Фазовый переход первого рода в окрестности структурного перехода ян-теллеровского типа в калий-диспрозиевом вольфрамате, индуцированный полевой перенормировкой и размягчением упругих модулей

© И.Б. Крынецкий, А.Ф. Попков*, А.И. Попов**, М.Т. Borowiec***, A. Nabiałek***, T. Zayarnyuk***, H. Szymczak***

Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова.

119992 Москва, Россия * Федеральное государственное унитарное предприятие "Научно-исследовательский институт физических проблем им. Ф.В. Лукина", 103489 Москва, Россия ** Московский институт радиотехники, электроники и автоматики, 124498 Москва, Россия *** Institute of Physics, Polish Academy of Sciences,

02-668 Warsaw, Poland

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

(Поступила в Редакцию 3 октября 2005 г.)

Проведены измерения магнитострикции монокристалла $KDy(WO_4)_2$ в области температур ниже температуры структурного фазового перехода (СФП) ян-теллеровского типа при воздействии внешнего магнитного поля. Обнаружено скачкообразное необратимое изменение упругой деформации при увеличении магнитного поля. Обнаружено скачкообразное оси **b** моноклинной ячейки кристалла. Наблюдаемое остаточное состояние сохраняется после изменения знака магнитного поля. Возврат начального состояния с характерными полевыми скачками деформаций возможен только после термоциклирования значительно выше температуры СФП. Построена теория наблюдаемого явления на основе феноменологического вывода термодинамического потенциала для упругой подсистемы с учетом симметрии кристалла и полевой перенормировки упругих модулей. Механизм скачкообразных переходов объясняется магнитным "размягчением" упругих модулей вблизи СФП.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 05-02-17152), частично поддержана в рамках EU-проекта DT-CRYS, а также Polish State Committee on Science (KBN) (проект N 72/E-67/SPB/6, PR/DIE 430/2004-2006).

PACS: 71.70.Ej, 75.50.Ee, 75.80.+q

1. Введение

Щелочно-редкоземельные двойные вольфраматы $MRe(WO_4)_2$, где M = Na, K, Re = Er, Dy, в настоящее время представляют собой весьма интересные объекты для исследований в области физики магнитных явлений. Данное обстоятельство обусловлено, в частности, тем, что в них в области низких температур наблюдаются структурные фазовые переходы (С $\Phi\Pi$), природа которых обусловлена кооперативным эффектом Яна-Теллера. В этом ряду наиболее изученным является калийдиспрозиевый вольфрамат, в котором исследовались ЭПР [1], магнитная восприимчивость, низкополевая намагниченность [2,3] и теплоемкость [4,5]. Важной особенностью СФП моноклинных соединений типа $MRe(WO_4)_2$ является то, что симметрия кристалла не меняется при ян-теллеровской неустойчивости. В этом отношении весьма актуальным для кристаллов подобного типа представляются исследования их упругих и магнитоупругих характеристик, позволяющие получать важную информацию о механизмах формирования физических свойств этих материалов. Магнитное поле оказывает существенное воздействие на упругие свойства кристаллов. Особенно ярко магнитоупругие взаимодействия проявляются в редкоземельных соединениях, которые при низких температурах обладают очень большой (гигантской) магнитострикцией ($\Delta l/l \sim 10^{-3} - 10^{-4}$) [6]. В настоящей работе указывается на возможность реализации магнитострикционно-индуцированного фазового перехода вблизи структурного перехода ян-теллеровского типа, где происходит "размягчение" упругих модулей кристалла, ответственных за структурный фазовый переход. Проведены экспериментальные и теоретические исследования магнитоупругих свойств монокристалла KDy(WO₄)₂ при низких температурах и в сильных магнитных полях.

2. Экспериментальные результаты

Изучалось поведение продольной магнитострикции монокристалла $KDy(WO_4)_2$ в области температур ниже температуры СФП ($T_c = 6.38 \text{ K}$ [4]) при воздействии



Рис. 1. Продольная магнитострикция монокристалла $KDy(WO_4)_2$ вдоль а-оси в магнитном поле, параллельном оси а, при T = 4.2 K.



Рис. 2. Продольная магнитострикция монокристалла $KDy(WO_4)_2$ вдоль **b**-оси в магнитном поле, параллельном оси **b**, при T = 4.2 K.

внешнего магнитного поля величиной до 11 T вдоль а- и **b**-осей моноклинной ячейки. Измерения проводились на тензометрическом дилатометре с чувствительностью по относительной деформации не хуже $0.5 \cdot 10^{-6}$, образцы представляли собой пластинки размером $3 \times 4 \times 1$ mm, вырезанные из массивного монокристалла, выращенного методом Чохральского.

На рис. 1 представлена изотерма продольной магнитострикции образца (измерение деформации совпадает с направлением внешнего магнитного поля) вдоль **а**-оси при T = 4.2 К. Видно, что магнитострикция отрицательна и в области полей H < 2 Т меняется монотонно и нелинейно (на начальном участке зависимость близка к квадратичной), затем при больших полях зависимость от поля становится линейной. При достижении магнитным полем значений $H \sim 2.04$ Т наблюдается практически вертикальный положительный скачок относительной деформации, значение которого составляет $\Delta l/l = 1.78 \cdot 10^{-5}$. После завершения скачка деформация продолжает уменьшаться с увеличением поля, причем зависимость от поля становится линейной. Указанное поведение сохраняется вплоть до достижения максимального значения поля в этом эксперименте (H = 7.56 T). Максимальное значение деформации образца вдоль **a**-оси при **H** || **a** составляет $-8.2 \cdot 10^{-5}$. При этом кривая магнитострикции образца, соответствующая обратному ходу поля, в пределах точности эксперимента совпадает с кривой прямого хода (при вводе поля) при уменьшении значения поля до $H \sim 2 \text{ T}$, однако скачка деформации уже не наблюдается. Таким образом, в нулевом магнитном поле образец имеет остаточную деформацию, равную $+1.78 \cdot 10^{-5}$. Измерения магнитострикции образца, выполненные при инверсии направления магнитного поля, также обнаружили отсутствие скачка относительной деформации.

На рис. 2 представлены результаты измерения продольной магнитострикции вдоль b-оси, записанные в полном цикле изменения внешнего магнитного поля (с переключением направления магнитного поля); температура образца T = 4.2 К. Так же как и в случае **H** || **a**, магнитострикция вдоль **b**-оси имеет аномальный характер: плавное монотонное возрастание деформации обрывается резким скачком с последующим линейным ростом при увеличении магнитного поля. Так же как и при Н || а, при выводе магнитного поля в образце фиксируется остаточная деформация. Отличия результатов, полученных при Н || b, от результатов для Н || a состоят в следующем: 1) магнитострикция положительна, а не отрицательна; 2) критическое поле составляет $H_c = 3.6$ T, а не 2.04 T; 3) скачок деформации отрицателен, а не положителен, его величина составляет $\Delta l/l = -0.78 \cdot 10^{-5}$ (в случае **H** || **a** $\Delta l/l = 1.78 \cdot 10^{-5}$).

Как и в случае измерений вдоль **H** || **a**, результаты измерений магнитострикции, выполненных после скачка магнитострикции при "обратном" направлении внешнего магнитного поля, оказались неожиданными: никакого скачка деформации уже не наблюдалось, в нулевом поле остаточная деформация не обнаружена. Скачкообразное изменение магнитострикции в магнитном поле и остаточная деформация для любого направления поля (**a**- или **b**-ось) проявлялись вновь только после предварительного нагрева образца значительно выше температуры ян-теллеровского структурного перехода.

3. Теория

Описанные выше экспериментально наблюдаемые особенности магнитострикции в $KDy(WO_4)_2$ не могут быть объяснены явлением пересечения уровней расщепленных крамерсовских дублетов в больших полях. Для этого монокристалла расстояние между нижними дублетами в низкотемпературой фазе составляет $W_{01} \sim 18 \text{ cm}^{-1}$; тогда, если допустить, что разность *g*-факторов основного и возбужденного состояний равна по порядку величины максимальной величине, полученной для основного состояния, т. е. для оценок положить ее равной $\Delta g \sim 2$ [4], найдем, что пересечение уровней произойдет в полях $H > W_{01}/\Delta g\mu_B \sim 20$ Т. Эти поля на

Представления	пространственной	группы	$C_{2h}(2/m)$	И	соответствующие	базисные	функции	ИЗ	компонент	тензора	упругих
деформаций и э	квивалентных опер	аторов С	тивенса								

Представления	Упругие деформации	Эквивалентные операторы	Размерность представления
α	$arepsilon^{lpha 1} = arepsilon_{xx} + arepsilon_{yy} + arepsilon_{zz},$		1
	$arepsilon^{lpha 2} = rac{\sqrt{3}}{2} \left(arepsilon_{zz} - rac{1}{3} arepsilon^{lpha 1} ight),$ $arepsilon^{lpha 3} = rac{1}{2} \left(arepsilon_{zz} - arepsilon_{zz} ight)$	$egin{array}{ll} I^{lpha 2}_{nm} \sim \hat{Y}^0_{2n}, \ I^{lpha 3} \sim \hat{Y}^{2m}_{2} + \hat{Y}^{-2m}. \end{array}$	
	$\varepsilon^{\alpha 4} = \varepsilon_{xy}$	$I_{nm}^{\alpha 4} \sim \hat{Y}_{2n}^{2m} - \hat{Y}_{2n}^{-2m}$	
β	$arepsilon^{eta 1} = arepsilon_{yz}, \ arepsilon^{eta 2} = arepsilon_{xz}$	$I^{eta 1}_{nm} = \hat{Y}^{2m-1}_{2n} + \hat{Y}^{-2m+1}_{2n}, \ I^{eta 2}_{nm} = \hat{Y}^{2m-1}_{2n} - \hat{Y}^{-2m-1}_{2n}$	1

Примечание. В выражениях для эквивалентных операторов n = 1, 2, 3; m = 1, ..., n.

порядок величины превышают значения полей, при которых наблюдались скачки магнитострикции в низкотемпературной фазе. Согласно имеющимся теоретическим представлениям [4,6], ян-теллеровская неустойчивость в монокристаллах рассматриваемого типа связывается с механизмом упругого взаимовлияния на расщепление уровней крамерсовских дублетов соседних ионов, обусловленного неоднородными оптическими и акустическими искажениями кристаллической ячейки (фононными модами), "зацепляющимися" за статическую акустическую моду, ответственную за ян-теллеровские макроскопические деформации. Обращает на себя внимание тот факт, что скачки магнитострикции возникают в акустических модах упругих деформаций кристалла, влияющих на его относительную длину в целом. В связи с этим в дальнейшем не будем интересоваться деталями механизма возникновения ян-теллеровской неустойчивости, так как для того, чтобы объяснить наблюдаемые в эксперименте особенности магнитострикции в окрестности этой неустойчивости, оказывается достаточным учесть эффект размягчения упругих модулей для акустических деформационных мод, который может иметь место вблизи СФП ян-теллеровского типа.

Кристалл KDy(WO₄)₂ относится к моноклинной сингонии с пространственной группой C2h(2/m) [4]. В этом кристалле магнитные ионы Dy³⁺ образуют парамагнитную матрицу в области температур $T > T_N = 0.6 \,\mathrm{K}$ [7]. Связь магнитной и упругой подсистем кристалла в данном случае осуществляется вследствие взаимодействия ионов Dy³⁺ с деформационным искажением их окружения, т.е. одночастичного магнитоупругого взаимодействия. В линейном по компонентам тензора упругих деформаций $\varepsilon_{ij} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_j}{\partial x_i} + \frac{\partial u_i}{\partial x_j} \right)$ приближении оно определяет поведение магнитострикции. Гамильтониан этого взаимодействия представляется в виде комбинаций билинейных инвариантов, составленных из произведений эквивалентных операторов $\hat{Y}_n^m(\hat{J})$ [8,9] на компоненты тензора деформаций, которые преобразуются по соответствующим представлениям пространственной группы C2h(C/m), приведенным в таблице. Магнитоупругое взаимодействие приводит к перенормировке упругих постоянных кристалла. Особенно актуальным данное взаимодействие становится при размягчении упругих модулей, что может произойти, в частности, вблизи рассматриваемого СФП. Обсудим этот эффект подробнее.

Полный гамильтониан редкоземельного иона представим в виде

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{V}_{\rm me}^{(1)} + \hat{V}_{\rm me}^{(2)},\tag{1}$$

$$\hat{H}_0 = \hat{H}_{\rm cr} + \mu_{\rm B} g_J H \hat{J}, \qquad (2)$$

где $\hat{H}_{\rm cr}$ — гамильтониан кристаллического поля,

$$\hat{V}_{me}^{(1)} = \sum_{\Gamma,i,j,n,m} b_{ij}^{\Gamma_{nm}} \varepsilon^{\Gamma_i} \hat{I}_{nm}^{\Gamma_j},$$
$$\hat{V}_{me}^{(2)} = \sum_{\Gamma,i,j,k,n,m} b_{ijk}^{\Gamma_{nm}} \varepsilon^{\Gamma_i} \varepsilon^{\Gamma_k} \hat{I}_{nm}^{\Gamma_j}.$$
(3)

В выражениях (3) ε^{Γ_i} , $\hat{I}_{nm}^{\Gamma_j}$ являются соответствующими базисными компонентами неприводимых представлений, которые даны в таблице, $b_{ijk}^{\Gamma_{mm}}$ — магнитоупругие коэф-фициенты в расчете на один ион.

Магнитоупругая энергия в расчете на один ион определяется усреднением магнитоупругого гамильтониана $\hat{V}_{me}^{(1)} + \hat{V}_{me}^{(2)}$ (3) с невозмущенной матрицией плотности, определяемой гамильтонианом \hat{H}_0 (2). Деформация кристалла приводит к увеличению его упругой энергии, которую мы учтем с точностью до слагаемых четвертого порядка по ε_{ij} . Пусть кристалл содержит Nредкоземельных ионов. Тогда совокупность упругой и магнитоупругой энергий примет вид

$$F_{\rm me} = \sum_{\Gamma,i,j,n,m} B_{ij}^{\Gamma_{nm}} \varepsilon^{\Gamma_i} \langle \hat{I}_{nm}^{\Gamma_j} \rangle + \sum_{\Gamma,i,j} \tilde{C}_{ij}^{\Gamma} \varepsilon^{\Gamma_i} \varepsilon^{\Gamma_j} + \sum_{\Gamma,i,j,k} C_{ijk}^{\Gamma} \varepsilon^{\Gamma_i} \varepsilon^{\Gamma_j} \varepsilon^{\Gamma_k} + \sum_{\Gamma,i,j,k,l} C_{ijkl}^{\Gamma} \varepsilon^{\Gamma_i} \varepsilon^{\Gamma_j} \varepsilon^{\Gamma_k} \varepsilon^{\Gamma_l}, \quad (4)$$
$$\tilde{C}_{\Gamma}^{\Gamma} = C_{\Gamma}^{\Gamma} + \sum_{\Gamma,i,j,k,l} B_{\Gamma_{nm}}^{\Gamma_{nm}} \langle \hat{I}_{rk}^{\Gamma_k} \rangle \qquad (5)$$

$$\tilde{C}_{ij}^{\Gamma} = C_{ij}^{\Gamma} + \sum_{n,m,k} B_{ijk}^{\Gamma_{nm}} \langle \hat{I}_{nm}^{\Gamma_k} \rangle, \qquad (5)$$

где $C_{ij}^{\Gamma}, C_{ijk}^{\Gamma}, C_{ijkl}^{\Gamma}$ — упругие модули соответственно второго, третьего и четвертого порядков при H = 0;

 $B_{ij(k)}^{\Gamma_{nm}}=Nb_{ij(k)}^{\Gamma_{nm}}$ — магнитоупругие коэффициенты кристалла; символ (...) означает термодинамическое усреднение.

Выражение (4) по сути представляет собой термодинамический потенциал, параметрами которого являются моды ε^{Γ_i} . Для дальнейшего анализа удобно перейти к представлению нормальных мод $\tilde{\epsilon}^{\Gamma_p}$, связанных линейным преобразованием с модами ε^{Γ_i} , а именно: $\varepsilon^{\Gamma_p} = \sum S_{ip} \tilde{\varepsilon}^{\Gamma_i}$, в котором матрица S_{ip} диагонализирует квадратичную форму в выражении (4). В этом случае

$$F_{\rm me} = \sum \tilde{B}_{ij}^{\tilde{\Gamma}_{mn}} \tilde{\epsilon}^{\Gamma_i} \langle \hat{I}_{nm}^{\Gamma_j} \rangle + \sum_{i,j} \widetilde{\tilde{C}}_{ii}^{\Gamma} (\tilde{\epsilon}^{\Gamma_i})^2 + \sum_{i,j,k} \widetilde{\tilde{C}}_{ijk}^{\Gamma} \tilde{\epsilon}^{\Gamma_i} \tilde{\epsilon}^{\Gamma_j} \tilde{\epsilon}^{\Gamma_k} + \sum_{i,j,k,l} \widetilde{\tilde{C}}_{ijkl}^{\Gamma} \tilde{\epsilon}^{\Gamma_i} \tilde{\epsilon}^{\Gamma_j} \tilde{\epsilon}^{\Gamma_k} \tilde{\epsilon}^{\Gamma_l}, \quad (6)$$

где $ilde{B}_{ij}^{\Gamma} = \sum_{p,k} B_{pk}^{\Gamma} S_{pi} S_{kj}, \quad \widetilde{\widetilde{C}}_{ij}^{\Gamma} = \sum_{p,k} \widetilde{C}_{pk}^{\Gamma} S_{pi} S_{kj}, \quad \widetilde{\widetilde{C}}_{ijk}^{\Gamma} =$ $=\sum_{p,q,r} C_{pkr}^{\Gamma} S_{pi} S_{qj} S_{rk}, \qquad \widetilde{\widetilde{C}}_{ijkl}^{\Gamma} = \sum_{p,q,r,m} C_{pqrm}^{\Gamma} S_{pi} S_{qj} S_{rk} S_{ml}.$ Предположим, что вблизи СФП размягчается мода $\widetilde{\epsilon}^{\Gamma_p}$,

т.е. модуль \tilde{C}_{nn}^{Γ} становится малым. Проведем дальнейший анализ поведения этой моды при изменении поля отдельно. Равновесные значения амплитуд остальных (жестких) мод определяются из условия минимума термодинамического потенциала (6) в пренебрежении упругими модулями третьего и четвертого порядков

$$\tilde{\varepsilon}_{0}^{\Gamma_{i}} = -\sum_{j,m,n} \frac{\tilde{B}_{ij}^{\Gamma_{nm}}}{2\tilde{C}_{ii}^{\Gamma}} \langle \hat{I}_{nm}^{\Gamma_{j}} \rangle, \tag{7}$$

где $i \neq p$. Подставим это выражение в формулу (6) и найдем редуцированный термодинамический потенциал для выделенной мягкой моды

$$F_{\rm me} = \left(\sum_{j,n,m} \tilde{B}_{pj}^{\Gamma_{nm}} \langle \hat{I}_{nm}^{\Gamma_j} \rangle \right) \tilde{\varepsilon}^{\Gamma_p} + \widetilde{\widetilde{C}}_{pp}^{\Gamma} (\tilde{\varepsilon}^{\Gamma_p})^2 + \widetilde{\widetilde{C}}_{ppp}^{\Gamma} (\tilde{\varepsilon}^{\Gamma_p})^3 + \widetilde{\widetilde{C}}_{pppp}^{\Gamma} (\tilde{\varepsilon}^{\Gamma_p})^4, \qquad (8)$$

где

$$\begin{split} \widetilde{\widetilde{C}}_{pp}^{\Gamma} &= \widetilde{\widetilde{C}}_{pp}^{\Gamma} + \sum_{i \neq p} \widetilde{\widetilde{C}}_{ppi}^{\Gamma} \widetilde{\varepsilon}_{0}^{\Gamma_{i}} + \sum_{i, j \neq p} \widetilde{\widetilde{C}}_{ppij}^{\Gamma} \widetilde{\varepsilon}_{0}^{\Gamma_{i}} \widetilde{\varepsilon}_{i}^{\Gamma_{j}}, \\ \widetilde{\widetilde{C}}_{ppp}^{\Gamma} &= \widetilde{\widetilde{C}}_{ppp}^{\Gamma} + \sum_{i \neq p} \widetilde{\widetilde{C}}_{pppi}^{\Gamma} \widetilde{\varepsilon}_{0}^{\Gamma_{i}}. \end{split}$$

Проведем дополнительное преобразование $\tilde{\varepsilon}^{\Gamma_i} = \tilde{\varepsilon}_0^{\Gamma_i} + \eta$, где $\tilde{\epsilon}_0^{\Gamma_i}$ определяется из условия экстремума потенциала (8), т.е. решением уравнения $\frac{\partial F_{\rm me}(\tilde{\varepsilon}^{\Gamma_p})}{\partial \tilde{\varepsilon}^{\Gamma_p}} = 0$. При этом термодинамический потенциал для выделенной мягкой

моды принимает простой вид

$$F_{\rm me} = a\eta^2 + b\eta^3 + c\eta^4, \qquad (9)$$

где
$$a(H) = \overset{\approx}{\widetilde{C}}_{pp}^{\Gamma} + 3\widetilde{\varepsilon}_{0}^{\Gamma_{p}}\overset{\approx}{\widetilde{C}}_{ppp}^{\Gamma} + 6\widetilde{\varepsilon}_{0}^{\Gamma_{p}^{2}}\overset{\approx}{\widetilde{C}}_{pppp}^{\Gamma}, \quad b(H) = \overset{\approx}{\widetilde{C}}_{ppp}^{\Gamma}$$

 $+4\tilde{\varepsilon}_0^{\Gamma_p}\widetilde{C}_{pppp}^{\Gamma}$, $c=\widetilde{C}_{pppp}^{\Gamma}$. Для нас важным обстоятельством является полевая зависимость коэффициента a(H), обусловленная магнитной перенормировкой упругого модуля второго порядка (см. (5)), а также упругих деформаций жестких мод (см. (7)), которые участвуют в перенормировке этого коэффициента. Зависимость от поля перенормировочных вкладов в коэффициент a(H) определяется термодинамическими средними эквивалентных операторов $\langle \hat{Y}_n^m \rangle$. Основным состоянием иона Dy³⁺ в кристаллическом поле в низкотемпературной фазе соединения KDy(WO₄)₂ является крамерсовский дублет, отделенный от вышележащих уровней на $W_1 = 18 \,\mathrm{cm}^{-1}$ [4]. В [9] было показано, что для дублетного основного состояния при температурах $k_{\rm B}T\ll W_1$ выполняется зависимость

$$\langle \hat{Y}_n^m \rangle \sim Hm,$$
 (10)

где $m(H, T) = \mu_{\rm B} \operatorname{th} \left(\sqrt{\sum_{i} (g_i H_i)^2} / k_{\rm B} T \right)$ — составляющая магнитного момента иона, обусловленная расщеплением в поле его основного дублета, g_i — компоненты g-тензона дублета. Таким образом, из формул (5) и (7) следует, что магнитоупругий вклад в коэффициент a(H, T) сильно меняется с ростом поля, что может привести к изменению знака коэффициента a(H, T) и инициировать фазовый переход в магнитном поле.

Анализ системы с термодинамическим потенциалом (9) в окрестности обращения параметра a(H) в нуль хорошо известен (см., например, [6]). Равновесное значение параметра порядка определяется из условия рановесия системы

$$\frac{\partial F_{\rm me}}{\partial \eta} = \eta (2a + 3b\eta + 4c\eta^2) = 0, \qquad (11)$$

которое имеет две устойчивые фазы с перекрывающимися областями устойчивости (рис. 3). Из условия устойчивости $\frac{\partial^2 F_{\rm me}}{\partial \eta^2} = 2a + 6b\eta_0 + 12c\eta_0^2 > 0$ следует, что фаза I с $\eta = 0$ устойчива в области a > 0, а фаза II с $\eta = \eta_0 = -\frac{3|b| + \sqrt{9b^2 - 32ac}}{16c}$ sgnb существует и устойчива, когда $a < \frac{9b^2}{32c}$. Энергии обеих фаз сравниваются внутри перекрытия областей устойчивости — с точке фазового перехода первого рода, когда $F_{\rm me} = a\eta_0^2 + b\eta_0^3 + c\eta_0^4 = 0.$

Таким образом, для объяснения экспериментальных результатов можно теперь использовать модель фазовых переходов первого рода, основанную на полевой зависимости модулей упругости с изменением знака одного из них. В высокотемпературной фазе, когда $a(H,T) > \frac{9b(H,T)^2}{32c(T)}$, имеют место только равновесные упругие деформации с нулевыми нормальными модами



Рис. 3. Зависимость термодинамического потенциала системы от параметра порядка η для трех различных значений внешнего магнитного поля (*a*-*c*) и соответственно коэффициента *a* в уравнении (9).

 $\eta_0 = 0$ (рис. 3, *a*). В низкотемпературной фазе с ростом поля, когда $0 < a(H, T) \leq \frac{9b(H,T)^2}{32c(H,T)}$, появляется метастабильная фаза с ненулевым параметром порядка $\eta_0 \neq 0$ (рис. 3, *b*). При обращении в нуль перенормированного полем модуля упругости a(H, T) = 0 нулевая фаза теряет устойчивость и система скачком меняет параметр порядка, переходя в более устойчивую фазу с конечным значением $\eta_0 \neq 0$, как показано на рис. 3, *c*. Выключение магнитного поля может оставлять эту фазу метастабильной, если при температуре наблюдения выполняется условие $0 < a(0, T) \leq \frac{9b(0,T)^2}{32c(0,T)}$. Изменение температуры нагрева до точки, где модуль возрастает настолько, что он превышает критическую величину $a(0, T) = \frac{9b(0,T)^2}{32c(0,T)}$, приводит к исчезновению метастабильной фазы, и система снова переходит к нулевой нормальной моде.

Хотя развитая здесь теория не может претендовать на количественное объяснение наблюдаемых результатов, так как многие необходимые параметры гамильтониана неизвестны, она позволяет интерпретировать ряд экспериментальных фактов, обсуждавшихся выше. Во-первых, она объясняет наблюдаемую последовательность возникновения метастабильных состояний и фазовых переходов с изменением поля и температуры в низкотемпературной области СФП. Во-вторых, из теории следует линейный полевой вид зависимостей магнитострикции, который должен наблюдаться в области полей $H > 2kT/\mu_{\rm B}g$, что и соответствует эксперименту. В-третьих, теория позволяет связать критическую величину поля наблюдения скачка упругой деформации с магнитоупругой перенормировкой модуля упругости второго порядка, когда по порядку величины характерное поле перехода дается выражением $H \sim \frac{(C^{\Gamma})^2}{C^{\Gamma\Gamma}B^{\Gamma}} \frac{W_{01}}{\Delta g \mu_B}$ Пересечение уровней расщепленных магнитным полем крамеровских дублетов требует большого магнитного поля $H > \frac{W_{01}}{\Delta g \mu_{\rm B}} \sim 20 \, {\rm T}$ (где Δg — разность компонент g-тензора для возбужденного и основного дублетов), которое не достигается в эксперименте. Таким образом, янтеллеровское размягчение модулей упругости второго порядка дает возможность объяснить меньшую величину критических полей возникновения скачка деформации по сравнению с полем пересечения уровней.

4. Заключение

Таким образом, проведенные полевые измерения магнитострикции монокристалла KDy(WO₄)₂ в области температур ниже температуры СФП ян-теллеровского типа при воздействии внешнего магнитного поля величиной до 11 Т показывают скачкообразное необратимое изменение упругой деформации при возрастании магнитного поля как вдоль оси а, так и вдоль оси b моноклинной ячейки, которое сохраняется даже после изменения знака магнитного поля. Новое состояние исчезает только после нагрева образца значительно выше температуры СФП и последующего его охлаждения до исходной температуры. Обнаруженные аномалии магнитострикции происходят в полях, не соответствующих величине поля, в котором возможно возникновение кроссовера расщепленных полем энергетических уровней нижних крамерсовских дублетов редкоземельных ионов в кристаллическом поле вольфрамата диспрозия. Анализ термодинамического потенциала для упругой подсистемы с учетом симметрии кристалла и полевой перенормировки упругих модулей показывает, что возникновение скачкообразных изменений упругой деформации может быть объяснено магнитным размягчением упругих модулей парамагнитного кристалла вблизи СФП. Благодаря пониженной величине упругих модулей вблизи СФП ян-теллеровского типа и большой магнитострикции, обусловленной наличием парамагнитной редкоземельной матрицы в кристалле, при низких температурах и больших магнитных полях происходит сильная полевая перенормировка модулей, в результате чего один из них, соответствующий деформационной моде перехода, может обратиться в нуль. При последующем уменьшении магнитного поля до нуля и смене его знака новое состояние может сохранять устойчивость, если величина восстановленного модуля недостаточно велика. Нагрев выше температуры СФП может привести к такому увеличению модулей упругости, что новое деформационное состояние потеряет устойчивость, что и наблюдается в эксперименте.

Список литературы

- M.T. Borowiec, V. Dyakonov, A. Nabialek, A. Pavlyuk, S. Piechota, A. Prokhorov, H. Szymczak. Physica B 240, 21 (1997).
- [2] M.T. Borowiec, V. Dyakonov, E. Zubov, E. Khatsko, H. Szymczak. J. Phys. I (France) 7, 1639 (1997).
- [3] M.T. Borowiec, V. Dyakonov, I. Fita, A. Nabialek, A. Pavlyuk, A. Szewczyk, H. Szymczak, M. Zaleski, E. Zubov. J. Magn. Magn. Mater. 915. 119 (1999).
- [4] В.П. Дьяконов, В.И. Маркович, В.Л. Коварский, А.В. Маркович, М. Боровец, А. Енджейчак, Г. Шимчак. ФТТ 40, 750 (1998).
- [5] M.T. Borowiec, V. Dyakonov, A. Jedrzejczak, V. Markovich, A. Pavlyuk, H. Szymczak, E. Zubov, M. Zaleski. Phys. Lett. A 243, 85 (1998).
- [6] К.П. Белов, А.К. Звездин, А.М. Кадомцева, Р.З. Левитин. Ориентационные переходы в редкоземельных магнетиках, Наука, М. (1979). 274 с.
- [7] E. Callen, H.B. Callen. Phys. Rev. 139, A455 (1965).
- [8] А.К. Звездин, В.М. Матвеев, А.А. Мухин, А.И. Попов. Редкоземельные ионы в магнитоупорядоченных кристаллах. Наука, М. (1985). 296 с.
- [9] E. Pytte. Phys. Rev. B 9, 932 (1974).