

ИНДУЦИРОВАННЫЙ МАГНИТНЫМ ПОЛЕМ СТРУКТУРНЫЙ ФАЗОВЫЙ ПЕРЕХОД В ВИРТУАЛЬНОМ ЯН-ТЕЛЛЕРОВСКОМ ЭЛАСТИКЕ $TmPO_4$

Б.Г.Вехтер, З.А.Казей, М.Д.Каплан, Ю.Ф.Попов

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

Поступила в редакцию 14 октября 1991 г.

Впервые экспериментально обнаружен и исследован новый тип структурных фазовых переходов в редкоземельных ян-теллеровских соединениях - стимулированный кооперативный эффект Яна-Теллера. По результатам измерения магнитострикции виртуального ян-теллеровского эластика $TmPO_4$ вдоль различных кристаллографических направлений в импульсном магнитном поле определены тип перехода, значения параметра порядка и порогового магнитного поля для этого типа структурных фазовых переходов.

Для редкоземельных (РЗ) ян-теллеровских (ЯТ) систем характерно сильное влияние внешнего магнитного поля на структурный фазовый переход (СФП)-температуру перехода и параметр порядка. Величина эффекта и характер влияния определяются симметрией волновых функций и спектром нижних электронных состояний РЗ иона в кристаллическом поле. В настоящее время достаточно подробно на примере РЗ соединений со структурой циркона исследовано влияние магнитного поля на системы с наиболее простым энергетическим спектром, состоящим из изолированного орбитального дублета ($TmVO_4$)¹ или двух крамерсовых дублетов, разделенных щелью ($DyVO_4$)^{2,3}.

Наиболее сложная и наиболее интересная ситуация, однако, реализуется в четырехуровневой системе синглет-дублет-синглет, которая имеется, например, в виртуальном ЯТ эластике $TmPO_4$. Известно, что поведение такой системы определяется отношением A/Δ , где Δ - щель между основным синглетом и возбужденным дублетом, а параметр A описывает ЯТ корреляции между РЗ ионами⁴. Для иона Tm^{3+} в $TmPO_4$ $A/\Delta = 0,67$, поэтому в отсутствие магнитного поля СФП в $TmPO_4$ не реализуется⁵. Внешнее магнитное поле $H \parallel [100]$ меняет спектр и волновые функции иона Tm^{3+} таким образом, что отношение A/Δ увеличивается и в некотором критическом поле начинает удовлетворять условию, необходимому для реализации СФП. В этом состоит физическая причина, по которой внешнее магнитное поле может индуцировать СФП в такого типа системах.

Необычное поведение ЯТ эластиков с синглет-дублет-синглетной системой электронных уровней во внешнем магнитном поле было предсказано теоретически для РЗ соединений со структурой циркона⁶. В более общем случае магнитное поле в таких системах стимулирует СФП, т.е. повышает температуру фазового перехода, при этом не размывая его (что принципиально отличает их от систем типа $DyVO_4$). Настоящая работа посвящена экспериментальному исследованию этой проблемы на примере виртуального эластика $TmPO_4$.

В работе исследована магнитострикция кристалла $TmPO_4$ вдоль различных кристаллографических направлений в импульсных магнитных полях при гелиевых температурах. Монокристаллы $TmPO_4$ размером $2 \times 1 \times 1$ мм были выращены методом спонтанной кристаллизации из раствора в расплаве с

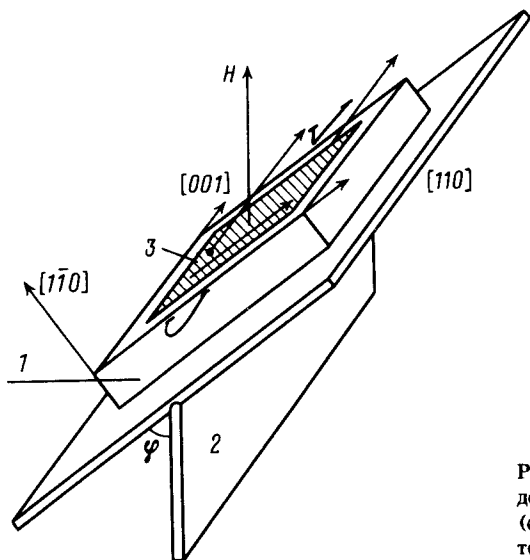


Рис. 1. Геометрия опыта: 1 - образец, 2 - держатель образца, 3 - кварцевый пьезодатчик (стрелкой показано направление тензочувствительности датчика).

использованием флюса пирофосфата свинца. Кристаллы ориентировались рентгеновским методом с точностью $\sim 1^\circ$. Схема опыта показана на рис. 1. Магнитоэлектрическая деформация растяжения-сжатия U измерялась с помощью кварцевых пьезодатчиков 3 (тонкие посеребренные пластины кварца, вырезанные перпендикулярно оси x , ось тензочувствительности вдоль оси y в плоскости пластины), наклеенных соответствующим образом на кристалл 1. Кристалл смонтирован на держателе 2, позволяющем изменять ориентацию магнитного поля H относительно осей кристалла. Сигнал на электродах кварца V , возникающий в импульсном магнитном поле, регистрировался на экране осциллографа.

Следует отметить, что измерения парамагнитных кристаллов в импульсных магнитных полях при гелиевых температурах осложняются разогревом образца за счет магнитокалорического эффекта. Величину разогрева образца мы оценили из сравнения намагниченности, измеренной в импульсных и статических магнитных полях. Для РЗ цирконов при ориентации H вдоль максимального значения g -фактора нагрев образца для импульса поля 100 кЭ составляет $\sim (2-3)^\circ$ и не влияет принципиально на полученные результаты.

На рис. 2 приведены зависимости $U(H)$ кристалла $TmPO_4$ вдоль оси $[110]$ для ориентации H вдоль направления близкого к оси $[100]$ при $T = 4,5$ К (геометрия опыта показана на рис. 1 и на вставке рис. 2) для двух различных разориентаций магнитного поля. Отметим необычный характер зависимости $U(H)$ для этой геометрии: магнитоэлектричество не превышает 10^{-4} в полях меньше критического $H_c \simeq 50$ кЭ и резко возрастает при $H > H_c$, достигая гигантской величины $\sim 10^{-3}$. Величина и знак U существенно зависят от разориентации магнитного поля относительно оси $[100]$, причем при изменении знака угла разориентации меняется знак магнитоэлектричества. Для этой же ориентации поля $H \parallel [100]$ магнитоэлектричество вдоль направления $[100]$ на два порядка меньше ($U \sim 10^{-5}$), что совпадает с результатами измерений в статических полях ⁷.

При объяснении экспериментальных результатов принципиальным является вопрос о симметрии магнитоэлектрической деформации, индуцированной магнитным полем $H \parallel [100]$. В тетрагональных цирконах преобладает взаимодействие электронов ЯТ ионов с деформациями и фононами B_{1g} - и

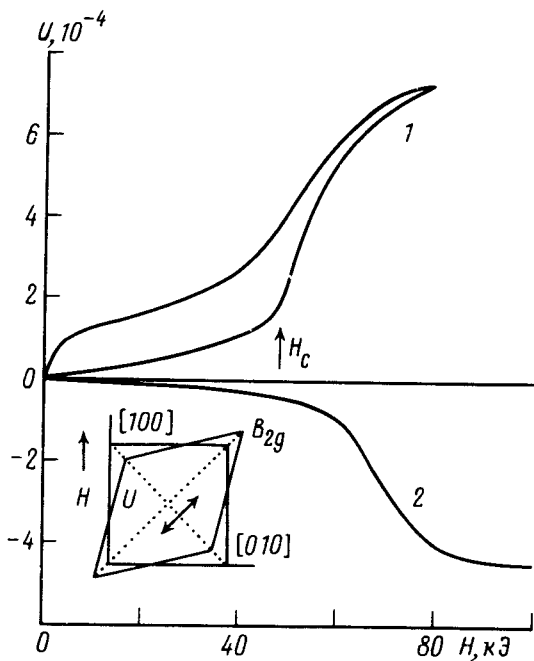


Рис. 2. Полевые зависимости деформации растяжения-сжатия кристалла $TmPO_4$ вдоль оси $[110]$ при ориентации магнитного поля вдоль направления близкого к оси $[100]$ для различных углов разориентации поля $\Delta\varphi$: 1 - $\Delta\varphi > 0$, 2 - $\Delta\varphi < 0$ (см. рис. 3).

B_{2g} -симметрии. Деформация B_{1g} -типа соответствует ромбической деформации растяжения вдоль оси $[100]$ или $[010]$, а деформация B_{2g} -типа - ромбической деформации растяжения вдоль оси $[110]$ или $[\bar{1}\bar{1}0]$ (в исходной системе координат кристалла деформация B_{2g} -типа представляется моноклинной). Эксперимент показывает, что при $H \parallel [100]$ продольная магнитострикция (деформация B_{1g} -типа) мала, а деформация вдоль направления $[110]$ (деформация B_{2g} -типа) достигает величины спонтанной деформации при СФП в РЗ цирконах. Это означает, что магнитное поле $H \parallel [100]$ вызывает в действительности деформацию B_{2g} -типа в ab -плоскости и симметрия магнитострикционной деформации не совпадает с симметрией магнитного поля. Деформация B_{2g} -типа обуславливает незначительную $\sim U^2$ деформацию растяжения - сжатия вдоль направления $[100]$, что и наблюдается на эксперименте.

Другими словами внешнее магнитное поле $H \parallel [100]$ вызывает не просто магнитострикционную деформацию, а индуцирует СФП B_{2g} -типа в $TmPO_4$. Тип перехода обусловлен тем, что в $TmPO_4$ взаимодействие с B_{2g} -деформациями преобладает, так что упругая постоянная C_{66} , сопряженная B_{2g} -деформации, сильно (на 80%) смягчается при понижении температуры⁸. Однако, при $H = 0$ параметр ЯТ корреляций A меньше критического, а магнитное поле формирует более благоприятную электронную структуру и индуцирует кооперативный эффект Яна-Теллера B_{2g} -типа.

Подтверждением этого факта служит также сильная зависимость магнитострикции вдоль $[110]$ от разориентации H относительно оси $[100]$. Действительно, при СФП обычно наблюдается разбиение кристалла на ЯТ или структурные домены и величина и знак результирующей деформации кристалла зависят от реальной доменной структуры². Кристалл можно сделать мономономенным слабым (~ 5 кЭ) магнитным полем, ориентированным вдоль направления спонтанной деформации, т.е. вдоль направлений $[110]$ или $[\bar{1}\bar{1}0]$ в нашем случае.

При точной ориентации магнитного поля вдоль направления $[100]$ проекции поля на оси $[110]$ и $[\bar{1}\bar{1}0]$ одинаковы, распределение доменов равновероятно и результирующая макроскопическая деформация кристалла существенно меньше

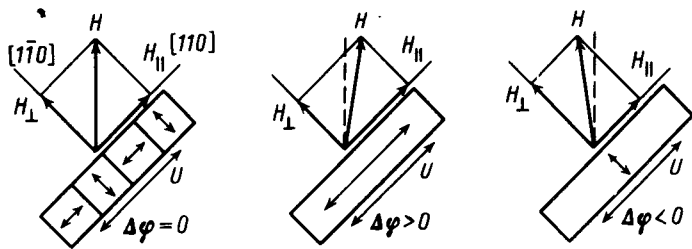


Рис. 3. Схематическое изображение доменного состояния кристалла TmPO_4 в полях выше критического H_c при ориентации магнитного поля вдоль направления близкого к оси $[100]$ для различных углов разориентации поля $\Delta\varphi$.

деформации в домене (рис. 3). При небольшой разориентации $\Delta\varphi \approx (3 - 5)^\circ$ магнитного поля относительно оси $[100]$ в ab -плоскости, имеется "монодоменизирующее" поле $H_d = |H_{\parallel}| - |H_{\perp}| \approx \sqrt{2}H \Delta\varphi$ вдоль или перпендикулярно направлению измерения магнитострикции. При этом кристалл становится монодоменным с легкой магнитной осью (ось с максимальной магнитной восприимчивостью) вдоль монодоменизирующего поля H_d .

Таким образом, полученные экспериментальные результаты однозначно свидетельствуют, что магнитное поле $H \parallel [100]$ индуцирует СФП B_{2g} -типа в виртуальном ЯТ эластике TmPO_4 . Характер зависимости $U(H)$ определяется в значительной степени качеством кристалла и точностью ориентации. Для оптимального случая мы наблюдали резкое, почти скачкообразное возрастание $U(H)$ в пороговом поле $H_c \approx 50$ кЭ; при ухудшении качества кристалла и ориентации зависимость $U(H)$ размывается. Значение критического поля H_c хорошо согласуется с теоретическими оценками, полученными для TmPO_4 в приближении молекулярного поля ⁶.

В заключение отметим, что TmPO_4 не является единственным уникальным кристаллом, в котором возможно реализовать стимулированный СФП. Эффекты, аналогичные описанным, должны наблюдаться также в разбавленных кристаллах $\text{Tb}_x\text{Gd}_{1-x}\text{VO}_4$. В этой системе, меняя концентрацию x ЯТ ионов Tb^{3+} , можно получить любую величину параметра A/Δ и, таким образом, более детально исследовать это красивое физическое явление - индуцированный магнитным полем кооперативный эффект Яна-Теллера.

1. Cooke A.H., Swithenby S.J., Wells M.R., Sol. St. Commun., 1972, 10, 265.
2. Казей З.А., ФТТ, 1986, 28, 3194.
3. Harley R.T., Perry C.H., Richter W., J. Phys. C, 1977, 10, L187.
4. Elliott R.J., Harley R.T., Heyes W., Smith S.R.P., Proc. Roy. Soc., 1972, A238, 217.
5. Knoll K.D., Phys. Stat. Sol. (b), 1971, 45, 553.
6. Вехтер Б.Г., Голубев В.Н., Каплан М.Д., Письма в ЖЭТФ, 1987, 45, 136.
7. Бондарь И.А., Вехтер Б.Г., Казей З.А., и др., ЖЭТФ, 1988, 94, 288.
8. Harley R.T., Manning D.I., J. Phys. C, 1978, 11, L633.