

## СЛУЧАЙНЫЕ МАГНИТНЫЕ ПОЛЯ И ТРИКРИТИЧЕСКОЕ ПОВЕДЕНИЕ ДИАМАГНИТНО РАЗБАВЛЕННЫХ АНТИФЕРРОМАГНЕТИКОВ $(\text{Ni}_{1-x}\text{Mg}_x)\text{O}$

*А. З. Меньшиков, Ю. А. Дорофеев, А. Г. Клименко,  
Н. А. Миронова*

На примере системы твердых растворов  $(\text{Ni}_{1-x}\text{Mg}_x)\text{O}$  впервые показано, что хаотическое замещение ионами магния никелевой подрешетки проявляется как эффект случайного магнитного поля, приводящий сначала к локальному магнитному разупорядочению, а затем и к полному разрушению дальнего магнитного порядка в топологически бесконечном антиферромагнитном кластере с образованием области трикритического поведения и кластерного спинового стекла.

Согласно Имри и Ма<sup>1</sup> магнитно-упорядоченное состояние с непрерывной симметрией является нестабильным к произвольно малому случайному разупорядочивающему полю в пространстве с размерностью  $n \geq 2$ . В качестве случайного поля могут выступать различного рода искажения реальных систем, например, антиферромагнитно взаимодействующая примесь в ферромагнитной матрице или внешнее однородное магнитное поле в диамагнитно разбавленных антиферромагнетиках<sup>2</sup>. Доказательством разрушения дальнего магнитного порядка случайным полем является экспериментальное обнаружение уширения когерентных магнитных рефлексов<sup>3</sup> и уменьшения точки Нееля<sup>4</sup> в диамагнитно разбавленных антиферромагнетиках, помещенных во внешнее магнитное поле.

В данной работе представлены доказательства того, что сами диамагнитные примеси могут служить источниками случайных магнитных полей по причине формирования на месте диамагнитного иона локального магнитного поля, направленного противоположно локальному молекулярному полю, которое в свою очередь, является хаотическим в силу неоднородного распределения магнитных ионов в ближайшем окружении примеси. Разрушение дальнего антиферромагнитного порядка при диамагнитном разбавлении установлено во многих случаях (см., например,<sup>5,6</sup>), но доказательств в пользу рассмотрения диамагнитной примеси как случайного поля не существовало до сих пор. Здесь мы впервые приводим их на примере влияния диамагнитной примеси Mg на антиферромагнитный порядок в NiO.

Система  $(\text{Ni}_{1-x}\text{Mg}_x)\text{O}$ , представляющая непрерывный ряд твердых растворов с решеткой типа NaCl была изучена методами нейтронографии и СКВИД-магнитометрии. Образцы для исследования, изготовленные методом спекания порошков исходных окислов, имели следующий состав:  $x = 0,1; 0,3; 0,4; 0,5; 0,55; 0,6; 0,65; 0,7; 0,8; 0,9$ . Нейтронографические исследования проводили при температурах 4,2–600 К на дифрактометре ( $\lambda = 1,81 \text{ \AA}$ ), установленном на одном из горизонтальных каналов реактора ИВВ-2М, а измерения обратной и необратимой восприимчивости исследуемых образцов осуществляли в интервале температур 1,5––300 К с помощью СКВИД-магнитометра в очень малых магнитных полях ( $\sim 1 \text{ м} \cdot \text{Тл}$ ).

Для всех твердых растворов с содержанием  $x \leq 0,6$  были получены идентичные нейтронограммы, на которых присутствовало семейство магнитных отражений с рефлексом родоначалником  $(\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, \frac{1}{2})$ . Из температурной зависимости этого рефлекса определяли точку Нееля исследуемых образцов  $T_N$ , а из данных по интенсивности магнитных рефлексов при 4,2 К — величину среднего магнитного момента на атом  $\bar{\mu}$  в предположении магнитной структуры с волновым вектором  $\mathbf{k} = \frac{2\pi}{a} (\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, \frac{1}{2})$ <sup>7</sup>.

По результатам исследований построена магнитная фазовая диаграмма  $(\text{Ni}_{1-x}\text{Mg}_x)\text{O}$  твердых растворов (рис. 1), на которой существуют области однородного и неоднородного антиферромагнетизма, а также область спинстекольного состояния. Для однородного антиферромагнетизма ( $0 \leq x \leq 0,3$ ) характерно линейное изменение  $T_N$  и  $\bar{\mu}$  с концентрацией. Кроме,

того на монокристаллах этих составов визуально наблюдается доменная структура из-за существования магнитного двулучепреломления, возникающего вследствие спонтанной деформации решетки<sup>9</sup>. Концентрационная зависимость температуры Нееля в этой области составов хорошо описывается следующей формулой, полученной из расчета общей энергии обменно-взаимодействующих пар ионов:

$$T_N = \frac{1}{2k} Z_{\text{эф}} J_{\text{эф}} S_{\text{Ni}}^2 (1-x), \quad (1)$$

где  $Z_{\text{эф}}$  — эффективное число соседей,  $J_{\text{эф}}$  — эффективный обменный интеграл,  $S_{\text{Ni}}$  — спин иона никеля. Подобное выражение может быть получено и в рамках теории молекулярного поля.

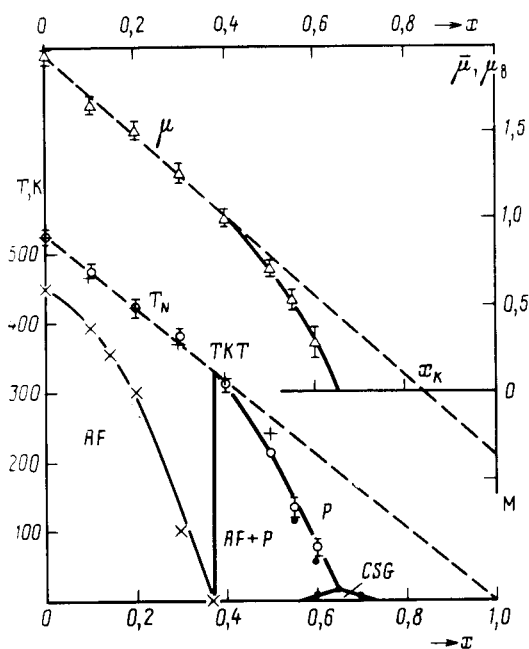


Рис. 1. Магнитная фазовая диаграмма (внизу) и концентрационная зависимость среднего магнитного момента (вверху) для  $(\text{Ni}_{1-x}\text{Mg}_x)\text{O}$  твердых растворов. (○, Δ) — данные настоящей работы, полученные из нейтронографии и (●), полученные из сквид-магнитометрии. Прямыми крестиками (+) показана температура максимума магнитной восприимчивости, измеренной в<sup>8</sup>, косыми (×) — температуры, до которых наблюдается хорошая антиферромагнитная доменная структура<sup>9</sup>. Сплошными линиями обозначены линии фазовых переходов I рода, пунктирными — II рода. ТКТ — трикритическая точка

Соответствие формулы (1) экспериментальным данным в области  $x \leq 0.37$  означает, что здесь  $J_{\text{эф}}^2 S_{\text{Ni}}^2 = \text{const}$ . Более того, из-за слабой зависимости параметра решетки от концентрации ( $a_{\text{MgO}} = 4,215 \text{ \AA}$ ,  $a_{\text{NiO}} = 4,175 \text{ \AA}$ ) можно сделать вывод, что и эффективный обменный интеграл и полный магнитный момент ионов никеля  $\mu_{\text{Ni}}$  также постоянны. Тем не менее, как видно из рис. 1, средний магнитный момент не удовлетворяет формуле  $\bar{\mu}(x) = \mu_{\text{Ni}}(1-x)$  и это обстоятельство не является случайным. Для описания  $\bar{\mu}(x)$ , наблюдаемого на опыте, нужно воспользоваться другим выражением

$$\bar{\mu}(x) = \mu_{\text{Ni}}(1-x) - Mx, \quad (2)$$

где  $M$  — некий индуцированный на ионах магния магнитный момент, антипараллельно направленный  $\mu_{\text{Ni}}$ . Его значение  $M = 0,35 \mu_{\text{B}}$  определяется из линейной экстраполяции экспериментальной зависимости на  $x = 1$ , а физический смысл непосредственно вытекает из представлений о случайном магнитном поле.

Действительно, ион магния, замещая ион никеля, не может рассматриваться только как немагнитный атом, а в силу существования вращения электронных орбит Mg вокруг локально-

го молекулярного поля на месте этого иона создается магнитное поле противоположного направления, которое будет случайным по отношению к магнитному порядку матрицы из-за неоднозначного ближайшего окружения из ионов никеля. При концентрациях магния  $x \leq 0,37$  случайные поля расстраивают магнитный порядок спинов, находящихся в ближайшем окружении к диамагнитному иону, оставляя неизменным топологически бесконечный антиферромагнитный кластер. Но концентрация  $x_T = 0,37$  является критической к разрушению его на кластеры конечных размеров. Именно при этой концентрации начинается отклонение  $T_N(x)$  и  $\bar{\mu}(x)$  от линейной зависимости, что, соответственно, означает появление некоторого числа атомных спинов, не участвующих как в образовании обменно-связанных пар, так и в когерентном рассеянии нейтронов.

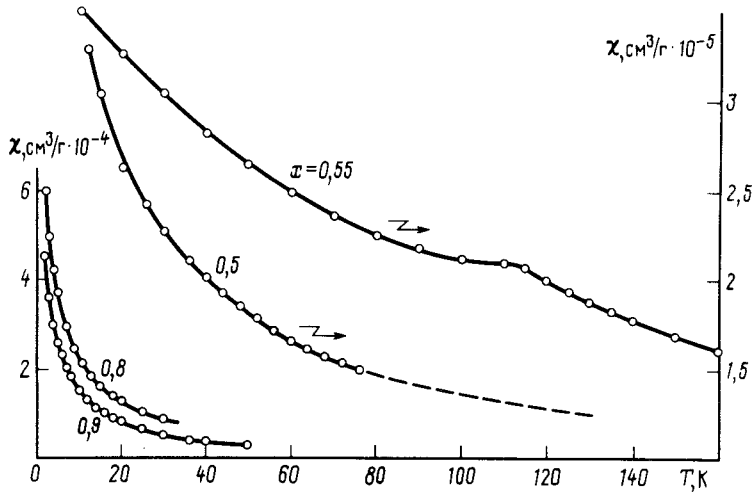


Рис. 2. Температурная зависимость магнитной восприимчивости для  $(Ni_{1-x}Mg_x)O$  твердых растворов с  $x = 0,5; 0,55$  и  $0,8; 0,9$

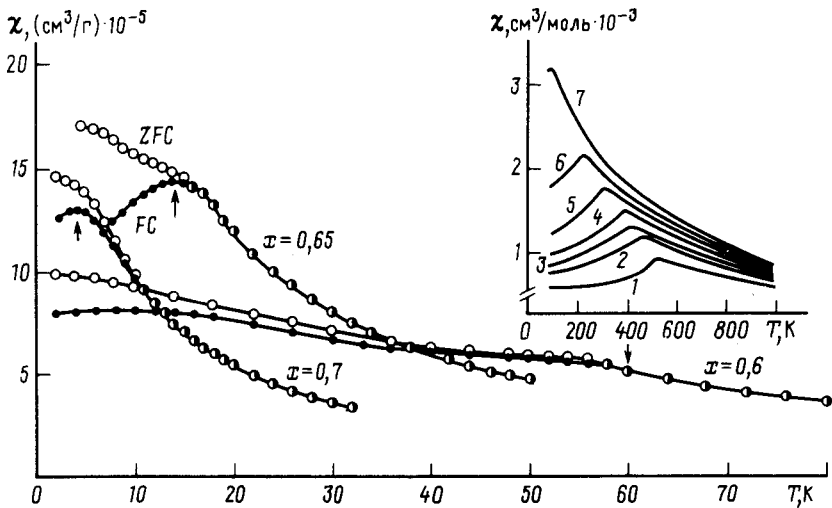


Рис. 3. Температурная зависимость обратимой (светлые кружки) и необратимой (темные кружки) магнитной восприимчивости  $(Ni_{1-x}Mg_x)O$  твердых растворов. Стрелками  $\uparrow$  показаны температуры перехода в состояние спинового стекла  $T_f$ ,  $\downarrow$  – точки Нееля. На вставке кривые  $\chi(T)$  из работы <sup>8</sup>: 1 –  $x = 0,0$ ; 2 – 0,1; 3 – 0,2; 4 – 0,3; 5 – 0,4; 6 – 0,5; 7 – 0,6

Такое поведение магнитных свойств дает нам основание определить точку с координатами  $T_N = 325$  К и  $x = 0,37$  на фазовой диаграмме как трикритическую. Согласно теории <sup>10</sup> в этой точке линия фазовых переходов второго рода в координатах  $T-x$  переходит в две линии фазовых переходов первого рода, между которыми сосуществуют высокосимметричная и низкосимметричная фазы (в нашем случае парамагнитная и антиферромагнитная). С точки зрения термодинамики причина появления этой точки кроется во взаимодействии векторного и скалярного параметров порядка. В качестве последнего здесь выступает упругое искажение решетки, сопровождающееся ромбоэдрической деформацией кубической решетки с осью сжатия вдоль направления <sup>11</sup> в антиферромагнитном NiO. При концентрации  $x > 0,37$  скалярный параметр порядка исчезает, поскольку доменная структура не наблюдается из-за отсутствия магнитного двулучепреломления.

Разрушение топологически бесконечного антиферромагнитного кластера на области конечных размеров, между которыми существуют парамагнитные спины, подтверждается наличием очень сильного возрастания восприимчивости ниже точки Нееля в образцах с  $x = 0,5$ ;  $0,55$  и  $0,6$  (рис. 2). Для однородных антиферромагнетиков такого возрастания ниже  $T_N$  не существует (см. вставку на рис. 3).

Вблизи трикритической точки размер конечных областей антиферромагнитного порядка еще достаточно велик, поскольку не существует уширения когерентных рефлексов. Но при концентрациях  $x = 0,6-0,7$  этот размер становится сравним с областью когерентного рассеяния нейтронов ( $\sim 100-200$  Å), и, наконец, при  $x \geq 0,7$  магнитные отражения исчезают совсем. При этом становятся большими необратимости магнитной восприимчивости из-за появления намагниченности у кластеров с нечетным числом антиферромагнитно упорядоченных плоскостей (рис. 3). Суперантиферромагнитное состояние при температуре ниже  $T_f$  переходит в состояние кластерного спинового стекла. Но уже при концентрациях  $x > 0,8$  наблюдается парамагнитное поведение окисла вплоть до гелиевой температуры (рис. 2).

#### Литература

1. Imry Y., Ma S. Phys. Rev. Lett., 1975, 35, 1399.
2. Fishma. S., Aharony A. J. Phys., 1979, с. 12, 729.
3. Yoshizawa H. et al. Phys. Rev. Lett., 1982, 48, 438.
4. Дробинин А.В., Ципинюк Ю.М. Письма в ЖЭТФ, 1983, 37, 500.
5. Borovik-Romanov A.S. et al. J. Magn. Magn. Mater., 1983, 31-34, 1121.
6. Giebultowicz T.M. et al. J. de Phys., 1988, 49, 8.
7. Roth W.L. Phys. Rev., 1958, 110, 1333.
8. Архипов А.А. Изв. АН Латв. ССР, сер. физ. техн. наук., 1981, № 3, 24.
9. Миронова Н.А. и др. Укр. физ. журнал, 1981, 26, 848.
10. Ландау Л.Д. ЖЭТФ, 1937, 7, 19.

Институт физики металлов  
Уральского отделения Академии наук СССР

Поступила в редакцию  
17 мая 1990 г.