

АНОМАЛЬНОЕ ПОВЕДЕНИЕ ПАРАМАГНИТНОЙ ВОСПРИИМЧИВОСТИ МОНОКРИСТАЛЛОВ $GdBaCuO_{6.2}$ В МАГНИТНОМ ПОЛЕ

© Г.Г.Левченко, В.П.Дьяконов, В.И.Маркович, И.М.Фита

Донецкий физико-технический институт Академии наук Украины,
340114 Донецк, Украина
(Поступила в Редакцию 20 марта 1995 г.
В окончательной редакции 16 июня 1995 г.)

Проведено исследование парамагнитной восприимчивости и электросопротивления в магнитном поле тетрагонального монокристалла $GdBaCuO_{6.2}$. Показано, что поведение дифференциальной восприимчивости в магнитном поле отличается от поведения изотермической. Установлено, что это связано с адиабатическим характером дифференциальной восприимчивости и с аномально низким значением теплоемкости в диапазоне температур ниже 20 К.

Исследованию магнитных свойств монокристаллов $GdBaCuO_{6.2}$ посвящено большое количество работ [1-6]. В этих работах особое внимание уделялось поведению иона гадолиния в магнитном поле в области его магнитоупорядоченного состояния ($T \leq 2.5$ К). В парамагнитной области температур проведены исследования лишь в нулевом внешнем магнитном поле с целью определения параметров спин-спиновых взаимодействий и анизотропии [7-9]. Однако изучение условий сосуществования магнетизма и сверхпроводимости с учетом слоистого характера последней [10,11] требует проведения исследований в магнитных полях и в парамагнитной области температур. Эти исследования необходимы для учета и разделения вкладов магнитной и сверхпроводящей подсистем. Такие исследования были начаты в [12], где было показано, что индукционная по методу измерения магнитная восприимчивость несверхпроводящего монокристалла $GdBaCuO_{6.2}$ сильно зависит от магнитного поля в области температур ниже 20 К. Целью данной работы является выяснение природы этой зависимости.

1. Эксперимент

Измерения проводились на монокристалле $GdBaCuO_{6.2}$ размером $1.5 \times 1.5 \times 1.4$ mm. Кристалл выращен в алуновом тигле, и поэтому в нем содержится 1% (mol.) алюминия. Непосредственно после роста кристалла содержание кислорода в нем было равно 6.4. Содержание кислорода 6.2 достигнуто путем отжига под откачкой. Достичь меньшего содержания кислорода не удалось.

В работе проводились измерения дифференциальной магнитной восприимчивости индукционным методом на частоте 31 Hz, намагниченности на вибрационном магнетометре и электросопротивления в магнитном поле четырехконтактным методом.

2. Результаты и их обсуждение

На рис. 1, 2 представлены полевые зависимости дифференциальной магнитной восприимчивости монокристалла $GdBaCuO_{6.2}$, измеренные в двух взаимно перпендикулярных направлениях (вдоль и перпендикулярно оси C) при различных температурах. Видно, что при температурах выше 20 К восприимчивость монокристалла слабо зависит от магнитного поля. При температуре ниже 20 К появляется полевая зависимость восприимчивости, которая возрастает с понижением температуры. При температурах меньше 2.5 К (ниже температуры антиферромагнитного упорядочения гадолиния) на кривой восприимчивости появляется максимум, связанный с переориентацией спинов в магнитном поле [12]. Особенностью полевых зависимостей дифференциальной восприимчивости является также наличие нестабильного гистерезиса, величина которого изменяется от эксперимента к эксперименту с трудно определяемой закономерностью.

Температурные зависимости дифференциальной восприимчивости $\chi(T)_B$ также имеют сложный характер (рис. 3, 4). При температуре 2.25 К в нулевом поле наблюдается максимум, связанный с антиферромагнитным упорядочением гадолиния [5, 12]. При увеличении поля наблюдается появление второго максимума, который смещается вверх по

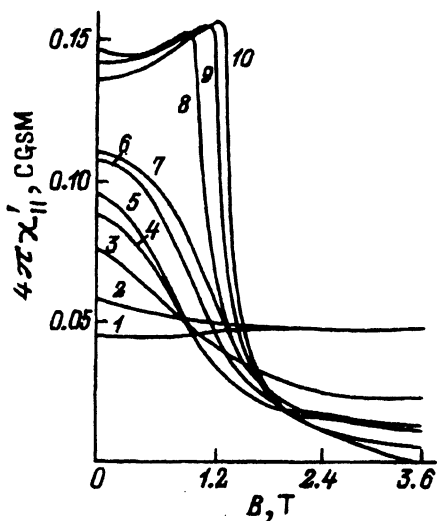


Рис. 1. Зависимость дифференциальной магнитной восприимчивости монокристалла $GdBaCuO_{6.2}$ от величины магнитного поля, приложенного вдоль оси C при фиксированных температурах.

$T(K)$: 1 — 31, 2 — 17, 3 — 11.4, 4 — 9.2, 5 — 8, 6 — 5.05, 7 — 4.32, 8 — 2.18, 9 — 2, 10 — 1.9.

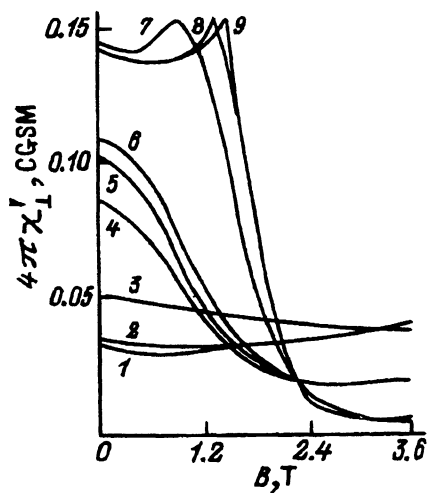


Рис. 2. Зависимость дифференциальной магнитной восприимчивости монокристалла $GdBaCuO_{6.2}$ от величины магнитного поля, приложенного перпендикулярно оси C при фиксированных температурах.

$T(K)$: 1 — 31, 2 — 26, 3 — 17.6, 4 — 8.4, 5 — 6, 6 — 5.3, 7 — 2, 8 — 1.83, 9 — 1.5.

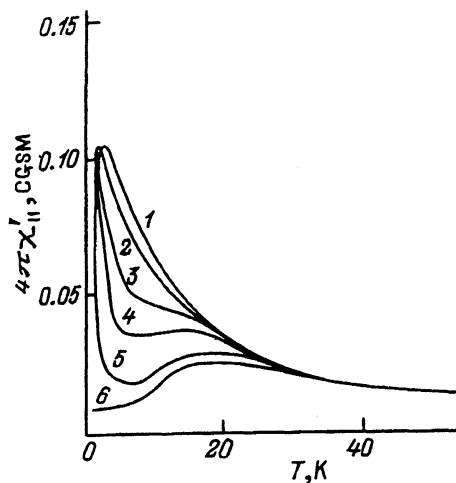


Рис. 3. Температурная зависимость дифференциальной магнитной восприимчивости $\text{GdBaCuO}_{6.2}$, измеренной в постоянных магнитных полях, приложенных параллельно оси C кристалла. $B(T)$: 1 — 0, 2 — 0.6, 3 — 1.2, 4 — 1.8, 5 — 2.4, 6 — 3.6.

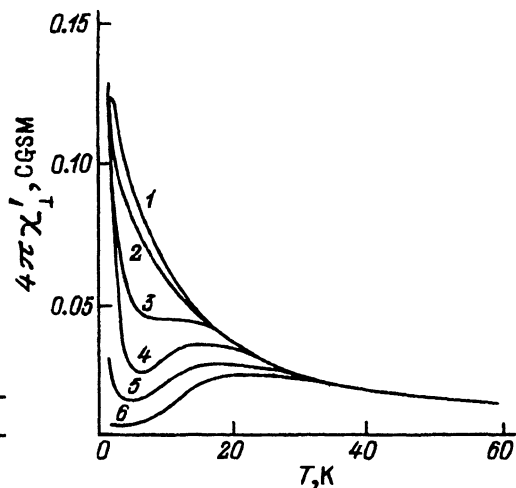


Рис. 4. Температурная зависимость дифференциальной магнитной восприимчивости $\text{GdBaCuO}_{6.2}$, измеренной в постоянных магнитных полях, приложенных перпендикулярно оси C кристалла. $B(T)$: 1 — 0, 2 — 0.6, 3 — 1.2, 4 — 1.8, 5 — 2.4, 6 — 3.6.

температуре. Выше 20 К восприимчивость практически не зависит от величины поля. Наблюдаемая зависимость $\chi(T)_B$ является несколько неожиданной и может быть вызвана целым рядом причин, среди которых существенную роль могут играть образование спин-стекольного состояния меди в цепочках или в гадолиниевой подсистеме, изменение электросопротивления, аномалия Шоттки или адиабатичность дифференциальной восприимчивости. Несмотря на присутствие некоторых признаков реализации спинового стекла (наблюдение гистерезиса и слабой частотной зависимости реальной части восприимчивости), его наличие, на наш взгляд, необходимо исключить по причине сдвига максимума на кривых $\chi(T)_B$ в область высоких температур при увеличении магнитного поля [13].

Для проверки влияния на изменение дифференциальной восприимчивости проводимости образца нами проведены измерения зависимости электросопротивления монокристалла вдоль оси C от магнитного поля при $T = 4$ К, результаты которых представлены в таблице. Из таблицы видно, что оно слабо зависит от поля и несколько возрастает при его увеличении. Такое изменение электросопротивления не может являться причиной наблюдаемого поведения дифференциальной восприимчивости. Следовательно, уменьшение дифференциальной восприимчивости в магнитном поле имеет магнитную природу.

Поскольку основное состояние иона Gd^{3+} , имеющего спин $7/2$, вырождено, то в магнитном поле вырождение снимается благодаря зеемановскому расщеплению. Поэтому максимумы на кривых $\chi(T)_B$ могут быть связаны с перераспределением электронов между расщепленными уровнями. Для выяснения наличия эффекта Шоттки нами проведены исследования полевой при $T = 4.2$ К (рис. 5, верхняя шкала) и

Зависимость электросопротивления монокристалла $\text{GdBaCuO}_{6.2}$ вдоль оси C от магнитного поля, приложенного перпендикулярно оси C , при $T = 4.2 \text{ K}$

B, T	$R, \text{M}\Omega$	B, T	$R, \text{M}\Omega$
0.0	0.8	3.0	1.0
2.0	0.9	3.5	1.1
2.5	0.95	4	1.1

температурной (рис. 5, нижняя шкала) зависимостей намагниченности на вибрационном магнетометре вдоль оси C кристалла. Из рис. 5 видно, что намагниченность монокристалла при $T = 4.2 \text{ K}$ линейно зависит от магнитного поля, что указывает на постоянство восприимчивости, а кривая намагниченности при повышении магнитного поля совпадает с кривой при его понижении. Из рис. 5 видно также, что никаких аномалий на температурной зависимости намагниченности не наблюдается, что также указывает на независимость восприимчивости от магнитного поля. Такое поведение намагниченности фактически исключает наличие эффекта Шоттки в данном кристалле.

Измерение намагниченности на вибрационном магнетометре важно и с другой точки зрения. В этом случае намагниченность и, следовательно, восприимчивость являются изотермическими в термодинамическом отношении. Дифференциальная же восприимчивость, измеренная индукционным методом, может быть как изотермической, так и адиабатической, что определяется соотношением частоты измерения, времени спин-решеточной релаксации и условий теплообмена образца и хладагента. Судя по отсутствию аномалий на кривой температурной зависимости намагниченности, а следовательно, и изотермической

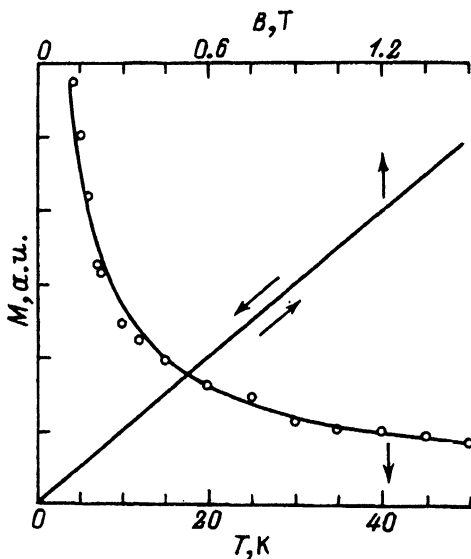


Рис. 5. Зависимость намагниченности монокристалла $\text{GdBaCuO}_{6.2}$, измеренная на вибрационном магнетометре, от магнитного поля, приложенного вдоль оси C , при $T = 4.2 \text{ K}$ (верхняя шкала) и от температуры при $B = 3.0 \text{ T}$, приложенного вдоль той же оси (нижняя шкала).

восприимчивости и по поведению электросопротивления в магнитном поле, из вышеперечисленных возможных причин изменения дифференциальной восприимчивости остается свойственный ей адиабатический характер.

Действительно, адиабатическая восприимчивость определяется выражением [14]

$$\chi_s = \chi_T - T\alpha^2/C \leq \chi_T, \quad (1)$$

$$\alpha = (dV/dT)_H, \quad (2)$$

где M — намагниченность, C — теплоемкость, H — магнитное поле внутри образца, T — температура, χ_s — адиабатическая восприимчивость, χ_T — изотермическая. Различие между χ_s и χ_T появится, если $\alpha \neq 0$, но, согласно (2), это возможно лишь в поляризованном кристалле, когда $M \neq 0$. В парамагнитной области температур при $H \neq 0$ появится отличное от нуля значение M , и отличие χ_s от χ_T будет определяться значением теплоемкости C и производной $(dM/dT)_H$. Поскольку при этом $M = \chi_T H$, а $\chi_T = C_1/T$ (пренебрегли парамагнитной температурой Кюри θ), где C_1 — постоянная Кюри, то

$$dM/dT = -HC_1/T^2, \quad \chi_s = C_1/T - C_1^2 H^2/CT^3. \quad (3)$$

Значения полей максимума выражения (3) будут определяться из условия

$$d\chi_s/dT = 0 = 3C_1^2 H^2/T^4 - C_1/T^2, \quad (4)$$

откуда

$$T_m = H(3C_1/C)^{1/2}. \quad (5)$$

Таким образом, анализ выражений (1)–(5) позволяет сделать следующие выводы: адиабатическая восприимчивость будет всегда меньше изотермической; с увеличением магнитного поля адиабатическая восприимчивость будет уменьшаться; разность между изотермической и адиабатической восприимчивостями в магнитном поле будет пропорциональна квадрату величины поля и обратно пропорциональна теплоемкости; температура максимума кривой $\chi_s(T)_B$ будет расти пропорционально величине магнитного поля и обратно пропорционально теплоемкости.

Анализ кривых на рис. 1–4 указывает на то, что они удовлетворяют этим требованиям. Действительно, с увеличением магнитного поля измеряемая дифференциальная восприимчивость уменьшается, и изменение с увеличением поля разности между нею и восприимчивостью при нулевом поле (которая является изотермической) близка к квадратичному закону. Температура максимума кривых $\chi_s(T)_B$ с увеличением поля растет (рис. 3, 4), и ее сдвиг близок к линейному закону. При температурах выше 20 К и ниже 3 К эффект уменьшения адиабатической восприимчивости в магнитном поле значительно ослабевает. Это видно из рис. 3, 4. При $T > 20$ К кривые практически совпадают, а при $T < 3$ К восприимчивость (особенно при малых полях) вновь возрастает. Это связано с зависимостью теплоемкости этого кристалла от температуры, которая аномально мала при $3 < T < 20$ К [15]. При $T < 3$ К теплоемкость возрастает из-за упорядочения ионов Gd, а при $T > 20$ К из-за возрастания температуры.

Быстрый рост теплоемкости в окрестности температур 20 К, возможно, связан также с упорядочением меди в цепочках. Это следует из работ [1,2], где из кривой температурной зависимости восприимчивости вычиталась расчетная кривая температурной зависимости восприимчивости ионов Gd. На результирующей кривой наблюдался максимум при $T = 20$ К, что и связывается авторами с упорядочением меди в цепочках. Это делалось на керамических образцах.

В [12] из измеренной вдоль оси C кривой $\chi(T)_{B=0}$ нами вычиталась расчетная кривая с использованием определенных параметров $\mu_{\text{ef}} = 7.46\mu_B$, $\theta_{\parallel} = -3.2$ К; установлено, что ниже 20 К на результирующей кривой наблюдается плато. Если проделать аналогичную процедуру с кривой $\chi(T)_{B=0}$, измеренной в перпендикулярном оси C направлении, и использовать при этом определенные в той же работе параметры $\mu_{\text{ef}}^{\perp} = 7.42\mu_B$ и $\theta_{\perp} = -2.0$ К, то на результирующей кривой получается размытый максимум. Такое поведение результирующих кривых $\chi(T)_{B=0}$ указывает на упорядочение меди в перпендикулярном оси C направлении. В таком случае диапазон температур $3 < T < 20$ К находится между двумя магнитными переходами с максимумами теплоемкости, и поэтому эффект адиабатичности вне этого диапазона будет меньше.

Таким образом, в данной работе показано, что аномальное поведение измеряемой дифференциальной восприимчивости монокристаллов $\text{GdBaCuO}_{6.2}$ связано с тем, что она при температурах меньше 20 К является адиабатической уже при самых низких частотах измерения (31 Hz). Адиабатический характер восприимчивости приводит к сильной ее зависимости от величины внешнего магнитного поля, которая проявляется в появлении максимумов на кривых $\chi(T)_B$ и их смещении в область высоких температур. Данный результат имеет большое значение при исследовании методом измерения дифференциальной восприимчивости сверхпроводящих свойств монокристалла GdBaCuO с содержанием кислорода, близким к концентрации исчезновения сверхпроводимости. Это связано с необходимостью учета и разделения магнитного и сверхпроводящего вкладов.

Список литературы

- [1] Dunlap B.D. Jap. J. Appl. Phys. **26**, 2027 (1987).
- [2] Dunlap B.D., Slaski M., Sungaila Z., Hinks D.G., Zhang K., Segre C., Malik S.K., Alp E.E. Phys. Rev. **B37**, 1, 592 (1988).
- [3] Дорошенко Н.А., Левченко Г.Г., Маркович В.И., Ревенко Ю.Ф., Фита И.М. ФТТ **31**, 8, 282 (1989).
- [4] Дьяков В.П., Левченко Г.Г., Маркович В.И., Свистунов В.М., Таренков В.И., Фита И.М. СФХТ **2**, 8, 74 (1989).
- [5] Dyakonov V.P., Zybov E.E., Kozeeva L.P., Levchenko G.G., Markovich V.I., Pavlyuk A.A., Fita I.M. Phys. **C178**, 1-3, 221-224 (1991).
- [6] Bloom S.H., Kuric M.V., Guertin R.P., Jee C., Nichols D., Kachanovich E., Grow I.E., Myer G. J. Magn. Magn. Mater. **68**, L135 (1987).
- [7] Berg J., Beek C.J., Kes P.H., Mydosh I.A., Nienwenhuys G.J., Jongh L.I. Solid. State Commun. **64**, 5, 699 (1987).
- [8] Vincent E., Hamman J., Hodges J.A., Hoel H., Potel M., Levet I.C., Gongeon P. Phys. **C159**, 863 (1989).
- [9] Klimentko A.G., Ishikava S.M., Matizen E.V., Kozeeva L.P., Pavlyuk A.A. Phys. Lett. **A138**, 8, 439.

- [10] Дьяконов В.П., Зубов Э.Е., Козеева А.П., Левченко Г.Г., Маркович В.И., Павлюк А.А., Фита И.М. СФХТ **4**, 9, 1687 (1991).
- [11] Asadov A.K., Genenko Yu.A., Levchenko G.G., Markovich V.I., Medvedev Yu.V., Pashchenko A.V., Fita I.M. Phys. **C206**, 119 (1993).
- [12] Левченко Г.Г., Дьяконов В.П., Зубов Е.Е., Маркович В.И., Фита И.М. ФТТ **37**, 2, 395 (1995).
- [13] Гинзбург С.Л. Необратимые явления в спиновых стеклах. М. (1989). 147 с.
- [14] Витебский И.М., Даньшин Н.К., Деркаченко В.Н., Лавриненко Н.М., Левченко Г.Г., Сдвижков М.А. ФТТ **30**, 5, 1271 (1988).
- [15] Hilscher G., Holubar T., Schaudy G., Dumschat I., Stecker M., Wormann G., Wang X.Z., Hellebrand B., Baherle D. Phys. **C224**, 330 (1994).