

МАГНИТОСТРИКЦИЯ В МОНОКРИСТАЛЛЕ $\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$

А.К. Звездин, А.М. Кадомцева, А.А. Ковалев,
М.Д. Кузьмин, Л.И. Леонюк, Н.И. Леонюк,
А.С. Маркосян, В.Н. Милов

Впервые на монокристалле $\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ исследована анизотропная магнитострикция, в ходе которой при $\mathbf{H} \perp \mathbf{c}$ обнаружены аномалии. На основании полученных результатов об-
суждается механизм подавления сверхпроводимости в этом соединении.

Известно, что замена в $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ 60% Y на Pr подавляет сверхпроводимость^{1,2}. Для выяснения природы этого явления представляется важным определение валентности празеодима в соединениях 1-2-3, сведения о которой противоречивы — от 3 по данным рентгеноспектрального анализа^{2,4} до 3,5–4 по результатам магнитных измерений^{1,3}. В связи с этим интересно исследовать характеристики, чувствительные к неустойчивости валентного состояния Pr. Одной из таких характеристик является магнитострикция⁵, которая в $\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ не исследовалась. Интерес к магнитострикции в $\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ вызван еще и тем обстоятельством, что в этом соединении возникает антиферромагнитное упорядочение ниже $T_N = 17 \text{ K}$ ⁶; магнитное поле может индуцировать перестройку магнитной структуры типа метамагнитного или ориентационного перехода. Магнитострикция, измеренная на монокристаллах, весьма чувствительна к таким фазовым переходам.

Монокристаллы $\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ были выращены из раствора в расплаве нестехиометрического состава при охлаждении его от 1150 до 400 °C со скоростью 5 °C/час. Измерение магнитострикции проводилось в импульсных магнитных полях до 75 кЭ методом контактного пьезодатчика (чувствительность $\sim 10^{-8}$). Магнитострикция измерялась вдоль \mathbf{a} - и \mathbf{b} -осей ромбического кристалла при различных ориентациях внешнего магнитного поля (если выводились рентгеновским методом) в интервале температур 4,2–200 К. Как видно из рис. 1, магнитострикция при $T = 4,2 \text{ K}$ ведет себя крайне анизотропно, отличаясь при различной ориентации поля как по величине, так и по знаку. Наиболее простой вид изотермы магнитострикции имели при ориентации поля вдоль \mathbf{c} -оси, при этом величины $\lambda_{\mathbf{ac}}$ и $\lambda_{\mathbf{bc}}$ (где первый индекс относится к направлению измерения, второй — магнитного поля) мало отличались друг от друга, имели отрицательный знак и изменялись пропорционально квадрату магнитного поля. Полевые зависимости продольной магнитострикции $\lambda_{\mathbf{aa}}$ и $\lambda_{\mathbf{bb}}$ также имели качественно сходный вид, однако характер зависимости был более сложным, чем при $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$. В сравнительно небольших полях магнитострикция обоих случаев была отрицательна, а с ростом поля обнаруживала возрастание, причем положительная магнитострикция квадратично зависела от поля (рис. 1б). В ходе полевой зависимости поперечной магнитострикции $\lambda_{\mathbf{ab}}$, $\lambda_{\mathbf{ba}}$ при некотором значении магнитного поля $\sim 20 \text{ кЭ}$ имелся излом подобно тому, как это наблюдалось при ориентационных переходах в антиферромагнетиках⁷. С ростом температуры магнитострикция в температурном интервале 4,2–80 К при всех ориентациях поля убывала $\sim (T - \theta)^2$, ($\theta = -17 \text{ K}$), при этом в зависимости $\lambda_{\mathbf{ac}, \mathbf{bc}}^{-1/2}(T)$ (рис. 2) при некоторой температуре наблюдался излом. Таким образом, температурно-полевая зависимость магнитострикции в широком диапазоне температур дается простым соотношением

$$\lambda_{\mathbf{nh}}(\mathbf{H}, T) = \lambda_{\mathbf{nh}}^{(0)} [\mu_B \mathbf{H} / (T - \theta)]^2. \quad (1)$$

Рассмотрим возможные механизмы магнитострикции в $\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, и в первую очередь механизм, обусловленный валентной неустойчивостью празеодима. В образце $\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ионы Pr^{3+} и Pr^{4+} находятся в равновесии, которое из-за различия их магнитных свойств чувствительно к изменению магнитного поля. Смещение равновесия вызывает деформацию решет-

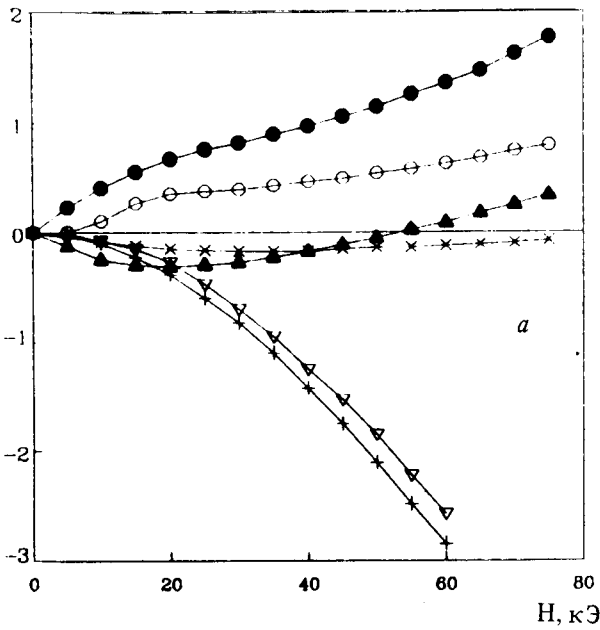
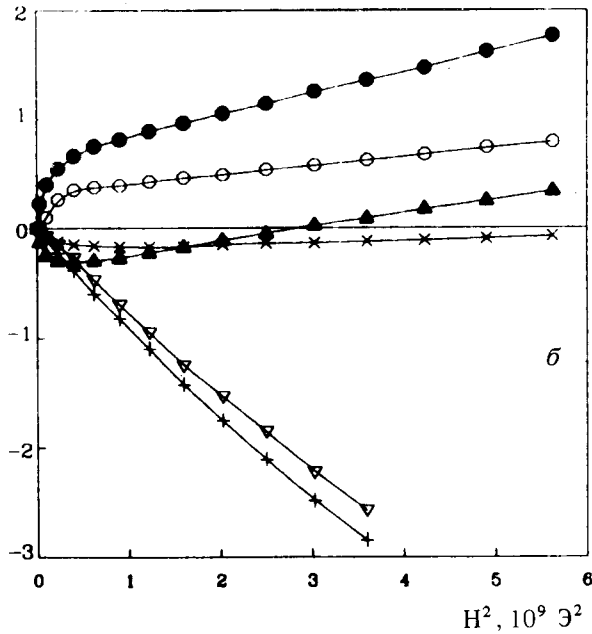
$\lambda, 10^{-6}$  $\lambda, 10^{-6}$ 

Рис. 1. Изотермы магнитострикции при $T = 4,2$ К. а – Полевые зависимости: \bullet – λ_{ab} ; \circ – λ_{ba} ; \blacktriangle – λ_{aa} ; \times – λ_{bb} ; ∇ – λ_{bc} ; б – Зависимости тех же величин от квадрата магнитного поля

ки, связанную с разницей ионных радиусов Pr^{3+} и Pr^{4+} . Пусть $\nu_{\mathbf{H}}$ и $1 - \nu_{\mathbf{H}}$ – концентрации ионов Pr^{3+} и Pr^{4+} в поле \mathbf{H} . Тогда магнитострикция, например, λ_{ah} , есть $\lambda_{ah}(H, T) = [a(\nu_{\mathbf{H}}) - a(\nu_0)] / a(\nu_0)$, где a – параметр решетки. Подобный механизм магнитоупругой связи рассмотрен в ⁵, однако, только для объемной магнитострикции, т.к. не принималась во внимание анизотропия g -тензора основного состояния редкоземельных ионов в кристаллическом поле. По имеющимся оценкам ⁸ три близкорасположенных нижних уровня иона Pr^{3+} отделены щелью ~ 900 К от возбужденных состояний, т.е. образуют случайный триплет, а основное состояние Pr^{4+} – кramerсовский дублет, изолированный щелью ~ 200 К. При этом рас-

чет приводит к выражению (1), где

$$\lambda_{\text{ah}}^{(0)} = \frac{a(0) - a(1)}{a(0)} \nu_0 (1 - \nu_0) \sum_{\alpha=xyz} (g_{3\alpha}^2/12 - g_{4\alpha}^2/8) h_{\alpha}^2, \quad (2)$$

$g_{3\alpha}, g_{4\alpha}$ — диагональные компоненты g -тензоров основных триплета и дублета Pr^{3+} и Pr^{4+} . Этот механизм объясняет наблюдаемую температурно-полевою зависимость магнитоstriction в $\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, если, следуя ⁵, считать величину ν_0 не зависящей от температуры. Исходя из предположения о преобладании вклада данного механизма в магнитоstriction $\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, получим оценку для ν_0 . Стоящая в правой части (2) сумма по абсолютной величине порядка единицы; полагая $\nu_0 \ll 1$, имеем

$$\nu_0 = \frac{|\lambda_{\text{ah}}^{(0)}|}{[a(0) - a(1)]/a(0)}. \quad (3)$$

Используем найденное из эксперимента значение $\lambda_{\text{ac}}^{(0)} = -8,8 \cdot 10^{-5}$, а в качестве величин $a(0)$ и $a(1)$ подставим параметры ячейки соединений $\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ и $\text{LuBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ ⁹; поскольку ионные радиусы Pr^{4+} и Lu^{3+} близки ¹⁰. В результате $[a(0) - a(1)]/a(0) = 1,0 \cdot 10^{-2}$, что дает $\nu_0 \sim 1\%$.

$|\lambda_{\text{ac}}|^{-1/2}, 10^3$

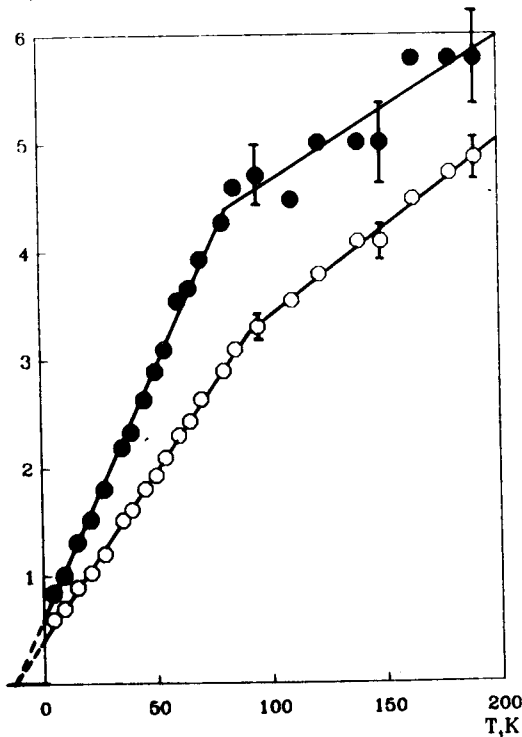


Рис. 2. Температурные зависимости $|\lambda_{\text{ac}}|^{-1/2}$ при $H = 60$ кЭ (светлые кружки) и $H = 40$ кЭ (темные кружки)

Рассмотрим теперь одноионный вклад в магнитоstriction. Согласно ¹¹, одноионная магнитоstriction редкоземельных соединений дается выражением

$$\lambda_{\text{nh}}(H, T) = - \sum_{\alpha\beta\gamma\delta} \sum_{nm} a_n B_{nm}^{\alpha\beta} S_{\alpha\beta\gamma\delta} n_{\gamma} n_{\delta} \langle \delta Y_n^m(\mathbf{J}) \rangle_{\text{H}}, \quad (4)$$

где a_n — коэффициенты Стевенса, $B_{nm}^{\alpha\beta}$ — магнитоупругие постоянные, $S_{\alpha\beta\gamma\delta}$ — компоненты тензора упругой податливости, $\langle \delta Y_n^m(\hat{J}) \rangle_H = \langle Y_n^m(\hat{J}) \rangle_H - \langle Y_n^m(\hat{J}) \rangle_0$ — изменение мультипольных моментов редкоземельных ионов в магнитном поле. Расчет величин $\langle \delta Y_n^m(\hat{J}) \rangle_H$ для ионов Pr^{3+} , определяющих согласно (4) температурно-полевою зависимость магнитострикции в $\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, проведем в высокотемпературном приближении $T \gg \mu_B H$, что дает $\langle \delta Y_n^m(\hat{J}) \rangle_H = A_{nm}^h (\mu_B H/T)^2$, причем коэффициент A_{nm}^h зависит только от направления магнитного поля:

$$A_{nm}^h = \frac{8}{75} \{ \text{Sp}[Y_n^m(\hat{J})(\hat{J}h)^2] - \text{Sp}[Y_n^m(\hat{J})] \sum_{\alpha=xyz} g_\alpha^2 h_\alpha^2 / 6 \}, \quad (5)$$

след берется по состояниям основного триплета. Учет R-R взаимодействия в стандартном приближении, т.е. замена $H \rightarrow H + H_{\text{обм}} = HT/(T - \theta)$, $T > T_N$, приводит вновь к выражению (1), причем

$$\lambda_{nh}^{(0)} = - \sum_{\alpha\beta\gamma\delta} \sum_{nm} a_n B_{nm}^{\alpha\beta} S_{\alpha\beta\gamma\delta} n_\gamma n_\delta A_{nm}^h, \quad (6)$$

$\theta \approx -T_N = -17$ К. Таким образом, оба рассмотренных механизма при сделанных выше предположениях приводят к наблюдаемой температурной зависимости магнитострикции; это говорит в пользу того, что ионы Pr находятся главным образом в состоянии Pr^{3+} (примесь Pr^{4+} $\nu_0 \sim 10^2$). В этих условиях причиной разрушения сверхпроводимости в $\text{Y}_{1-x}\text{Pr}_x\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ может быть *pf*-гибридизация, или переходы $\text{Pr}^{3+} + p \rightarrow \text{Pr}^{4+}$, где p — дырка в CuO_2 -плоскости, т.е. механизм с математической точки зрения близкий известному механизму разрушения сверхпроводимости магнитными примесями¹², а не компенсация дырок, как предполагалось ранее¹. Эта же реакция является, видимо, причиной магнитного упорядочения в $\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$. Важное значение для понимания магнитных свойств и их взаимосвязи со сверхпроводящим порядком в этих соединениях могут иметь обнаруженные нами аномалии в полевой зависимости магнитострикции при $\mathbf{H} \perp c$, которые, по-видимому, связаны с магнитными фазовыми переходами.

Литература

1. Jee C.-S. et al. Sol. St. Comm., 1989, 69, 379. Matsuda A. et al. Phys. Rev. B, 1988, 38, 2910.
2. Neukirch U. et al. Europhys. Lett., 1988, 5, 567.
3. Morán E. et al. Sol. St. Comm., 1988, 67, 369; Mitzi D.B. et al. Phys. Rev. B, 1988, 38, 6667.
4. Soderholm L., Goodman G.L. J. Sol. St. Chem., 1989, 81, 121.
5. Ziegłowski J. et al. Phys. Rev. Lett., 1986, 56, 193.
6. Li W.-H. et al. Magn. Order of Pr in $\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$. Preprint, 1988.
7. Белов К.П. и др. Ориентационные переходы в редкоземельных магнетиках. М.: Наука, 1979.
8. Nekvasil V. et al. J. de Phys., 1988, 49, Suppl. № 12, C8-2177.
9. Алексеевский Н.Е. и др. ЖЭТФ, 1988, 94 (5), 281.
10. Shanon R.D. Acta Cryst. A, 1976, 32, 751.
11. Ведерников Н.Ф. и др. ЖЭТФ, 1988, 94 (8), 358.
12. Абрикосов А.А., Горьков Л.П. ЖЭТФ, 1960, 39, 178.

Московский государственный университет
им. М.В.Ломоносова

Поступила в редакцию
10 января 1990 г.