

ИССЛЕДОВАНИЕ ЭФФЕКТА ПЕРЕСЕЧЕНИЯ УРОВНЕЙ В ТЕТРАГОНАЛЬНОМ ПАРАМАГНЕТИКЕ $YbPO_4$ В СВЕРХСИЛЬНОМ МАГНИТНОМ ПОЛЕ ДО 400 Тл

З.А.Казей¹⁾, Н.П.Колмакова*, Р.З.Левитин, В.В.Платонов+,
А.А.Сидоренко*, О.М.Таценко+

Физический факультет МГУ
119899 Москва, Россия

*Технический университет
241035 Брянск, Россия

+ Российский федеральный ядерный центр
607190 Саров, Нижегородская обл., Россия

Поступила в редакцию 7 апреля 1997 г.

Экспериментально и теоретически исследован эффект пересечения энергетических уровней иона Yb^{3+} в парамагнитном $YbPO_4$ в сверхсильном магнитном поле до 400 Тл, полученном взрывным методом. Обнаружен широкий максимум дифференциальной восприимчивости dM/dH в поле $H_c \approx 280$ Тл, обусловленный пересечением энергетических уровней магнитных ионов в поле. В предположении адиабатичности намагничивания в импульсных полях рассчитан магнитокалорический эффект, который имеет немонотонную зависимость от поля и сопровождается значительным охлаждением кристалла вблизи H_c .

PACS: 71.70.-d, 75.30.Cr, 75.30.Sg

Пересечение энергетических уровней магнитных ионов в поле (кроссовер) и связанный с ним скачок намагниченности были предсказаны теоретически Купером для соединения $TmSb$ [1] и наблюдались экспериментально в разных редкоземельных (РЗ) соединениях (см., например, [2]) как в парамагнитном, так и в упорядоченном состояниях. Этот эффект имеет место в тех случаях, когда энергия нижнего уровня основного мультиплета РЗ иона, расщепленного кристаллическим полем, зависит от магнитного поля значительно слабее, чем энергия одного из возбужденных. Поэтому в достаточно сильных полях эти уровни сначала сближаются, а затем меняются местами. Поскольку при этом основным становится более "магнитный" уровень, кроссовер сопровождается скачкообразным увеличением намагниченности M и максимумом дифференциальной восприимчивости dM/dH .

Можно ожидать, что в РЗ цирконе RXO_4 (R – редкоземельный ион, $X=As, P, V$) эффекты пересечения уровней будут довольно многочисленными, поскольку достаточно низкая тетрагональная симметрия цирконе (пространственная группа $D_{4h}^{19} = I_{41}/amd$) обуславливает богатый слабо вырожденный спектр РЗ иона и значительную магнитную анизотропию вдоль и перпендикулярно тетрагональной оси в парамагнитном состоянии. При этом из-за отсутствия неэквивалентных позиций для РЗ иона в структуре цирконе эти эффекты должны отчетливо проявляться даже на макроскопических характеристиках, таких, как намагниченность. К настоящему времени из всей серии РЗ цирконов явление кроссовера в сравнительно слабых магнитных полях (~ 10 Тл) исследовано только в парамагнитном $HoVO_4$ [3–5]. Значительный прогресс в

¹⁾ e-mail: kasei@plm2.phys.msu.su

технике получения сильных и сверхсильных магнитных полей делает эффекты пересечения уровней в настоящее время доступными для экспериментального исследования. В данной работе экспериментально и теоретически исследован эффект пересечения уровней в парамагнитном YbPO_4 .

Измерения были выполнены при 4.2 К индукционным методом в импульсных магнитных полях до 400 Тл, полученных взрывным методом [6], на монокристалле YbPO_4 . Время возрастания поля в импульсе составляло 15 мкс. Данные измерения являются однократными и измерительные катушки и образцы разрушаются после каждого импульса, при этом не удается полностью скомпенсировать сигнал от магнитного поля. Таким образом, сигнал, наводимый в измерительных катушках, может быть записан в виде

$$V_1(H) \sim \frac{dM}{dt} + K \frac{dH}{dt}, \quad (1)$$

где первый член соответствует сигналу от образца, а второй – сигналу раскомпенсации катушек. В течение импульса поля с интервалом 0.002 мкс проводилась запись сигналов V_1 и $V_2 \sim dH/dt$ с измерительной и "полевой" катушек (около 8000 точек). Эти данные позволяют рассчитать кривые $V_1(H)/V_2(H)$ (которые в предположении слабой зависимости сигнала раскомпенсации от величины поля с точностью до постоянной величины K пропорциональны дифференциальной восприимчивости образца $dM/dH = (dM/dt)/(dH/dt)$), а также провести усреднение сигнала по времени для уменьшения высокочастотных флуктуаций фона.

На рис.1 приведены экспериментальная и теоретические зависимости dM/dH монокристалла YbPO_4 для магнитного поля вдоль тетрагональной оси [001]. Широкий максимум восприимчивости при $H_c \approx 280$ Тл связан с пересечением энергетических уровней иона Yb^{3+} . Значительная ширина максимума обусловлена, по-видимому, изменением температуры образца вследствие магнитокалорического эффекта при намагничивании в импульсном поле. Поскольку времена спин-решеточной релаксации в РЗ ионных соединениях весьма малы ($\sim 10^{-9}$ с, см., например, [7]) по сравнению с длительностью импульса поля, электронная подсистема и решетка при измерении находятся в равновесии, а процесс намагничивания близок к адиабатическому. На наш взгляд, теплообмен образца с окружающей средой не существен уже в импульсных полях с длительностью импульса ~ 10 мс, о чем свидетельствует совпадение кривых намагничивания при возрастании и уменьшении поля.

Для расчета эффекта Зеемана и магнитных характеристик использовался гамильтониан, включающий гамильтониан кристаллического поля, записанный через неприводимые тензорные операторы C_q^k , и зеемановский член:

$$H = B_0^2 C_0^2 + B_0^4 C_0^4 + B_0^6 C_0^6 + B_4^4 (C_4^4 + C_{-4}^4) + B_4^6 (C_4^6 + C_{-4}^6) + g_J \mu_B H \cdot J. \quad (2)$$

Здесь B_q^k – параметры кристаллического поля, g_J – фактор Ланде. Параметры кристаллического поля для иона Yb^{3+} в матрице фосфата известны только для легированных соединений Yb:LuPO_4 и Yb:YPO_4 [8] (они различаются сильно по параметру B_0^2) и могут, вообще говоря, заметно отличаться от значений для концентрированного соединения YbPO_4 . Поле кроссовера H_c определяется спектром и волновыми функциями основного мультиплета $2F_{7/2}$ иона Yb^{3+} , формируемыми кристаллическим полем. Наши расчеты с параметрами кристаллического поля для Yb:YPO_4 и Yb:LiPO_4 дают для H_c

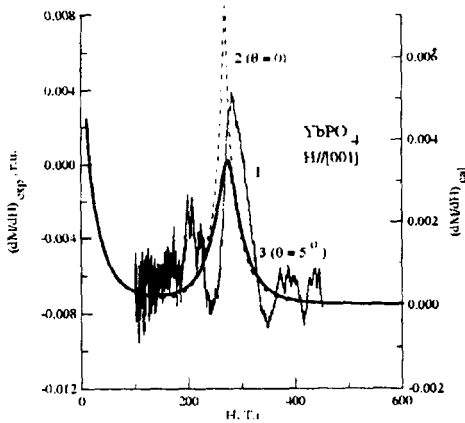


Рис.1. Экспериментальная (1) и рассчитанные (2, 3) зависимости дифференциальной восприимчивости dM/dH для $YbPO_4$ для ориентации магнитного поля вблизи тетрагональной оси [001] (θ – угол ориентации)

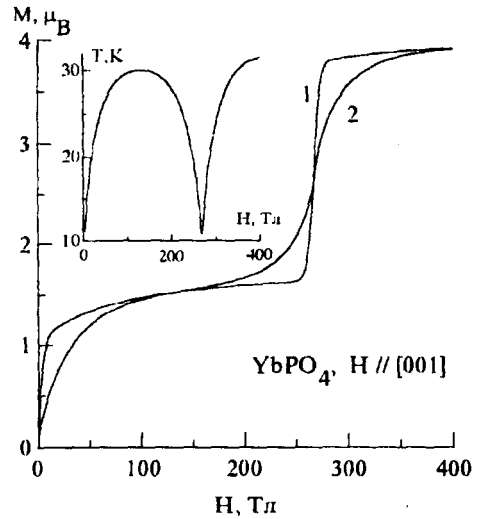


Рис.2. Изотермическая (1) и адиабатическая (2) кривые намагничивания $M(H)$ $YbPO_4$ для начальной температуры $T_0 = 4.2K$ и изменение температуры образца $T(H)$, обусловленное магнитокалорическим эффектом при адиабатическом намагничивании

значения 210 Тл и 180 Тл, соответственно. Численный анализ показывает, что величина поля кроссовера наиболее чувствительна к параметру B_0^2 . Решение оптимизационной задачи для $YbPO_4$ с учетом всей имеющейся экспериментальной информации (спектроскопия и ЭПР [8,9], а также наши магнитные измерения) позволило получить параметры кристаллического поля, которые укладываются в границы их изменения по ряду РЗ фосфатов и дают теоретическое значение $H_c = 270$ Тл. В пределах точности измерения поля $\pm 10\%$ и возможной разориентации образца $\leq 3^\circ$ это значение хорошо совпадает с экспериментальным.

Интересной особенностью кроссовера в $YbPO_4$ является то, что основной уровень ($g_z^{gr} \sim 2$) пересекается нижним уровнем первого возбужденного дублета, для которого z -компонента g -тензора в отсутствие магнитного поля существенно меньше ($g_z^{ex1} < 0.1$). Однако в поле происходит сильное примешивание к нижнему уровню первого возбужденного дублета состояния $|+7/2\rangle$ от третьего возбужденного дублета, принадлежащего к тому же представлению, и сильное возрастание его g_z . Для основного дублета g_z в поле меняется не так сильно из-за слабого примешивания к нему от второго возбужденного дублета. Отметим, что для ориентации поля строго вдоль тетрагональной оси смешивание волновых функций основного и первого возбужденного дублетов отсутствует и поэтому должно наблюдаться "истинное" пересечение уровней. Разориентация поля уже в 3–5 градусов приводит к появлению в волновой функции основного уровня компоненты $|\pm 7/2\rangle$ и к взаимодействию между основным и первым возбужденным уровнями, что обуславливает небольшую щель (расталкивание уровней) в спектре в районе полей кроссовера. Ре-

зультатом этого является уширение максимума dM/dH и возрастание поля кроссовера.

При расчете магнитных характеристик для каждого значения поля от 0 до 400 Тл с шагом $\Delta H = 0.01$ Тл проводилась численная диагонализация гамильтониана (2) для определения спектра и волновых функций иона Yb^{3+} и рассчитывался "элементарный" магнитокалорический эффект ΔT при изменении поля от H до $H + \Delta H$:

$$\Delta T = -(\partial M / \partial T)_H T \Delta H / C_H. \quad (3)$$

В этой формуле полная теплоемкость кристалла C_H включает теплоемкость решетки $C_{lat} \sim (T/T_D)^3$ (дебаевская температура для решетки фосфата $T_D = 275$ К [10]) и магнитную теплоемкость C_{mag} , рассчитываемую при каждом значении поля и температуры, исходя из спектра РЗ иона. Эти данные позволили рассчитать изотермическую и адиабатическую намагниченности $YbPO_4$ и температуру образца как функцию магнитного поля (рис.2). Последняя имеет немонотонный характер, то есть сначала образец нагревается примерно на 25 К, а затем в районе полей кроссовера охлаждается примерно на 20 К. Знак "элементарного" магнитокалорического эффекта определяется знаком производной $(\partial M / \partial T)_H$. Для изотермических кривых намагничивания со скачками эта производная положительна при приближении к полю кроссовера (при нагревании скачки размываются), что и объясняет охлаждение кристалла вблизи кроссовера.

Исследования эффекта пересечения энергетических уровней дают существенную информацию о спектре и волновых функциях РЗ иона и направлены, в конечном счете, на исследование кристаллического поля. Хорошее совпадение рассчитанных и экспериментальных данных для $YbPO_4$ подтверждает, что процесс намагничивания в сверхсильном поле близок к адиабатическому. При этом в зависимости от характера уровней, участвующих в кроссовере, вблизи кроссовера может наблюдаться как нагревание, так и охлаждение образца. Охлаждение кристалла при этом делает в ряде случаев аномалии на магнитных характеристиках даже более ярко выраженными, чем при изотермическом процессе в статических полях. Это позволяет проводить исследование эффектов кроссовера по магнитным измерениям в импульсных сильных и сверхсильных полях. Подчеркнем, что, как показывают наши расчеты, подобных эффектов можно ожидать для целого ряда соединений из группы РЗ оксидов со структурой цирконна.

1. B.R.Cooper, Phys. Lett. **23**, 244 (1966).
2. M.Guillot, A.Marchand, V.Nekvasil, and F.Tcheou, J. Phys. C18, 3547 (1985).
3. J.E.Battison, A.Kasten, M.J.M.Leask, and J.B.Lowry, J. Phys. C10, 323 (1977).
4. T.Goto, A.Tamaki, T.Fujimura, and H.Unoki, J. Phys. Soc. Japan **55**, 1613 (1986).
5. P.Morin, J.Rouchy, and Z.Kazei, Phys. Rev. B51, 15103 (1995).
6. A.I.Pavlovskii, N.P.Kolokol'chikov, and O.M.Tatsenko, *Megagauss Physics and Techniques*, Ed. P.Turchi, N.Y.: Plenum Press, 1980.
7. Landolt-Bornstein, *Numerical Data and Functional Relationships in Science and Technology*, vol.27/e, Ed. H.P.J.Wijn, Springer-Verlag, Berlin, 1991.
8. P.C.Becker, T.Hayhurst, G.Shalimoff et al., J. Chem. Phys. **81**, 2872 (1984).
9. P.C.Becker, N.Edelstain, G.M.Williams et al., Phys. Rev. B45, 5027 (1992).
10. A.Kasten, H.G.Kahle, P.Klofer, and D.Schafer-Siebert, Phys. Stat. Sol. (b) **144**, 423 (1987).