

ОСОБЕННОСТИ МЕТАМАГНИТНОГО ПЕРЕХОДА МОНОКРИСТАЛЛА ГРАНАТА $\text{Ca}_3\text{Mn}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$

З.А.Казей, Б.В.Милль, В.И.Соколов

По измерениям намагниченности монокристалла $\text{Ca}_3\text{Mn}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ ниже $T_N = 13,85$ К установлено существование в этом гранате магнитного фазового перехода, который не соответствует обычной модели метамагнетика с высокой анизотропией.

Среди антиферромагнитных гранатов [1] $\text{Ca}_3\text{Mn}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ (MnGeG) занимает особое место. В этом соединении ионы Mn^{3+} в октаэдрической координации имеют двукратно вырожденное орбитальное основное состояние и являются, следовательно, ян-теллеровскими ионами. По рентгенографическим данным [2] при температуре $T_{\text{ЯТ}} \approx 400$ К в MnGeG возникает тетрагональное искажение кристаллической решетки ($c/a_{\text{max}} \approx 1,003$), вызванное кооперативным эффектом Яна – Теллера. Это, в свою очередь, обуславливает установленную по дифракции нейтронов [3, 4] своеобразную антиферромагнитную структуру MnGeG ниже T_N , а также нелинейный ход намагниченности [5] и аномалии теплоемкости [6] в сильных магнитных полях. Согласно Плюмье и др. [7] характер спиновых конфигураций MnGeG в сильных магнитных полях связан с высокой локальной анизотропией ионов Mn^{3+} .

До сих пор исследование свойств MnGeG проводилось на поликристаллических образцах. В настоящей работе сообщаются результаты измерений намагниченности монокристалла MnGeG , которые свидетельствуют о ряде особенностей метамагнитного перехода в этом гранате ниже T_N .

Кристаллы $\text{Ca}_3\text{Mn}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ были выращены из раствора в расплаве $\text{Pb} - \text{GeO}_2$ по способу, предложенному Дезвинем и Ле-Галлем [8]. При охлаждении от 1250 до 1000°C со скоростью $1,7$ град/час в платиновых тиглях, содержащих $30 - 38$ г расплава (42 мол. % PbO , 34 % GeO_2 , 18 % CaO и 6 % Mn_2O_4), образовывалось по одному кристаллу граната массой $6 - 7,5$ г. Измерения проводились на вибрационном магнитометре со сверхпроводящим соленоидом в интервале температур $4,2 - -70$ К. Исследуемые образцы имели форму, близкую к кубу с размерами $2,5 \times 2,5 \times 2,5$ мм³, и ориентировались рентгеновским методом с точностью $\pm 0,5^\circ$.

На рис.1 и рис.2 приведены записанные на двухкоординатном потенциометре изотермы намагниченности кристалла MnGeG при ориентациях внешнего магнитного поля вдоль осей $\langle 111 \rangle$ и $\langle 110 \rangle$. Видно, что зависимости $M(H)$ обнаруживают скачки, число которых зависит от ориентации H относительно кристаллографических осей. Это обусловлено разбиением кристалла MnGeG ниже $T_{\text{ЯТ}}$ на кристаллографические "домены", отличающиеся направлениями осей тетрагонального искажения,

т.е. имеется три типа "доменов", которые соответствуют трем осям четвертого порядка кубического кристалла. Кристаллографические "домены" удается наблюдать при 300 К рентгенографически по профилю дифракционной линии.

Следует отметить, что указанная "доменная структура" в $MnGeG$ является довольно "жесткой": охлаждение образца ниже T_{dT} при действии внешнего сжимающего усилия $- 10^7$ дин/см² не дает каких-либо заметных изменений в характере зависимостей $M(H)$ ниже T_N или дифракционной картины при 300 К.

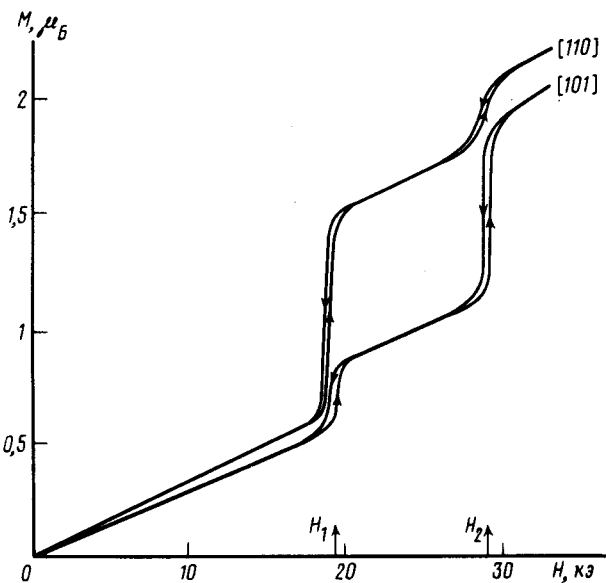


Рис.1. Изотермы намагниченности при 4,2 К кристалла $MnGeG$ при направлении магнитного поля вдоль осей $[110]$ и $[101]$

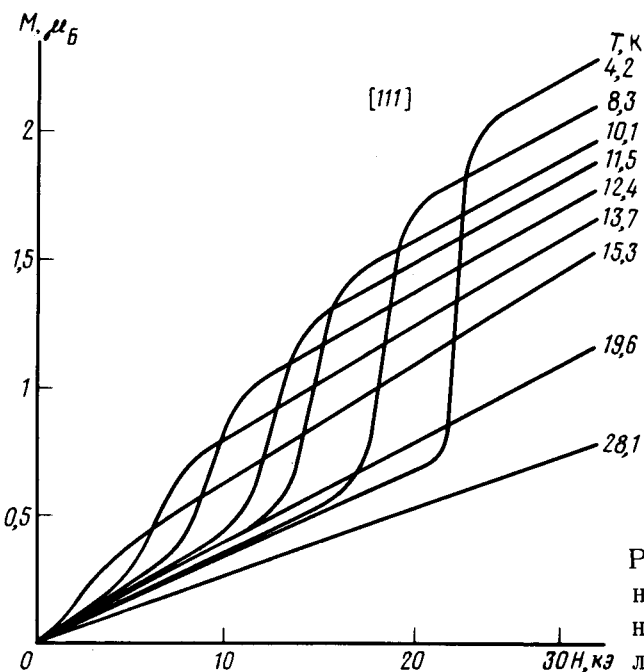


Рис.2. Изотермы намагниченности $MnGeG$ для направления внешнего магнитного поля по оси $[111]$

Когда направление H не совпадает с осями симметрии кристалла, изотермы $M(H)$ при 4,2 К обнаруживают три скачка, соответствующие трем типам "доменов" с различными ориентациями оси c относительно внешнего поля. По симметричным направлениям число скачков уменьшается. Для $\langle 110 \rangle$ наблюдается два скачка (рис.1), так как ориентация двух типов "доменов" относительно H одинакова. При $H \parallel \langle 111 \rangle$ остается один скачок (рис.2), поскольку во всех трех типах "доменов" оси c составляют с H одинаковые углы. С повышением температуры, как видно из рис.2, величины скачков и соответствующих $H_{кр}$ уменьшаются. При $T > T_N$ зависимости $M(H)$ носят обычный парамагнитный характер. Для всех ориентаций магнитного поля скачки M при 4,2 К происходят с гистерезисом (на рис.2 приведено только одно направление изменения H), что свидетельствует о фазовых переходах первого рода.

Используя M_{110} и M_{101} , измеренные вдоль двух осей $\langle 110 \rangle$ "полидоменного" кристалла, мы рассчитали намагниченности "монодоменного" образца m_{110} и m_{101} , которые неэквивалентны в тетрагонально искаженной решетке, с помощью простых соотношений:

$$M_{110} = m_{110} x_3 + m_{101} (x_1 + x_2) ,$$

$$M_{101} = m_{110} x_2 + m_{101} (x_1 + x_3) .$$

Здесь x_1, x_2, x_3 — доли "доменов", у которых оси c направлены соответственно по $[100]$, $[010]$, $[001]$ ($x_1 + x_2 + x_3 = 1$). Они определяются величинами скачков на кривых намагничивания ΔM_{110} и ΔM_{101} в критических полях H_1 и H_2 (см. рис.1):

$$\frac{x_3}{x_2} = \frac{\Delta M_{110}(H_1)}{\Delta M_{101}(H_1)} ; \quad \frac{x_1 + x_2}{x_1 + x_3} = \frac{\Delta M_{110}(H_2)}{\Delta M_{101}(H_2)} .$$

Величины намагниченности вдоль $[001]$ и $[100]$ рассчитываются аналогичным образом из намагниченностей, измеренных вдоль двух направлений типа $\langle 100 \rangle$. При $H \parallel \langle 111 \rangle$ эксперимент дает непосредственно значение намагниченности для "однодоменного" кристалла. Результаты расчета намагниченности $MnGeG$ для различных кристаллографических направлений при 4,2 К приведены на рис.3. Видно, что значения критических полей существенно зависят от направления H в кристалле, тогда как величины скачков остаются практически неизменными. Существенно, что для всех измеренных направлений H значение намагниченности после скачка составляет $\sim 25\%$ от намагниченности насыщения $M(0) = 2 \text{ гс } \mu_B$ (на молекулу $MnGeG$), т.е. в $MnGeG$ не происходит полного захлопывания подрешеток, как в случае обычного метамагнетика с большой (порядка обменной энергии) анизотропией. Следует также отметить, что экстраполяция зависимостей $M(H)$ для $H > H_{кр}$ к значению $H = 0$ дает $M \neq 0$.

Указанные особенности магнитного поведения кристалла $MnGeG$ позволяют предположить, что в этом гранате реализуется механизм суперобменного упорядочения орбиталей, рассмотренный для систем с ян-теллеровскими ионами К.И.Кугелем и Д.И.Хомским [9]. Однако при $H > H_{кр}$ полученные нами экспериментальные зависимости $M(H)$ качественно отличаются от теоретических, приведенных в [9] для полностью изотропной спиновой системы. Возможно, согласие теории с экспериментом можно улучшить путем учета анизотропии ионов Mn^{3+} , которая, очевидно, играет существенную роль в изменении магнитной структуры $MnGeG$ в сильных магнитных полях.

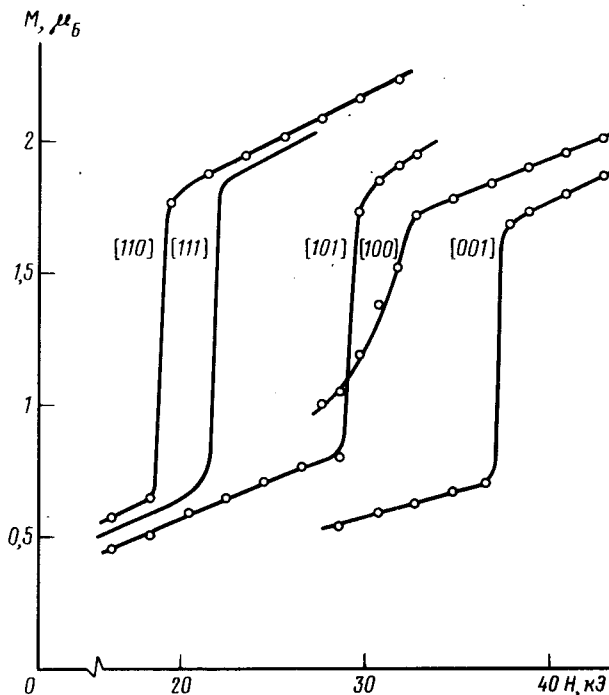


Рис.3. Зависимости намагниченности от поля при 4,2 К "однодоменного" кристалла $MnGeG$ для различных кристаллографических направлений

В заключение выражаем благодарность К.П.Белову за внимание к работе и Д.И.Хомскому, К. И.Кугелю, Р.З.Левитину — за полезные обсуждения.

Московский государственный университет
им. М.В.Ломоносова

Поступила в редакцию
1 февраля 1980 г.

Литература

- [1] К.П.Белов, В.И.Соколов. УФН, 121, 285, 1977.
- [2] З.А.Казей, Б.В.Милль, В.И.Соколов. Письма в ЖЭТФ, 24, 229, 1976.
- [3] R.Plumier. Sol. St. Comm., 9, 1723, 1971.
- [4] R.Plumier, M.Sougi. J.Phys. Lett., 40, 213, 1979.
- [5] К.П.Белов, Б.В.Милль, Г.Роннигер, В.И.Соколов, Т.Д.Хиен. ФТТ, 12, 1761, 1970.

- [6] К.П.Белов, Т.В.Валянская, Л.Г.Мамсурова, В.И.Соколов. ЖЭТФ, 65, 1133, 1973.
- [7] R.Plumier, D.Esteve, M. Le Comte, M.Sougi. J. Appl. Phys., 49, 1525, 1978.
- [8] J.M.Desvignes, H.Le Gall. Mater. Res. Bull., 13, 141, 1978.
- [9] К.И.Кугель, Д.И.Хомский. Письма в ЖЭТФ, 23, 264, 1976.
-