

Теплоемкость манганита $\text{Sm}_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$ в полях до 15 Тл: аномальное критическое поведение ферромагнетика в магнитном поле и наблюдение трикритической точки

Ш. Б. Абдулвагидов⁺¹⁾, А. М. Алиев^{+*}, А. Г. Гамзатов⁺, В. И. Нижанковский^{*}, Х. Мёдге^{*2)}, О. Ю. Горбенко[∇]

⁺ Институт физики Дагестанского научного центра РАН, 367003 Махачкала, Республика Дагестан, Россия

^{*} International Laboratory of High Magnetic Fields and Low Temperatures, Wrocław Poland

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

Поступила в редакцию 25 мая 2006 г.

Измерена теплоемкость манганита $\text{Sm}_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$ в окрестности ферромагнитного фазового перехода в сильных магнитных полях до 15 Тл. Предсказано и экспериментально подтверждено аномальное критическое поведение ферромагнетика $\text{Sm}_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$ в магнитном поле, проявляющееся в том, что в полях до 4 Тл поле благоприятствует флуктуациям, при этом аномалия теплоемкости становится все более острой с полем, принимая λ -образный вид, а выше 4 Тл поведение становится классическим – поле подавляет флуктуации, размывая пик теплоемкости. Гистерезис температуры перехода при измерениях в режимах нагрева/охлаждения, составлявший в нулевом поле около 15 К, постепенно сужается, полностью исчезая в поле 4 Тл. Полученные результаты объясняются в представлениях о конкуренции гистерезиса и флуктуаций магнитного параметра порядка. H, T -фазовая диаграмма $\text{Sm}_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$ убедительно свидетельствует о существовании в $\text{Sm}_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$ трикритической точки при 4 Тл, в которой нивелируется различие между ферромагнитной и парамагнитной фазами $\text{Sm}_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$.

PACS: 71.30.+h, 75.40.Cx

В последние десятилетия исследованиями физических свойств манганитов заняты многие исследовательские группы во всем мире. Вначале эти исследования были инициированы исключительно прикладными аспектами применения манганитов. Впоследствии выяснилось, что манганиты обладают очень богатой фундаментальной физикой, проявляющейся в череде фазовых переходов различной физической природы и типа: ферромагнетик-парамагнетик, антиферромагнетик-парамагнетик, ферромагнетик-антиферромагнетик. Кроме того, манганиты характеризуются многообразием различных типов структурного упорядочения.

Удобство манганитов с точки зрения их экспериментального изучения заключается в том, что их физические свойства в окрестности фазовых переходов, и не только, подвержены сильному влиянию различных полей (температуры, давления, электрического и магнитного полей).

В данной работе мы используем сильный эффект влияния магнитного поля на температуру магнитного фазового перехода с целью изучения влияния

флуктуаций и гистерезиса на температурную зависимость теплоемкости в магнитных полях до 15 Тл.

Принято считать, что гистерезис и флуктуации не совместимы друг с другом. Гистерезис ассоциируется с фазовым переходом I рода, а флуктуации – с фазовым переходом II рода. Типичный пример фазового перехода I рода – изменение агрегатного состояния вещества, а фазового перехода II рода – сверхтекучий переход в жидком гелии. До сих пор, по нашему мнению, не встречались вещества, в которых оба эти прочно устоявшиеся признаки различных типов фазовых переходов встречались вместе и поддавались экспериментальному исследованию.

Как мы увидим ниже, исследованный нами ферромагнитный манганит $\text{Sm}_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$ оказался именно таким веществом. Он также стоит особняком на концентрационной фазовой диаграмме самарий-стронциевых манганитов как объект, обладающий максимальной долей ферромагнитной фазы, и в котором практически не обнаруживаются следов антиферромагнитной фракции вплоть до гелиевых температур [1–3]. Ранее результаты по исследованию теплоемкости и электросопротивления $\text{Sm}_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$ докладывались в работах [1–4], в которых доступное магнитное поле ограничивалось величиной в 26 кЭ, что не позволило нам довести исследования пробле-

¹⁾ e-mail: abdulvagidov@iwt.ru

²⁾ H. Mödger.

мы конкуренции флуктуаций и гистерезиса до логического завершения, сопровождающегося экспериментальными доказательствами. Поэтому мы могли только сформулировать наши предположения о поведении температурной зависимости теплоемкости $\text{Sm}_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$ в более сильных полях, чем те, которые достигались с помощью имеющегося в Институте физики Дагестанского научного центра РАН электромагнита.

Чтобы подтвердить на опыте наше предсказание, дальнейшие исследования манганита $\text{Sm}_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$ были продолжены в Международной лаборатории сильных магнитных полей и низких температур, г. Вроцлав, Польша. К нашему большому удовлетворению эксперименты, проведенные в стенах Международной лаборатории, полностью подтвердили наши догадки и обоснованность подхода, использованного в работе [4].

В данной работе впервые на примере ферромагнитного манганита $\text{Sm}_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$ приводятся результаты, раскрывающие аномальное флуктуационное поведение теплоемкости ферромагнетика в магнитных полях до 4 Тл и возвращение его поведения к классическому сценарию в более сильных полях. Кроме того, наши исследования показывают, что при фазовом переходе II рода можно обнаружить признаки гистерезиса, когда этот переход сопровождается гигантской стрикцией и нелинейными эффектами [4, 5].

Керамика $\text{Sm}_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$ была получена с использованием метода химической гомогенизации: водные растворы нитратов Sm, Sr и Mn были смешаны в стехиометрическом соотношении. Полученный раствор с суммарной концентрацией металлов 1 моль/л использовался для пропитки бензольных фильтров, которые высушивались и сжигались. После 30-минутного отжига при 700 °С образовавшийся порошок прессовали в таблетки и спекали при 1200 °С в течение 16 ч. Полученная керамика представляла собой, по данным рентгенографии, однофазный орторомбический перовскит с параметрами решетки $a = 0.5424(1)$ нм, $b = 0.7678(2)$ нм, $c = 0.5434(2)$ нм. Растровая электронная микроскопия обнаруживает однородный гранулометрический состав керамики со средним размером гранул 2 мкм, с хорошей спайностью и пористостью около 20%. Рентгеноспектральный микроанализ указывает на одинаковый химический состав гранул, отвечающий формуле $\text{Sm}_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$. Кислородный индекс, определенный методом йодометрического титрования [6], составил 3.02. Измерения теплоемкости проводились на автоматизированной эксперимен-

тальной установке [7] для измерения теплоемкости малых образцов методом а.с.-калориметрии [8] с относительной погрешностью не хуже 0.1%. Средняя температура микрокалориметра измерялась медь-константановой термопарой с диаметром проволочек 100 мкм, а температурные осцилляции – хромель-константановой термопарой, изготовленной с помощью точечной электросварки из проволок диаметром 25 мкм расплющенных до 5 мкм. Скорость изменения температуры не превышала 0.1 К/мин, а в окрестности перехода – 0.05 К/мин. Осцилляции температуры образца с частотой 2 Гц возбуждались с помощью светового потока от лампы накаливания, промодулированного механическим прерывателем. Амплитуда осцилляций температуры образца не превышала 0.05 К, что особенно важно при исследованиях в окрестности фазовых переходов. Магнитное поле создавалось с помощью сверхпроводящего соленоида на 15 Тл от фирмы “Oxford Instruments”. Во избежание помех из-за пульсаций тока в сверхпроводящем соленоиде измерения проводились при замкнутом сверхпроводящем ключе.

На рис.1 приведены температурные зависимости теплоемкости $\text{Sm}_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$ в полях 0–15 Тл в об-

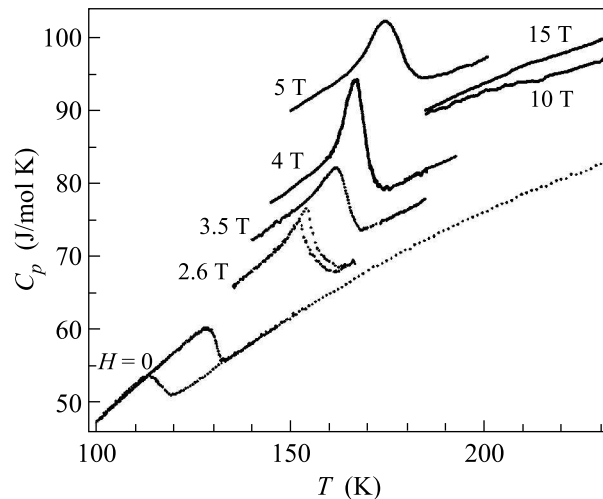


Рис.1. Температурная зависимость теплоемкости $\text{Sm}_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$ в различных магнитных полях: зависимости в поле 2.6, 3.5, 4, 5, 10 и 15 Тл для наглядности приподняты над данными в нулевом поле на 2, 6, 9, 20, 9 и 10 Дж/моль·К, соответственно. На зависимостях с гистерезисом $H = 0$ и 2.6 Тл большее значение температуры перехода соответствует режиму нагрева, меньшее – режиму охлаждения

ласти магнитного фазового перехода ферромагнетик-парамагнетик в режимах охлаждения и нагрева.

Как видно из рисунка, теплоемкость $\text{Sm}_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$ как в поле, так и без поля обнаруживает в окрестности T_c аномалии, обусловленные фазовым переходом ферромагнетик – парамагнетик. Данные в полях 0 и 2.6 Тл обнаруживают гистерезис, проявляющийся в том, что T_c зависит от направления изменения температуры, то есть от того, проводятся ли измерения в режиме нагрева или охлаждения. Этот факт получил объяснение еще в нашей ранней работе [1], которое состоит в том, что при фазовом переходе ферромагнетик \leftrightarrow парамагнетик в $\text{Sm}_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$ происходит скачкообразное изменение T_c , то есть ферромагнитному и парамагнитному состояниям $\text{Sm}_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$ соответствуют различные значения T_c . Здесь данные в полях 0 и 2.6 Тл демонстрируют воспроизводимость наших результатов и приводятся с целью сравнения с результатами в более сильных полях.

Ниже в таблице приводятся некоторые параметры, рассчитанные из температурных зависимостей теплоемкости ферромагнетика $\text{Sm}_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$ в различных магнитных полях, приведенные на рис.1: температура магнитного фазового перехода T_c , ширина перехода ΔT , скачок теплоемкости $\Delta C_p(T_c)$ при температуре перехода, ширина гистерезиса ΔT_h .

Как видно из рисунка, критическая температура $\text{Sm}_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$ возрастает с полем, что соответствует общетеоретическим представлениям о поведении классического ферромагнетика в магнитном поле.

Во внешнем магнитном поле 3.5 Тл гистерезис практически исчезает, поэтому зависимость на охлаждение в этом поле не приведена на рисунке, а величина аномалии теплоемкости при этом продолжает возрастать, все более явственнее демонстрируя λ -образный пик теплоемкости, свидетельствующий о возрастании влияния флуктуаций на ход температурной зависимости теплоемкости $\text{Sm}_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$ в окрестности магнитного фазового перехода с ростом напряженности приложенного поля. Мы в работе [4] приводили объяснение механизма роста флуктуаций в магнитном поле. Кратко это можно пояснить следующим образом. Из-за гистерезиса для появления парамагнитной (ферромагнитной) флуктуации в ферромагнитной (парамагнитной) фазе необходимо, чтобы температура флуктуирующей области самопроизвольно увеличилась (уменьшилась) на величину не меньшую, чем ширина гистерезиса ΔT_c . Без поля $\Delta T_c = 15$ К, чему соответствует существенное изменение внутренней энергии флуктуирующих областей $dU = C_p \xi^3 \Delta T_c$ (ξ – радиус корреляции), что, как общеизвестно из

термодинамики и статистической физики, означает крайне малую вероятность возникновения таких флуктуаций. Вследствие этого, радиус корреляции температурных флуктуаций оказывается значительно меньше радиуса корреляции флуктуаций магнитного параметра порядка. Напротив, с ростом поля и соответственно с сужением гистерезиса, величина dU уменьшается и вероятность флуктуаций резко возрастает, что и обнаруживается в эксперименте.

Во внешнем магнитном поле величиною в 4 Тл аномалия теплоемкости $\text{Sm}_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$ достигает своего максимального значения, а в полях, больших чем 4 Тл, аномалия теплоемкости уже начинает неуклонно убывать, и в поле 15 Тл размывается настолько сильно, что становится практически незаметной по данным, представленным на рис.1.

Таким образом, выявляется качественное изменение поведения теплоемкости ферромагнетика $\text{Sm}_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$ в магнитном поле 4 Тл. В интервале полей 0–4 Тл ферромагнетик $\text{Sm}_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$ ведет себя аномально. Это проявляется в том, что в этом интервале с ростом приложенного внешнего поля аномалия теплоемкости не уменьшается по величине и не размывается, а напротив, растет по величине, становясь все более острой. В полях же выше 4 Тл $\text{Sm}_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$ уже ведет себя как обычный классический ферромагнетик, то есть аномалия теплоемкости с ростом поля размывается и убывает по величине, что вызвано подавлением флуктуаций магнитного параметра порядка внешним магнитным полем. Итак, во внешнем магнитном поле ферромагнетик $\text{Sm}_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$ обнаруживает при 4 Тл кроссовер от аномального ферромагнитного поведения к классическому ферромагнитному поведению.

По значениям критической температуры, приведенным в таблице, построена схематичная H, T -фазовая диаграмма, которая показана на рис.2. Линии фазовых переходов, показанные на рис.2, и их слияние в единственную линию магнитного фазового перехода при полях выше 4 Тл убедительно свидетельствуют о существовании в $\text{Sm}_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$ трикритической точки, в которой нивелируется различие между ферромагнитной и парамагнитной фазами $\text{Sm}_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$. Эта фазовая диаграмма показывает две критические конечные точки в нулевом магнитном поле (128.6 К и 113.3 К), что обусловлено гистерезисом, и одну в максимальном поле 15 Тл (213 К). Заметим, что видное на рисунке расщепление линии фазового перехода также является следствием гистерезиса. Мы можем здесь отметить, что результаты наших исследований,

	0 Тл	2.6 Тл	3.5 Тл	4 Тл	5 Тл	10 Тл	15 Тл
T_c , К	128.6 ⁺ 113.3 ⁻	153.5 ⁺ 151.4 ⁻	161.82	166.87	174.67	193	213
ΔT , К	4.43 ⁺ 5.89 ⁻	8.42 ⁺ 9.33 ⁻	6.72	7.37	9.85	31.44	
$\Delta C_P(T_C)$, J/molK	4.3 ⁺ 4.0 ⁻	7.83 ⁺ 6.91 ⁻	8.5	14.95	7.81	-	-
ΔT_h , К	15	2	—	0	0	0	0

Примечание: Верхними индексами “+”, “-” обозначены значения в циклах нагрева, охлаждения, соответственно.

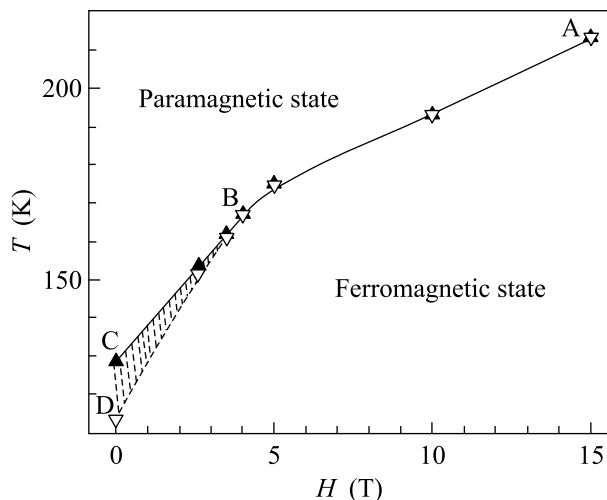


Рис.2. $H-T$ -фазовая диаграмма магнитного фазового перехода в $\text{Sm}_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$ по значениям температуры перехода из таблицы (▲ – температура перехода из ферромагнитного состояния в парамагнитное, режим нагрева, ▼ – температура перехода из парамагнитного состояния в ферромагнитное, режим охлаждения). В заштрихованной области магнитное состояние образца определяется тем, каким образом достигается эта область: с повышением или понижением температуры (магнитного поля)

выполненные на керамическом образце, качественно согласуются с исследованиями намагниченности и электросопротивления монокристалла [9, 10].

Фазовая $H-T$ -диаграмма, показанная на рис.2, свидетельствует о том, что трикритическая точка может наблюдаться и при фазовом переходе II рода. Эта фазовая диаграмма обнаруживает некоторые сходства и отличия при сравнении с фазовой диаграммой с трикритической точкой по Ландау [11]. Так, в нашем случае трикритическая точка является точкой, разделяющей фазовые переходы с гистерезисом от фазовых переходов без гистерезиса. С переходом в гистерезисную область вблизи трикрити-

ческой точки при понижении поля линия фазового перехода АВ расщепляется в две линии, на одной из которых (BC) переход происходит только при переходе из упорядоченной фазы в неупорядоченную, то есть в режиме нагрева, а на другой (BD) – только при обратном переходе из неупорядоченной фазы в упорядоченную, то есть в режиме охлаждения. В области, заключенной между этими двумя линиями, магнитное состояние образца определяется тем, каким образом достигается эта область: с повышением или понижением температуры (магнитного поля).

Работа выполнена при поддержке проекта Российского фонда фундаментальных исследований # 04-07-90011.

1. А. М. Алиев, Ш. Б. Абдулвагидов, А. Б. Батдалов и др., Письма в ЖЭТФ **72**, 668 (2000).
2. А. М. Алиев, Ш. Б. Абдулвагидов, А. Б. Батдалов и др., ФТТ **45**, 124 (2003).
3. J. M. De Teresa, M. R. Ibarra, P. Algarabel et al., Phys. Rev. B **65**, 100403(R) (2002).
4. Ш. Б. Абдулвагидов, И. К. Камилов, А. М. Алиев, А. Б. Батдалов, ЖЭТФ **123**, 857 (2003).
5. Ш. Б. Абдулвагидов, В книге *Современные проблемы физики фазовых переходов и критических явлений*, посвященной 70-летию члена-корреспондента РАН И. К. Камилова, Махачкала, 2005, с. 465.
6. Y. Tomioka, H. Kuwahara, A. Asamitsu et al., Appl. Phys. Lett. **70**, 3609 (1997).
7. Ш. Б. Абдулвагидов, Г. М. Шахшаев, И. К. Камилов, ПТЭ № 5, 134 (1996).
8. P. Sullivan and G. Seidel, Phys. Rev. **173**, 679 (1968).
9. V. Yu. Ivanov, A. A. Mukhin, V. D. Travkin et al., JMMM **258-259**, 535 (2003).
10. V. Yu. Ivanov, A. A. Mukhin, A. S. Prokhorov et al., Phys. Stat. Sol. (b) **236**, 445 (2003).
11. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Статистическая физика*, Часть 1, М.: Наука, 1976.