05,11 Структурные и магнитные фазовые переходы в KMnF₃

© С.А. Кижаев, Л.А. Маркова

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

E-mail: kizhsean@mail.ru

(Поступила в Редакцию 1 марта 2011 г.)

Проведены диэлектрические и магнитные измерения кристаллов KMnF₃, полученных методами Чохральского и Бриджмена. В кристаллах наблюдаются три структурных перехода. Взаимное расположение температуры магнитного упорядочения и температуры низшего структурного перехода определяет число и тип магнитных переходов в этих кристаллах.

1. Введение

КМпF₃ имеет структуру типа перовскита и является одним из наиболее исследованных кристаллов, в котором наблюдаются последовательности структурных и магнитных фазовых переходов. Обзор работ по исследованию этого кристалла содержится в [1]. Согласно этой работе, при $T_{C1} = 186.6$ К происходит переход из кубической фазы в тетрагональную с пространственной группой $D_{4h}^{18}-I4/mcm$, а при $T_{C2} = 91.5$ К — в тетрагональную с пространственной группой $D_{4h}^{5}-P4/mbm$.

При температуре Нееля $T_{N1} = 88.6 \,\mathrm{K}$ происходит переход из парамагнитной фазы в антиферромагнитную с намагниченностью подрешеток вдоль тетрагональной оси, а при $T_{N2} = 81.5 \,\mathrm{K}$ — переход в состояние со слабым ферромагнетизмом с намагниченностью в плоскости, перпендикулярной тетрагональной оси. Однако такая последовательность структурных и магнитных переходов не является полной. Так, в работе [2] обнаружен переход в моноклинную фазу при 109 К, в работе [3] в экспериментах по рамановскому рассеянию помимо перехода при $T_{C1} = 187.6 \,\mathrm{K}$ наблюдался фазовый переход при 102 К, который связывался с конденсацией фононов в точке М₃ зоны Брюллюэна. В целом экспериментальные данные о последовательности структурных и магнитных фазовых переходов в KMnF3 при температурах 80–110 К противоречивы и неоднозначны.

Целью настоящей работы является исследование фазовых переходов в KMnF₃ в окрестности температуры магнитного упорядочения.

2. Исследуемые образцы и методика эксперимента

Исследовались две группы кристаллов KMnF₃, полученных различными методами: 1) выращенные методом Чохральского в ФТИ РАН (Санкт-Петербург); 2) полученные по методу Бриджмена в ИФ СО РАН (Красноярск).

Диэлектрические и магнитные измерения кристаллов КМпF₃ первой и второй групп проводились в температурном интервале 4.2–300 К в процессе как охлаждения, так и нагрева образцов.

Для диэлектрических измерений вырезались образцы $KMnF_3$ в форме пластины, измерительно электрическое поле частотой f = 9.8 kHz прикладывалось в направлении [100]. Проводились измерения емкости образцов C = f(T) по мостовой схеме.

Магнитные измерения кристаллов KMnF₃ выполнялись с помощью вибрационного магнитометра M159. Измерялась намагниченность M в зависимости от напряженности магнитного поля H при различных температурах. Магнитная восприимчивость χ ниже температуры магнитного упорядочения T_N определялась из наклона кривой намагниченности M(H) в полях 0.4-1.2 kOe. Линейная экстраполяция M(H) к нулевому полю дает спонтанный магнитный момент M_S . В парамагнитной фазе восприимчивость χ вычислялась по температурной зависимости магнитного момента в постоянном поле сверхпроводящего магнита величиной 5.1 kOe.

3. Экспериментальные результаты и обсуждение

3.1. Диэлектрические измерения. Диэлектрическая проницаемость, полученная нами, при комнатной температуре равна 8.7 ± 0.3 и хорошо согласуется с величиной, полученной из результатов по отражению света в инфракрасной области [4,5].

С целью сравнения образцов KMnF₃, полученных различными методами, на рис. 1 приведены температурные зависимости C(T)/C(300), где C(T) — емкость образца при температуре T. Из рис. 1 видно, что по результатам диэлектрических измерений для кристаллов KMnF₃ каждого типа наблюдаются аномалии при трех температурах: для кристаллов, выращенных методом Чохральского, при температурах $T_{C1} = 187.4$ К, $T_{C2} = 94.8$ К, $T_{C3} = 82.5$ К; для кристаллов, выращенных методом Бриджмена, при температурах $T_{C1} = 189.3$ К, $T_{C2} = 102.5$ К, $T_{C3} = 90.5$ К.

Эти аномалии мы связываем со структурными фазовыми переходами. При температуре *T*₁ для кристаллов



Рис. 1. Температурные зависимости величины C(T)/C(300) для кристаллов KMnF₃, выращенных методами Чохральского (1) и Бриджмена (2). Темные символы — режим нагревания образца, светлые — режим охлаждения.

первой и второй групп наблюдался скачок вниз на температурной зависимости диэлектрических измерений, причем ход кривых в режиме нагрева и охлаждения образцов совпадал. Структурный переход при T_{C1} в кристаллах KMnF₃ достаточно хорошо изучен и не будет обсуждаться в настоящей работе.

Поскольку аномалии (скачки вверх) на температурной зависимости C(T)/C(300) при температурах T_{C2} и T_{C3} обнаруживали температурный гистерезис, эти температуры для кристаллов при первой и второй групп указаны для случая охлаждения образцов. Отметим, что температуры T_{C2} и T_{C3} для образцов первой группы отличаются от соответствующих температур образцов второй группы приблизительно на 8 К. Структурные переходы при температурах T_{C2} и T_{C3} являются переходами первого рода.

3.2. Магнитные измерения. Результаты магнитных измерений представлены на рис. 2 (для кристаллов первой группы) и на рис. 3 (для кристаллов второй группы) вместе с результатами диэлектрических измерений в температурном интервале $T_N \pm 20$ К. Вне этого интервала никаких аномалий на температурных зависимостях магнитных величин обнаружено не было.

Из рис. 2 видно, что при T = 87.7 К наблюдается острый максимум на температурной зависимости магнитной восприимчивости $\chi(T)$, а при 82.5 К — небольшой пик, который по температуре совпадает с появлением слабого ферромагнитного момента M_S и скачком вверх на температурной зависимости C(T)/C(300) при T_{C3} . Температурный гистерезис магнитной восприимчивости $\chi(T)$ и магнитного момента M(S) при 82.5 К совпадает с гистерезисом для диэлектрических измерений.

Известно, что для кристаллов KMnF₃ переход из парамагнитной фазы в магнитоупорядоченное состояние происходит при температуре T_N порядка 88 К [1]. Для кристаллов KMnF₃ первой группы появление острого максимума магнитной восприимчивости χ при $T_N = 87.7$ К связано с переходом в антиферромагнитное состояние, которое затем по мере понижения температуры переходит в состояние со слабым ферромагнетизмом при T_{C3} . Таким образом, в кристаллах KMnF₃ первой группы наблюдаются два магнитных перехода: при понижении температуры при температуре Нееля $T_N = 87.7$ К происходит переход в антиферромагнитное состояние, при



Рис. 2. Температурные зависимости спонтанного магнитного момента M_s , магнитной восприимчивости χ и величины C(T)/C(300) для кристалла KMnF₃, выращенного методом Чохральского. Темные символы — режим нагревания, светлые — режим охлаждения.



Рис. 3. То же, что и на рис. 2, для кристалла, выращенного методом Бриджмена. Темные символы — режим нагревания, светлые — режим охлаждения.

температуре структурного перехода T_{C3} — в антиферромагнитное состояние со слабым ферромагнетизмом.

Появление острого максимума магнитной восприимчивости при температуре перехода в антиферромагнитное состояние в кристаллах первой группы может быть связано с тем, что магнитная структура, возникающая при этом переходе, является неколлинеарной (типа "крест"). Как показано в работе [6], рост восприимчивости при температуре антиферромагнитного перехода в кристаллах CoSO₄ связан с тем, что среди групп магнитной симметрии этого кристалла наряду с антиферромагнитными имеются группы, допускающие слабоферромагнитное состояние. В этом случае слабый ферромагнитный момент может возникать в кристалле при наложении внешнего магнитного поля, даже если в отсутствие поля кристалл является чисто антиферромагнитным. Но в нашем случае зависимость магнитного момента от поля является линейной и без слабого ферромагнитного момента в интервале температур $T_{C3} < T < T_N$ и полях до 10.5 kOe.

Другая возможность объяснения полученных результатов связана с тем, что при T_{C2} возникает несоразмерная фаза, которая приводит к усреднению слабого ферромагнитного момента по кристаллу. Возможно также появление несоразмерной магнитной структуры при $T_{C3} < T < T_N$.

Для кристаллов KMnF₃ второй группы (рис. 3) на зависимости магнитной восприимчивости $\chi(T)$ при T = 90.5 К видна небольшая аномалия, совпадающая с аномалией на температурной зависимости диэлектрических измерений при T_{C3} и проходящая с тем же температурным гистерезисом. Аномалия $\chi(T)$ отражает влияние структурного фазового перехода при T_{C3} . При T = 87.1 К на температурной зависимости магнитной восприимчивости χ наблюдается острый максимум, который по температуре совпадает с появлением спонтанного магнитного момента при T_N . Таким образом, в кристаллах KMnF₃ второй группы переход из парамагнитного в магнитоупорядоченное состояние при температуре Нееля T_N происходит сразу в антиферромагнитное состояние со слабым ферромагнетизмом.

4. Заключение

Проведенные диэлектрические и магнитные исследования кристаллов KMnF₃, полученных методами Чохральского и Бриджмена, в диапазоне температур 4.2–300 К позволяют сделать следующие выводы.

1) Обе группы кристаллов KMnF₃ обнаруживают по три структурных перехода, и их температуры не зависят от магнитных переходов, но зависят от совершенства кристаллов, т. е. от метода их получения.

2) Температуры Нееля *T_N* для обеих групп кристаллов практически совпадают.

3) В номинально "чистых" кристаллах T_N может быть выше или ниже T_{C3} и случайным образом эти темпера-

туры могут совпадать. Это и объясняет разнообразие и противоречивость имеющихся экспериментальных данных по магнитным свойствам этого кристалла.

Список литературы

- [1] H. Konwent, N.M. Plakida. Acta Phys. Pol. A 63, 755 (1983).
- [2] М.А. Винник, Л.Н. Селезнева. Кристаллография 14, 1068 (1969).
- [3] В.В. Еременко, В.И. Фомин, Ю.А. Попков, Н.А. Сергиенко. ФНТ 1, 1030 (1975).
- [4] J.D. Axe, G.D. Pettit. Phys. Rev. 157, 435 (1967).
- [5] C.H. Perry, E.F. Young. J. Appl. Phys. 38, 4616 (1967).
- [6] Н.М. Крейнес. ЖЭТФ 40, 762 (1961).