

УДК 536.424

## ИНДУЦИРОВАННЫЙ МАГНИТНЫМ ПОЛЕМ ПЕРЕХОД ИЗ СЛАБО- В СИЛЬНОАНИЗОТРОПНОЕ СОСТОЯНИЕ В ТЕРБИЙ-ИТТРИЕВЫХ ФЕРРИТАХ-ГРАНАТАХ

А. С. Лагутин, А. В. Дмитриев

Проведено исследование намагниченности и дифференциальной магнитной восприимчивости монокристаллов  $Tb_xY_{3-x}Fe_5O_{12}$  ( $x < 0.5$ ) в импульсных магнитных полях амплитудой до 40 Тл при  $T=4.2$  К. Обнаружено, что процесс перемагничивания редкоземельной подсистемы таких ферритов-гранатов происходит одним или несколькими скачками магнитного момента в зависимости от ориентации поля относительно кристаллографических осей образцов. Полученные результаты интерпретируются в предположении возникновения в поле некомпланарной структуры, образованной изинговскими магнитными моментами. Экстраполяцией к  $x \rightarrow 0$  определена величина эффективного поля обменного взаимодействия между редкоземельной и «железной» подсистемами феррита-граната тербия.

Для построения теории, позволяющей установить однозначное соответствие между микроскопическими характеристиками магнитных ионов кристалла и его термодинамическими свойствами, необходимо знать величины обменных и анизотропных взаимодействий в изучаемых соединениях.

Поэтому одной из задач данного исследования было определение величины обменного взаимодействия между редкоземельными (РЗ) ионами и «железной» подсистемой гранатов  $Y_{3-x}Tb_xFe_5O_{12}$ , а также величин констант магнитной кристаллографической анизотропии в таких соединениях при гелиевых температурах.

В проведенных ранее экспериментах [1, 2] были обнаружены скачки намагниченности монокристаллов  $Y_{3-x}Tb_xFe_5O_{12}$  ( $x < 0.65$ ) в полях около 10 Тл при  $T=4.2$  К. Эти аномалии интерпретировались на основе модели инверсии энергетических уровней иона  $Tb^{3+}$  в магнитном поле, предложенной Купером [3] для объяснения магнитных свойств  $TmSb$ . При достаточно низких температурах инверсия основного состояния сопровождается скачками магнитного момента [4, 5]. Если предположить, что такой процесс происходит до момента перемагничивания РЗ иона, т. е. в полях  $H < H_{обм}$ , то в полях  $H > H_{обм}$  должна иметь место обратная инверсия уровней РЗ иона. При этом поля подобных переходов будут расположены симметрично относительно  $H_{обм}$  ( $H_{обм}$  — эффективное поле обменного взаимодействия РЗ ионов и ионов железа). Была предпринята попытка обнаружить такое явление в монокристалле  $Y_{2.74}Tb_{0.26}Fe_5O_{12}$  [6], однако искомым результат не был получен. Было найдено, однако, что перемагничивание магнитных моментов РЗ ионов в этом соединении происходит не путем двух фазовых переходов второго рода, как в слабоанизотропных ферритах-гранатах, например в  $Gd_{0.5}Y_{2.5}Fe_5O_{12}$  [7], а одним или двумя переходами первого рода.

Такой процесс намагничивания характерен для сильноанизотропных (изинговских) магнетиков и рассмотрен в [8]. Там же отмечено, что наиболее близкими по свойствам к такой модели являются гранаты с ионами  $Ho$ ,  $Dy$ ,  $Tb$ . Эксперименты, проведенные на системе  $Ho_xY_{3-x}Fe_5O_{12}$  [9], показали хорошее согласие с теорией, тогда как для  $Tb_{0.26}Y_{2.74}Fe_5O_{12}$

не удается получить даже качественного согласия теории и эксперимента. Поэтому второй задачей данного исследования было выяснить, как происходит перемагничивание редкоземельной магнитной подсистемы таких гранатов.

## 1. Методика экспериментов и образцы

Для решения поставленных задач был выбран индукционный метод измерения намагниченности и дифференциальной магнитной восприимчивости. Магнитное поле амплитудой до 40 Тл длительностью 12 мс создавалось разрядом конденсаторной батареи на многовитковый соленоид [10]. Индукционный датчик представлял собой две коаксиальные (одна поверх другой) катушки, скомпенсированные с точностью до витка; рабочий диаметр датчика 4 мм [7]. Дальнейшая компенсация датчика проводилась с использованием цепей амплитудной и фазовой коррекции [11].

Магнитное поле измерялось расположенной вблизи от образца полевой катушкой, прокалброванной по сигналу ЭПР в дифенилпикрилгидразиле в поле 7 Тл.

Напряжения с индукционного датчика и полевой катушки поступали на входы прецизионных электронных интеграторов (ошибка интегрирования около 0.1 %). С выхода интеграторов напряжения, пропорциональные временным зависимостям магнитного момента образца и магнитного поля, подавались на два идентичных канала цифрового регистратора однократных процессов (меморископа) [12]. На третий канал меморископа поступало напряжение с датчика (без интегрирования), пропорциональное временной зависимости дифференциальной магнитной восприимчивости. Числовые массивы из каналов меморископа считывались в ЭВМ «Искра-226», с помощью которой велась дальнейшая обработка информации, включающая в себя вычитание из суммарного сигнала напряжения раскомпенсации, калибровку по эталону, расчет дифференциальной магнитной восприимчивости путем деления измеренного значения  $dM/dt$  на производную магнитного поля.

При измерениях намагниченности эталоном служил монокристалл железо-иттриевого феррита-граната, а для измерения восприимчивости в качестве эталона использовался монокристалл  $MnF_2$ ; магнитное поле ориентировалось при калибровке вдоль направления оси  $C_4$  этого кристалла. Погрешность абсолютных измерений не превышала 10 %, причем основной вклад в нее вносило различие формы исследуемых образцов и эталонных.

Все измерения проводились на монокристаллических образцах, выращенных сотрудниками проблемной лаборатории магнетизма МГУ по методу «из раствора в расплаве». Шихта приготавливалась из окислов с чистотой не менее 99.99 %. Состав образцов определялся методом рентгено-спектрального анализа на микроанализаторе УХА-5 (Япония), точность определения  $x$  была не хуже 0.02. Для измерений намагниченности и восприимчивости использовались образцы цилиндрической формы длиной 4—5 и диаметром 2—3 мм. Ошибка в ориентации кристаллографических осей образца относительно магнитного поля не превышала  $3^\circ$ .

## 2. Результаты экспериментов и обсуждение

а) Слабые магнитные поля ( $\mu_0 H < 6$  Тл). Экспериментальные зависимости магнитного момента монокристаллов  $Tb_x Y_{3-x} Fe_5 O_{12}$  от магнитного поля, полученные при ориентациях поля вдоль основных кристаллографических направлений, приведены на рис. 1, *a—в*. Для всех составов легким направлением является направление [100]. При  $H \parallel [111]$  переход в состояние с максимальным моментом происходит скачкообразно для составов с  $x=0.1$  и 0.26, а при  $x=0.41$  имеет место плавный переход в такое состояние. Плавное нарастание намагниченности наблюдается и при ориентации поля вдоль оси [110]; исключение состав

ляет состав с  $x=0.1$ , в котором есть небольшой скачок момента в поле около 0.3 Тл. Если предположить, что магнитные моменты всех шести неэквивалентных позиций РЗ иона  $[13]$  параллельны, то магнитный момент изучаемых соединений в расчете на формульную единицу можно представить в виде  $M = M_{Fe} - M_{Tb} x$ , где  $M_{Fe} = 5 \mu_B$ , а  $M_{Tb} = 9 \mu_B$ . Сравнение расчетных значений магнитных моментов в нулевом поле с экспериментальными данными дает возможность говорить о правдоподобности сделанного предположения.

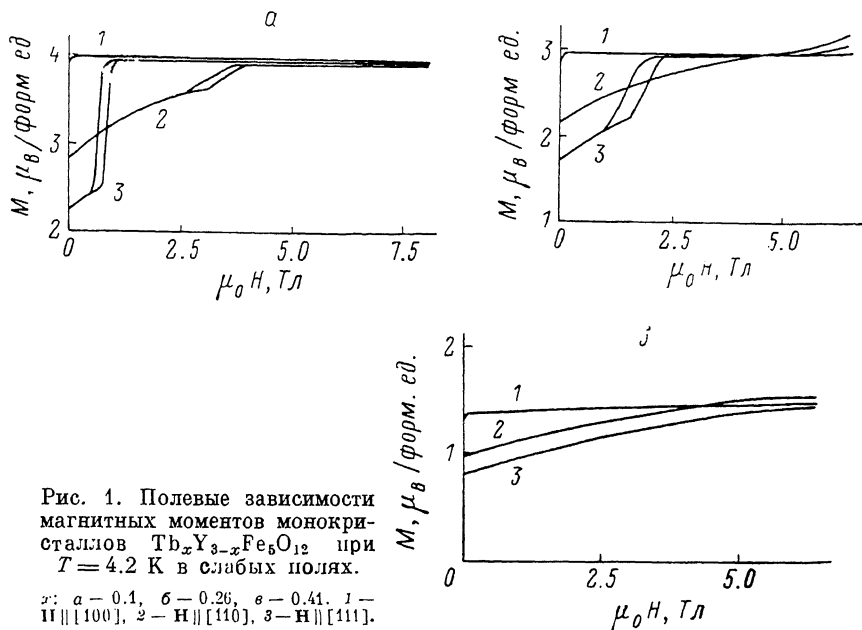


Рис. 1. Полевые зависимости магнитных моментов монокристаллов  $Tb_xY_{3-x}Fe_5O_{12}$  при  $T = 4.2$  К в слабых полях.

$x$ : а — 0.1, б — 0.26, в — 0.41. 1 —  $\Pi \parallel [100]$ , 2 —  $\Pi \parallel [110]$ , 3 —  $\Pi \parallel [111]$ .

Результаты эксперимента (рис. 1, а—в) были использованы для расчета констант магнитной кристаллографической анизотропии. Значения констант (см. таблицу) определялись в предположении справедливости разложения свободной энергии тербий-иттриевого феррита-граната (ТИФГ) в ряд по степеням магнитного момента и при учете только двух первых членов этого ряда, что достаточно для описания свойств ТИФГ при температурах 100—200 К [14]. Из этой таблицы видно, что при увеличении  $x$  происходят значительные изменения обоих констант вплоть до смены знака. Логично связать этот результат с наличием в этих соединениях большого магнитоупругого вклада в константы магнитной анизотропии [15] и предположить, что различие в константах анизотропии для составов с разными  $x$  проявится и в более сильных полях.

Константы анизотропии  $Tb_xY_{3-x}Fe_5O_{12}$  при  $T=4.2$  К

$x$	$K_1, 10^5$ Дж/м <sup>3</sup>	$K_2, 10^5$ Дж/м <sup>3</sup>
0.1	3.4	-16.7
0.26	2.1	-1.5
0.41	1.1	5.1

б) Сильные магнитные поля ( $\mu_0 H > 6$  Тл). Полевые зависимости магнитного момента ТИФГ при разных  $x$  в сильных полях приведены на рис. 2, а—в. Для всех составов в полях от 6 до 16 Тл имеют место скачки момента, величина которых изменяется линейно с  $x$ . Такие поля значительно превосходят поля технического намагничивания, однако магнитные моменты образцов при этом меньше, чем в чистом железо-иттриевом феррите-гранате. Это говорит о том, что перемангничивания редкоземельной подсистемы еще не произошло. Известно также, что аномалии магнитного момента в данном интервале полей сопровождаются аномалиями магнитоstriction [1] и эффекта Фарадея [2].

В полях, превышающих 20 Тл, также обнаружен скачкообразный процесс намагничивания ТИФГ, причем число скачков момента и их величина

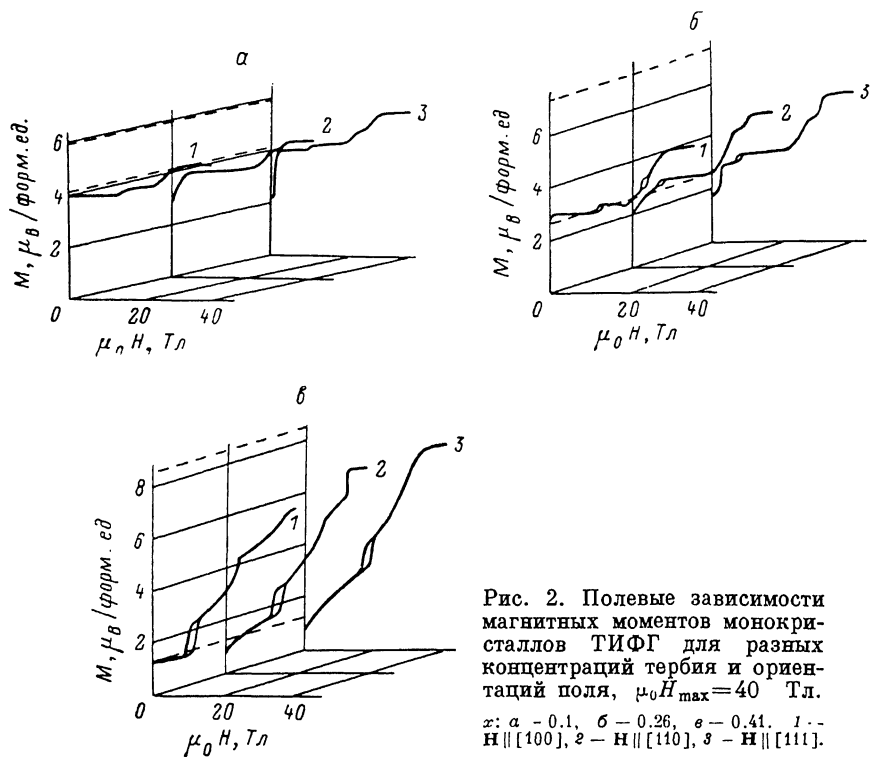


Рис. 2. Полевые зависимости магнитных моментов монокристаллов ТИФГ для разных концентраций тербия и ориентаций поля,  $\mu_0 H_{\max} = 40$  Тл.  $x$ : а - 0.1, б - 0.26, в - 0.41. 1 -  $H \parallel [100]$ , 2 -  $H \parallel [110]$ , 3 -  $H \parallel [111]$ .

варьируются в зависимости от состава и ориентации внешнего поля относительно кристаллографических осей. Характерно, что и в самых больших

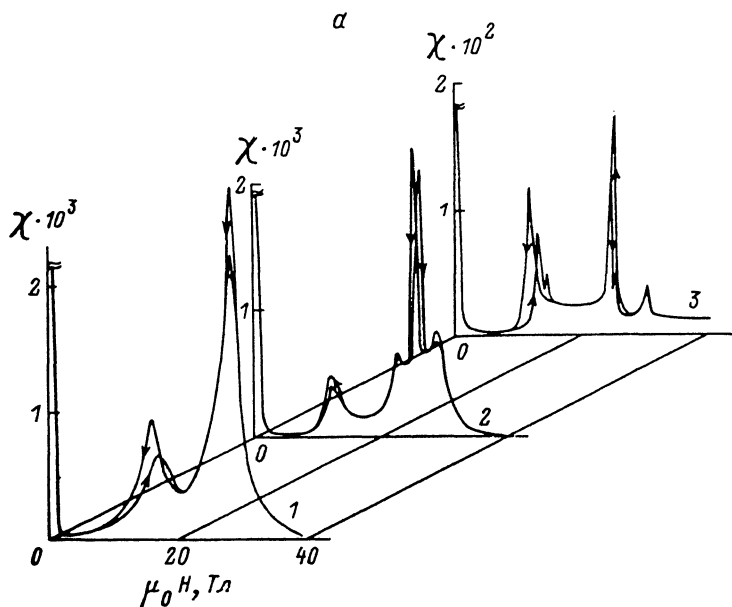


Рис. 3. Зависимости дифференциальной магнитной восприимчивости монокристаллов  $Tb_x Y_{3-x} Fe_5 O_{12}$  для разных  $x$ , полученные при различных ориентациях внешнего поля относительно осей кристаллов.

а -  $H \parallel [100]$ , б -  $H \parallel [110]$ , в -  $H \parallel [111]$ ,  $x$ : 1 - 0.1, 2 - 0.26, 3 - 0.41.

полях магнитные моменты образцов далеки от величин, соответствующих ферромагнитному состоянию ферримагнетика (параллельная ориентация  $M_{Fe}$  и  $M_{Tb}$ ).

Похожее поведение намагниченности было обнаружено в гольмий-иттриевых ферритах-гранатах [9], для описания свойств которых использовалась Z-изинговская модель ферромагнетика [15]. В случае же ТИФГ эта модель не работает, во всяком случае без существенных дополнений.

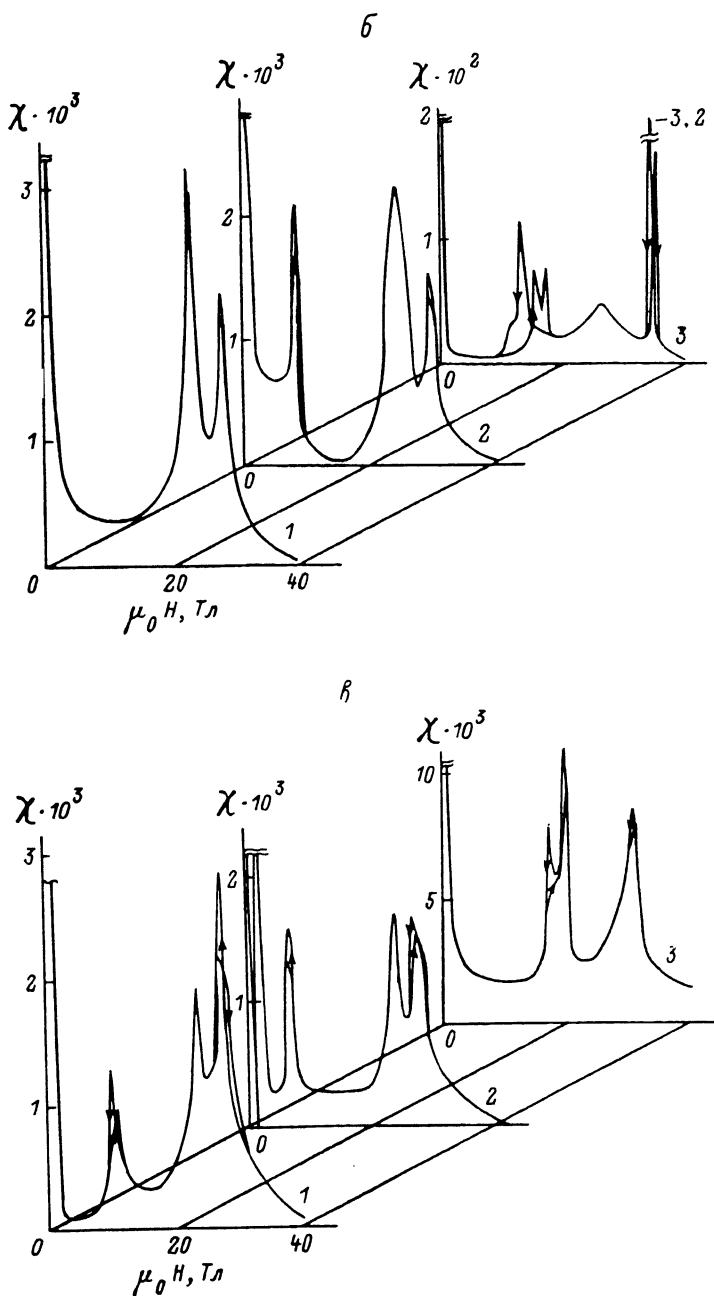


Рис. 3 (продолжение).

Попытка применить альтернативную X—Y-изинговскую модель также не привела к успеху. В обоих случаях не удалось добиться даже качественного соответствия теории и эксперимента.

Ключ к решению задачи был найден при анализе фазовых диаграмм ТИФГ на плоскости «поле—концентрация», для построения которых были использованы экспериментальные полевые зависимости дифференциальной магнитной восприимчивости (рис. 3, а—в). Видно, что величина  $\chi = dM/dH$

при фазовых переходах в полях порядка 20 Тл велика и близка к значению, соответствующему переходу первого рода.

Магнитные фазовые диаграммы на плоскости « $H-x$ » показаны на рис. 4,  $a-e$ . Точками 1, 2 на них указаны поля, соответствующие максимумам восприимчивости. Вертикальные отрезки показывают полуширину переходов, измеренную на полувысоте соответствующих пиков восприимчивости.

Линии фазовых переходов сходятся при  $x \rightarrow 0$  к одной точке, в которой  $\mu_0 H_0 = 28 \pm 2$  Тл. Такое поведение характерно для фазовых диаграмм редкоземельных ферритов-гранатов вне зависимости от рода перехода в полях, где происходит перемагничивание редкоземельной подсистемы [7, 9]. В таком случае  $\mu_0 H_0$  есть эффективное поле обменного взаимодействия между редкоземельной и «железной» подсистемами ТИФГ.

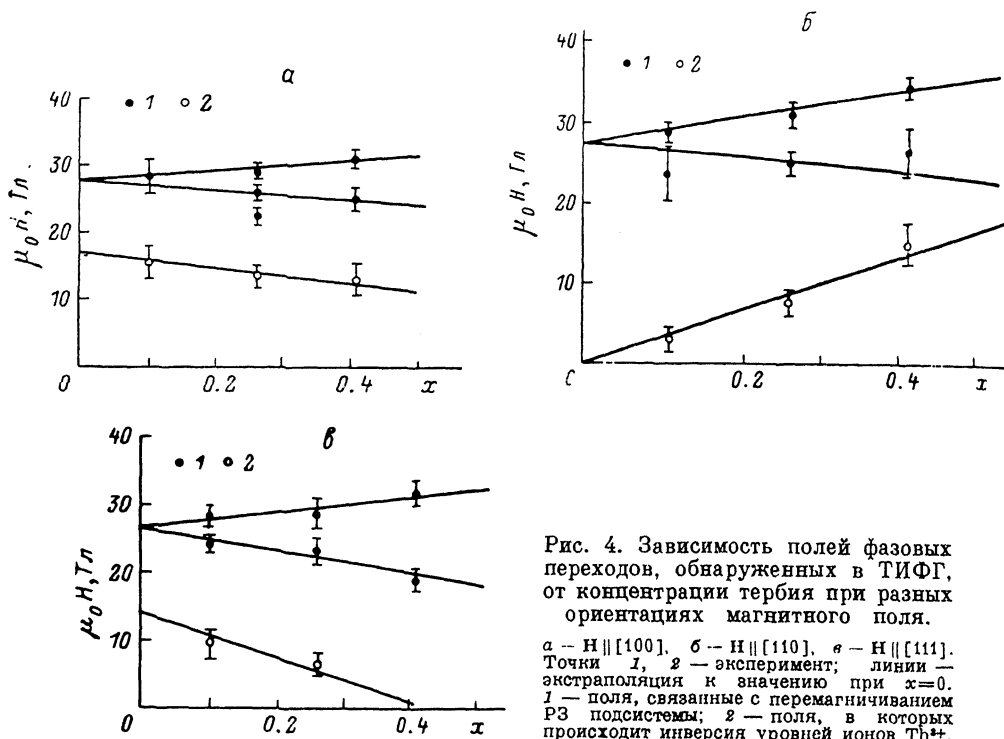


Рис. 4. Зависимость полей фазовых переходов, обнаруженных в ТИФГ, от концентрации тербия при разных ориентациях магнитного поля.

$a - H \parallel [100]$ ,  $b - H \parallel [110]$ ,  $c - H \parallel [111]$ . Точки 1, 2 — эксперимент; линии — экстраполяция к значению при  $x=0$ . 1 — поля, связанные с перемагничиванием РЗ подсистемы; 2 — поля, в которых происходит инверсия уровней ионов  $\text{Th}^{3+}$ .

Рассмотрим более подробно фазовую диаграмму при  $H \parallel [100]$  в полях, больших 20 Тл. При  $x=0.1$  имеет место один переход первого рода, при  $x=0.26$  наблюдается один переход первого рода и вблизи от него два других, о роде которых судить затруднительно. В кристалле с  $x=0.41$  перемагничивание редкоземельной подсистемы происходит двумя переходами первого рода. Если теперь положить, что с изменением состава меняется и ориентация изинговской оси РЗ иона, то свойства ТИФГ в больших полях уже можно описать в рамках  $Z$ -изинговской модели ферримагнетика [15]. Если это так, то экспериментальные результаты говорят о том, что с ростом  $x$  направление  $[100]$  последовательно становится трудным, легким и, наконец, промежуточным, а при  $x=0.41$  ни одно из главных направлений кубического кристалла не является легкой осью. Физической причиной такого магнитного поведения ТИФГ может быть деформация кислородного окружения, обусловленная сильным магнитоупругим взаимодействием. Из-за этой деформации и происходит перестройка уровней РЗ иона, приводящая к изменению основного состояния, в том числе и к смене ориентации изинговской оси. Подтверждением существенного влияния магнитоупругого взаимодействия на магнитные свойства ТИФГ служат изложенные выше результаты по определению констант анизотропии.

Итак, в полях менее 10 Тл свойства исследованных образцов близки к свойствам слабоанизотропных гранатов, тогда как в больших полях они

напоминают свойства сильноанизотропных изинговских магнетиков. Следовательно, в промежуточных полях должен иметь место переход от одного типа поведения к другому. Такой переход может проявляться на магнитных характеристиках ТИФГ, и обнаруженные нами аномалии намагниченности и восприимчивости в полях  $6 < \mu_0 H < 16$  Тл мы связываем именно с подобным переходом, обусловленным пересечением уровней РЗ иона в магнитном поле. В отличие от [2] мы полагаем, что при этом происходит не зануление магнитного момента на одном из неэквивалентных для РЗ иона мест, а возникает неколлинеарная и некомпланарная редкоземельная магнитная структура, подобная наблюдаемой в гольмий-иттриевых ферритах-гранатах [9]. Новое основное состояние РЗ ионов и обуславливает изинговские свойства ТИФГ и задает ориентацию самой изинговской оси — для каждого из неэквивалентных мест РЗ ионов [13]. В первом приближении (без учета взаимодействия РЗ ионов между собой) поля, в которых имеет место пересечение уровней ( $H_K$ ), не должны зависеть от концентрации этих ионов [16]. Полученную в эксперименте зависимость  $H_K$  от  $x$  можно также объяснить наличием сильного магнитоупругого взаимодействия в РЗ подсистеме, которое сказывается на изменении энергетического спектра ионов, вызванном деформацией кристаллической решетки, которая в свою очередь пропорциональна  $x$ .

Модель возникновения в промежуточных полях некомпланарной магнитной структуры в ТИФГ может также объяснить и отсутствие аномалий намагниченности и восприимчивости для составов с  $x=0.1$  и  $0.41$  при  $H \parallel [111]$ . Действительно, возможна ситуация, в которой, несмотря на изменение основного состояния и, следовательно, магнитного момента РЗ иона, аномалий намагниченности не будет, если скачок момента на узле сопровождается возникновением некомпланарной магнитной структуры, что связано с уменьшением суммарного РЗ момента. В результате измеряемое изменение магнитного момента граната может быть очень малым и даже нулевым.

Авторы признательны В. И. Ожогину за постоянный интерес к работе. Они очень благодарны Р. З. Левитину за предоставление образцов и многократные обсуждения экспериментальных результатов. Авторы благодарят также А. К. Звездина, А. И. Попова и В. В. Дружинина за полезные дискуссии.

#### Л и т е р а т у р а

- [1] Демидов В. Г., Левитин Р. З., Попов Ю. Ф. ФТТ, 1976, т. 18, № 2, с. 596—598.
- [2] Валеев У. В., Кринчик Г. С., Левитин Р. З., Мукимов К. М. Письма в ЖЭТФ, 1979, т. 29, № 4, с. 239—243.
- [3] Cooper V. R. Phys. Lett., 1966, vol. 22, N 3, p. 244—245.
- [4] Varret F. J. Phys. Chem. Sol., 1976, vol. 37, p. 257—262.
- [5] Ataya K., Yamashita N. J. Phys. Soc. Jap., 1977, vol. 42, N 1, p. 24—30.
- [6] Лагутин А. С., Гуртовой К. Г. Тез. докл. II Междунар. конф. по физике магнитных явлений. Ядвизиш (ПНР), 1984, с. 212.
- [7] Гуртовой К. Г., Лагутин А. С., Ожогин В. И. ЖЭТФ, 1980, т. 78, № 2, с. 847—853.
- [8] Звездин А. К., Мухин А. Л., Попов А. И. ЖЭТФ, 1977, т. 72, № 3, с. 1097—1110.
- [9] Силантьев В. И., Попов А. И., Левитин Р. З., Звездин А. К. ЖЭТФ, 1980, т. 78, № 2, с. 640—655.
- [10] Лагутин А. С., Ожогин В. И. ПТЭ, 1981, № 3, с. 195—198.
- [11] Allain Y., Gunzbourg J., Krebs J. P., Miedan-Gros A. Rev. Sci. Inst., 1968, vol. 39, p. 1360—1366.
- [12] Стародумов В. Я. ПТЭ, 1984, № 2, с. 61—65.
- [13] Белов К. П. Редкоземельные магнетики и их применение. М.: Наука, 1980. 240 с.
- [14] Белов К. П., Звездин А. К., Левитин Р. З. и др. ЖЭТФ, 1975, т. 68, № 3, с. 1189—1202.
- [15] Белов К. П., Звездин А. К., Кадомцева А. М., Левитин Р. З. Ориентационные переходы в редкоземельных магнетиках. М.: Наука, 1979. 317 с.
- [16] Звездин А. К., Матвеев В. М., Мухин А. Л., Попов А. И. Редкоземельные ионы в магнитоупорядоченных кристаллах. М.: Наука, 1985. 234 с.

Поступило в Редакцию  
15 января 1988 г.  
В окончательной редакции  
20 апреля 1988 г.