

## МАГНИТНЫЕ ФАЗОВЫЕ ПЕРЕХОДЫ В ФЕРРИТЕ-ГРАНАТЕ САМАРИЯ. ГИПОТЕЗА ИЗИНГОВСКОГО УПОРЯДОЧЕНИЯ

Г.А.Бабушкин, В.А.Бородин, В.Д.Дорошев, А.К.Звездин,  
Р.З.Левитин, А.И.Попов

Экспериментально изучен низкотемпературный магнитный ориентационный фазовый переход в  $\text{Sm}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  и показано, что в основном состоянии (при  $T \rightarrow \text{OK}$ ) этот ферримагнетик имеет магнитную структуру типа  $\langle uv0 \rangle$ . Это, а также наблюдаемые в  $\text{Sm}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  при повышении температуры фазовые переходы  $\langle uv0 \rangle \rightleftharpoons \langle 110 \rangle \rightleftharpoons \langle 111 \rangle$  объяснены в модели изинговского упорядочения магнитных моментов ионов  $\text{Sm}^{3+}$ .

Недавно при исследовании эффекта Мессбауэра на поликристаллических образцах феррита-граната самария ( $\text{Sm}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ ) [ 1 ] было обнаружено, что у этого ферромагнетика кроме хорошо изученного ориентационного перехода первого рода от осей типа  $\langle 111 \rangle$  к осям  $\langle 110 \rangle$  при  $T_{п2} = 65,7 \text{ K}$  [ 2, 3 ] имеется еще один ориентационный переход: ниже  $T_{п2} = 18 \text{ K}$  магнитные моменты отклоняются от осей  $\langle 110 \rangle$  и при  $T \lesssim 10 \text{ K}$  ориентированы вдоль осей  $\langle 100 \rangle$ . Последнее, однако, противоречит данным работы [ 4 ], из которой следует, что направления  $\langle 100 \rangle$  при 4,2 К не являются осями легкого намагничивания.

Для выяснения природы низкотемпературного ориентационного перехода в  $\text{Sm}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  мы провели изучение начальной радиочастотной восприимчивости, вращающего момента в плоскостях типа  $\{100\}$  и  $\{110\}$  и намагниченности вдоль различных направлений в диапазоне температур 1,8 – 77 К на монокристаллах, выращенных в двух лабораториях.

Полученные нами данные показывают, что действительно при 18 К происходит ориентационный магнитный переход, при котором магнитные моменты отклоняются от осей  $\langle 110 \rangle$ . Это хорошо видно из рис. 1, а, на котором показаны кривые вращающего момента в плоскости  $\{100\}$  (в направлении легкого намагничивания  $L = 0$  и  $\partial L / \partial \phi < 0$ ). Этот вывод подтверждается также измерениями восприимчивости: при  $T_{п1} = 18,2 \text{ K}$  наблюдается острый максимум на зависимости  $\chi(T)$  (рис. 1, б). Однако, как следует из наших данных, оси  $\langle 100 \rangle$  не являются при низких температурах направлениями легкого намагничивания, т.е. вывод авторов работы [ 1 ] о существовании в  $\text{Sm}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  магнитных фаз  $\langle 100 \rangle$  не подтверждается. Температурная зависимость угла ориентации магнитных моментов в  $\text{Sm}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  в плоскости  $\{100\}$  показана на рис. 2. Видно, что угол  $\phi_L$  между направлением легкого намагничивания и осью  $\langle 100 \rangle$  ниже  $T_{п1}$  плавно уменьшается при понижении температуры, однако даже при 2,86 К этот угол составляет  $29 - 31^\circ$ .

Таким образом, из опытных данных следует, что низкотемпературный переход в  $\text{Sm}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  при 18 К является фазовым переходом второго рода из коллинеарной фазы  $\langle 110 \rangle$  в угловую фазу  $\langle uv0 \rangle$ . Формально такой переход в кубических магнетиках может быть описан

только при учете в энергии магнитной анизотропии взаимодействия восьмого порядка (кроме взаимодействий четвертого и шестого порядков, которые приводят только к фазовым переходам первого рода) [ 5 ]. Из угловых зависимостей вращающего момента в плоскостях  $\{100\}$  и  $\{110\}$  мы оценили значения констант магнитной анизотропии  $\text{Sm}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  при 4,2 К:  $K_1 = -10^7$ ,  $K_2 = 10^8$  и  $K_3 = 2,5 \cdot 10^7$  (в эрг/см<sup>3</sup>). Видно, что  $|K_1| < |K_2|$ ,  $|K_3|$ , поэтому вызывает сомнение возможность представления энергии магнитной анизотропии  $\text{Sm}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  при низких температурах в виде ряда по гармоническим инвариантам. Более того, для большинства редкоземельных ферритов-гранатов вообще неправомерно представлять энергию магнитной анизотропии в виде аддитивной части свободной энергии, так как в этих магнетиках взаимодействие редкоземельных (РЗ) ионов с молекулярным полем, действующим со стороны железной подрешетки (это взаимодействие приводит к магнитному упорядочению РЗ ионов), меньше их взаимодействия с кристаллическим полем.

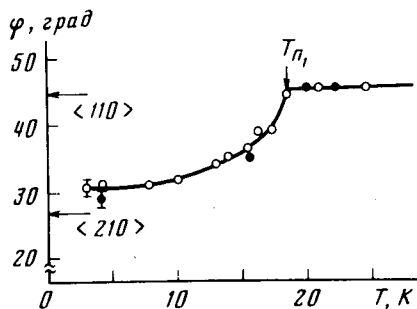
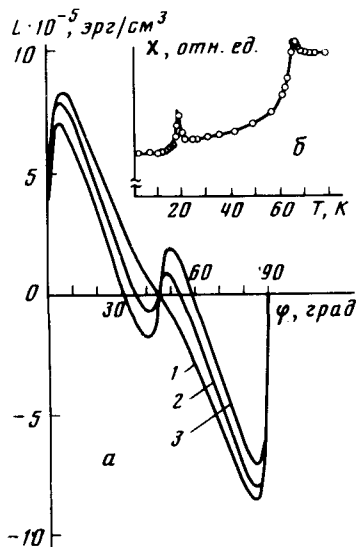


Рис.2. Температурная зависимость угла ориентации магнитных моментов  $\text{Sm}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  в плоскости  $\{100\}$ .  $\circ$  — из измерений вращающего момента,  $\bullet$  — из измерений намагниченности

Рис. 1. а -- Кривые вращающихся моментов монокристалла  $\text{Sm}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  в плоскости  $\{100\}$  в поле 10,2 кЭ: 1 — 21 К, 2 — 15,5 К, 3 — 7,8 К; б — температурная зависимость начальной восприимчивости.  $\text{Sm}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$

Поэтому для теоретического описания обнаруженных в  $\text{Sm}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  магнитных фазовых переходов мы предлагаем другой подход, в основу которого положено предположение об изинговском характере магнитного упорядочения ионов  $\text{Sm}^{3+}$ . Аналогичная модель ранее применялась нами для описания магнитных свойств гольмий-иттриевых ферритов-гранатов [ 6 — 8 ].

В структуре граната РЗ ионы располагаются по шести неэквивалентным додекаэдрическим узлам (симметрия  $D_2$ ), локальные оси которых по разному ориентированы относительно кристаллографических осей (рис. 3,а). Предположим, что в  $\text{Sm}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  изинговская ось иона  $\text{Sm}^{3+}$  в  $i$ -том узле совпадает с  $k_i(y_i)$ -локальной осью, т.е. с осью типа  $\langle 110 \rangle$ . Это означает, что при любой ориентации молекулярного поля магнитный момент этого типа может быть ориентирован либо вдоль, либо против соответствующей оси  $\langle 110 \rangle$  сообразно знаку проекции поля на эту ось. Из чисто геометрических соображений следует, что при таком типе магнитного упорядочения результирующий момент самариевой подрешетки  $M_{\text{Sm}}$  может быть ориентирован только по осям типа  $\langle 210 \rangle$  или  $\langle 111 \rangle$ . Однако, «стояние с  $M_{\text{Sm}} \parallel \langle 111 \rangle$  является неустойчивым -- оно соответствует максимуму энергии<sup>1)</sup>. Поэтому в рассмотрен-

<sup>1)</sup> В этом состоянии три из шести ионов  $\text{Sm}^{3+}$  размагничены т.е. у них основной дублет вырожден, что из-за магнитного эффекта Яна — Теллера и является причиной неустойчивости [ 9 ].

ной модели магнитный момент результирующей самариевой подрешетки может быть направлен только коллинеарно осям типа  $\langle 210 \rangle$ . Очевидно, что в равновесии магнитный момент железной подрешетки  $\mathbf{M}_{Fe}$  параллелен  $\mathbf{M}_{Sm}$ . Таким образом, при 0 К в рассмотренной простейшей изинговской модели осями легкого намагничивания являются направления  $\langle 210 \rangle$ , для которых  $\phi = 26,6^\circ$ , что близко к измеренному при гелиевых температурах значению  $\phi_L = 29 - 31^\circ$ .

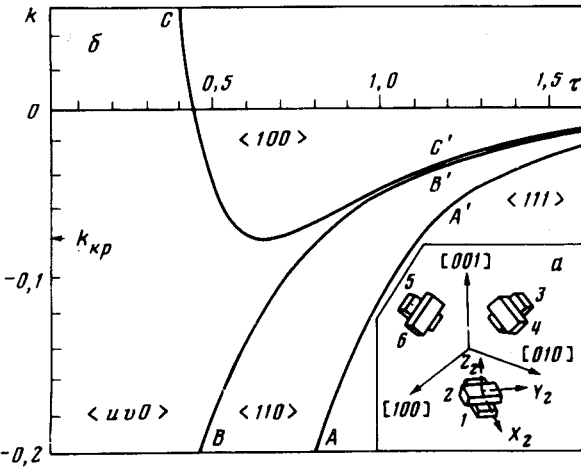


Рис. 3. а – Неэквивалентные места РЗ ионов в структуре граната; б – теоретическая фазовая диаграмма  $Sm_3Fe_5O_{12}$

Этот результат получен при учете только основного изинговского дублета иона  $Sm^{3+}$ . Для более тонкого описания магнитной структуры  $Sm_3Fe_5O_{12}$  при 0 К и ее трансформации при повышении температуры необходимо учесть влияние вышележащих уровней, а также анизотропию железной подрешетки. В этом случае термодинамический потенциал кристалла в расчете на один РЗ ион представим в виде

$$F = -(T/6) \sum_{i=1}^6 \ln [ 2ch(\mu_x \lambda M_{Fe} x_i/T) ] + K(T)(\gamma_x^2 \gamma_y^2 + \gamma_y^2 \gamma_z^2 + \gamma_x^2 \gamma_z^2). \quad (1)$$

Здесь первый член представляет собой вклад основного изинговского дублета, расщепленного молекулярным полем

$$E_i = \pm \mu_x (\lambda \cdot M_{Fe} \cdot x_i) = \pm \mu_x \cdot \lambda \cdot M_{Fe} \cdot \vec{\gamma} \cdot x_i \quad (2)$$

$\mu_x$  – среднее значение оператора магнитного момента для изинговского дублета,  $\lambda$  – константа молекулярного поля,  $x_i$  – единичный вектор в направлении оси  $x_i$ ,  $\vec{\gamma} = \mathbf{M}_{Fe} / M_{Fe}$ , а второй член описывает вклад в анизотропию от вышележащих уровней иона  $Sm^{3+}$  и анизотропию железной подрешетки.

Минимизация термодинамического потенциала (1) по  $\vec{\gamma}$  показывает, что в рассматриваемой модели возможны следующие четыре фазы:  $\mathbf{M}_{Fe} \parallel \langle 111 \rangle$ ,  $\mathbf{M}_{Fe} \parallel \langle 110 \rangle$ ,  $\mathbf{M}_{Fe} \parallel \langle 100 \rangle$  и  $\mathbf{M}_{Fe} \parallel \langle uv0 \rangle$ .

Магнитная фазовая диаграмма в переменных  $\tau = T/\mu_x \lambda M_{Fe}$  и  $K = 6K/\mu_x \lambda M_{Fe}$  представлена на рис.3, б. При низких температурах ( $\tau \rightarrow 0$ ) осуществляется угловая фаза  $\langle uv0 \rangle$ , в которой магнитный момент лежит в плоскости  $\{100\}$  и отклонен от оси типа  $\langle 100 \rangle$  на некоторый угол  $\phi_L$ . Если  $k = 0$ , магнитный момент параллелен  $\langle 210 \rangle$  ( $\phi_L = 26,6^\circ$ ) и несколько отклоняется от этого направления при возрастании  $|k|$ . Из наших экспериментальных данных следует, что при  $T \rightarrow 0$  для  $Sm_3Fe_5O_{12}$   $K = -(0,3 \div 0,6)$ . При повышении температуры, если  $k < k_{кр} = -0,07$ , происходит переход второго рода в фазу  $\langle 110 \rangle$ . Линия перехода  $BB'$  описывается уравнением

$$k(\tau) = 1/2 [ th(1/\tau) + 2 th(1/2\tau) + (1/\tau)th^2(1/2\tau) - 2/\tau ]. \quad (3)$$

Дальнейшее возрастание температуры приводит к переходу из фазы  $\langle 110 \rangle$  в фазу  $\langle 111 \rangle$ . Этот переход является переходом первого рода и происходит по линии  $AA'$ :

$$k(\tau) = -12\tau \ln[\operatorname{ch}^4(1/2\tau)\operatorname{ch}(1/\tau) / \operatorname{ch}^3(\sqrt{2}/\sqrt{3\tau})]. \quad (4)$$

Таким образом, рассматриваемая модель позволяет не только описать наблюдаемую экспериментально в  $\operatorname{Sm}_3\operatorname{Fe}_5\operatorname{O}_{12}$  при повышении температуры последовательность фазовых переходов  $\langle uv0 \rangle \rightleftharpoons \langle 110 \rangle \rightleftharpoons \langle 111 \rangle$ , но и правильно предсказывает характер этих переходов.

Отметим, что в данной модели возможна также фаза типа  $\langle 100 \rangle$  (при  $k > k_{\text{кр}}$ ). Она ограничена снизу линией фазового перехода первого рода  $CC'$  и в самариевом феррите-гранате не осуществляется.

Авторы благодарят К.П.Белова и Н.М.Ковтуна за интерес к работе, а также Б.В.Милля и А.Г.Титова, представивших монокристаллы для исследований.

#### Литература

1. Geller S., Balestrino Y. Phys. Rev. B., 1980, 21, 4055.
2. Harrison F.W., Thompson J.F.A., Lang G.K. J. Appl. Phys., 1965, 36, 1014.
3. Бородин В.А., Дорошев В.Д., Клочан В.А., Ковтун Н.М., Титова А.Г. ФТТ, 1976, 18, 1852.
4. Колачева Н.М. Автореферат канд. дисс. М., изд. МГУ, 1980.
5. Белов К.П., Звездин А.К., Кадомцева А.М., Левитин Р.З. Ориентационные переходы в редкоземельных магнетиках. М., изд. Наука, 1979.
6. Звездин А.К., Мухин А.А., Попов А.И. ЖЭТФ, 1977, 72, 1097.
7. Силантьев В.И., Попов А.И., Левитин Р.З., Звездин А.К. ЖЭТФ, 1980, 78, 640.
8. Бабушкин Г.А., Звездин А.К., Левитин Р.З., Попов А.И., Силантьев В.И. ЖЭТФ, 1981, 80, 1952.
9. Звездин А.К., Мухин А.А., Попов А.И. Письма в ЖЭТФ, 1976, 23, 267.

Донецкий  
Физико-технический институт  
Академии наук Украинской ССР

Поступила в редакцию  
24 ноября 1981 г.