

# Релаксация метастабильных состояний и квантовое туннелирование в антиферромагнетиках с изинговскими редкоземельными ионами: ортоалюминат диспрозия

© И.Б. Крынецкий, А.Ф. Попков

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

Государственный научный центр, Государственный научно-исследовательский институт  
физических проблем им. Ф.В. Лукина,  
103460 Москва, Россия

E-mail: krynets@plms.phys.msu.su

(Поступила в Редакцию 12 апреля 1999 г.  
В окончательной редакции 6 сентября 1999 г.)

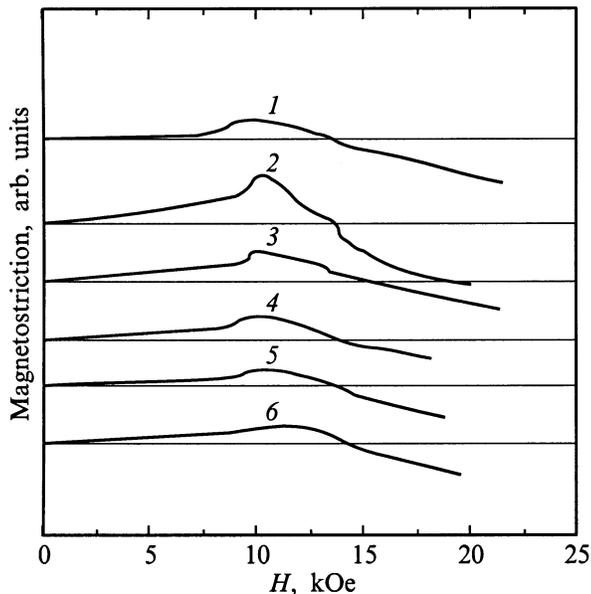
Путем измерения магнитострикции впервые наблюдалась магнитная релаксация метастабильных состояний в антиферромагнетике (ортоалюминате диспрозия  $DyAlO_3$ ) при низких температурах в нулевом магнитном поле. Метастабильные состояния возбуждались в результате теплового удара при переходе через  $\lambda$ -точку жидкого гелия во время термоциклирования. Обсуждается возможный мезоскопический механизм термоактивационной и квантовой магнитной релаксации.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (грант № 98-02-16469) и Минобразования РФ (грант по фундаментальному естествознанию № 97-0-7.3-157).

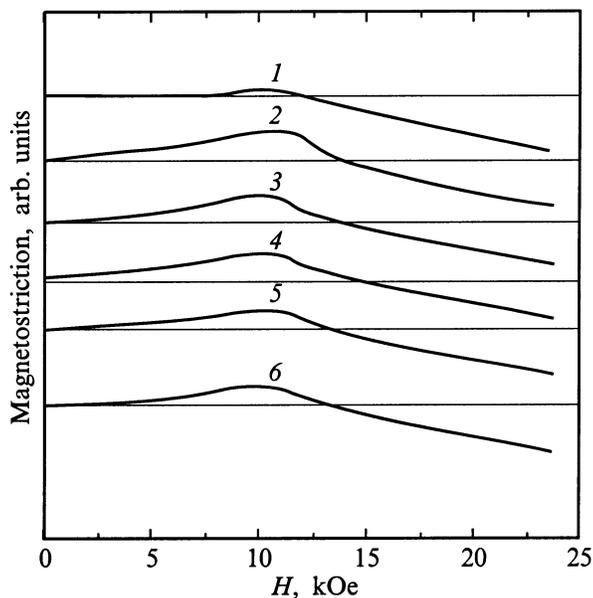
**1.** Магнитные релаксационные явления, характеризующиеся квантовым насыщением в области гелиевых температур, наблюдались в аморфных и монокристаллических, пленочных и объемных магнетиках [1–3]. При этом обычно метастабильные состояния образуются в перемагничивающем магнитном поле, величина которого не превышает коэрцитивность материала, измеряемой характеристикой является намагниченность образца. Основным механизмом магнитной релаксации в этом случае является термоактивационное и квантовое сползание доменных границ [4–7]. Наиболее высокую температуру перехода от термоактивационного к квантовому режиму и наибольшую частоту квантового туннелирования при одинаковом объеме имеют антиферромагнитные материалы [8–12]. Однако применение магнитного поля для создания метастабильных состояний в чистом антиферромагнетике затруднительно, так как зеемановское взаимодействие скомпенсировано и в стандартных полях наблюдения ( $H < 100$  Ое) намагниченность образца равна нулю.

**2.** В настоящей работе впервые в антиферромагнитных монокристаллах (ортоалюминате диспрозия) наблюдалась магнитная релаксация метастабильных состояний, возникающих благодаря эффекту сильного теплового возбуждения магнитных кристаллов, погруженных в жидкий гелий, при температуре вблизи точки сверхтекучести, в которой происходит резкий скачок теплопроводности гелия. Из-за гигантского уменьшения ( $10^{-7}$ ) теплоотвода при переходе через  $\lambda$ -точку фазового перехода при обратном температурном ходе во время термоциклирования происходил тепловой удар, обусловленный выделением джоулева тепла в тензодатчике, приклеенном к образцу, благодаря которому монокристалл переходил в возбужденное состояние [13,14].

Для изучения релаксации этого состояния предложен новый способ, заключающийся в измерении магнитострикции при метамагнитных переходах. Используемый в эксперименте образец представлял собой монокристалл ортоалюмината диспрозия  $DyAlO_3$  размером  $4 \times 4 \times 1$  мм, выращенный методом спонтанной кристаллизации из раствора в расплаве. Магнитострикция измерялась с помощью тензометрического дилатометра (чувствительность по относительной деформации —  $5 \times 10^{-7}$ ) в полях сверхпроводящего соленоида до 4.2 Т в диапазоне температур от 4.2 до 1.57 К. Магнитное поле прикладывалось вдоль  $a$ -оси кристалла, и деформация измерялась вдоль направления [110]. Ниже температуры Нееля ( $T_N = 3.52$  К [15]) в указанной геометрии эксперимента в  $DyAlO_3$  наблюдается метамагнитный переход с перестройкой магнитной структуры  $A_y G_x \Rightarrow C_y F_x$  (в номенклатуре Воллана–Кёллера [16]). Как было нами обнаружено, метамагнитный переход сопровождается аномалией магнитострикции, которая и является в настоящей работе индикатором состояния редкоземельной подсистемы. Эксперимент осуществлялся по следующей схеме. На первом этапе измерялись кривые магнитострикции при понижении температуры образца от 4.2 до 1.57 К (образец в равновесном состоянии). В качестве примера на рис. 1 и 2 приведены изотермы магнитострикции  $DyAlO_3$ , измеренные при  $T_1 = 2.3$  и  $T_2 = 2.9$  К. Видно, что на кривых наблюдается характерная куполообразная аномалия, обусловленная метамагнитным переходом. Равновесному состоянию образца на этих рисунках соответствуют кривые  $I$ . После достижения предельно низкой в данном эксперименте температуры  $T = 1.5$  К начинается повышение температуры образца. В момент прохождения температуры ванны жидкого гелия через  $\lambda$ -точку образец подвергается



**Рис. 1.** Изотермы магнитострикции монокристалла  $\text{DyAlO}_3$  вдоль  $a$ -оси при  $T = 2.3$  К. 1 — образец в равновесном состоянии, 2–6 соответствуют метастабильному состоянию образца и отражают временную зависимость ( $t, \text{s}$ : 2 — 0, 3 — 280, 4 — 1120, 5 — 1680, 6 — 2240).

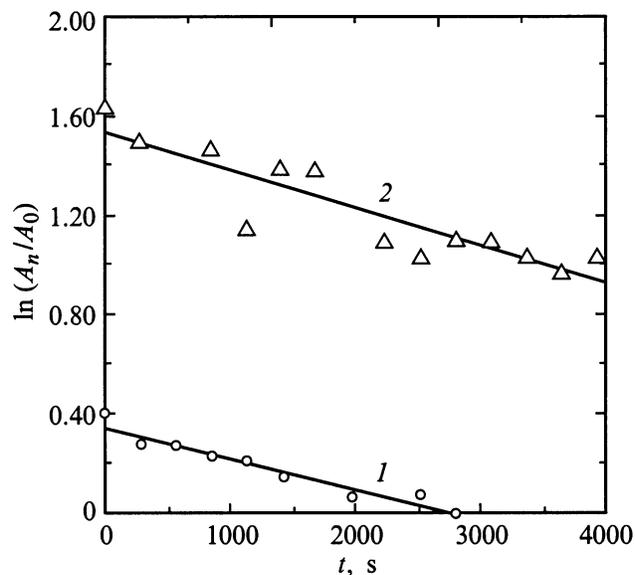


**Рис. 2.** Изотермы магнитострикции монокристалла  $\text{DyAlO}_3$  вдоль  $a$ -оси при  $T = 2.9$  К. 1 — образец в равновесном состоянии, 2–6 соответствуют метастабильному состоянию образца и отражают временную зависимость ( $t, \text{s}$ : 2 — 0, 3 — 840, 4 — 1400, 5 — 3080, 6 — 3920).

кратковременному тепловому удару (за счет изменения условий эксперимента от изотермических к адиабатическим), возбуждающему кристалл. В этом состоянии образца начинается второй этап эксперимента. Температура образца стабилизируется, например, при  $T = 2.3$  К,

и начинается изучение временной зависимости аномалии магнитострикции при метамагнитном переходе путем последовательного измерения изотерм магнитострикции с шагом по времени  $\Delta t = 240$  s (кривые 2–6 на рис. 1 и 2). Дальнейшая обработка результатов измерений заключается в вычислении для каждой кривой отношения амплитуды аномалии  $A_n$  (в метастабильном состоянии) к амплитуде  $A_0$  (в равновесном состоянии) и построении зависимости  $\ln A_n/A_0$  от времени измерения для данной температуры. На рис. 3 приведены полученные зависимости при  $T_1 = 2.3$  и  $T_2 = 2.9$  К. По этим графикам определены релаксационные постоянные  $\Gamma$  для данных температур ( $\Gamma_1 = 1.24 \times 10^{-4}$ ,  $\Gamma_2 = 1.53 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ ). Следует подчеркнуть, что определенные нами значения  $\Gamma$  находятся в хорошем согласии с полученными в работе [3] значениями  $\Gamma$  при изучении низкотемпературной релаксации в изоморфном монокристалле ортоферрита тербия  $\text{TbFeO}_3$  традиционным методом по измерениям намагниченности образца. Принципиальным отличием нашего эксперимента является то, что здесь исследуется релаксация метастабильных состояний сильноанизотропных редкоземельных ионов, обладающих большими значениями  $J$  (для иона  $\text{Dy}^{3+}$   $M_J = \pm 15/2$ ) и характеризующихся псевдоизинговскими свойствами, тогда как в [3] изучалась релаксация магнитной подсистемы, образованной ионами  $\text{Fe}^{3+}$  ( $S = 5/2$ ), являющихся классическим примером слабоанизотропных ионов.

3. Обсудим возможные механизмы термоактивационной и квантовой релаксации в магнитной подсистеме изучавшегося антиферромагнетика. Один из них может быть связан с образованием доменов метастабильной антиферромагнитной фазы, релаксирующих путем смещения доменных границ. Поясним этот механизм по-



**Рис. 3.** Зависимость от времени натурального логарифма отношения амплитуды магнитострикции метамагнитного перехода в метастабильном состоянии  $A_n$  к амплитуде в равновесном состоянии  $A_0$  для  $\text{DyAlO}_3$  при  $T_1 = 2.3$  (1) и  $T_2 = 2.9$  К (2).

дробнее. Редкоземельный ортоалюминат  $\text{DyAlO}_3$  имеет искаженную структуру перовскита, описываемую пространственной группой  $D_{2h}^{16}$ . Они характеризуются наличием двух неэквивалентных мест для редкоземельных ионов, которым соответствуют две изинговские оси, лежащие в  $ab$ -плоскости кристалла под углом друг к другу и четырема попарно связанными антиферромагнитными подрешетками, намагниченности которых располагаются вдоль изинговских осей [17]. Если обозначить через  $m_i$  ( $i = 1, 2, 3, 4$ ) намагниченности подрешеток, то энергия антиферромагнетика в магнитном поле может быть представлена в виде

$$E = E_0 + 1/4[-H_x \cos \alpha_0(m_1 + m_2 + m_3 + m_4) - H_y \sin \alpha_0(m_1 + m_2 - m_3 - m_4) - \frac{1}{2}\lambda_{11}(m_1^2 + m_2^2 + m_3^2 + m_4^2) - \lambda_{12}(m_1 m_2 + m_3 m_4) - \lambda_{13}(m_1 m_3 + m_2 m_4) - \lambda_{14}(m_1 m_4 + m_2 m_3)], \quad (1)$$

где  $H_x$ ,  $H_y$  — компоненты магнитного поля вдоль  $a$ - и  $b$ -осей,  $\lambda_{ij}$  — постоянные обменного взаимодействия,  $\alpha_0$  — угол наклона изинговских осей к  $a$ -оси. Минимизация энергии (1) в нулевом магнитном поле, согласно [17], дает две двукратно вырожденные антиферромагнитные фазы: фазу  $(A_y G_x)$ , в которой  $m_1 = m_3 = -m_2 = -m_4 = \pm m$ , и фазу  $(A_x G_y)$ , в которой  $m_1 = m_4 = -m_2 = -m_3 = \pm m$ . Энергии этих фаз соответственно равны следующим выражениям:

$$E(A_y G_x) = \frac{1}{2}[-\lambda_{11} + \lambda_{12} - \lambda_{13} + \lambda_{14}]m^2, \quad (2)$$

$$E(A_x G_y) = \frac{1}{2}[-\lambda_{11} + \lambda_{12} + \lambda_{13} - \lambda_{14}]m^2. \quad (3)$$

Одна из этих фаз является метастабильной и будет переходить в более устойчивую благодаря термоактивационному либо квантовому механизму релаксации под действием энергетического давления, обусловленного разностью их удельных энергий  $\Delta E = E(A_y G_x) - E(A_x G_y) = [-\lambda_{13} + \lambda_{14}]m^2$ . Трансформация фаз может происходить путем локального смещения разделяющей границы, которая очевидно представляет собой в рассматриваемом случае сильной (изинговской) анизотропии два соседних подрешеточных слоя редкоземельных ионов со скомпенсированным антиферромагнитным обменным полем от соседних слоев. Назовем условно состояние магнитных ионов в таком граничном слое "±"-состояние. В связи с изинговским характером анизотропии РЗ ионов для перехода граничного иона из "±"- в "−"-состояние требуется преодолеть энергетический барьер, связанный с ферромагнитным взаимодействием в подрешеточном пограничном слое  $\Delta E_{\pm} = \frac{1}{2}\lambda_{11}m\mu$ , где  $\mu$  — магнитный момент иона. Этот барьер может преодолеваться благодаря термоактивации при конечной температуре. Поскольку изинговские свойства крмерсовских РЗ ионов в ортоалюминате на являются

идеальными, т.е. имеется хотя и сильная, но конечная анизотропия  $g$ -фактора, нарушающая аксиальную локальную симметрию кристаллического поля, то механизм квантового туннелирования также не запрещен в рассматриваемой системе (такой механизм в системе некрамерсовских изинговских ионов рассмотрен в работе [18]). Оценим возможное число ионов, которые принимают участие в единичных актах граничной трансформации фаз. Согласно проведенным измерениям релаксационной постоянной  $\Gamma(T) = \omega \exp(-\Delta U/k_B T)$  при двух температурах ( $T_1 = 2.3$  и  $T_2 = 2.9$  К) имеем  $\Delta U = [k_B T_1 T_2 / (T_1 - T_2)] \ln(\Gamma_1 / \Gamma_2) \sim 3.2 \cdot 10^{-16}$  эрг. С другой стороны,  $\Delta E_{\pm} = \frac{1}{2}\lambda_{11}m\mu = \frac{1}{2}H_{11exch}\mu$ , где  $\mu$  — магнитный момент редкоземельного иона, поэтому  $\Delta E_{\pm} \sim 1.67 \cdot 10^{-17}$  эрг в соответствии с данными работы [19] для  $\text{DyAlO}_3$ . Сравнение двух энергий показывает, что в процессе единичного акта смещения граничной области участвуют  $\sim 10^1 - 10^2$  ионов. Поэтому описываемый возможный процесс квантового туннелирования в данном случае является мезоскопическим. Следует заметить, что расширение метастабильной фазы перпендикулярно подрешеточным антиферромагнитным плоскостям более выгодно, чем расширение в плоскости  $ab$ -кристалла, так как в последнем случае приходится преодолевать дополнительно энергию антиферромагнитного взаимодействия для образования граничной плоскости. Поэтому представляется более вероятным образование вытянутых вдоль  $c$ -оси метастабильных фазовых образований в каждой паре антиферромагнитно связанных подрешеток. Перекрывание метастабильных фаз приводит к образованию стабильной фазы с противоположным вектором антиферромагнетизма в обеих подрешетках. Вероятность образования описанных метастабильных состояний велика, так как оцениваемая тепловая энергия, накапливаемая в кристалле, более чем достаточна для перевода всего кристалла в метастабильную фазу. Действительно, если учесть, что наблюдаемый кратковременный скачок температуры образца при переходе через  $\lambda$ -точку составляет  $\Delta T = 5$  К [13,14], то удельная тепловая энергия составляет  $\Delta E_T = \rho c \Delta T \sim 3.9 \cdot 10^7$  эрг/см<sup>3</sup>, а энергия метастабильной фазы —  $\Delta E = E(A_y G_x) - E(A_x G_y) = | -H_{13} + H_{14} | m \sim 3.0 \cdot 10^6$  эрг/см<sup>3</sup>. Таким образом, проделанные оценки не противоречат возможности существования описанного механизма магнитной релаксации. По-видимому, гигантская величина наблюдаемого теплового расширения, а также возникновение частотного смещения спектра оптического поглощения  $\text{DyAlO}_3$  [20] ( $\Delta \epsilon = 10^{-4}$ ) после удара могут быть обусловлены метастабильными изменениями в магнитной подсистеме кристалла, поскольку в немагнитном аналоге исследованного образца — ортоалюминате иттрия  $\text{YAlO}_3$  — гигантское тепловое расширение не наблюдается. Следует отметить, что относительная величина частотного смещения спектра оптического поглощения коррелирует с наблюдаемой величиной гигантского теплового расширения  $\Delta \epsilon = 3 \cdot 10^{-5}$  [13].

Следует учитывать также, что при тепловом возбуждении в кристалле происходит сильное упругое искажение решетки, приводящее к изменению кристаллического поля и, как следствие, к изменению основного состояния редкоземельного иона (энергетический спектр, компоненты  $g$ -тензора, характер волновых функций). Измерения магнитострикции позволяют проследить временную релаксацию таких искажений. Для уточнения природы обнаруженной гигантской метастабильной деформации кристалла необходимо провести дополнительные эксперименты, такие, например, как изучение антиферромагнитной доменной структуры с использованием магнитооптических методов.

4. В работе обнаружена экспоненциальная релаксация метастабильных магнитных состояний в редкоземельных ортоалюминатах с изинговскими ионами и предложен новый способ ее исследования — измерение температурных и временных зависимостей магнитоупругих аномалий при метамагнитных переходах.

## Список литературы

- [1] B. Barbara, L.C. Sampalio, J.E. Wegron, B.A. Ratham, A. Marchand, C. Paulsen, M.A. Novak, J.L. Tholence, M. Uehara, D. Fruchart. *J. Appl. Phys.* **73**, 6703 (1993).
- [2] J. Tejada, X.X. Zhang, L.I. Ballcells. *J. Appl. Phys.* **73**, 6709 (1993).
- [3] X.X. Zhang, J. Tehada, A. Roig, O. Nikolov, E. Molins. *J. Magn. Magn. Mater.* **137**, L235 (1994).
- [4] P.C.E. Stamp. *Phys. Rev. Lett.* **66**, 2802 (1991).
- [5] E.M. Chudnovski, O. Iglesias, P.C.E. Stamp. *Phys. Rev.* **B46**, 5392 (1992).
- [6] S. Takagi, G. Tataru. *Phys. Rev.* **B54**, 9920 (1996).
- [7] В.В. Добровский, А.К. Звездин. *ЖЭТФ* **109**, 4, 1420 (1996).
- [8] B. Barbara, E.M. Chudnovsky. *Phys. Lett. A* **145**, 205 (1990).
- [9] E.V. Krive, O.B. Zaslavskii. *J. Phys. Condens. Matter.* **2**, 9457 (1990).
- [10] E.N. Bogachek, I.V. Krive. *Phys. Rev.* **B46**, 14 559 (1992).
- [11] Ji-Min Duan, A. Garg. *J. Phys. Cond. Matter.* **7**, 2171 (1995).
- [12] V.Yu. Golyshev, A.F. Popkov. *Europhys. Lett.* **29**, 327 (1995).
- [13] N.P. Kolmakova, I.B. Krynetskii, E.V. Sinitsin, Proc. of the First Intern. Meet. on Magnetoelastic Effects and Applications. Naples, Italy (1993). S. 297.
- [14] И.Б. Крынецкий, Н.П. Колмакова, Е.В. Синицын. *ФТТ* **38**, 2, 391 (1996).
- [15] L.M. Holmes, L.G. Van Uitert, R.R. Hecker, G.V. Hull. *Phys. Rev.* **B5**, 138 (1972).
- [16] W.C. Koehler, E.O. Wollan. *J. Phys. Chem. Solids* **2**, 100 (1957).
- [17] А.К. Звездин, В.М. Матвеев, А.А. Мухин, А.И. Попов. Редкоземельные ионы в магнито-упорядоченных кристаллах. Наука, М. (1985). 296 с.
- [18] А.К. Звездин, А.Ф. Попков. *Письма ЖЭТФ* **57**, 548 (1993).
- [19] И.Б. Крынецкий, В.М. Матвеев, В.В. Матвеев. *ФТТ* **37**, 5 1548 (1996).
- [20] B.T. Borowiec, I.B. Krynetskii, M.M. Lukina, H. Szymczak. Abstracts of the International Conference on Magnetism. Warsaw, Poland (1994). S. 373.