

ПРИЗНАКИ ДИПОЛЬНОГО СПИНОВОГО СТЕКЛА В МАГНИТНО-РАЗБАВЛЕННОМ ДИЭЛЕКТРИКЕ $\text{CaF}_2 \cdot \text{Er}^{3+}$

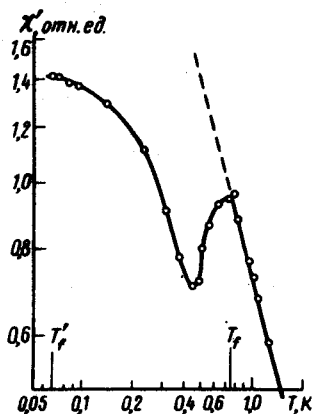
В.А.Ацаркин, В.В.Демидов, С.Я.Хлебников

При исследовании магнитной восприимчивости в кристаллах CaF_2 с примесью 1% ионов Er^{3+} (эффективный спин $S^* = 1/2$) при температурах ниже 0,8К впервые наблюдались признаки образования спинового стекла за счет магнитных дипольных взаимодействий между примесными ионами.

Спиновым стеклом называют состояние, при котором хаотически распределенные по объему твердого тела спиновые магнитные моменты "заморожены" в случайно ориентированных локальных полях, при отсутствии макроскопической намагниченности вещества в целом. Интерес к этой проблеме резко возрос после того, как был обнаружен острый максимум в температурном ходе магнитной восприимчивости сплава AuFe , что было воспринято как признак фазового перехода от парамагнитного состояния к спиновому стеклу [1]. Число теоретических и экспериментальных работ на эту тему сейчас измеряется сотнями, однако общепринятой концепции спинового стекла пока не существует (см., например, [2]).

Взаимодействие, ответственное за образование спинового стекла в металлах, представляет собой дальнедействующий обменный потенциал РККИ, быстро осциллирующий по знаку в зависимости от расстояния r_{ij} между взаимодействующими спинами и затухающий, как r_{ij}^{-3} . В работе [3] одним из авторов данной статьи была отмечена аналогия между этим потенциалом и магнитным диполь-дипольным взаимодействием, также убывающим пропорционально r_{ij}^{-3} и осциллирующим по знаку в зависимости от ориентации вектора r_{ij} . На этом основании в [3] делался вывод о возможности возникновения спинового стекла в магнитно-разбавленных диэлектриках с дипольным взаимодействием. Впоследствии вопрос о дипольном спиновом стекле обсуждался в ряде теоретических работ (см., например, [4]), однако до сих пор это явление, видимо, не наблюдалось.

Основным препятствием для экспериментального поиска дипольного спинового стекла представлялась относительно слабая величина дипольных взаимодействий, соответствующая (для разумных концентраций парамагнитной примеси $c \sim 1\%$) трудно достижимой температуре перехода $T_f \lesssim 10^{-2}\text{К}$. В качестве выхода из положения предлагалось [3] понизить температуру дипольной подсистемы методом "адиабатического размагничивания во вращающейся системе координат", т. е. тем способом, каким ранее было получено ядерное магнитное упорядочение [5]. Трудности, возникающие при осуществлении этой идеи применительно к электронным спинам, заставили нас избрать иной путь — а именно, подобрать систему с аномально высоким значением g -фактора парамагнитной примеси (напомним, что диполь-дипольная энергия пропорциональна g^2).



Температурная зависимость магнитной восприимчивости в $\text{CaF}_2: \text{Er}^{3+}$. Прямая линия — закон Кюри

В качестве такого объекта были выбраны кристаллы CaF_2 с примесью ионов Er^{3+} . При выращивании этих кристаллов по специальной методике примесные ионы, замещающие Ca^{2+} , дают спектр ЭПР, характеризующийся слегка анизотропным g -фактором с компонентами $g_{||} = 7,76$ и $g_{\perp} = 6,25$ [6]. Это позволяло надеяться на повышение T_f более чем на порядок по сравнению с обычными парамагнетиками, где $g = 2$.

Весьма существенно, что эффективный спин S' иона Er^{3+} равен $1/2$, а природное содержание единственного нечетного изотопа ^{167}Er составляет лишь 23%. Это гарантирует отсутствие низкотемпературных аномалий восприимчивости, которые могли бы возникнуть из-за электрических или сверхтонких расщеплений энергетических уровней парамагнитного иона. Заметим, что подобные аномалии, попадающие в диапазон $10^{-1} - 10^{-3}\text{K}$, могут повлиять на интерпретацию результатов, полученных на ионах Eu^{2+} [7 - 9], Ho^{3+} [10] и т. п.

Наконец, есть основания считать, что обменные взаимодействия между ближайшими соседями Er^{3+} в CaF_2 малы по сравнению с дипольными: последние имеют порядок 1К, тогда как обменная энергия в сходной системе $\text{CaF}_2: \text{Nd}^{3+}$ не превышает 0,15К [11].

Наш эксперимент состоял в измерении действительной части магнитной восприимчивости χ'' на частоте $\nu \approx 330$ кГц в нулевом постоянном магнитном поле и диапазоне температур $T = 0,07 \pm 2,2\text{K}$. Величина на χ'' измерялась по сдвигу частоты генератора, собранного на туннельном обращенном диоде и находящегося при гелиевой температуре (долговременная стабильность составляла около 1 Гц). Амплитуда переменного магнитного поля на образце не превышала 2 А/м. Для охлаждения образца использовался рефрижератор растворения на смеси $^3\text{He} - ^4\text{He}$.

Результаты измерений для образца с концентрацией $\text{Er}^{3+} c = 1\%$ (по отношению к Ca^{2+}) показаны на рисунке. Видно, что при температурах ниже $T_f \approx 0,8\text{K}$ закон Кюри сменяется падением величины χ'' , которое продолжается примерно до 0,45К. При дальнейшем охлаждении снова наблюдается рост восприимчивости, имеющий, однако, явную тенденцию к насыщению (или к новому максимуму?) вблизи $T_f' = 0,07\text{K}$.

Зависимость, показанная на рисунке, весьма напоминает результаты, полученные на образцах $\text{SrS}: \text{Eu}^{2+}$ при $c \leq 10\%$ [7, 8]. Согласно

идеям этих работ, максимум восприимчивости при $T = T_f$ следовало бы трактовать как результат температурной зависимости времени продольной спин-спиновой релаксации τ_S , которое при охлаждении, как предполагается, резко возрастает и вблизи T_f достигает значений порядка $1/2\pi\nu \approx 5 \cdot 10^{-7}$ сек (заметим, что при высоких температурах для нашего образца $\tau_S \approx 5 \cdot 10^{-10}$ сек). Подчеркнем, однако, что интерпретация, предложенная в [7, 8], опирается на наличие в SrS: Eu²⁺ сильного близкодействующего обменного взаимодействия, ведущего к образованию суперпарамагнитных кластеров, и, кроме того, существенно использует отличие спина Eu²⁺ от 1/2. Оба эти условия неприменимы к нашему случаю не говоря уже о том, что при использованной нами низкой концентрации парамагнитных центров роль кластеров вряд ли существенна.

Другое предположение состоит в том, что при $T = T_f$ происходит образование дипольного спинового стекла, однако вплоть до температур порядка $T_f' \approx 0,07\text{K}$ это состояние неустойчиво и конкурирует с парамагнитной фазой, окончательно беря верх лишь при $T < T_f'$. Заметим, что приведенное значение T_f' неплохо согласуется с величиной среднеквадратичного дипольного локального поля, которое в данном случае составляет около $0,1 \text{ см}^{-1}$ (см. [3]). Ясно, однако, что окончательную интерпретацию можно будет провести лишь после дополнительных экспериментов, которые позволят установить частотную, концентрационную и полевую зависимости магнитной восприимчивости.

Авторы благодарят Л.Д. Ливанову и И.Н. Куркина за предоставление кристаллов для исследований.

Институт радиотехники и электроники
Академии наук СССР

Поступила в редакцию
29 июля 1980 г.

Казанский физико-технический институт
Академии наук СССР

Литература

- [1] V.Cannella, J.A.Mydosh. Phys. Rev., B6, 4220, 1972.
- [2] Proc. 2d Joint Intermag-magnetism and Magnetic materials Conf. 1979; J. Appl. Phys., 50, 7308; 7318, 7342, 1979.
- [3] В.А.Ацаркин. Письма в ЖЭТФ, 23, 323, 1976.
- [4] J.Villain. Z.Physik, B33, 31, 1979.
- [5] M.Chapellier, M.Goldman. Vu Hoang Chau, A.Abragam. J. Appl. Phys. 41, 849, 1970.
- [6] Ю.К.Воронько, Г.М.Зверев, Б.Б.Мешков, А.И.Смирнов. ФТТ, 6, 2799, 1964.
- [7] F.Holtzberg, J.L.Tholence, H.Godfrin, R.Tournier. J. Appl. Phys., 50, 1717, 1979.
- [8] G.Eiselt, J.Kötzler, H.Maletta, D.Stauffer, K.Binder. Phys. Rev., B19, 2664, 1979.

[9] H.Maletta, W.Felsch, Phys. Rev.,B20, 1245, 1979.

[10] C.Chappert, P.Beauvillain, J.-P.Renard, K.Knorr. Solid State Comm.,
31, 213; 1979.

[11] Н.Е. Каск, Л.С.Корниенко, Е.Г.Ларионцев. ФТТ, 8, 2572, 1966.
