

Магнитная и магнито-решеточная динамика в  $\text{GdMn}_2\text{O}_5$ Е. И. Головенчик<sup>1)</sup>, В. А. Санина

Физико – технический институт им. А. Ф. Иоффе РАН, 194021 Санкт-Петербург, Россия

Поступила в редакцию 26 июня 2003 г.

В диапазоне частот 20–300 ГГц и интервале температур 5–50 К исследована динамика магнитоэлектрических кристаллов  $\text{RMn}_2\text{O}_5$  ( $R = \text{Eu}$  и  $\text{Gd}$ ), обладающих магнитным и ферроэлектрическим дальним порядком с близкими температурами перехода  $T \simeq 36$  К и  $T \simeq 30$  К для кристаллов с  $R = \text{Eu}$  и  $\text{Gd}$ , соответственно. В  $\text{GdMn}_2\text{O}_5$  были обнаружены смешанные магнито-решеточные возбуждения, которые были наиболее интенсивны вблизи температуры перехода  $T \simeq 30$  К на частотах, близких к частотам антиферромагнитного резонанса Mn-подсистемы. Во внешнем магнитном поле в  $\text{GdMn}_2\text{O}_5$  наряду с антиферромагнитным резонансом Mn-подсистемы наблюдался также и ферромагнитный резонанс Gd-подсистемы. В  $\text{EuMn}_2\text{O}_5$  подобной динамики не наблюдалось.

PACS: 75.47.Lx, 76.50.+g, 77.80.–e

Кристаллы  $\text{RMn}_2\text{O}_5$  ( $R$  – редкоземельные ионы от Rг до Lu, Y или Bi) являются магнитоэлектриками, обладающими одновременно антиферромагнитным и ферроэлектрическим дальним порядком с близкими температурами Нееля и Кюри  $T_{N,C} \simeq 30$ –40 К (при комнатной температуре простр. группа  $Pbam$ ). В ряде кристаллов с различными R-ионами ранее были изучены магнитные, диэлектрические, магнитоэлектрические свойства [1–6], а также проведены нейтронные исследования [7, 8]. При температурах  $T \leq T_N$  в  $\text{RMn}_2\text{O}_5$  обычно реализуется несоразмерная магнитная структура с вектором распространения  $\mathbf{k} = (1/2, 0, z)$ , где величина  $z \simeq 0.3$ –0.38 и зависит от типа R-иона. Вблизи температур 15–20 К в этих кристаллах имеется еще один фазовый переход, при котором изменяются магнитные и структурные свойства.

В настоящей работе приведены результаты изучения динамических свойств  $\text{RMn}_2\text{O}_5$  с немагнитным в основном состоянии  $^7F_0$  ионом  $\text{Eu}^{3+}$  и ионом  $\text{Gd}^{3+}$  ( $^8S_{7/2}$ ), обладающим максимальным спиновым моментом среди R-ионов. Динамика кристаллов с  $R = \text{Eu}$  и  $\text{Gd}$  оказалась существенно различной. Приводятся также результаты магнитных и диэлектрических исследований  $\text{GdMn}_2\text{O}_5$ .

В  $\text{EuMn}_2\text{O}_5$  реализуется несоразмерная антиферромагнитная структура и ферроэлектрическое упорядочение с близкими температурами Нееля и Кюри  $T_{N,C} \simeq 36$  К [3, 8]. В  $\text{GdMn}_2\text{O}_5$  антиферромагнитное упорядочение возникает в Mn-подсистеме при температуре, близкой к значению  $T_N$  в  $\text{EuMn}_2\text{O}_5$ , но вблизи температуры  $T \simeq 30$  К имеется добавочный фазо-

вый переход [6]. Как следует из результатов данной работы, в низкотемпературной фазе  $\text{GdMn}_2\text{O}_5$  (при  $T \leq 30$  К) реализуются однородные магнитное (антиферромагнитное в Mn- и ферромагнитное в Gd-подсистемах) и ферроэлектрическое упорядочения.

Динамические исследования проводились на квази-оптическом спектрометре (в схеме на проход). В качестве источника излучения использовались лампы обратной волны, в качестве приемников – охлаждаемые жидким гелием детекторы на основе InSb. Монокристаллы выращивались методом спонтанной кристаллизации, описанным в [2], и представляли собой хорошо ограниченные параллелепипеды с размерами  $5 \times 4 \times 4$  мм, из которых вырезались пластинки толщиной  $\sim 0.5$  мм, перпендикулярные осям кристалла  $\mathbf{a}$ ,  $\mathbf{b}$ ,  $\mathbf{c}$ . Пластинки располагались развитой плоскостью перпендикулярно направлению распространения электромагнитной волны. При этом переменные электрическое и магнитное ( $\mathbf{e}$  и  $\mathbf{h}$ , соответственно) поля ориентированы в плоскости образца. Постоянное магнитное поле  $H_0$  величиной до 2 Тл прикладывалось также в плоскости образца. При фиксированных частотах и температурах изучались зависимости от магнитного поля относительного коэффициента поглощения  $\Gamma_{F,T} = 1 - P(H) / P_{\max}$ , где  $P(H)$  и  $P_{\max}$  – мощности СВЧ сигналов, прошедшие через образец при текущем значении поля, и том его значении, при котором наблюдалось максимальное прохождение. Кроме того, в отсутствие магнитного поля, при фиксированных частотах, изучались также температурные зависимости относительного коэффициента поглощения  $\Gamma_F = 1 - P(T) / P_{\max}$ . Из зависимостей  $\Gamma_{F,T}(H_0)$  и  $\Gamma_F(T)$  строились частотные и полевые зависимости коэффициента поглощения при

<sup>1)</sup>e-mail: e.golovenchits@mail.ioffe.ru

фиксированных температурах (спектры магнитных резонансов).

Резонансные поглощения при развертке магнитного поля наблюдались лишь в  $GdMn_2O_5$  и только при ориентации  $H_0 \parallel a$  (см. рис.1). Видны два харак-

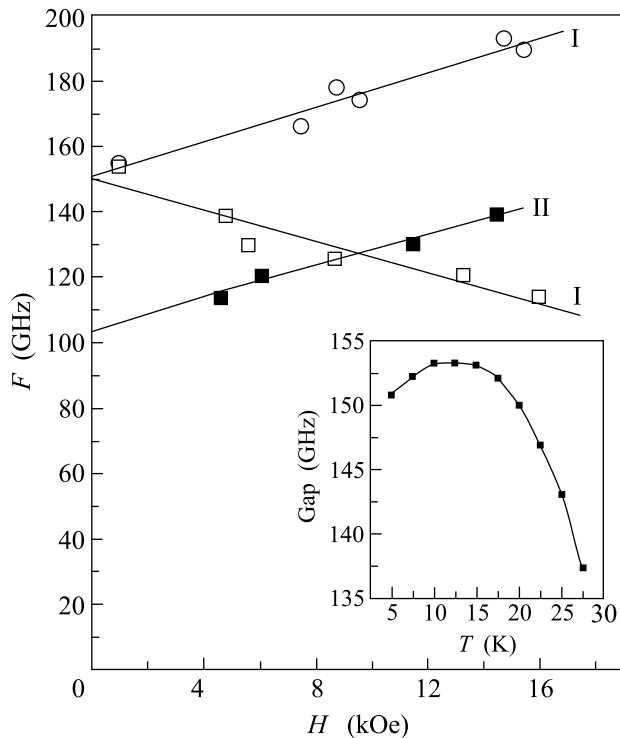


Рис.1. Зависимость частоты магнитных резонансов от внешнего магнитного поля  $H_0$ , ориентированного вдоль оси  $a$  пластинки  $GdMn_2O_5$  с развитой плоскостью  $ac$  (образец 2 по классификации рис.2).  $h \parallel c$ .  $T = 5$  К. На вставке: Температурная зависимость щели для спектра I

терных спектра со щелями 150 ГГц (I) и 100 ГГц (II), линейно зависящих от величины поля. Из вставки к рис.1 видно, что при повышении температуры величина щели спектра I падает, достигая при  $T \approx 30$  К 130 ГГц. Отметим, что температурные зависимости интенсивности сигналов I и II различны. Для сигналов I интенсивность изменяется с температурой как параметр порядка с критической температурой  $\sim 40$  К, для сигналов II – значительно более резко падает с ростом температуры, стремясь к нулю при  $T \approx 30$  К.

В отличие от магнитных резонансов, интенсивность которых падала при приближении к температуре  $\sim 30$  К, в отсутствие внешнего магнитного поля наблюдались также линии поглощения, зависимость интенсивности от температуры для которых имела максимум при  $T \approx 30$  К. Вид  $\Gamma(T)$  при этом зави-

сел от ориентации переменного электрического поля относительно осей  $a, b, c$  кристалла (см. рис.2). По-

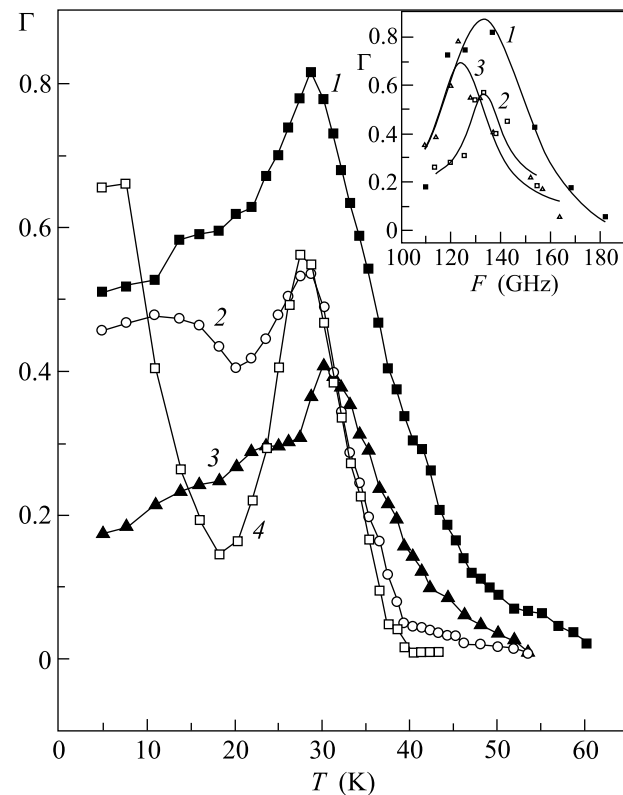


Рис.2. Зависимость от температуры относительного коэффициента поглощения  $\Gamma$  при  $H_0 = 0$  для образцов  $GdMn_2O_5$ : 1 – с развитой плоскостью  $ab$ ,  $e \parallel a$ , частота  $F = 137$  ГГц; 2 – плоскость  $ac$ ,  $e \parallel a$ , частота  $F = 129.9$  ГГц; 3 – плоскость  $ab$ ,  $e \parallel b$ , частота  $F = 135.1$  ГГц; 4 – плоскость  $bc$ ,  $e \parallel c$ , частота  $F = 132.1$  ГГц. На вставке: Зависимость величины  $\Gamma$  в максимуме линии поглощения от частоты вблизи температуры  $T = 30$  К для образцов 1, 2 и 3

видимому, эти линии обусловлены динамикой решетки вблизи фазового перехода при  $T \approx 30$  К и возбуждаются главным образом переменным электрическим полем. Для линий поглощения вблизи  $T \approx 30$  К наблюдался температурный гистерезис. Интенсивность линий зависела от частоты и была максимальной вблизи 130 ГГц (см. вставку к рис.2). Обращает на себя внимание факт близости этой частоты с величиной щели магнитных резонансов (сигналов I) при  $T \sim 30$  К (см. вставку к рис.1). На линии электрической природы с максимумом поглощения вблизи  $T \sim 30$  К также влияло внешнее магнитное поле (см. рис.3). Наиболее отчетливым это влияние было при ориентации  $H_0 \parallel a$ . При этом максимум поглощения

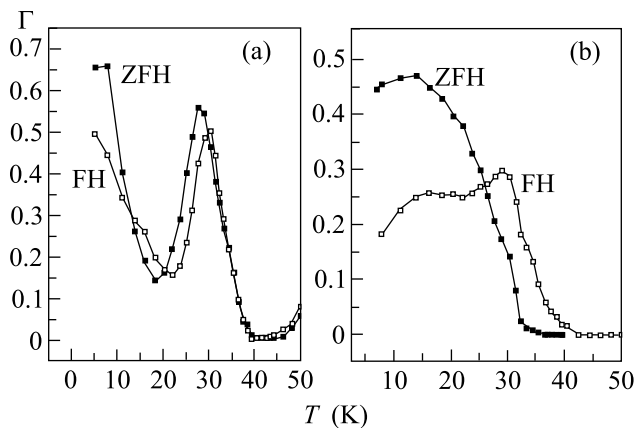


Рис.3. Те же зависимости, что на рис.2 для образцов 4 (a) и 1 (b), снятые как при  $H_0 = 0$  в режиме медленного нагрева (ZFH) после предварительного медленного остывания до  $T \approx 5$  К, так и в режиме медленного нагрева в магнитном поле  $H_0 \neq 0$  (FH). Магнитное поле прикладывалось при  $T = 5$  К. Для образца 4 –  $H_0 = 1.6$  Тл,  $H_0 \parallel c$ , частота  $F = 132.1$  ГГц. Для образца 1 –  $H_0 = 1.86$  Тл,  $H_0 \parallel a$ , частота  $F = 168.5$  ГГц

смещался к частоте, соответствующей частоте сигнала I при данном значении магнитного поля.

Близость частот линий магнитных резонансов (I) и линий поглощения электрической природы, а также влияние на последние магнитного поля  $H_0$  говорят о том, что эти линии имеют смешанный магнито-решеточный характер. Как видно из рис.2, линии с максимальным поглощением вблизи 30 К не полностью разрешены с линиями магнитных резонансов и при низких температурах, так что и низкотемпературные возбуждения также в некоторой степени имеют смешанный характер.

В  $\text{EuMn}_2\text{O}_5$  в широком диапазоне частот 30 – 300 ГГц наблюдались слабоинтенсивные сигналы поглощения вблизи температуры 36 – 40 К, соответствующей фазовому переходу в несоразмерное магнитное и ферроэлектрическое состояния. Эти линии поглощения практически не зависели от магнитного поля и частоты.

Результаты магнитных и диэлектрических исследований  $\text{GdMn}_2\text{O}_5$  представлены на рис.4. Видно, что вблизи 30 К имеет место максимум действительной части диэлектрической восприимчивости (Real  $\epsilon$ ), аналогичный тому, который в  $\text{EuMn}_2\text{O}_5$  наблюдался вблизи 36 К [2, 3]. Принимая во внимание также исследования магнитоэлектрической восприимчивости и пиротока [4] можно утверждать, что наблюдаемая аномалия диэлектрической восприимчивости характеризует переход в ферроэлектрическое состояние с поляризацией вдоль оси **b**. Максимум

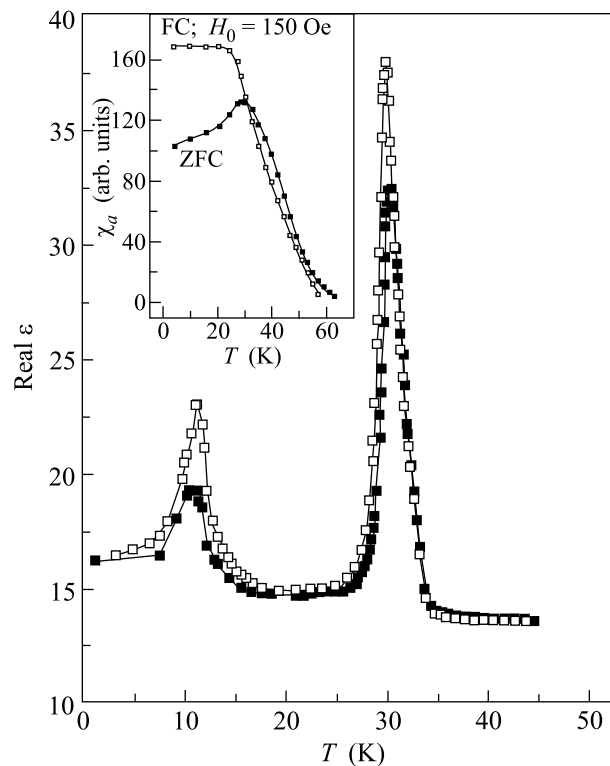


Рис.4. Зависимость действительной части диэлектрической восприимчивости от температуры для  $\text{GdMn}_2\text{O}_5$  на частоте 10 кГц при ориентации  $\epsilon \parallel b$ . Черные точки сняты при нагреве образца, а светлые – при его охлаждении. На вставке: температурная зависимость магнитной восприимчивости (в произвольных единицах) для  $\text{GdMn}_2\text{O}_5$ . Частота 10 кГц,  $h \parallel a$ ,  $h \approx 4$  Э. Кривые сняты в режиме охлаждения образца при отсутствии внешнего магнитного поля (ZFC) и в поле  $H_0 \approx 40$  Э,  $H_0 \parallel a$  (FC)

Real  $\epsilon$  при  $T \approx 30$  К в  $\text{GdMn}_2\text{O}_5$  имелся при ориентации  $\epsilon$  вдоль всех главных осей кристалла, но при  $\epsilon \parallel b$  величина скачка была на два порядка больше. На вставке к рис.4 представлена магнитная восприимчивость  $\text{GdMn}_2\text{O}_5$ , снятая индукционным методом. Видно, что при ориентации  $h \parallel a$  температурная зависимость восприимчивости имеет ферромагнитный характер. Она насыщается в слабом магнитном поле и падает, начиная с температуры  $\sim 30$  К, обнаруживая при этом хвост, затянутый до более высоких температур. Мы полагаем, что эта восприимчивость характеризует Gd-подсистему, находящуюся в подмагничивающем поле Mn-подсистемы.

Обращаясь к интерпретации результатов по динамике, отметим, что вид спектров магнитных резонансов I на рис.1 характерен для антиферромагнитного резонанса (АФМР) антиферромагнетиков с анизотропией типа “легкая ось” в случае, когда маг-

нитное поле параллельно этой оси ( в нашем случае оси  $\mathbf{a}$  кристалла). Как известно, в этом случае зависимость частот АФМР от магнитного поля имеет вид  $\omega_{1,2} = \sqrt{2H_E H_A} \pm \gamma H_0$ , где  $H_E$ ,  $H_A$  – обменное поле и поле анизотропии, соответственно, а величина  $\gamma$  – гиромангнитное отношение. Для спектра I величина  $\gamma \simeq 2.75 \pm 0.15$  и соответствует значению  $g$ -фактора, близкому к 2. Естественно отнести эти сигналы к антиферромагнитной подсистеме ионов Mn. Для сигналов II зависимость  $\omega(H_0)$  имеет вид  $\omega = \Delta\omega + \gamma H_0$  с тем же линейным наклоном от поля, что и для спектра I, соответствующим спиновому значению  $g \simeq 2$ . Мы относим этот спектр к подсистеме ионов Gd. При этом щель  $\Delta\omega$ , видимо, индуцирована эффективным обменным полем от взаимодействия Mn–Gd. Учитывая данные по магнитной восприимчивости и большую интенсивность сигналов II, мы относим их к ферромагнитному резонансу (ФМР) Gd-подсистемы. Характер наблюдаемых АФМР и ФМР свидетельствует о том, что магнитное состояние кристалла  $\text{GdMn}_2\text{O}_5$  при  $T \leq 30$  К является однородным. Напомним, что в кристаллах  $\text{RMn}_2\text{O}_5$  с другими R-ионами обычно реализуется несоразмерная магнитная структура.

Нейтронные исследования  $\text{EuMn}_2\text{O}_5$  [8] показали, что в этих кристаллах при  $T \simeq 30$  К имеется добавочный фазовый переход из несоразмерной в соизмеримую пространственно-модулированную магнитную структуру с вектором  $\mathbf{k} = (1/2, 0, 1/3)$ . В работе [9] в  $\text{EuMn}_2\text{O}_5$  вблизи  $T \simeq 30$  К в сильном магнитном поле  $H_0 \simeq 20$  Тл, ориентированном вдоль оси  $\mathbf{c}$ , наблюдался фазовый переход из пространственно-модулированной в однородную антиферромагнитную структуру, сопровождающийся скачком поляризации и появлением линейного магнитоэлектрического эффекта.

Мы полагаем, что в  $\text{GdMn}_2\text{O}_5$  однородное ферромагнитное упорядочение Gd-подсистемы вблизи температуры 28–30 К возникает за счет поляризационного Gd–Mn–Gd обмена [10]. В этом случае на Mn-подсистему действует эффективное однородное обменное поле со стороны Gd-подсистемы. Максимальный вклад в поляризационный обмен изотропен [10] и компонента этого поля вдоль оси  $\mathbf{c}$  кристалла, возможно, приводит к однородному антиферромаг-

нитному состоянию в Mn-подсистеме (аналогично переходу в  $\text{EuMn}_2\text{O}_5$  в сильном внешнем магнитном поле [9]). Отметим, что структурный фазовый переход (возникновение ферроэлектрического упорядочения) в  $\text{GdMn}_2\text{O}_5$  смещен по температуре в сторону более низких температур по сравнению с кристаллами  $\text{RMn}_2\text{O}_5$  с другими R-ионами. Он происходит одновременно с возникновением однородных магнитных состояний в Mn- и Gd-подсистемах. Благодаря однородному магнитному состоянию в  $\text{GdMn}_2\text{O}_5$  наблюдается сильный линейный МЕ-эффект [6] и сильная связь магнитных и структурных состояний, приводящая к смешанной динамике, обнаруженной и изученной в данной работе.

Таким образом, наличие в кристаллах манганитов  $\text{RMn}_2\text{O}_5$  магнитных R-ионов с достаточно сильным поляризационным обменным взаимодействием R–Mn–R существенно влияет как на магнитные, так и магнитоэлектрические и структурные свойства.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант #02-02-16140а) и частичной поддержке Программы “Фундаментальные исследования” (грант “Квантовая макрофизика”) и Программы Отделения физических наук РАН.

1. S. C. Abrahams and J. L. Burnstein, Phys. Rev. **46**, 3776 (1967).
2. В. А. Санина, Л. М. Сапожникова, Е. И. Головенчиц и др., ФТТ **30**, 3015 (1988).
3. Е. И. Головенчиц, В. А. Санина и А. В. Бабинский, ЖЭТФ **112**, 284 (1997).
4. T. Doi and K. Kohn, PhaseTrans. **38**, 273 (1992).
5. A. Inomata and K. Kohn, J. Phys.: Condens. Matter **8**, 2673 (1996).
6. H. Tsujino and K. Kohn, Sol. St. Comm. **83**, 639 (1992).
7. C. Wilkinson, F. Sinclair, P. Gardner et al., J. Phys. C: Solid State Phys. **14**, 1671 (1981).
8. V. Polyakov, V. Plakhty, M. Bonnet et al., Physica **B297**, 208 (2001).
9. Yu. F. Popov, A. M. Kadomtseva, G. P. Vorob'ev et al., JMMM **188**, 237 (1998).
10. Е. И. Головенчиц и В. А. Санина, ФТТ, **26**, 1640 (1984).