

МАГНИТНАЯ ФАЗОВАЯ ДИАГРАММА ГРАНАТА  $Mn_3Cr_2Ge_3O_{12}$ 

С.А.Богословский, В.И.Соколов

С помощью измерений магнитной восприимчивости на частоте 2 МГц исследовано влияние диамагнитного разбавления и внешнего магнитного поля на независимое антиферромагнитное упорядочение окта- и додекаэдрической подрешеток граната  $Mn_3Cr_2Ge_3O_{12}$  (MnCrG). Построена магнитная фазовая диаграмма этого соединения.

Интересной особенностью MnCrG, у которого додекаэдрические (*c*) и октаэдрические (*a*) узлы заняты, соответственно, ионами  $Mn^{2+}$  и  $Cr^{3+}$ , является существование в нем независимого антиферромагнитного упорядочения *a*- и *c*-подрешеток при  $T_N^a = 5,1K$  и  $T_N^c = 3,0K$ . Об этом свидетельствуют результаты измерений теплоемкости [1] и данные по дифракции нейтронов [2]. Причем, согласно нейтронографическим исследованиям Голосовского и Плахтия [2], магнитная структура, реализующаяся на атомах Cr, такая же, как в гранате  $Ca_3Cr_2Ge_3O_{12}$  (CaCrG) — две ферромагнитные подрешетки, вставленные антиферромагнитно одна в другую, а упорядочение атомов Mn совпадает с треугольной антиферромагнитной структурой граната  $Mn_3Al_2Ge_3O_{12}$  (спины атомов Mn лежат в плоскости (111) и направлены вдоль направлений типа  $\langle 21\bar{1} \rangle$ ).

В упорядоченном состоянии магнитная симметрия MnCrG такова, что молекулярные поля  $H_{ca}$  и  $H_{ac}$ , создаваемые спинами одной кристаллографической подрешетки на любом атоме другой подрешетки, равны нулю [1], т. е.

$$H_{ca} = \gamma_{ca} (M_1^a + M_2^a) = 0.$$

Здесь  $M_1^a$  и  $M_2^a$  — противоположно направленные магнитные моменты антиферромагнитных подрешеток  $Cr^{3+}$ ,  $\gamma_{ca}$  — параметр обменного взаимодействия между ионами в узлах *c* и *a*. Аналогичная ситуация будет и для поля  $H_{ac}$ . Следовательно, можно ожидать, что внешнее магнитное поле достаточно сильное для нарушения компенсации  $M_1^a$  и  $M_2^a$ , вызовет возникновение  $H_{ca}$  (и  $H_{ac}$ ), которые будут трансформировать антиферромагнитные структуры MnCrG. Очевидно, к такому же результату приведет и частичное диамагнитное замещение ионов  $Cr^{3+}$  или  $Mn^{2+}$ .

В настоящей работе мы предприняли попытку обнаружить указанные эффекты с помощью измерений магнитной восприимчивости ( $\chi'$ ) на частоте 2 МГц в магнитных полях до 40 кЭ при температурах 2,5 – 20К. Конструкция установки позволяла записывать на двухкоординатном самописце полевую зависимость сигнала, пропорционального изменению частоты высокостабильного криогенного генератора на полевом транзисторе. Для повышения чувствительности к особенностям поведения  $\partial M / \partial H$  вых. дной сигнал можно было частично компенсировать с помощью специальной схемы и записывать  $\Delta \chi'(H)$ . Температура измерялась угольным термометром и стабилизировалась прибором ДТС-2 в пределах  $\pm 0,05K$ .

Измерения проводились на поликристаллических образцах цилиндрической формы  $Mn_3Ga_xCr_{2-x}Ge_3O_{12}$  с  $0 \leq x \leq 2$ . Рентгеноструктурный анализ показал, что все исследованные образцы однофазны, а параметр решетки изменяется от  $12,025 \pm 0,02\text{\AA}$  для MnCrG ( $x = 0$ ) до  $12,019 \pm 0,02\text{\AA}$  в  $Mn_3Ga_2Ge_3O_{12}$  (MnGaG).

На рис. 1 приведены зависимости  $\chi'(T)$  гранатов  $Mn_3Ga_xCr_{2-x}Ge_3O_{12}$ , которые иллюстрируют переход от антиферромагнетика с двумя температурами Нееля ( $x = 0$ ) к обычному антиферромагнетику MnGaG ( $x = 2$ ). Видно, что существует значительный интервал концентраций ( $0,5 < x < 1,5$ ), в котором, по-видимому, отсутствует дальний магнитный порядок. Представляется маловероятным, чтобы 30% (от общего числа магнитных катионов в элементарной ячейке) ионов  $Cr^{3+}$  ( $s = 3/2$ ), находящихся в парамагнитном состоянии, могли „замазать” аномально  $\chi'(T)$ , обусловленную антиферромагнитным упорядочением додекаэдрических ионов  $Mn^{2+}$  ( $s = 5/2$ ).

По-видимому, уменьшение концентрации  $Cr^{3+}$  в MnCrG вызывает появление в ближайшем окружении  $Mn^{2+}$  неупорядоченных ионов  $Cr^{3+}$ , которые стимулируют возникновение  $H_{ca}$  и, следовательно, разрушение дальнего магнитного порядка в *c*-подрешетке.

На рис. 2 показаны примеры записей зависимостей  $\chi'(H)$  и  $\Delta\chi'(H)$  при различных температурах. Основные особенности, наблюдающиеся при этом в исследованных образцах, состоят в следующем: 1) два максимума в полях  $H_1$  и  $H_2$  для гранатов с  $0 \leq x \leq 0,5$ ; 2) слабая зависимость  $H_1(T)$  и резкий рост  $H_2$  с понижением температуры; 3)  $\chi'$  образцов с  $x > 0,5$  практически не зависит от  $H$ ; 4)  $\chi'(H)$  граната CdCrG обнаруживает один максимум при  $H_1 \approx 4,6$  кЭ. Мы полагаем, что максимум  $\chi'(H)$  в CdCrG соответствует полю спин-флопа. Действительно, поскольку значение обменного поля в этом гранате составляет  $H_E = 260$  кЭ [3], найденная величина  $H_{сф} = 4,6$  кЭ соответствует полю анизотропии  $H_a = 29,3 \cdot 10^{-4}$  см<sup>-1</sup>, что хорошо согласуется с соответствующим значением, определенным из АФМР в работе [4]. В MnGaG  $H_E \approx 200$  кЭ [5]. Опрокидывания подрешеток, судя по нашим измерениям, здесь не наблюдается, что по-видимому, связано с многоподрешеточной магнитной структурой этого граната.

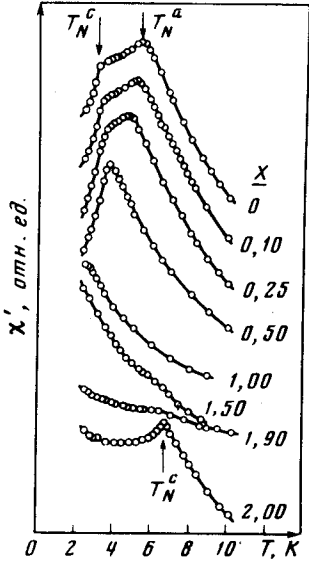


Рис. 1. Зависимость от температуры магнитной восприимчивости гранатов  $Mn_3Ga_xCr_{2-x}Ge_3O_{12}$

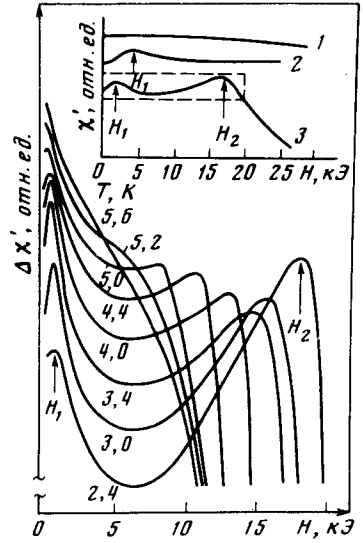


Рис. 2. а – Полевые зависимости  $\chi'$  гранатов MnGaG (1), CdCrG (2) и MnCrG (3); б – зависимость от магнитного поля  $\Delta\chi'$  (увеличенная в 15 раз часть кривой 3 рис. 2, а, обведенной пунктиром) граната MnCrG

При анализе результатов по MnCrG следует учесть, что величины  $T_N^a$  и  $T_N^c$  примерно в два раза ниже температур Нееля соответствующих „одноподрешеточных“ гранатов Cr и Mn. Поэтому можно предположить, что поле  $H_1$  характеризует  $H_{сф}$  подрешетки Cr. Внешнее магнитное поле  $H > H_1$  приводит к появлению межподрешеточного обменного взаимодействия ( $H_{ca}$ ), которое разрушает антиферромагнитное упорядочение ионов  $Mn^{2+}$  в с-подрешетке. Поле  $H_2$ , по нашему мнению, соответствует полю захлопывания ( $H_E$ ) а-подрешетки, хотя не вполне ясна причина его столь низкого значения по сравнению с CdCrG.

Экспериментальные зависимости  $H_1(T)$  и  $H_2(T)$  позволяют построить фазовую диаграмму MnCrG, которая приведена на рис. 3. Из этой диаграммы следует, что „двойная“ антиферромагнитная структура MnCrG разрушается уже внешним магнитным полем  $\sim 1$  кЭ (0, К), когда происходит опрокидывание антиферромагнитных подрешеток ионов  $Cr^{3+}$ . В полях  $H > H_1$  с-подрешетка становится парамагнитной, и с этим, очевидно, связан линейный рост намагниченности MnCrG вплоть до полей 200 кЭ, который наблюдался при гелиевых температурах в работе [1].

В интервале полей  $H_1 < H < H_2$  MnCrG представляет собой смешанную фазу из парамагнитных  $c$ -ионов  $Mn^{2+}$  и антиферромагнитно упорядоченных  $a$ -ионов  $Cr^{3+}$  в спин-флоп состоянии. При  $H > H_2$   $a$ -подрешетка становится ферромагнитной.

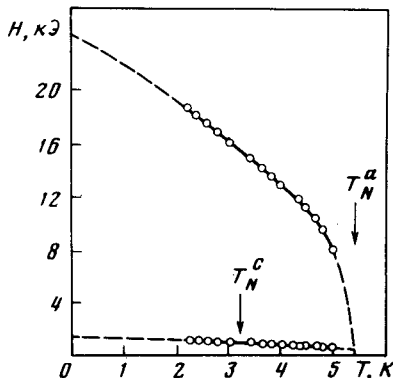


Рис. 3. Магнитная фазовая диаграмма MnCrG

Фазовые диаграммы, подобные описанной выше, мы получили и для гранатов  $Mn_3Ga_xCr_{2-x}Ge_3O_{12}$  с  $x = 0,10; 0,25; \text{ и } 0,50$ . Отличие состоит лишь в величинах полей  $H_1$  и  $H_2$ :  $H_2 \approx 12$  кЭ (0 К) при  $x = 0,5$ , а значение  $H_1$  несколько возрастает ( $\sim 3,5$  кЭ при 0 К). Последнее можно объяснить ростом поля анизотропии подрешетки  $Cr^{3+}$  за счет более быстрого уменьшения магнитного момента по сравнению с константой анизотропии.

В заключение отметим, что для получения дополнительных данных о магнитной фазовой диаграмме MnCrG, несомненный интерес представляют нейтронографические исследования этого соединения в магнитном поле.

Авторы благодарят К.П.Белова за внимание к работе и Б.В.Милля за помощь при изготовлении образцов.

#### Литература

1. Валянская Т.В., Соколов В.И. ЖЭТФ, 1978, 75, 325.
2. Голосовский И.В., Плахтий В.П. Нейтронографическое исследование гранатов с  $3d$ -ионами в двух подрешетках. Препринт, Л., Ленинградский институт ядерной физики, №374, 1977.
3. Валянская Т.В., Милль Б.В., Соколов В.И. ФТТ, 1976, 18, 1212.
4. Соколов В.И., Шевалеевский О.И. ЖЭТФ, 1977, 72, 2367.
5. Валянская Т.В., Плахтий В.П., Соколов В.И. ЖЭТФ, 1976, 70, 2279.