собственно магнотстрикции очень мал. Наиболее яркой иллюстрацией малости магнотстрикционного вклада является кривая деформации для самой низкой температуры на рис. 2. Тепловые вариации в этом случае подавлены из-за указанного выше эффекта, и деформации очень малы, хотя система безусловно переходит из AF- в F-фазу. Вообще, малость константы магнотстрикции вдоль оси b при $H \parallel b$ — это экспериментальный факт; например, при $H \parallel a$, когда в четырехподрешеточной магнитной системе ионов Ду индуцируется совсем другой метамагнитный переход, величина деформаций по меньшей мере на порядок больше.

Однако более важно, что в данном случае реализуется дополнительный адиабатический механизм подавления магнотстрикции, в результате чего в максимальной степени проявляется немагнитное по своей природе тепловое расширение со всеми сопутствующими аномалиями. Поясним это утверждение с помощью простых выкладок.

Согласно [1], полевую зависимость магнотстрикционных деформаций, обусловленных вкладом редкоземельных ионов в рассматриваемом изинговском антиферромагнетике и при используемой геометрии намагничивания, можно описать формулой

$$\Delta l/l = A(m_2 h_1 + m_2 h_2), \quad (12)$$

где A — соответствующая константа магнотстрикции; $h_{1,2}$ и $m_{1,2}$ — эффективные магнитные поля, действующие на подрешетки 1 и 2 и магнитные моменты этих подрешеток соответственно.

Для низкополевой AF-фазы из (4) получаем

$$h_1 = l + h, \quad h_2 = -l + h, \quad (13)$$

поэтому

$$\Delta l/l = 2A(l^2 + mh). \quad (14)$$

Из первого уравнения в (7) легко получить зависимость $l = l(h)$, $m = m(h)$ на изотерме ($t = t_0$) и изоэнтропе ($m^2 + l^2 = l_0^2$) вблизи температуры Нееля. На изотерме

$$l = \sqrt{l_0^2 - 3h^2}, \quad m = h; \quad (15)$$

на изоэнтропе

$$l = \sqrt{l_0^2 - h^2}, \quad m = h. \quad (16)$$

Подставляя эти выражения в (14), для реально измеряемых деформаций, отсчитываемых от начальной деформации $2Al_0^2$ в нулевом поле, получаем: на изотерме

$$\Delta l/l = -4h^2, \quad (17)$$

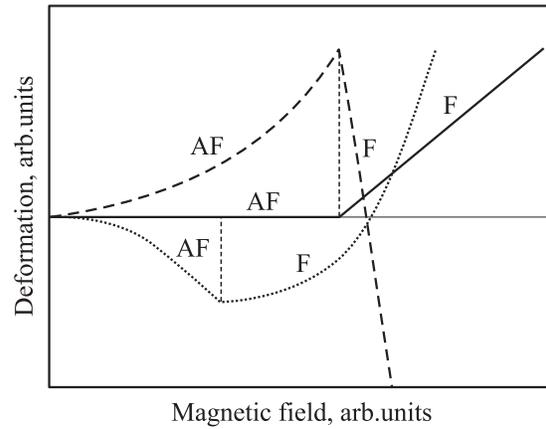


Рис. 9. Характер изменения теплового расширения магнотстрикции кристалла при адиабатическом и изотермическом процессах намагничивания в AF- и F-фазах: сплошная линия — магнотстрикция при адиабатическом намагничивании, пунктирная линия — изотерма магнотстрикции, штриховая линия — тепловое расширение.

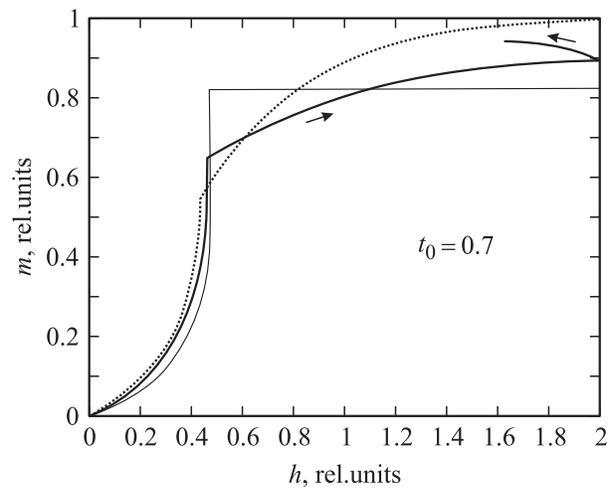


Рис. 10. Характер изменения намагниченности на чистой адиабате (тонкая сплошная линия), изотерме (штрих) и в реальном квазиadiaбатическом процессе (жирная сплошная линия).

на изоэнтропе

$$\Delta l/l = 0. \quad (18)$$

Таким образом, в AF-фазе на изоэнтропах магнотстрикционные деформации полностью подавляются, и мы видим в чистом виде магнитоиндуцированное тепловое расширение кристалла.

В F-фазе (при $l = 0$) эффект подавления магнотстрикции при адиабатическом намагничивании проявляется в том, что за счет постоянства намагниченности на изоэнтропах может реализоваться только линейный по полю рост магнотстрикции, тогда как на изотермах магнотстрикция возрастает по квадратичному закону (до области насыщения). Все это показано на рис. 9.

Отметим также, что характер полевой зависимости намагниченности получает полное объяснение в рамках использованной модели квазиadiaбатического намагничивания изинговского антиферромагнетика — достаточно проследить изменение намагниченности вдоль рассчитанных траекторий на фазовой $H-T$ -диаграмме (рис. 10). Здесь наиболее интересен наблюдаемый и на первый взгляд совершенно необъяснимый эффект возрастания казалось бы уже насыщенной намагниченности при выводе поля. На самом деле, как видно из рис. 10, никакого насыщения даже на реальной траектории нет. А тот факт, что на чистой изоэнтропе „насыщение“ намагниченности ($m = \text{const}$) вообще реализуется в очень малых полях сразу же после перехода в F-конфигурацию, показывает, как аккуратно следует относиться к интерпретации тех или иных экспериментальных эффектов и полученных значений измеряемых величин.

4. Заключение

Таким образом, на основе адекватно интерпретационного базиса с использованием точно рассчитываемых параметров межподрешеточных взаимодействий удалось весьма точно описать практически все наблюдаемые аномалии упругих деформаций и намагниченности в модельном изинговском антиферромагнетике DyAlO_3 . Показано, что эти аномалии обусловлены главным образом квазиadiaбатичностью процессов намагничивания в исследованной магнитной системе. Результаты работы показывают необходимость строгого учета магнитокалорического эффекта в подобных магнитных системах даже при относительно медленном изменении внешнего магнитного поля и соответствующей интерпретации значений измеряемых физических величин и наблюдаемых эффектов. В то же время увеличение степени адиабатичности процессов намагничивания в принципе позволяет исследовать самые низкотемпературные (экспериментально недостижимые в изотермических условиях) области фазовой $H-T$ -диаграммы.

Список литературы

- [1] А.К. Звездин, В.М. Матвеев, А.А. Мухин, А.И. Попов. Редкоземельные ионы в магнитоупорядоченных кристаллах. Наука, М. (1985).
- [2] H. Shuchert, S. Hufner, R. Faulhaber. *Z. Phys.* **222**, 105 (1969).
- [3] L.M. Holmes, R. Sherwood, L.G. Van Uitert. *J. Appl. Phys.* **39**, 1373 (1968).
- [4] I.B. Krynetskii, V.M. Matveev, V.V. Matveev. *J. Magn. Magn. Mater.* **140–144**, 1579 (1995).
- [5] L.M. Holmes, L.G. Van Uitert, R.R. Hecker, G.W. Hull. *Phys. Rev. B* **5**, 138 (1972).
- [6] N.P. Kolmakova, I.B. Krynetskii, M. Lukina, A.A. Mukhin. *Phys. Stat. Sol. (b)* **159**, 845 (1990).
- [7] А.С. Борухович. *УФН* **169**, 7, 737 (1999).