

УДК 548:537.611.44

ИССЛЕДОВАНИЕ $f-d$ -ОБМЕНА В РАЗБАВЛЕННЫХ ОРТОХРОМИТАХ ДИСПРОЗИЯ

Д. В. Белов, И. А. Зорин, А. М. Кадомцева, И. Б. Крынецкий, М. М. Лукина, В. М. Матвеев

(кафедра общей физики для естественных факультетов)

В монокристаллах $Dy_xY_{1-x}CrO_3$ исследованы спонтанные и индуцированные внешним магнитным полем ($H||a$, $H||b$, $H||c$) спин-переориентационные переходы, не наблюдаемые в чистом $DyCrO_3$. Определены параметры $f-d$ -обмена и константы анизотропии исследованных материалов.

Хорошо известно [1, 2], что разнообразие магнитных свойств редкоземельных ортоферритов и ортохромитов — изоструктурных соединений $RFeO_3$ и $RCrO_3$ — во многом определяется обменным $f-d$ -взаимодействием в этих материалах, главным образом анизотропным. Дополнительная специфика ортоферритов и ортохромитов связана с тем, что сами редкоземельные ионы в структуре этих соединений, например Ho^{3+} , Tb^{3+} , Dy^{3+} , обладают сильно анизотропными свойствами, и к ним с хорошей точностью применима модель Изинга. Особое место занимает крамерсов ион Dy^{3+} , основное состояние которого (крамерсов дублет) характеризуется крайне анизотропным g -фактором с близким к максимально возможному значением магнитного момента вдоль некоторого выделенного направления (изинговской оси). Поскольку обменное расщепление дублета в первом порядке теории возмущений отсутствует [3], становятся существенными так называемые ванфлековские слагаемые негейзенберговской части гамильтониана $f-d$ -обмена, учитывающие обменное примешивание к основному дублету возбужденных уровней во втором порядке теории возмущений. Именно эти слагаемые ответственны за спиновую переориентацию $\Gamma_4(G_xF_z) \rightarrow \Gamma_1(G_y)$ [3] (переход типа Морина) в ортоферрите диспрозия.

В редкоземельных ортохромитах $f-d$ -взаимодействие заметно сильнее, чем в ортоферритах. Вероятно, поэтому в ортохромите диспрозия ванфлековские обменные слагаемые и связанная с ними анизотропия достаточны, чтобы сразу же после достижения температуры магнитного упорядочения ионов хрома энергетически предпочтительной стала магнитная конфигурация $\Gamma_2(G_zF_x)$ [4] (ионы Cr^{3+} , очевидно, предпочитают упорядочиваться в конфигурации $\Gamma_4(G_xF_z)$, как в $YCrO_3$ [5]) *. Конфигурация Γ_2 сохраняется в $DyCrO_3$ вплоть до самых низких температур. Отсутствие спонтанных спин-переориентационных переходов в ортохромите диспрозия «обедняет» спектр магнитных свойств этого соединения и затрудняет определение параметров обменного взаимодействия.

С целью определения параметров обменного $Dy-Cr$ -взаимодействия и констант анизотропии в плоскости ac кристалла нами были проведены магнитные исследования монокристаллов $Dy_xY_{1-x}CrO_3$ с $x=0,11$ и $0,21$, в которых в результате разбавления редкоземельной под-

* Ванфлековская обменная энергия минимальна в конфигурации Γ_1 и максимальна в конфигурации Γ_4 , т. е. она способствует упорядочению кристалла в конфигурациях Γ_1 и Γ_2 (по отношению к Γ_4). Какая именно конфигурация реализуется, зависит от конкретного соотношения констант анизотропии ионов Cr^{3+} в плоскостях ac и ab кристалла.

системы немагнитными ионами Y^{3+} реализуются спин-переориентационные переходы $\Gamma_4 \rightarrow \Gamma_2$.

Эксперимент. Монокристаллы $Du_xY_{1-x}CrO_3$ с $x=0,11$ и $0,21$ были выращены методом из раствора в расплаве при изотермическом испарении. Количественное содержание ионов Du^{3+} и Y^{3+} определялось рентгеноспектральным методом с точностью $\sim 4\%$.

Снимались изотермы намагниченности на вибрационном магнитометре в интервале температур от 1,65 до 150 К. На рис. 1 представлены температурные зависимости спонтанной намагниченности исследуе-

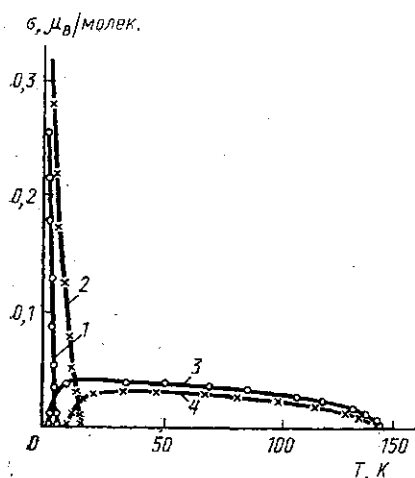


Рис. 1. Температурные зависимости спонтанной намагниченности: 1 — σ_a , $x=0,11$; 2 — σ_a , $x=0,21$; 3 — σ_c , $x=0,11$; 4 — σ_c , $x=0,21$

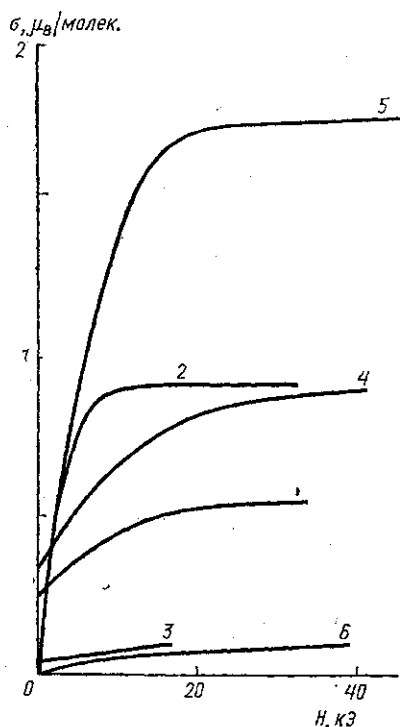


Рис. 2. Изотермы намагниченности: 1 — σ_a , $x=0,11$, $T=1,65$ К; 2 — σ_b , $x=0,11$, $T=1,65$ К; 3 — σ_c , $x=0,11$, $T=4,2$ К; 4 — σ_a , $x=0,21$, $T=2,0$ К; 5 — σ_b , $x=0,21$, $T=2,9$ К; 6 — σ_c , $x=0,21$, $T=4,2$ К

мых монокристаллов вдоль осей a и c кристалла, полученные путем экстраполяции изотерм намагниченности $\sigma_{a,c}(H)$ к нулевому полю. Видно, что ниже температуры магнитного упорядочения $T_N=142$ К слабощеромагнитный момент (СФМ) в обоих замещенных ортохромитах направлен вдоль оси c кристалла (конфигурация Γ_4), т. е. как и в $YCrO_3$. Видно также, что с понижением температуры СФМ переориентируется от направления, параллельного оси c , к оси a (интервалы температур переориентации $T_{R1}-T_{R2}$: 8–15 К для $x=0,21$ и 1,7–3 К для $x=0,11$). Появление в этих составах спонтанного спин-переориентационного перехода $\Gamma_4 \rightarrow \Gamma_2$ указывает на относительно большую величину анизотропии Du — Cr -обменного взаимодействия, которая да-

же при столь малых концентрациях стабилизирует при низких температурах конфигурацию Γ_2 .

Изотермы намагниченности $\sigma(H)$, снятые вдоль осей a , b и c при низких температурах (рис. 2), указывают на сильную анизотропию g -фактора иона Dy^{3+} . Намагниченность вдоль осей a и b насыщается в больших полях, достигая значений $\sigma_{a0}=0,53\mu_B$, $\sigma_{b0}=0,90\mu_B$ ($x=0,11$) и $\sigma_{a0}=0,87\mu_B$, $\sigma_{b0}=1,72\mu_B$ ($x=0,21$) в расчете (как и всюду ниже) на одну молекулу $Dy_xY_{1-x}CrO_3$. Намагниченность вдоль оси c существенно меньше и в фазе Γ_4 практически линейно зависит от поля. Эти значения намагниченности насыщения соответствуют ориентациям изинговских осей под углами $\varphi_0=62^\circ$ ($x=0,11$) и $\varphi_0=64^\circ$ ($x=0,21$) к оси a кристалла ($\tan \varphi_0=\sigma_{b0}/\sigma_{a0}$) и магнитному моменту ионов Dy^{3+} вдоль изин-

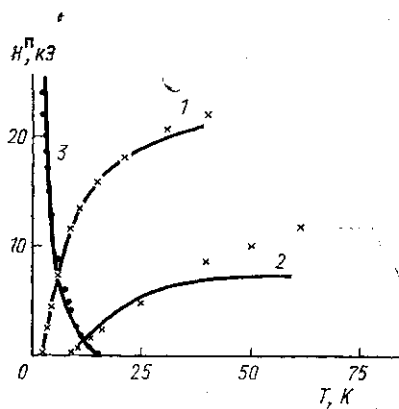


Рис. 3. Температурные зависимости пороговых полей: 1 — $H \parallel a$, $x=0,11$; 2 — $H \parallel a$, $x=0,21$; 3 — $H \parallel c$, $x=0,21$. Сплошные линии — теоретические кривые, точки — данные эксперимента

товской оси $\sigma_{Dy} \approx 9\mu_B/\text{ион}$. Заметим, что в чистом ортохромите диспрозия $\varphi_0=63^\circ$ и $\sigma_{Dy} \approx 8,9\mu_B/\text{ион}$.

В обоих монокристаллах исследовались также спин-переориентационные переходы в плоскости ac ($\Gamma_2 \rightarrow \Gamma_4$ и $\Gamma_4 \rightarrow \Gamma_2$), индуцированные внешним магнитным полем ($H \parallel a$ и $H \parallel c$ для состава с $x=0,21$ и $H \parallel a$ для состава с $x=0,11$). Пороговые поля этих переходов определялись по изломам на изотермах намагниченности. Эти пороговые поля (фазовые H - T -диаграммы) приведены на рис. 3.

Обсуждение результатов. При анализе полученных экспериментальных результатов мы используем термодинамический потенциал (в расчете на молекулу $Dy_xY_{1-x}CrO_3$)

$$\Phi = -xT \ln 2 \operatorname{ch} \frac{\Delta(H, \theta)}{T} + K_1(x) \cos^2 \theta + K_2(x) \cos^4 \theta - \sigma(x) H. \quad (1)$$

Здесь θ — угол между вектором СФМ F ионов Cr^{3+} и осью a кристалла в плоскости ac , $2\Delta(H, \theta)$ — расщепление основного дублета иона Dy^{3+} во внешнем и молекулярном полях, $K_1(x)$ и $K_2(x)$ — константы анизотропии в плоскости ac (2-го и 4-го порядков), $\sigma(x)$ — не зависящая от температуры спонтанная намагниченность, H — внешнее магнитное поле. Формула (1) получена путем минимизации исходного термодинамического потенциала ортохромитов (см. [1, 2]) по величине СФМ F ионов Cr^{3+} , причем сделаны следующие предположения: спиновая переориентация происходит только в плоскости ac , не учитывается обратное влияние редкоземельной подсистемы ионов Dy^{3+} на насыщенную подсистему ионов Cr^{3+} и, наконец, учитывается заселенность только основного дублета иона Dy^{3+} , что оправданно при $T \leq 50$ К.

Первое слагаемое в (1) представляет собой вклад ионов Dy^{3+} , связанный с расщеплением основного дублета во внешнем и молекулярном полях. Пренебрегая возможным малым расщеплением этого дублета в конфигурации Γ_4 (вследствие малости g -фактора вдоль оси c), можно записать

$$\Delta(H, \theta) = \Delta \cos \theta + g_a H \text{ при } H \parallel a; \quad \Delta(H, \theta) = \Delta \cos \theta \text{ при } H \parallel c,$$

где Δ — обменное (и дипольное) расщепление дублета в конфигурации Γ_2 , g_a — g -фактор вдоль оси a кристалла.

Константа анизотропии 2-го порядка $K_1(x)$ включает в себя константу анизотропии подрешеток ионов Cr^{3+} и не зависящую от температуры (ванфлековскую) анизотропию $Dy-Cr$ -взаимодействия: $K_1(x) = K_1^{Cr} + xK_1^{Dy}$, причем $K_1^{Cr} > 0$ (ионы Cr^{3+} предпочитают упорядочиваться в фазе Γ_4); $K_1^{Dy} < 0$. Константа анизотропии 4-го порядка $K_2(x) > 0$, поскольку экспериментально наблюдается непрерывная переориентация спинов (в чистом $YCrO_3$ $K_2 = 0$ [6]).

Величина $\sigma(x)$ представляет собой не зависящий от температуры вклад в спонтанную намагниченность:

$$\sigma_{a,c}(x) = F + x\sigma'_{a,c}, \quad (2)$$

где $\sigma'_{a,c}$ — ванфлековская намагниченность за счет $Dy-Cr$ -взаимодействия. Значения ванфлековской намагниченности вдоль осей a и c кристалла практически совпадают (из [3] следует, что $\sigma'_a = \sigma'_c \sin \varphi_0 \approx \approx 0,9 \sigma'_c$). Поскольку $\sigma_c \approx F$ (см. ниже), то с учетом малости x можно считать $\sigma_a \approx \sigma_c$.

На основе термодинамического потенциала (1) обсудим полученные экспериментальные результаты.

1. Спонтанные спин-переориентационные переходы. Минимизируя (1) по углу θ при $H=0$, находим выражение для температур начала ($T_{R1}: \Gamma_4 \rightarrow \Gamma_{42}$) и конца ($T_{R2}: \Gamma_{42} \rightarrow \Gamma_2$) спонтанной спиновой переориентации $\Gamma_4 \rightarrow \Gamma_{42} \rightarrow \Gamma_2$ (см. рис. 1):

$$T_{R1} = \frac{x\Delta^2}{2K_1}, \quad (3a)$$

$$T_{R2} = \frac{\Delta}{\text{arth}[(2K_1 + 4K_2)/(x\Delta)]} \approx \frac{x\Delta^2}{2K_1 + 4K_2}. \quad (3б)$$

В формулы (3а, б) входят три неизвестных энергетических параметра: K_1 , K_2 , Δ . Величину Δ можно определить из температурной зависимости пороговых полей спин-переориентационных переходов, индуцируемых внешним магнитным полем (см. рис. 3), после чего, используя экспериментальные значения температур T_{R1} и T_{R2} , из (3а) и (3б) можно найти K_1 и K_2 . Эти параметры имеют размерность температуры.

2. Спин-переориентационные переходы, индуцируемые внешним полем.

а) Случай $H \parallel c$. Величина порогового поля для спин-переориентационного перехода $\Gamma_2 \rightarrow \Gamma_4$ определяется простой формулой

$$H_{\Pi}^c = \frac{x\Delta^2}{\sigma_c(x)} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_{R1}} \right), \quad (4)$$

которая получается путем минимизации термодинамического потенциала (1) при $H \parallel c$ с учетом (3а). Если магнитное поле измерять в кЭ, то σ_c будет измеряться в К/кЭ ($1 \mu_B$ соответствует $1/15$ К/кЭ).

Наши измерения показали, что величина спонтанной намагниченности кристалла вдоль оси c $\sigma_c(x)$ практически не зависит от температуры при $T \leq 50$ К (в согласии со сделанным выше предположением) и составляет

$$\sigma_c = 0,040 \mu_B = 2,7 \cdot 10^{-3} \text{ К/кЭ для } x=0,11, \quad (5a)$$

$$\sigma_c = 0,033 \mu_B = 2,2 \cdot 10^{-3} \text{ К/кЭ для } x=0,21. \quad (5b)$$

Эти значения меньше, чем для YCoO_3 , где $\sigma_c \equiv F = 0,047 \mu_B = 3,1 \cdot 10^{-3} \text{ К/кЭ}$. Полученные результаты свидетельствуют об отрицательном вкладе ванфлековской намагниченности ионов Dy^{3+} в полную намагниченность исследуемых соединений вдоль оси c . С учетом (2) получаем оценку для ванфлековской намагниченности ионов Dy^{3+} : $\sigma_c' = -0,065 \mu_B/\text{ион} \approx -4,3 \cdot 10^{-3} \text{ К/кЭ}$.

б) Случай $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}$. Пороговое поле для спин-переориентационного перехода $G_4 \rightarrow G_2$ определяется в неявном виде формулой *

$$H_n^a = \frac{1}{\sigma_a} x \Delta [\text{th}(\Delta/T_{R2}) - \text{th}((\Delta + g_a H_n^a)/T)], \quad (6)$$

причем, как указывалось выше, можно считать $\sigma_a \approx \sigma_c$.

Подставляя значение σ_c из (5б) для состава с $x=0,21$ в выражения (4) и (6) (в последнем вместо σ_a), можно построить кривые зависимости пороговых полей H_n^c , H_n^a от температуры при различных значениях параметра Δ . Наилучшее согласие кривых $H_n^{c,a}(T)$ с экспериментальными точками в интервале температур 2–30 К достигается при $\Delta \approx 0,84$ К, что при $\sigma_{\text{Dy}} = 9 \mu_B = 0,6 \text{ К/кЭ}$ соответствует обменному полю $H_{\text{об}}^{\text{из}} = \Delta/\sigma_{\text{Dy}} \approx 1,4 \text{ кЭ}$ вдоль изинговской оси или обменному полю $H_{\text{об}}^a = H_{\text{об}}^{\text{из}}/\cos \varphi_0 \approx 3,2 \text{ кЭ}$ вдоль оси a . При этом значении параметра Δ наблюдается хорошее согласие теории и эксперимента и для состава с $x=0,11$ (см. рис. 3).

Расхождение теории и эксперимента при $T > 30$ К связано, по-видимому, с возрастающим по мере увеличения температуры вкладом в термодинамический потенциал возбужденных дублетов иона Dy^{3+} , который мы не учитываем в (1).

Теперь из (3а) и (3б) легко получить оценки для констант анизотропии $K_1(x)$ и $K_2(x)$ в исследуемых соединениях:

$$K_1 = 1,29 \cdot 10^{-2} \text{ К}, \quad K_2 = 5,0 \cdot 10^{-3} \text{ К для } x=0,11,$$

$$K_1 = 4,9 \cdot 10^{-3} \text{ К}, \quad K_2 = 2,1 \cdot 10^{-3} \text{ К для } x=0,21.$$

Учитывая, что $K_1^{\text{ст}} = 0,17 \text{ К}$ [5, 6], можно сделать вывод, что наблюдаемое различие в константах анизотропии свидетельствует о существенном вкладе от ванфлековского механизма в рассматриваемых соединениях.

Таким образом, используя экспериментальные результаты, мы определили на основе простой, но достаточно адекватной модели основные магнитные параметры исследованных соединений.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- [1] Белов К. П., Звездин А. К., Кадомцева А. М., Левитин Р. З. Ориентационные переходы в редкоземельных магнетиках. М. 1979. [2] Звездин А. К., Матвеев В. М., Мухин А. А., Попов А. И. Редкоземельные ионы в магнитоупорядоченных кристаллах. М. 1985. [3] Звездин А. К., Матвеев В. М. // ЖЭТФ.

* Можно в явном виде выразить T как функцию H_n^a , но мы для упрощения записи этого делать не будем.

1979. 77. С. 1076. [4] Tsushima K., Tamaki T., Yamaura R.//Тр. Междунар. конф. по магнетизму (МКМ-73). М. 1974. Т. 5. С. 270. [5] Jacobs J. S., Burgin H. F., Levinson L. M.//J. Appl. Phys. 1971. 42. P. 1631. [6] Кадомцева А. М. и др.//ЖЭТФ. 1981. 81. С. 702.

Поступила в редакцию
06.04.87

ВЕСТН. МОСК. УН-ТА. СЕР. 3, ФИЗИКА. АСТРОНОМИЯ. 1988. Т. 29, № 4

УДК 530.145—531.787

ЭЛЕКТРОСТАТИЧЕСКОЕ ПОЛЕ В НЕОДНОРОДНО НАПРЯЖЕННОМ ПРОВОДНИКЕ

В. И. Григорьев, Е. В. Григорьева

(кафедра квантовой теории и физики высоких энергий)

На основе модели Томаса—Ферми проводится теоретическое исследование электрического поля в химически однородном изотермическом проводнике в зависимости от распределения плотности, порождаемого неоднородными напряжениями.

Появление электростатического поля внутри проводника в результате действия на этот проводник гравитационного поля было предметом довольно оживленного обсуждения, начавшегося около двух десятилетий назад. Первую оценку для электрического поля, «наведенного» гравитационным воздействием, опубликовали, по-видимому, Барнхилл и Шифф [1]. Поле Барнхилла—Шиффа было подвергнуто как теоретическому, так и экспериментальному исследованию в ряде работ (см., напр., [2—7]). Хотя сам факт существования электрического поля такого рода установлен достаточно надежно, в оценках его величины имеется значительный разбой. Это обусловлено, в частности, по нашему мнению, тем, что появление электрического поля вызывается несколькими различными физическими причинами, и разные авторы фиксируют внимание на различных механизмах поляризации. Правда, имеются и такие подходы, которые как бы маскируют механизм поляризации. Так, простейшая оценка для поля, фактически использованная уже в [1], основывается на таком элементарном рассуждении: гравитационное поле напряженности G действует на ион массы M с силой MG ; ион находится в равновесии, если возникает электрическое поле с такой напряженностью E , что электрическая сила eE уравнивает гравитационную: $MG + eE = 0$; отсюда получается оценка $E = -(M/e)G$, но вопрос, почему появляется поле, обходится.

Цель настоящей заметки — оценить роль «концентрационного» механизма формирования электрического поля. Имеется в виду, что даже в химически однородном и поддерживаемом при постоянной температуре проводнике первого рода при наличии градиентов плотности (т. е. при неоднородных напряжениях, вызываемых внешними воздействиями) должно появляться электрическое поле. Физическая причина возникновения этого поля может быть пояснена достаточно наглядно. Носителями массы являются почти исключительно ионы (атомные остовы), одновременно несущие положительные электрические заряды. Если внешние воздействия вызывают повышение плотности в некоторых участках проводника, то там возникает избыточный положительный заряд, так как «облако» валентных электронов благодаря квантомеханическим эффектам и в первую очередь принципу Паули обладает некоторой дополнительной жесткостью, препятствующей полной