

АНОМАЛИИ МАГНИТНЫХ СВОЙСТВ ФТОРОСИЛИКАТА НИКЕЛЯ ПРИ ВЫСОКИХ ДАВЛЕНИЯХ И СВЕРХНИЗКИХ ТЕМПЕРАТУРАХ

А.А.Галкин, И.М.Витебский, В.П.Дьяконов,
И.М.Фита, Г.А.Цинцадзе

Впервые исследовано влияние давления на температуру и характер магнитного упорядочения в $\text{NiSiF}_6 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$. Получена P - T фазовая диаграмма, в тройной точке которой стыкуются области устойчивости парамагнитной и двух ферромагнитных фаз (типа "легкая" ось и "легкая" плоскость), а производная dT_c/dP меняет знак.

Фторосиликат никеля $\text{NiSiF}_6 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ (федоровская группа симметрии $R\bar{3}$) относится к модельным магнетикам, магнитные и резонансные свойства которого хорошо изучены¹. При температурах ниже $T_c = 0,150$ К в этом соединении наблюдается ферромагнитное упорядочение, магнитный момент направлен вдоль оси C_3 .

Основным состоянием иона Ni^{2+} в кристаллическом поле тригональной симметрии является спиновый триплет. Спин-орбитальное взаимодействие расщепляет его на синглет и дублет, причем дублет лежит ниже синглета. Начальное расщепление $\mathcal{D} = -0,16$ К. Исследования спектров ЭПР ионов Ni^{2+} показали, что при повышении давления параметр \mathcal{D} увеличивается с прохождением через ноль. Поэтому представляет интерес выяснить, каким образом инверсия энергетических уровней основного состояния иона Ni^{2+} отразится на магнитных свойствах кристалла.

В настоящей работе изучено воздействие всестороннего давления (до 5 кбар) на температуру и характер магнитного упорядочения фторосиликата никеля. Главной особенностью данного эксперимента является то, что магнитные измерения под давлением проводились при сверхнизких температурах (0,5 – 0,05 К) в рефрижераторе растворения. Исследования выполнены на монокристаллических образцах индукционной методикой на частоте 30 Гц (амплитуда переменного магнитного поля на образце $1 \div 0,3$ Э). Зависимость температуры Кюри от давления определялась по сдвигу пика магнитной восприимчивости в направлении легкого намагничивания.

О появлении магнитного упорядочения свидетельствует резкое возрастание восприимчивости до величины $\sim 1/4 \pi N$, где N – размагничивающий фактор образца. При дальнейшем понижении температуры амплитуда восприимчивости остается практически на постоянном уровне, что говорит о наличии доменной структуры. Тот факт, что при $P < 1,3$ кбар такое поведение обнаруживает лишь χ_{\parallel} (восприимчивость вдоль тригональной оси), а при $P > 1,3$ кбар лишь χ_{\perp} , однозначно показывает, что в первом случае магнитные моменты упорядочиваются вдоль оси C_3 , а во втором – перпендикулярно ей, т.е. имеет место индуцированный давлением спин-переориентационный переход.

Полученная таким образом P - T фазовая диаграмма представлена на рис. а. Если в выполненных ранее работах при всестороннем сжатии устанавливалось либо увеличение, либо уменьшение критической температуры, то в данной работе в одном магнитоэлектрике наблюдается аномальная, знакопеременная зависимость температуры Кюри от давления (линия AOB на рис. а). В критической точке O ($P_K = 1,3$ кбар, $T_K = 0,120$ К) производная dT_c/dP меняет знак.

Теоретический анализ полученной зависимости $T_c(P)$ проведен в приближении молекулярного поля с использованием метода спин-гамильтониана. Получены следующие аналитические выражения для температуры Кюри T_c

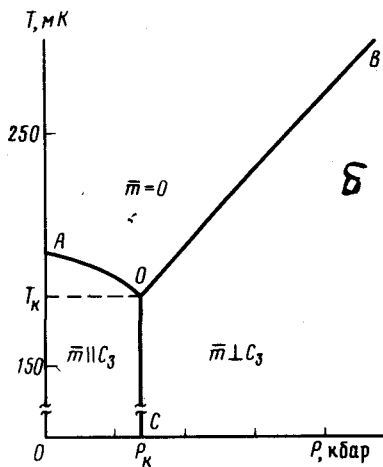
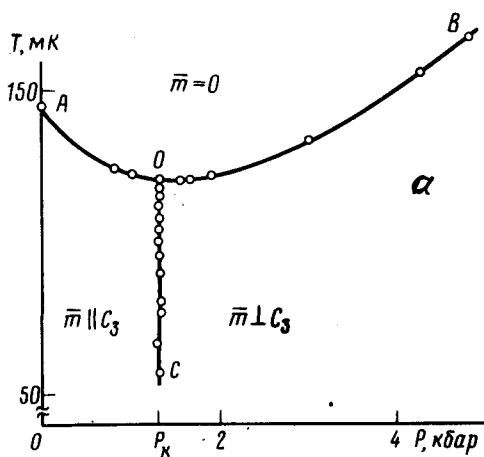
$$T_c (2 + \exp\{\mathcal{D}/T_c\}) = 3 T_0 \quad \text{при } \mathcal{D} < 0, \quad (1)$$

$$T_c = \mathcal{D} \left\{ \ln \frac{T_0 + 2\mathcal{D}/3}{T_0 - \mathcal{D}/3} \right\}^{-1} \quad \text{при } \mathcal{D} > 0. \quad (2)$$

T_0 – характеристика обменного взаимодействия

$$T_0 = \frac{2}{3} \lambda \mu_B^2 g^2 n, \quad (3)$$

где λ – константа молекулярного поля, характеризующая изотропное обменное взаимодействие; n – число магнитных ионов в единице объема, g – фактор практически изотропен и равен 2,24.



Магнитная фазовая диаграмма фторосиликата никеля под давлением: а – экспериментальная, б – построенная по формулам (1) и (2)

Параметры T_0 и \mathcal{D} являются монотонно возрастающими функциями давления². Различный аналитический вид выражений для T_c в случаях $\mathcal{D} < 0$ и $\mathcal{D} > 0$ связан с тем, что при $\mathcal{D} < 0$ минимуму свободной энергии (при $T < T_c$) отвечает состояние с намагниченностью $m \parallel C_3$, а при $\mathcal{D} > 0$ – состояние с $m \perp C_3$. В окрестности критической точки, т.е. при $|\mathcal{D}| \ll T_0$, вместо (1) и (2) можно использовать следующие приближенные выражения:

$$T_c \approx T_0 - \mathcal{D}/3 \quad \text{при } \mathcal{D} < 0 \quad (4)$$

$$T_c \approx T_0 + \mathcal{D}/6 \quad \text{при } \mathcal{D} > 0 \quad (5)$$

Теоретическая зависимость $T_c(P)$ в соответствии с выражениями (1) и (2) показана линией AOB на рис. б. Экспериментальные значения T_c при различных давлениях примерно в полтора раза ниже теоретических. Это не удивительно, если учесть, что параметры обменного взаимодействия T_0 в концентрированном фторосиликате никеля и в разбавленном растворе $Ni_xZn_{1-x}SiF_6 \cdot 6H_2O$, для которого получена зависимость $T_0(P)$, используемая при анализе, не обязаны совпадать. Определяющим с точки зрения топологии фазовой диаграммы является тот надежно установленный факт, что $\mathcal{D}(P)$ проходит через 0 при $P = P_K$. Таким образом, точка O является тройной точкой, в ней стыкуются области устойчивости парамагнитной фазы и двух ферромагнитных состояний (типа "легкая" ось и "легкая" плоскость). Линия OC – линия магнитного ориентационного перехода.

Использованная выше теоретическая модель, основанная на спиновом гамильтониане аксиальной симметрии^{1,2} с учетом одноионной анизотропии типа $\mathcal{D}S_z^2$, не позволяет ответить на вопрос о характере фазового перехода по давлению между двумя ферромагнитными состояниями. Используя симметричные соображения в рамках феноменологической теории фазовых переходов можно показать: а) переход из состояния с $m \parallel C_3$ в состояние $m_{\perp} \neq 0$ может происходить только первым родом (из-за наличия инвариантов третьей

степени по соответствующему параметру порядка); б) состояние с $m \perp C_3$, строго говоря, вообще не реализуется — даже при $P > P_k$ вектор m не будет лежать точно в базисной плоскости.

К сожалению, в исследуемом интервале температур нам не удалось экспериментально обнаружить эти особенности, поскольку при $P \sim P_k$, аномально велики обе компоненты магнитной восприимчивости (χ_{\parallel} и χ_{\perp}).

Авторы выражают искреннюю признательность В.Г.Барьяхтару за интерес к работе и полезные обсуждения.

Литература

1. Валишев Р.М. В сб. "Парамагнитный резонанс", Казань, 1968, стр.35.
2. Галкин А.А., Кожухарь А.Ю., Цинцадзе Г.А. ЖЭТФ, 1976, 70, 248.

Донецкий физико-технический институт
Академии наук Украинской ССР

Поступила в редакцию
1 апреля 1982 г.