

- [19] Zener C., Heikes R. R.//Rev. Mod. Phys. 1953. 25, N 1. P. 191. [20] Белов К. П., Васильковский В. А., Ковтун Н. М. и др.//ФТТ. 1976. 18, № 8. С. 2244. [21] Brooks M. S. S., Eriksson O., Johanson B.//J. Phys. Condens. Matter. 1989. 1. P. 5861. [22] Broucha M., Buschow K. H. J.//J. Appl. Phys. 1973. 44, N 4. P. 1813. [23] Buschow K. H. J., Broucha M., Biesterbos J. W. M., Dirks A. G.//Physica. 1977. 91B. P. 261. [24] Коренблит И. Я., Шендер Е. Ф.//УФН. 1989. 157. С. 263. [25] Goldfarb R. B., Rao K. V., Chen H. S.//Solid State Commun. 1985. 54. P. 799. [26] Goto T., Murayama S., Mori N. et al//J. de Physique. 1988. 49. Suppl. P. 1143. [27] Biesterbos J. W. M., Broucha M., Dirks A. G.//AIP Conf. Proc. 1976. 29. P. 184. [28] Андреевко А. С., Никитин С. А., Спичкин Ю. И., Тишин А. М.//ФТТ. 1991. 33, № 8. С. 2463. [29] Strnat K., Hoffer G., Ray A. E.//IEEE Trans. Magn. 1966. 2. P. 489. [30] Heiman N., Kazama N.//Phys. Rev. 1979. B19. P. 1623. [31] Ishio S., Fujikura M., Ishio T., Takahashi M.//J. Magn. and Magn. Mat. 1986. 60. P. 236. [32] Coey J. M. R., Girord D., Lienard A., Rebouillat J. P.//J. Phys. F: Metal. Phys. 1981. 11. P. 2707. [33] Chappert J., Coey J. M. D., Lienard A., Rebouillat J. P.//J. Phys. F: Metal. Phys. 1981. 11. P. 2727. [34] Biesterbos J. W. M., Broucha M., Dirks A. G.//Physica. 1977. 86—88B. P. 770. [35] Chappert J., Arrese-Boggiano R.//J. Magn. and Magn. Mat. 1978. 7. P. 175. [36] Ishio S., Aubertin F., Limbach T. et al.//J. Phys. F: Metal. Phys. 1988. 18. P. 2253. [37] Croat J. J.//J. Appl. Phys. 1982. 53. P. 6932. [38] Van der Kraan A. M., Buschow K. H. J.//Phys. Rev. 1982. B25. P. 3311. [39] Ishio S., Yang X., Miyazaki T.//J. Phys. Condens. Matter. 1989. 1. P. 8979. [40] Kakehashi I.//Phys. Rev. 1988. B38. P. 474. [41] Givord D., Lemaire R., James J. J. et al.//IEEE Trans. Magn. 1971. 7. P. 657. [42] Givord D., Givord E., Lemaire R.//J. de Physique. 1971. 32. Suppl. P. 668.

ВЕСТН. МОСК. УН-ТА. СЕР. 3, ФИЗИКА. АСТРОНОМИЯ. 1993. Т. 34, № 1

УДК 538.1

## ОСОБЕННОСТИ МАГНИТНЫХ И МАГНИТОУПРУГИХ СВОЙСТВ ЯН-ТЕЛЛЕРОВСКИХ МАГНЕТИКОВ

**В. И. Соколов**, З. А. Казей

(кафедра общей физики для естественных факультетов)

Проведены систематические экспериментальные исследования магнитных и магнитоупругих свойств серии редкоземельных цирконов, обнаруживающих кооперативный эффект Яна—Теллера (КЭЯТ). Наблюдены характерные аномалии магнитной восприимчивости, намагниченности и магнитной анизотропии в базисной плоскости, обусловленные ЯТ-взаимодействием и КЭЯТ. Обнаружено значительное усиление магнитоупругих характеристик РЗ-цирконов за счет ЯТ-корреляций, а также качественно различное их поведение в кристаллах с подавлением и с усилением ЯТ-корреляций магнитным полем.

### Введение

Ян-теллеровские (ЯТ) магнетики — это системы с двумя параметрами порядка (спиновым и псевдоспиновым, или орбитальным), которые, вообще говоря, взаимосвязаны. Наличие двух параметров порядка приводит к тому, что физические свойства ЯТ-магнетиков, как правило, оказываются намного сложнее и интереснее, чем поведение веществ, не содержащих ионы с орбитально-вырожденным основным состоянием. Наиболее известными и изученными ЯТ-ионами являются 3d-ионы и редкоземельные (РЗ) ионы, между которыми существует принципиальное различие, связанное с характерными величинами ЯТ-взаимодействий и энергий в спектре иона.

Для 3d-ионов кристаллическое поле велико по сравнению со спин-орбитальной связью, поэтому велико также ЯТ-взаимодействие, о котором можно судить по температурам кооперативного эффекта Яна—

Теллера (КЭЯТ), составляющим несколько сотен градусов. Магнитные взаимодействия при этом, как правило, на 1—1,5 порядка меньше и реализуются в кристаллической структуре, искаженной за счет КЭЯТ. Следовательно, КЭЯТ в случае магнетиков с  $3d$ -ионами определяет обменные взаимодействия (геометрию связей), магнитные структуры и магнитную анизотропию в магнитоупорядоченной фазе [1]. Таким образом, для магнетиков с  $3d$ -ионами характерно сильное ЯТ-взаимодействие, на которое, однако, трудно повлиять внешними воздействиями — магнитными и электрическими полями, механическими напряжениями.

Для  $R3$ -ионов кристаллическое поле меньше энергии спин-орбитальной связи, поэтому ЯТ-взаимодействие существенно меньше и температуры КЭЯТ составляют  $\sim 10$  К [2]. При этом характерные энергии расщеплений в спектре  $R3$ -ионов также составляют  $\sim 1 \div 10$  см<sup>-1</sup>, в отличие от сотен градусов для  $3d$ -ионов. Из этого различия между  $3d$  и  $4f$  ЯТ-ионами следует, что ЯТ-эластики с  $4f$ -ионами наиболее удобны и интересны для экспериментального исследования, потому что внешними магнитными полями и одноосными давлениями можно индуцировать расщепления уровней такой же величины и, таким образом, эффективно влиять на эти системы. В связи с этим мы и обратились к  $R3$  ЯТ-соединениям, причем к классическим ЯТ-соединениям со структурой циркона. Эти соединения, хорошо изученные с точки зрения ЭЯТ, как оказалось, недостаточно исследованы с точки зрения магнетизма и связи магнетизма и ЭЯТ.

#### Образцы и методика эксперимента

Кристаллы  $RXO_4$  ( $R=Tb, Dy, Tm; X=V, P$ ) были выращены методом спонтанной кристаллизации из раствора в расплаве и представляли собой пластинки размером  $1 \times 1 \times 2$  мм. Ориентация кристаллов производилась рентгеновским методом с точностью не хуже 1°. Кривые намагничивания  $M(H)$  измерялись на вибромагнитометре со сверхпроводящим соленоидом в полях  $H \leq 50$  кЭ. Из начальных линейных участков зависимостей  $M(H)$  для  $H=5$  кЭ рассчитывалась магнитная восприимчивость  $\chi$ . Кроме того,  $\chi$  определялась с помощью модуляционной методики на частоте  $\sim 64$  Гц (амплитуда переменного поля  $H \sim 50$  Э). Конструкция этой установки позволяла измерять зависимость  $\chi(T)$  как в отсутствие, так и при наличии постоянного магнитного поля  $H_0 \parallel H$ .

Для измерений магнитострикции и теплового расширения при низких температурах использовалась установка с емкостным датчиком деформации, включенным в колебательный контур криогенного генератора (частота  $\sim 1,5$  МГц) [3]. Температура в интервале 1,7—30 К измерялась угольным термометром сопротивления. Внешнее магнитное поле создавалось двумя сверхпроводящими магнитными системами, позволяющими прикладывать поле параллельно ( $H \leq 40$  кЭ) или перпендикулярно ( $H \leq 25$  кЭ) измеряемой деформации.

#### ЭЯТ в редкоземельных соединениях со структурой циркона

Прежде чем перейти к описанию полученных экспериментальных результатов, напомним коротко основные сведения по кристаллической структуре циркона и особенностям проявления ЭЯТ в этой структуре. Цирконы — это оксидные соединения с общей формулой  $RXO_4$  ( $R$  — редкоземельные ионы,  $X$  — пентавалентные ионы  $V, P, As$ ), имеющие при комнатной температуре тетрагональную элементарную ячейку [2]. Вообще говоря, признаки ЭЯТ в большей или меньшей степени проявляют почти все  $R3$ -ионы в структуре циркона, однако кооперативный эффект обнаруживают только ионы  $Tb, Dy, Tm$ . Интересно, что один и тот же ион  $Tb, Dy$  или  $Tm$  имеет похожие спектры, отличающиеся только величинами расщеплений, в матрицах ванадата и арсената и качественно другие — в матрице фосфата. В соответствии с различны-

ми типами вырождения спектра РЗ-иона в группе цирконов имеется большое разнообразие ЭЯТ.

Наиболее простым является случай чистого ЭЯТ для изолированного орбитального дублета (следующий возбужденный синглет расположен выше основного на  $\sim 50 \text{ см}^{-1}$ ), реализующийся в  $\text{TmVO}_4$  [4]. Для иона Dy в матрице ванадата имеет место псевдо-ЭЯТ, обусловленный малым начальным расщеплением  $\Delta=9 \text{ см}^{-1}$  между двумя нижними крамерсовыми дублетами (на крамерсовское вырождение ЭЯТ не влияет) [5]. Более сложная ситуация обнаруживается в Tb-ванадате и Tm-фосфате, имеющих синглет-дублет-синглетный спектр в тетрагональной фазе [6, 7]. Спектры этих ионов качественно одинаковы, различаются только значения щели между основным синглетом и вторым возбужденным дублетом: 9 и  $31 \text{ см}^{-1}$  для ионов Tb и Tm соответственно.

Из-за большого начального расщепления в кристаллическом поле спектра иона Tm соединение  $\text{TmPO}_4$  является виртуальным эластиком, в котором при наличии заметного ЯТ-взаимодействия реальный структурный фазовый переход (СФП) не реализуется. Для иона Tb начальное расщепление меньше, поэтому в  $\text{TbVO}_4$  имеется реальный СФП с максимальной из всех РЗ-цирконов температурой перехода  $T_c=33 \text{ К}$ . Однако спецификой Tb-ванадата является то, что ЭЯТ обусловлен как малым расстоянием между основным и возбужденным уровнями, так и тем, что первый возбужденный уровень является орбитальным дублетом. Таким образом, можно говорить, что в  $\text{TbVO}_4$  ЭЯТ реализуется на возбужденном уровне, и это определяет особенности данного кристалла.

Спецификой структуры циркона является то, что имеются два типа деформаций решетки,  $B_{1g}$ - и  $B_{2g}$ -симметрии, которые снимают вырождение спектра РЗ-иона [2]. При  $B_{1g}$ -искажении тетрагональная элементарная ячейка растягивается вдоль оси типа [100], так что квадрат в базисной плоскости превращается в прямоугольник. При  $B_{2g}$ -искажении квадрат превращается в ромб, что эквивалентно растяжению вдоль оси [110]. Таким образом, оба искажения являются, по сути, ромбическими, но при  $B_{2g}$ -искажении происходит удвоение элементарной ячейки. Как правило, для каждого конкретного соединения  $\text{RHO}_4$  взаимодействие с одним типом деформаций и колебаний является преобладающим, и оно и определяет поведение и симметрию кристаллической структуры ниже критической температуры. В настоящее время, однако, появились также работы, посвященные исследованиям РЗ-цирконов сложного состава, в которых взаимодействия с колебаниями  $B_{1g}$ - и  $B_{2g}$ -симметрии сравнимы по величине [8, 9].

### **Вклад ЯТ-корреляций в магнитные и магнитоупругие свойства РЗ-цирконов**

ЯТ-взаимодействие и КЭЯТ обуславливают особенности практически всех физических свойств, но нас интересовали прежде всего магнитные и магнитоупругие свойства. Во-первых, и это самое простое, КЭЯТ сопровождается существенной перестройкой энергетического спектра электронной подсистемы кристалла. При этом, естественно, изменяются и его магнитные свойства, определяемые спектром: начальная магнитная восприимчивость и намагниченность, магнитная анизотропия в базисной плоскости и т. д.

Наиболее интересным в магнитных свойствах, на наш взгляд, является то, что наличие ЯТ-корреляций можно обнаружить, когда КЭЯТ

не реализуется, т. е. при температурах выше критической, или при концентрациях ниже критической. Вклад ЯТ-корреляций в магнитные и магнитоупругие свойства можно просто пояснить на качественном уровне. Действительно, отличительной чертой ЯТ-систем является сильная (из-за наличия вырождения в спектре РЗ-иона) связь электронной подсистемы с решеткой, т. е. сильное электрон-фононное и электрон-деформационное взаимодействие. Эти взаимодействия сводятся к эффективному взаимодействию между РЗ-ионами, носителем которого являются фононы и деформации и которое выражается через квадрупольные операторы взаимодействующих РЗ-ионов [2]. По этой причине ЯТ-взаимодействие называют иногда квадруполь-квадрупольным. Наличие квадруполь-квадрупольного члена в гамильтониане взаимодействия и описывает аномалии магнитных и магнитоупругих свойств ЯТ-кристаллов.

Магнитное поле вдоль определенного направления (при наличии КЭЯТ — вдоль направления спонтанной деформации) за счет магнитоstriction вызывает локальные деформации вокруг ЯТ-ионов, которые сильно взаимодействуют между собой благодаря наличию квадруполь-квадрупольного члена в гамильтониане. Это взаимодействие эквивалентно некоторому эффективному полю, действующему на магнитный РЗ-ион и дающему дополнительный вклад в намагниченность и магнитоstriction.

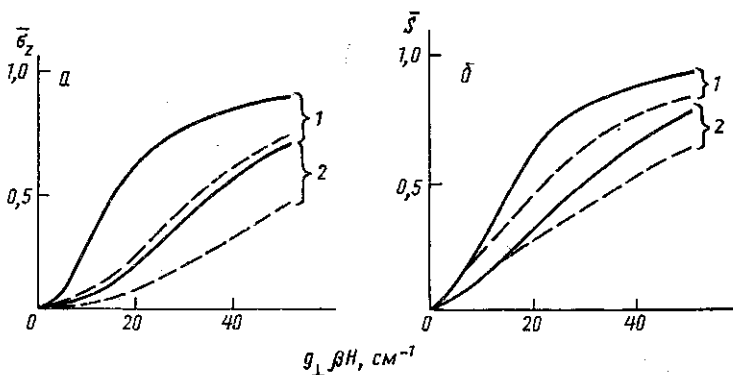


Рис. 1. Теоретические полевые зависимости (по данным [10]) деформации  $\bar{\epsilon}_z$  (а) и магнитного момента  $\bar{S}$  (б) кристалла  $TmPO_4$  вдоль направления [110] при наличии ( $A=20 \text{ см}^{-1}$ , сплошные линии) и в отсутствие ( $A=0$ , штриховые) ЯТ-корреляций при различных температурах:  $kT=14$  (1) и  $30 \text{ см}^{-1}$  (2)

Вклад ЯТ-корреляций в магнитные и магнитоупругие свойства РЗ-цирконов удастся определить количественно, используя численные расчеты. На рис. 1 приведены (по данным работы [10]) рассчитанные зависимости от магнитного поля  $H$  ( $g_{\perp} \approx 10$  —  $g$ -фактор в базисной плоскости,  $\beta$  — магнетон Бора) параметра  $\bar{\epsilon}_z$ , пропорционального магнитоstriction, и параметра  $\bar{S}$ , пропорционального намагниченности, кристалла виртуального ЯТ-эластика  $TmPO_4$  вдоль направления типа [110] при наличии и в отсутствие ЯТ-взаимодействия. Разница между соответствующими изотермами наглядно показывает вклад ЯТ-корреляций в магнитные и магнитоупругие свойства. Видно, что ЯТ-корреляции обуславливают особенности типа точек перегиба на изотермах и дают вклад, который по величине составляет  $\sim 20 \div 30\%$  для намагниченности и доходит до  $50\%$  для магнитоstriction.

## Особенности магнитных свойств РЗ-цирконов

На рис. 2, а приведены температурные зависимости обратной магнитной восприимчивости  $\chi^{-1}(T)$  вдоль направлений спонтанной деформации в области температур СФП кристаллов  $\text{DyVO}_4$  и  $\text{TbVO}_4$  при раз-

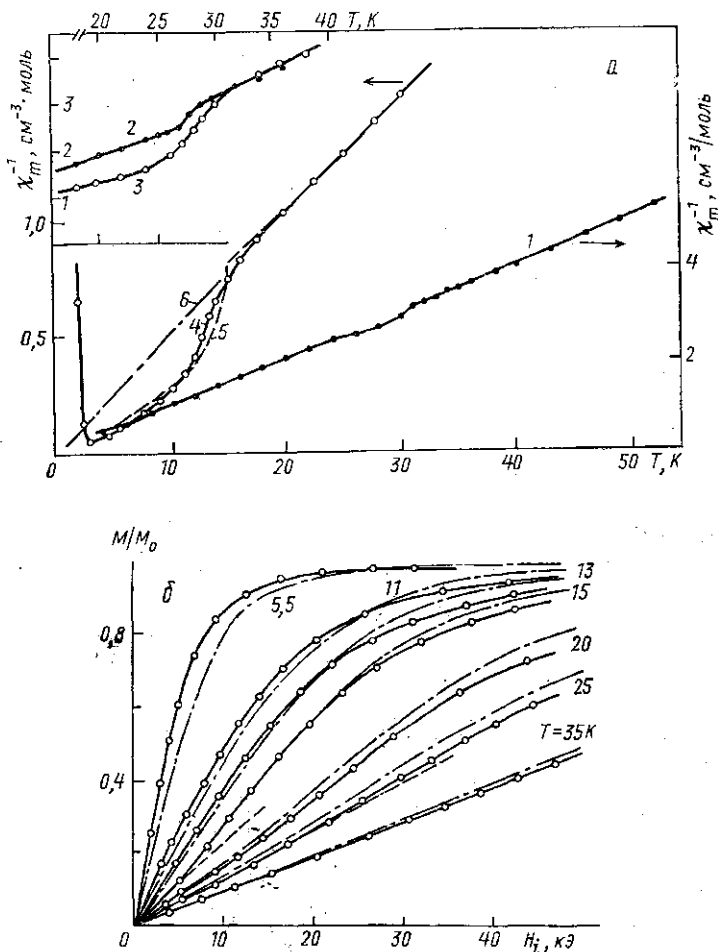


Рис. 2. а — Экспериментальные и теоретические зависимости от температуры обратной молярной восприимчивости кристаллов  $\text{TbVO}_4$  вдоль  $[110]$  (1—3) и  $\text{DyVO}_4$  вдоль  $[100]$  (4—6) для различных значений магнитного поля  $H$ :  $H=0$  (1), 1 (2), 5 (3) и 5 кЭ (4); 5, 6 — расчет соответственно для монодоменного и полидоменного с равным соотношением доменов ( $n_+=n_-$ ) кристаллов  $\text{DyVO}_4$ . Нормировка теоретических кривых выбрана из условия совпадения  $\chi_{\text{теор}}$  и  $\chi_{\text{эксп}}$  при  $T \approx (1,5 \div 2,0)T_c$ . б — Экспериментальные (сплошные линии) и теоретические (штрих-пунктир) зависимости магнитного момента  $M/M_0$   $\text{DyVO}_4$  от внутреннего поля  $H_i$  вдоль направления  $[100]$  при различных температурах. Штриховыми линиями показана экстраполяция начальных линейных участков изотер намагниченности

личных значениях внешнего магнитного поля. Экспериментальные зависимости  $\chi^{-1}(T)$  даны с учетом размагничивающих полей. Видно, что зависимости  $\chi^{-1}(T)$  исследованных кристаллов имеют характерные аномалии в области СФП и температуры аномалий совпадают с  $T_c$ , определенными другими методами [11—13].

При  $T > T_c$  для исследованных кристаллов характерна сильная магнитная анизотропия вдоль и перпендикулярно тетрагональной оси  $[001]$ , такая, что  $g_x = g_y$  более чем на порядок превышает  $g_z$  [5, 14]. При этом магнитная анизотропия в базисной плоскости практически отсутствует. При фазовом переходе тетрагональная — ромбическая фаза в базисной плоскости возникает сильная магнитная анизотропия, такая, что восприимчивость вдоль ромбических осей  $a$  и  $b$  различается более чем на порядок. При этом магнитная восприимчивость ниже СФП, как оказалось, сильно зависит от условий эксперимента, а именно от величины магнитного поля, в котором проводились измерения.

Эта зависимость обусловлена структурными или ЯТ-доменами, которые возникают в кристалле при  $T < T_c$  из-за наличия двух эквивалентных направлений искажения:  $[100]$  и  $[010]$  для  $B_{1g}$ -перехода и  $[110]$  и  $[\bar{1}\bar{1}0]$  для  $B_{2g}$ -перехода. Магнитное поле, направленное вдоль одной из осей спонтанной деформации, делает кристалл однодоменным за счет сильной магнитной анизотропии в базисной плоскости, возникающей при КЭЯТ. Во внешнем магнитном поле домены, для которых оси легкого намагничивания (т. е. оси, вдоль которых максимальны магнитная восприимчивость и намагниченность) перпендикулярны полю, становятся энергетически невыгодными и переориентируют свои ромбические оси  $a$  и  $b$ .

С целью выяснения влияния доменного состояния образца на магнитные свойства при  $T < T_c$  мы провели измерения магнитной восприимчивости кристаллов  $TbVO_4$  на переменном токе при различных значениях постоянного внешнего поля ( $H = 0, 1, 5, 10$  кЭ). Кривая  $I$  для  $H = 0$  свидетельствует о том, что при  $T < T_c$  образец является практически полидоменным, с почти равным соотношением доменов. В постоянном поле  $H \parallel H_0$  в кристалле возникает преимущественная ориентация доменов с легкой магнитной осью вдоль поля. В поле  $H = 5$  кЭ образец является уже практически монодоменным, так что при дальнейшем увеличении поля аномалия в районе  $T_c$  не увеличивается, а лишь несколько размывается. Аналогичные исследования на  $DyVO_4$  показали, что кристалл становится монодоменным уже в полях  $H \sim 1$  кЭ.

На рис. 2, б приведены изотермы намагниченности  $M(H)/M_0$  кристалла  $DyVO_4$  ( $M_0 = 5,35 \cdot 10^4$  Гс·см<sup>3</sup>/моль — магнитный момент насыщения кристалла при 5,5 К) при ориентации  $H$  вдоль направления спонтанной деформации для температур вблизи СФП. Обращает на себя внимание нелинейность и точки перегиба на зависимостях  $M(H)/M_0$ , которые смещаются по мере повышения температуры в область более сильных магнитных полей. Для наглядности штриховыми линиями показана экстраполяция начальных линейных участков изотерм намагниченности. При  $T > T_c$  такое поведение  $M(H)$ , как было показано выше (рис. 1, б), связано с вкладом в магнитный момент ЯТ-корреляций. При  $T < T_c$  вклад в этот эффект может также давать переориентация в магнитном поле «невыгодных» доменов. Для магнитного поля  $H$  вдоль  $[110]$ , индуцирующего локальные деформации  $B_{2g}$ -симметрии, для которых ЯТ-корреляции в  $DyVO_4$  отсутствуют, указанных выше особенностей на кривых  $M(H)$  не наблюдается.

### Особенности магнитоупругих свойств РЗ-цирконов

Магнитоупругие свойства РЗ-цирконов более разнообразны, чем магнитные, и в большей степени зависят от особенностей спектра РЗ-иона. Под магнитоупругими свойствами мы имеем в виду как собственно магнитострикцию, так и тепловое расширение во внешнем маг-

нитном поле, которое для РЗ-цирконов иногда является более информативным.

Для редкоземельных ЯТ-магнетиков из самых общих соображений следует ожидать больших стрикционных эффектов в магнитном поле [10]. Во-первых, магнитное поле из-за вырождения (или квазивырождения) в спектре РЗ-иона эффективно действует на электронную подсистему, меняя расщепление и сильно перемешивая волновые функции. Это в свою очередь, благодаря сильной связи электронной подсистемы с решеткой (большие константы электрон-колебательной связи) и «размягчению» кристаллической решетки из-за близости СФП, приводит к гигантским стрикционным деформациям решетки. Поскольку все эти условия выполняются для РЗ-цирконов при наличии реального или виртуального ЭЯТ, для них можно ожидать значительных магнитострикционных деформаций в области СФП.

По характеру влияния магнитного поля на фазовый переход РЗ цирконы можно разделить на две большие группы. Для соединений первой группы, к которой относится большинство РЗ-цирконов, например  $\text{DyVO}_4$ , магнитное поле увеличивает локальные ЯТ-деформации и формирует однородную деформацию кристалла той же симметрии, что и спонтанная. При этом параметр порядка  $\sigma_z$  увеличивается и становится отличным от нуля при всех температурах, т. е., строго говоря, СФП в магнитном поле исчезает. Для соединений второй группы, например  $\text{TmVO}_4$ , магнитное поле уменьшает локальные ЯТ-деформации и понижает, таким образом, температуру перехода.

Обсуждение магнитоупругих свойств РЗ-цирконов начнем с кристалла виртуального эластика  $\text{TmPO}_4$ , для которого СФП не происходит, но имеются сильные корреляции локальных ЯТ-искажений вокруг ионов Тм. С этими корреляциями связаны, очевидно, наблюдающиеся в  $\text{TmPO}_4$  характерный минимум упругого модуля  $C_{66}$  в районе  $T \approx 20$  К [15] и аномалии магнитных свойств в области температур жидкого гелия [16]. Важно отметить, что для виртуального эластика  $\text{TmPO}_4$  особенности магнитоупругих характеристик не маскируются процессами переориентации кристаллографических доменов, возникающими ниже температуры СФП в реальных ЯТ-эластиках.

На рис. 3 показаны зависимости продольной магнитострикции  $U_{||}(H)$  и  $U_{||}(H^2)$  кристалла  $\text{TmPO}_4$  для магнитного поля  $H||[110]$ . Видно, что в области температур жидкого гелия магнитострикция достигает гигантских величин ( $>10^{-3}$ ) и в полях  $H \leq 15$  кЭ квадратична по полю. При этом поле, в котором начинается отклонение от закона  $U = \alpha H^2$ , зависит от температуры, а при  $T \geq 28$  К магнитострикция изменяется пропорционально  $H^2$  во всем исследованном нами интервале магнитных полей. Коэффициент  $\alpha$ , который можно определить как магнитострикционную восприимчивость, имеет немонотонную зависимость от температуры с максимумом вблизи  $T_0 = 13$  К. В районе  $T_0$  интервал полей, где выполняется зависимость  $U = \alpha H^2$ , значительно сужается.

Величина продольной магнитострикции для  $H||[100]$  составляет  $10^{-5}$  при  $T = 4,5$  К и  $H = 40$  кЭ. Таким образом, анизотропия  $U_{||}$  в базисной плоскости велика:  $U_{||}$  изменяется на два порядка при изменении направления  $H$  в этой плоскости. Столь большая величина анизотропии свидетельствует о слабой электрон-фононной связи с колебаниями и деформациями  $B_{1g}$ -симметрии по сравнению с  $B_{2g}$ -симметрией.

Численный расчет в приближении молекулярного поля дает возможность выделить вклад ЯТ-корреляций в магнитострикцию  $\text{TmPO}_4$ . На рис. 4 приведены экспериментальные и рассчитанные температурные

зависимости  $\alpha(T)$ . Наилучшее согласие с экспериментом получено при значениях параметров  $A=22 \text{ см}^{-1}$ ,  $\gamma\Delta=30 \text{ см}^{-1}$  и  $g=8$ , для которых зависимость  $\alpha(T)$  имеет максимум при  $T_0 \approx 14 \text{ К}$ . Из сравнения кривых 2 и 3 на рис. 4 видно, что корреляции локальных ЯТ-искажений ( $A \neq 0$ ) не только существенно увеличивают магнитострикционную восприимчивость в  $\text{TmPO}_4$  при низких температурах, но и приводят к появлению на зависимости  $\alpha(T)$  экстремума при  $T_0=14 \text{ К}$ .

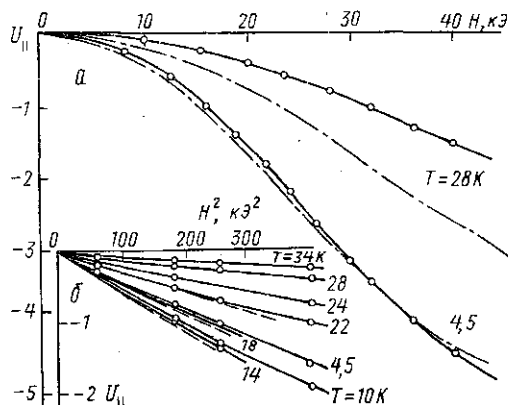


Рис. 3

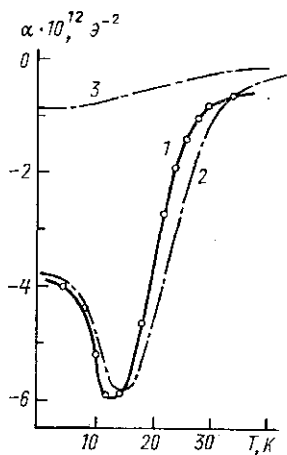


Рис. 4

Рис. 3. Изотермы продольной магнитострикции  $U_{\parallel}(H)$  (а) и  $U_{\parallel}(H^2)$  (б) монокристалла  $\text{TmPO}_4$  для магнитного поля  $H \parallel [110]$ : точки — эксперимент, штрих-пунктир — расчет, штриховая линия — линейная экстраполяция зависимости  $U_{\parallel}(H^2)$  в слабых полях

Рис. 4. Зависимости магнитострикционной восприимчивости  $\alpha = U_{\parallel}/H^2$  монокристалла  $\text{TmPO}_4$  от температуры для  $H \parallel [110]$ : экспериментальная (1) и теоретические при  $A=22 \text{ см}^{-1}$  (2) и  $A=0$  (3)

При наличии СФП магнитоупругие эффекты в РЗ-цирконях являются более сложными. Это обусловлено появлением ниже СФП ЯТ-доменов и связанной с ними гигантской «доменной» магнитострикцией при монодоменизации образца во внешнем магнитном поле. «Доменная» магнитострикция обусловлена в значительной степени дефектностью кристалла и представляет определенный интерес для исследования физики реальных кристаллов. Однако она затрудняет изучение истинной магнитострикции монодоменированного образца (особенно вдоль оси трудного намагничивания), которая составляла основную цель настоящих исследований. Рассмотрим основные особенности магнитоупругих свойств РЗ-цирконов при наличии КЭЯТ для двух групп на примере наиболее типичных их представителей.

На рис. 5 приведены изотермы продольной магнитострикции  $U_{\parallel}$  кристалла  $\text{DyVO}_4$  при температурах выше и ниже температуры СФП. Видно, что магнитострикция максимальна вблизи  $T_c$  и составляет величину порядка спонтанной деформации решеток при КЭЯТ в поле порядка 20 кЭ; при понижении температуры магнитострикция резко падает. Отличная от нуля магнитострикция при 4,2 и 1,8 К обусловлена переориентацией энергетически невыгодных доменов, т. е. имеет «доменный» характер.



О характере влияния магнитного поля на СФП в  $\text{DyVO}_4$  можно судить по тепловому расширению в магнитном поле. На рис. 6 приведено тепловое расширение  $\text{DyVO}_4$  вдоль  $[100]$  в магнитном поле  $H=20$  кЭ, параллельном и перпендикулярном измеряемой деформации  $\Delta l$  (кривые 1 и 2 соответственно). Деформация отсчитывается по отношению к состоянию кристалла при  $H=0$  и температуре существенно выше температуры фазового перехода  $T_c$ . Такое поведение  $\Delta l(T)/l_0$  обусловлено тем, что магнитное поле вдоль направления  $[100]$  или  $[010]$  делает кристалл однодоменным с осью легкого намагничивания, направленной вдоль поля. Поэтому для  $H \parallel [100] \parallel \Delta l$  тепловое расширение измеряется вдоль «легкой» оси, а для  $H \parallel [010] \perp \Delta l$  — вдоль «трудной» оси. Если в соответствии с общепринятой кристаллографической установкой для ромбической структуры положить  $a < b$ , то из теплового расширения  $\text{DyVO}_4$  в магнитном поле следует, что при  $T < T_c$  восприимчивость  $\chi_a < \chi_b$ , т. е. «легкой» магнитной осью является короткая ось второго порядка в базисной плоскости.

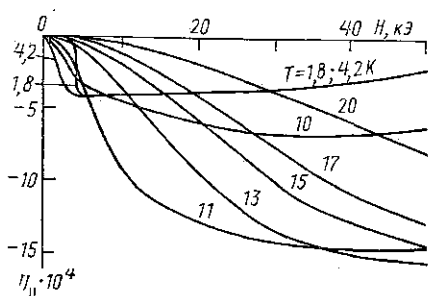


Рис. 5

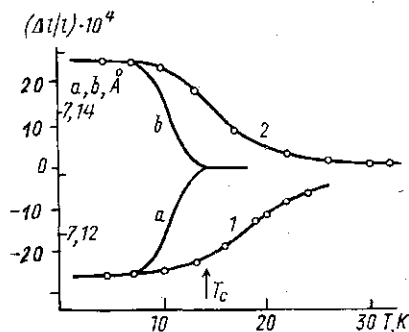


Рис. 6

Рис. 5. Изотермы продольной магнитоэластики  $U_{\parallel}$  монокристалла  $\text{DyVO}_4$  для магнитного поля  $H \parallel [010]$  в области СФП

Рис. 6. Тепловое расширение кристалла  $\text{DyVO}_4$  вдоль  $\Delta l \parallel [100]$  в поле  $H=20$  кЭ ( $1 - H \parallel [100] \perp \Delta l$ ,  $2 - H \parallel [010] \perp \Delta l$ ) и температурная зависимость параметров ромбической ячейки  $a$  и  $b$  (по данным работы [17])

Выше  $T_c$  магнитное поле  $H \parallel [100]$  или  $[010]$  за счет магнитоэластики индуцирует деформацию той же симметрии, что и спонтанная и, таким образом, размывает переход и повышает температуру перехода. Это согласуется с результатами численного расчета температурной зависимости искажения решетки  $\text{DyVO}_4$  в магнитном поле. Таким образом, тепловое расширение является информативной характеристикой при изучении КЭЯТ, сопровождающегося возникновением макроскопической деформации решетки. Исследования теплового расширения для  $H \parallel \Delta l$  и  $H \perp \Delta l$  для двух срезов  $\Delta l \parallel [100]$  и  $\Delta l \parallel [110]$  позволяют установить тип искажения решетки циркона ( $B_{1g}$  или  $B_{2g}$ ) при КЭЯТ, температурную зависимость искажения (параметра порядка), доменное состояние образца и его изменение под действием внешних условий (магнитных полей, одноосных давлений и т. д.).

В качестве кристалла, в котором магнитное поле подавляет СФП, рассмотрим  $\text{TmVO}_4$ . На рис. 7 показано тепловое расширение кристалла  $\text{TmVO}_4$  вдоль направления спонтанной деформации  $[110]$  в магнитном поле вдоль тетрагональной оси  $[001]$ . Тепловое расширение и магни-

тострикция определялись как  $\Delta l(T)/l_0 = [l(T) - l_0]/l_0$  и  $U = \Delta l(T, H)/l_0$  соответственно, где  $l_0$  — длина кристалла вдоль направления измерения при  $H=0$  и  $T=6$  К, т. е. в неискаженной тетрагональной фазе.

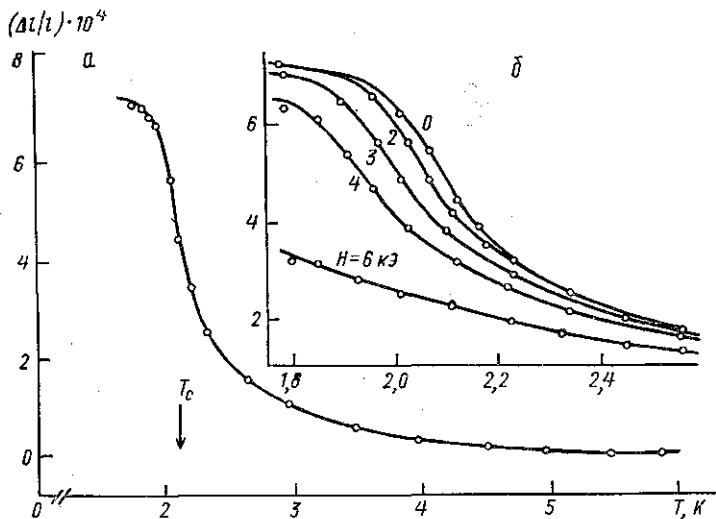


Рис. 7. Тепловое расширение кристалла  $TmVO_4$  вдоль оси  $[110]$  при  $H=0$  (а) и во внешнем магнитном поле  $H \parallel [001]$  (б)

Особенностью зависимости  $\Delta l/l$  при  $H=0$  является сильно размытый характер перехода, такой, что «хвост» теплового расширения продолжается вплоть до температур  $\sim 3 T_c$ . Температура СФП, определенная по максимуму коэффициента линейного расширения образца  $\alpha = [d\Delta l(T)/dT]/l_0$ , составляет  $T_c = (2,15 \pm 0,05)$  К. Это значение хорошо согласуется с  $T_c$ , определенной ранее в работах [18—20].

Влияние магнитного поля на СФП показано на рис. 7, б. Видно, что поле существенно уменьшает величину деформации решетки  $TmVO_4$  вблизи  $T_c$  и понижает температуру фазового перехода, что качественно согласуется с данными измерений магнитных [18] и упругих [20] свойств кристалла  $TmVO_4$ .

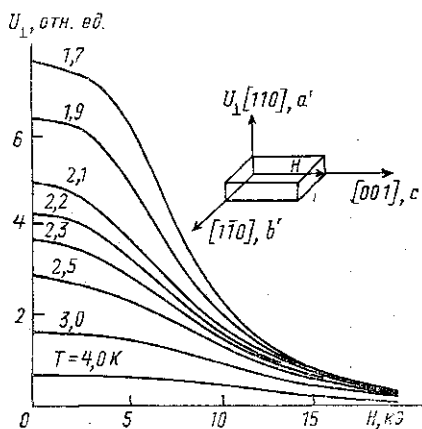


Рис. 8. Изотермы поперечной магнитоэлектрики  $U_{\perp}$  кристалла  $TmVO_4$  ( $H \parallel [001]$ ,  $\Delta l \parallel [110]$ ) и геометрия эксперимента. Изменение с температурой  $U_{\perp}$  при  $H=0$  отражает тепловое расширение образца

Наиболее наглядно влияние магнитного поля иллюстрирует рис. 8, на котором приведены изотермы поперечной магнитоэлектрики  $U_{\perp}$  кристалла  $TmVO_4$  для магнитного поля вдоль тетрагональной оси  $H \parallel [001]$  ( $\Delta l \parallel [110]$ , геометрия опыта показана на вставке). При  $T < T_c$  на изотермах наблюдается резкое уменьшение  $U_{\perp}$ , связанное с восстановлением

в магнитном поле  $H_c(T)$  тетрагональной фазы. Отметим, что знаки скачка магнитоупругости при увеличении магнитного поля и теплового расширения при охлаждении кристалла ниже  $T_c$  различны, т. е. магнитное поле вызывает обратный переход ромбическая — тетрагональная фаза, при этом все изотермы сходятся вместе в больших полях. Таким образом, включая достаточно сильное поле при низкой температуре, можно восстановить тетрагональную фазу, существующую при высоких температурах.

Восстановление тетрагональной симметрии магнитным полем при  $T < T_c$  обусловлено тем, что магнитная энергия неискаженной фазы меньше, чем искаженной. Поэтому в некотором поле  $H_c$ , когда разность магнитных энергий двух фаз равна понижению энергии кристалла при КЭЯТ, тетрагональная фаза становится энергетически выгоднее.

Сравнивая магнитоупругие свойства ЯТ-кристаллов с усилением ( $\text{DyVO}_4$ ) и подавлением ( $\text{TmVO}_4$ ) ЯТ-корреляций внешним магнитным полем, можно отметить их качественно и количественно различный характер. Действительно, в первом случае магнитоупругость максимальна вблизи  $T_c$  и резко уменьшается ниже СФП; во втором — наоборот, магнитоупругость максимальна при низких температурах.

Таким образом, в настоящей работе проведены систематические экспериментальные исследования магнитных и магнитоупругих свойств серии РЗ-цирконов, обнаруживающих КЭЯТ или сильные ЯТ-корреляции. Показано, что перестройка энергетического спектра электронной подсистемы кристалла при КЭЯТ обуславливает особенности магнитных свойств: характерные аномалии на зависимости  $\chi^{-1}(T)$  и изотермах намагниченности, сильную магнитную анизотропию в базисной плоскости. Обнаружен вклад ЯТ-корреляций в намагниченность и значительное усиление за счет ЯТ-корреляций магнитоупругих характеристик РЗ-цирконов, которые существуют, когда КЭЯТ не реализуется, при температурах выше критической или при концентрациях ниже критической.

#### ЛИТЕРАТУРА

- [1] Кугель К. И., Хомский Д. И.//УФН. 1986. 60, № 4. С. 621. [2] Gehring G. A., Gehring K. A.//Rep. Progr. Phys. 1975. 38. P. 1. [3] Казей З. А., Леванидов М. В., Соколов В. И.//ЛТЭ. 1982. 1. С. 196. [4] Becker P. J., Leask M. J. M., Tyte R. N.//J. Phys. C: Solid. St. Phys. 1972. 5. P. 2027. [5] Cooke A. H., Ellis C. J., Gehring K. A. et al.//Solid. State Commun. 1970. 8. P. 689. [6] Knoll K. D.//Phys. Stat. Solidi (b). 1971. 45. P. 553. [7] Elliott R. J., Harley R. T., Hayes W. et al.//Proc. Roy. Soc. 1972. A328. P. 217. [8] Васильев А. В., Дворникова А. Е., Казей З. А. и др.//Письма в ЖЭТФ. 1989. 50, № 2. С. 90. [9] Hess G., Kahle H. G.//J. de Physique. 1988. 49, Suppl. N 12. P. C8-891. [10] Вехтер Б. Г., Каплан М. Д.//ЖЭТФ. 1984. 87, № 11. С. 1774. [11] Wells M. R., Worwick R. D.//Phys. Lett. 1972. 42A. P. 269. [12] Cooke A. H., Martin D. M., Wells M. R.//Solid. State Commun. 1971. 9. P. 519. [13] Melcher R. L., Scott B. A.//Phys. Rev. Lett. 1972. 28. P. 607. [14] Pytte E.//Phys. Rev. 1974. B9. P. 932. [15] Harley R. T., Manning D. I.//J. Phys. C: Solid. St. Phys. 1978. 11. P. L633. [16] Иоффе В. А., Андроненко С. И., Бондарь И. А. и др.//Письма в ЖЭТФ. 1981. 34. С. 586. [17] Gobel H., Will G.//Phys. Stat. Solidi (b). 1972. 50, N 1. P. 147. [18] Cooke A. H., Swithenby S. J., Wells M. R.//Solid. State Commun. 1972. 10. P. 265. [19] Segmuller A., Meicher R. L., Kinder H.//Solid. State Commun. 1974. 15. P. 101. [20] Melcher R. L., Pytte E., Scott B. A.//Phys. Rev. Lett. 1973. 31. P. 307.