

УДК 538.22

©1994

ОСОБЕННОСТИ ВОЗВРАТНОГО СОСТОЯНИЯ ТИПА СПИНОВОГО СТЕКЛА В РАЗБАВЛЕННОЙ СИСТЕМЕ $\text{Li}_{0.5}\text{Fe}_{1.15}\text{Ga}_{1.35}\text{O}_4$

*Н.Н.Ефимова, Ю.А.Попков, Г.А.Такзэй,
А.Б.Сурменко, А.М.Двогглазов*

С целью уточнения механизмов формирования неупорядоченных возвратных состояний в гейзенберговских системах с короткодействием на образце $\text{Li}_{0.5}\text{Fe}_{1.15}\text{Ga}_{1.35}\text{O}_4$ в интервале температур от 4.2 К до $T > T_c$ проведены исследования температурных зависимостей интегральной и пиковой интенсивностей упругого рассеяния нейтронов, а также различных вкладов в низкочастотную динамическую восприимчивость в малых полях на первой, второй и третьей гармониках $h - \chi'_0(T)$, $\chi''_0(T)$ и $\chi_1(T)$, $\chi_2(T)$ соответственно. Обнаруженные особенности поведения можно объяснить в рамках модели структуры состояния, учитывающей наличие заметной неоднородности обменного взаимодействия: при $T \leq T_c$ сосуществуют две взаимодействующие подсистемы спинов, которые соответственно входят либо в кластеры с сильным обменом, либо во фрустрированную матрицу. С понижением температуры постепенное замерзание спинов в матрице приводит к появлению в ней областей ближнего порядка спин-стеклового (СС) типа, так что при $T \leq T_f$ сосуществуют два типа дальнего порядка — ферримагнитный для продольных составляющих спинов и СС для поперечных. Все эти процессы — установление дальнего ФМ порядка в T_c , СС в T_f и формирование кластеров обоих типов — отчетливо проявляются в характерных особенностях исследованных свойств.

В физике спиновых стекол (СС) проблема возвратных переходов, т.е. переходов при температуре замерзания $T_f < T_c$ из магнитоупорядоченного в состояние возвратного СС, занимает особое место. До настоящего времени такие превращения экспериментально изучались главным образом в металлических фрустрированных гейзенберговских ферро- и антиферромагнетиках [1-5], а также в изинговских антиферромагнитных диэлектриках [6,7]. В перечисленных работах различными методами было установлено, что в изинговских системах в фазе возвратного СС дальний магнитный порядок сохраняется, в то время как в гейзенберговских разрушается. В последнем случае, как показано в [2-5], при температурах выше температуры перехода T_f образуются неколлинеарные спиновые упорядочения — асперо- или антиасперомагнитные. В связи со сказанным выше необходимо подчеркнуть, что изучение возвратных переходов в ферримагнитных гейзенберговских системах с короткодействующим обменом только начинается [8]. Вместе с тем такие исследования представляют значительный интерес, в том числе в связи с общей проблемой возможности возникновения

состояний СС в гейзенберговских магнетиках с короткодействующим обменом.

В настоящей работе представлены результаты исследования упругого рассеяния нейтронов и низкочастотной динамической восприимчивости разбавленного ферримагнетика $\text{Li}_{0.5}\text{Fe}_{1.15}\text{Ga}_{1.35}\text{O}_4$. Выбор объекта исследования обусловлен следующим. Исходное соединение — литиевая шпинель $\text{Li}_{0.5}\text{Fe}_{2.5}\text{O}_4$ — имеет коллинеарную двухподрешеточную магнитную структуру, $T_c = 913 \text{ K}$ [9]. Короткодействующие косвенные обменные взаимодействия $\text{Fe}^{3+} - \text{O}^{2-} - \text{Fe}^{3+}$ как в первой, так и во второй координационных сферах (т.е. меж- и внутривподрешеточные) антиферромагнитны [9]. При диамагнитном разбавлении $\text{Ga}^{3+} \rightarrow \text{Fe}^{3+}$ из-за разрыва тех или иных антиферромагнитных связей увеличивается степень фрустрированности системы, что является предпосылкой для перехода в неупорядоченные состояния типа СС.

В соответствии с фазовой $x-T$ диаграммой, построенной на основе результатов исследования статических магнитных свойств, в системе $\text{Li}_{0.5}\text{Fe}_{2.5-x}\text{Ga}_x\text{O}_4$ при низких температурах в области $1.5 < x < 2.0$ существует кооперативный переход по параметру порядка Эдвардса-Андерсона из парамагнитного состояния в фазу кластерного СС, а при $0.9 \leq x < 1.5$ реализуется возвратный переход из ферримагнитного состояния (ФМ) в состояние ферримагнитного СС (ФСС) [8]. Последнее характеризуется сосуществованием дальнего ферримагнитного порядка с отличной от нуля спонтанной намагниченностью ($\sigma_s \neq 0$) в интервале температур $0 \text{ K} - T_c$ и типичных СС-свойств, появляющихся при $T \leq T_f < T_c$. Выбранный для исследования состав $x = 1.35$ находится сравнительно близко от критической концентрации исчезновения дальнего ферримагнитного порядка $x_0 = 1.5$, поэтому здесь наиболее ярко должны проявляться специфические особенности систем с короткодействующим — в первую очередь эффекты кластеризации, обусловленные сильной неоднородностью обмена в разбавленных магнетиках такого типа [8,10].

Следует отметить, что в литературе не только обсуждается вопрос о сохранении или разрушении дальнего магнитного порядка в фазе возвратного СС, но и в некоторых случаях ставится под сомнение сама возможность установления дальнего ФМ-порядка в кластерных системах [11–13]. Детальному изучению этих вопросов с привлечением методов более тонких, чем исследование статических магнитных свойств, и посвящена настоящая работа.

1. Методика эксперимента и образцы

Для исследования был взят поликристаллический образец $\text{Li}_{0.5}\text{Fe}_{1.15}\text{Ga}_{1.35}\text{O}_4$, изготовленный по стандартной керамической технологии с использованием окислов и карбонатов (Fe_2O_3 , Ga_2O_3 , Li_2CO_3) марки «ч.д.а.». Однофазность образца контролировалась рентгенографически.

Измерения вещественной χ'_0 и мнимой χ''_0 составляющих динамической магнитной восприимчивости, а также ее нелинейных компонентов χ_1 и χ_2 , измеряемых на второй и третьей гармониках частоты перемагничивающего поля, были проведены с помощью моста взаимодукции.

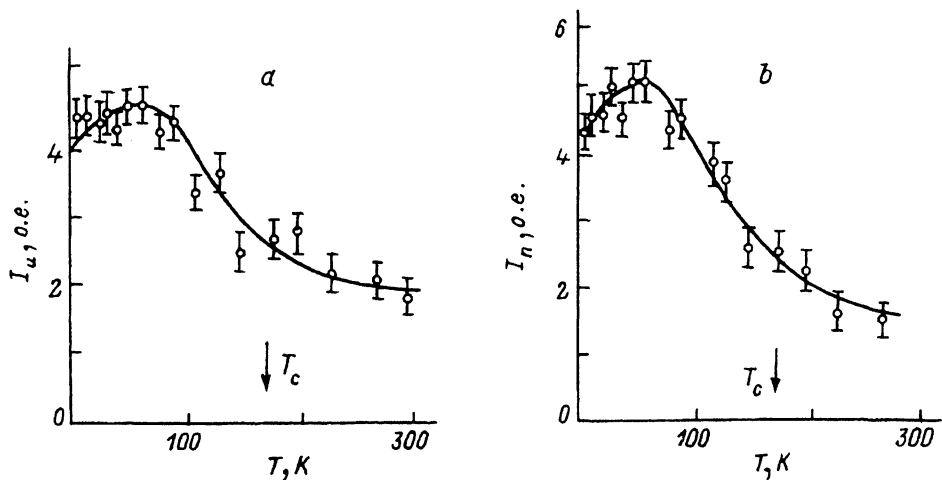


Рис. 1. Температурные зависимости интегральной $I_n(T)$ (а) и пиковой $I_p(T)$ (б) интенсивностей сверхструктурного магнитного рефлекса (111).

Нейтроннографические исследования выполнены на дифрактометре, установленном в одном из горизонтальных каналов атомного реактора ВВР-М Института ядерных исследований АН Украины. Монохроматический пучок нейтронов ($\lambda = 1.22 \text{ \AA}$) получен с помощью двойной монохроматизации отражением от плоскости (111) деформированного монокристалла германия.

2. Экспериментальные результаты и их обсуждение

1. Упругое рассеяние нейтронов. На рис. 1 представлены температурные зависимости интегральной (а) и пиковой (б) интенсивностей структурного магнитного рефлекса (111). По оценкам, проведенным в [14], в Li-Ga шпинелях ядерный вклад в рефлекс (111) составляет лишь несколько процентов, а интенсивность I пропорциональна суммарной намагниченности подрешеток. Как видно из приведенных результатов, в обоих случаях в районе $T \sim 50 \text{ K}$ имеются максимумы: слабо выраженный для интегральной и более отчетливый для пиковой интенсивностей; в области T_c наблюдается перегиб кривых $I(T)$, обе интенсивности имеют достаточно большие значения при $T > T_c$. В целом эти нейтроннографические данные хорошо согласуются с ранее полученными результатами исследования статических магнитных свойств [8]. Определенные кинк-методом и методом Белова-Арротта температурные зависимости спонтанной намагниченности образцов с содержанием $x = 1.30 \div 1.45$ имеют широкие максимумы в области температур $T \sim 50 \text{ K}$, выраженные тем сильнее, чем больше x . «Хвосты» же на зависимостях $I(T)$ при $T > T_c$ могут быть связаны только с ближним ферримагнитным порядком, существования которого, судя по результатам исследования намагниченности в статических полях, простирается вплоть до температур, превышающих T_c на 100–200 K.

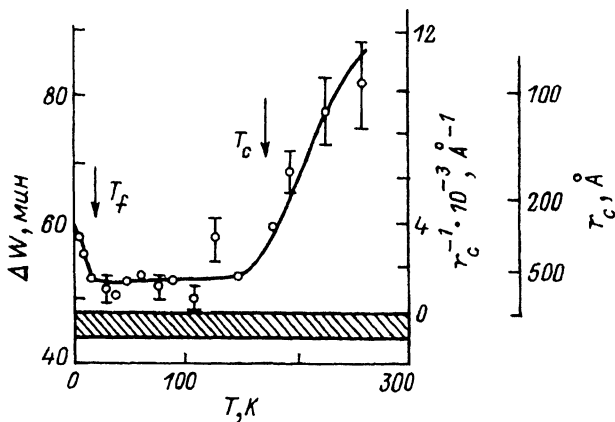


Рис. 2. Температурная зависимость полуширины магнитного рефлекса (111) (левая шкала).

Заштрихованная область с учетом погрешности соответствует инструментальной ширине. Шкалы справа соответствуют величинам обратного корреляционного радиуса r_c^{-1} и r_c , оцененного по (1).

Более детальную информацию дает температурная зависимость полуширины рефлекса (111) — ΔW , которая пропорциональна обратному корреляционному радиусу r_c^{-1} . Значение r_c можно оценить по формуле

$$r_c = 0.94\lambda / \Delta W \cos \theta, \quad (1)$$

где $\lambda = 1.22 \text{ \AA}$, θ — угол рассеяния нейтронов, ΔW — уширение магнитного рефлекса (111) по отношению к инструментальной ширине на том же угле дифракции.

На рис. 2 показана температурная зависимость полуширины магнитного рефлекса — левая шкала; шкалы справа соответствуют величинам r_c^{-1} и r_c . Заштрихованная область в нижней части графика (с соответствующей погрешностью) соответствует инструментальной ширине. Видно, что по мере приближения к T_c^+ обратный корреляционный радиус практически линейно уменьшается. При этом несколько ниже T_c величина r_c достигает значения $\sim 600 \text{ \AA}$. При дальнейшем понижении температуры величина r_c остается постоянной, а при $T < T_f$ снова уменьшается до $\sim 250 \text{ \AA}$ при $T = 0 \text{ K}$. Нужно отметить, что подобного рода поведение наблюдалось и в других неупорядоченных системах: металлических $\text{Fe}_{1-x}\text{Ge}_x$ [15], диэлектрических $\text{FeTiO}_3 - \text{Fe}_2\text{O}_3$ [16], в $\text{Eu}_{1-x}\text{Sr}_x\text{S}$ [12], в $\text{KMn}_{1-x}\text{Zn}_x$ [17].

В работе [18] для объяснения такого характера температурной зависимости корреляционного радиуса предложена эвристическая модель, согласно которой в системах с отчетливо выраженным ближним порядком, обусловленным наличием перколяционных кластеров, обратный корреляционный радиус можно представить в виде

$$r_c^{-1}(T) = r_0^{-1}(\Delta x) + r_{cT}^{-1}(T), \quad (2)$$

где $r_0^{-1}(\Delta x)$ определяет средний размер перколяционного кластера и зависит от близости концентрации Δx к порогу протекания, а $r_{cT}^{-1}(T)$ — так называемый термический обратный корреляционный радиус.

В соответствии с (2) величина $r_0^{-1}(T)$ остается конечной во всей области температур. Функциональная зависимость $r_{cT}^{-1}(T)$ различается для изинговских и гейзенберговских систем, причем для последних $r_{cT}^{-1}(T) = kT/J$ в случае образования одномерных обменных связей (J — обменная константа).

Необходимо подчеркнуть, что модель [18] опирается на результаты компьютерного моделирования при статистическом размещении в решетке магнитных и немагнитных атомов. Полученная картина — резко неоднородное распределение магнитных атомов при достаточно высокой степени разбавления — аналогична результатам рассмотрения в рамках теории протекания разбавленной ферримагнитной шпинели с одним сортом магнитных ионов [10]. Это дает основание для использования представлений модели работы [18] при интерпретации поведения рассматриваемого в настоящей работе разбавленного ферримагнетика $\text{Li}_{0.5}\text{Fe}_{1.15}\text{Ga}_{1.35}\text{O}_4$.

Используя полученные экспериментальные данные, а также модель [18], можно предложить следующую картину формирования дальнего ферримагнитного порядка. Поскольку в Li-Ga системе значения меж- и внутривузловых обменных интегралов достаточно велики $|J_{ij}| = 15 \div 20$ К, $|J_{ii}| = 1 \div 8$ К [9], то уже при температурах много выше точки Кюри T_c начинается формирование областей ближнего порядка — перколяционных кластеров, объединяющих ионы Fe^{3+} с достаточно большим числом магнитных соседей. Размеры таких кластеров, например, при температурах $T \sim 230$ К достигают ~ 120 Å, что много больше величины элементарной ячейки ($a \sim 8$ Å), содержащей восемь формульных единиц. Магнитные моменты ионов Fe^{3+} в кластерах упорядочены ферримагнитно. Кроме кластеров, при $T > T_c$ в системе имеются «свободные» (неупорядоченные) спины, для которых величины локальных молекулярных полей $\mu H_{\text{мол}} < kT$. Постепенно, по мере понижения температуры ($T \rightarrow T_c^+$), эти спины присоединяются к кластерам, образуя разветвленную сеть обменных связей, посредством которой осуществляется обменная корреляция между кластерами, так что при $T = T_c$ устанавливается дальний ферримагнитный порядок по всему кристаллу. В рассматриваемом образце концентрация немагнитных ионов ($\text{Ga}_{1.35} + \text{Li}_{0.5}^+$) составляет $\sim 62\%$, поэтому определенная доля спинов и при $T < T_c$ может оставаться еще свободной и замерзает в своих локальных молекулярных полях лишь при достаточно низких температурах. Таким образом, при $T < T_c$, хотя существует ферримагнитный порядок, магнитная структура является резко неоднородной. Можно выделить две обменно-связанные подсистемы — кластеры и матрицу, причем последняя характеризуется высокой степенью фрустрированности, вследствие чего спины здесь сильно разупорядочены.

При дальнейшем понижении температуры в области $T_f < T < T_c$ в матрице происходят два процесса — замерзание в случайных направлениях свободных спинов и уменьшение тепловых флуктуаций поперечных составляющих спинов, замерзших ранее. Поскольку локальное молекулярное поле, в котором находится каждый магнитный атом, зависит от направления магнитных моментов его соседей в первой и второй координационных сферах, то оба процесса в целом способствуют

ют формированию разупорядочения СС-типа, которое в гейзенберговских системах, как известно [19,20], связано в первую очередь с поперечными компонентами спинов. При $T_f < T$ такие области образуют своеобразные кластеры СС-типа, не связанные друг с другом, а при $T \leq T_f$ устанавливаются дальнедействующие обменные корреляции уже между этими неупорядоченными СС-образованиями. Ясно, что процессы формирования состояний СС-типа в матрице влияют и на кластеры. При $T < T_f$ из-за поляризации близко расположенных спинов СС-подсистема частично разрушает локальный магнитный порядок в подсистеме ферримагнитных кластеров. Это приводит к постепенному уменьшению корреляционного радиуса в области температур ниже T_f , и при $T = 0$ величина r_c понижается до значения $\sim 250 \text{ \AA}$. При $T = 0$ термически свободных спинов нет и магнитная структура представляет собой совокупность кластеров, замороженную в СС-матрицу. Таким образом, механизм перехода в неупорядоченное состояние и в случае неоднородного по кристаллу обменного взаимодействия в основных чертах подобен рассматриваемому в [20].

В качестве резюме попытаемся сделать некоторые обобщающие выводы, учитывая, что разбавленная система $\text{Li}_{0.5}\text{Fe}_{2.5-x}\text{Ga}_x\text{O}_4$ является по сути модельной, т.е. относится к числу наиболее простых ферримагнитных систем. Главной предпосылкой для формирования в рассматриваемом образце ($x = 1.35$) и ему подобных дальнего ферримагнитного порядка при $T = T_c$ и сохранения его в области $T < T_f$ является наличие сильного ($|J_{ij}| \sim 20 \text{ K}$) обменного взаимодействия. За счет этого образуются мощные перколяционные кластеры с ферримагнитным упорядочением, в определенной мере способствующие формированию бесконечной сетки протекания в матрице при $T < T_c$ и сохранению в ней ферримагнитных тенденций при $T < T_f$. Ослабление кластерных эффектов, естественно, «усилит» матрицу, вследствие чего вероятность сохранения дальнего ФМ порядка при $T < T_f$ значительно уменьшится.

Косвенное обменное взаимодействие, как известно, определяется сортом магнитоактивных ионов и геометрией обменных связей $\text{Me}-\text{O}^{2-}-\text{Me}$, последняя же прямо связана с кристаллографическим строением [21,22]. Отсюда непосредственно следует, что в сложных ферримагнитных системах (несколько сортов магнитных ионов или отличная от шпинельной структура) обменное взаимодействие может быть существенно иным, чем в $\text{Li}-\text{Ga}$ шпинелях, поэтому вопрос о типе магнитного упорядочения при $T < T_f$ при наличии двойного перехода (T_c, T_f) каждый раз должен рассматриваться индивидуально.

2. Д и н а м и ч е с к а я в о с п р и и м ч и в о с т ь Используя результаты исследования динамической восприимчивости, рассмотрим, насколько предложенная в предыдущем параграфе модель формирования неупорядоченного состояния согласуется с наблюдающимся поведением в магнитном поле. Как уже отмечалось, статические магнитные свойства полностью коррелируют с нейтронографическими данными, однако изучение динамической восприимчивости позволяет провести более детальный анализ.

На рис. 3–5 представлены температурные зависимости динамической восприимчивости в слабых переменных полях с частотой $f = 83.7 \text{ Гц}$ и амплитудным значением $h_0 = 4 \text{ Э}$: действительная χ'_0 и

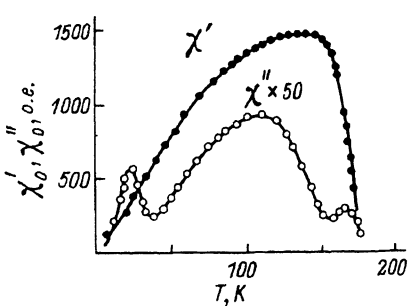


Рис. 3. Температурные зависимости действительной χ'_0 и мнимой χ''_0 частей динамической восприимчивости на первой гармонике перемещающегося поля с амплитудным значением $h_0 = 4 \text{ Э}$.

мнимая χ''_0 части восприимчивости на первой гармонике (рис. 3), нелинейные восприимчивости на второй χ_1 и третьей χ_2 (рис. 4 и 5 соответственно).

Из рис. 3 видно, что на зависимости $\chi''_0(T)$ при температурах перехода T_c и T_f , значения которых совпадают с определенными ранее в статических магнитных полях [8], наблюдаются характерные максимумы: $\chi'_0(T)$ резко увеличивается при $T \sim T_c (T \rightarrow T_c^+)$, а затем при понижении температуры плавно понижается до некоторого конечного значения при $T = 4.2 \text{ К}$. Обе нелинейные восприимчивости χ_1 и χ_2 (рис. 4,5) также резко изменяются при $T = T_c$, причем их температурный ход в окрестностях T_c зависит от величины амплитуды переменного поля — увеличение h_0 от 0.4 до 4 Э приводит к смещению максимумов зависимостей $\chi_1(T)$ и $\chi_2(T)$ в область более высоких температур. Во всех случаях χ_1 и χ_2 отличны от нуля в интервале температур $T_c > T > T_f$, а при $T \leq T_f$ в пределах точности измерений обращаются в нуль. Кроме того, на зависимостях $\chi''_0(T)$ и $\chi_2(T)$ имеются широкие максимумы в области $T_c > T > T_f$, положение которых при увеличении h_0 заметно смещается в сторону низких температур.

Учитывая, что в рассматриваемом образце при $T < T_c$ существует спонтанная намагниченность, для объяснения полученных результатов используем некоторые общие представления о процессах намагничивания. Известно, что в слабых переменных полях восприимчивость можно представить в виде ряда [23]

$$\chi = \chi_0 + \chi_1 h + \chi_2 h^2 + \dots \quad (3)$$

Первое слагаемое χ_0 соответствует обратимым процессам, где намагниченность линейно возрастает с полем $\sigma = \chi_0 h$; второе слагаемое описывает рэлеевскую область и связано с появлением необратимых процессов, приводящих к гистерезису намагниченности; третье слагаемое $\chi_2 h^2$ характеризует нелинейные искажения.

Таким образом, возрастание при переходе через точку Кюри ($T \rightarrow T_c^+$) всех вкладов в динамическую восприимчивость, очевидно, отражает факт появления дальнего ФМ-порядка и образования доменной структуры. Зависимость положения и формы максимумов $\chi_1(T)$ и $\chi_2(T)$ от амплитуды переменного поля, вероятно, связана с наличием сильного ближнего порядка при $T \gtrsim T_c$. Поскольку дальний порядок в T_c возникает за счет установления корреляций между кластерами через фрустрированную матрицу, то наложение даже слабого внешнего поля способствует этому процессу и переход в присутствии поля размывается сильнее, чем в обычных ферромагнетиках.

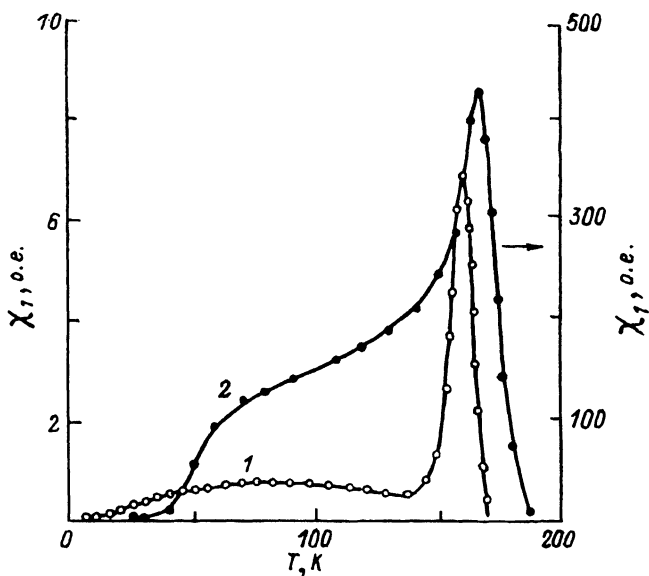


Рис. 4. Температурные зависимости нелинейной восприимчивости χ_1 на второй гармонике перемагничивающего поля с амплитудными значениями $h_0 = 0.4$ (1), 4 Э (2).

При обсуждении характера поведения восприимчивости (3) при $T < T_c$ необходимо также принять во внимание то, что процессы намагничивания, связанные с доменной структурой, в значительной степени определяются анизотропией, которая, как правило, возрастает при понижении температуры [21–23]. Последнее, в частности, должно приводить к расширению интервала полей, соответствующих обратимым процессам намагничивания и, следовательно, уменьшению вкладов χ_1 и χ_2 при $h_0 = \text{const}$ и $T \rightarrow 0$. Действительно, как видно из рис. 4, ход $\chi_1(T)$ вполне можно объяснить в рамках такого рода представлений, что, однако, не распространяется на температурные зависимости $\chi_0''(T)$ и $\chi_2(T)$ в области $T_f < T < T_c$.

Чтобы разобраться в особенностях поведения $\chi_0''(T)$ и $\chi_2(T)$, необходимо учесть, что обе эти восприимчивости в отличие от χ_1 должны иметь конечные значения и в СС-состоянии. Тогда наблюдающееся различие температурного хода $\chi_1(T)$ и $\chi_2(T)$, с одной стороны, и общие черты поведения $\chi_0''(T)$ и $\chi_2(T)$ в области $T_f < T < T_c$ — с другой, можно объяснить следующим. Помимо вкладов, определяемых обычными для упорядоченных ферромагнетиков механизмами, обсуждавшихся выше, χ_0'' и χ_2 содержат вклады, обусловленные фрустрированными спинами. Поэтому температурное поведение $\chi_0''(T)$ и $\chi_2(T)$ должно также отражать процессы, протекающие в разупорядоченной системе. В целом на зависимости $\chi_0''(T)$ и $\chi_2(T)$ могут оказывать влияние: *i*) перестройка, как в обычных ферромагнетиках, доменной структуры, обусловленная температурной зависимостью энергии анизотропии; *ii*) автономное намагничивание СС-областей ближнего порядка. Отметим, что в обоих типах процессов участвуют фрустрированные спины, что должно приводить к диссипации энергии ($\chi_0'' \neq 0$) и нели-

нейным искажениям ($\chi_2 \neq 0$). В первом случае следует исключить из рассмотрения рост кластеров (доменов) при понижении температуры за счет присоединения фрустрированных спинов — процесс, лежащий в основе модели динамических кластеров [24,25], так как размер корреляционного радиуса r_c (рис. 2) в интервале температур $T_f < T < T_c$ не изменяется. Поэтому при понижении температуры возможно лишь образование доменов в крупных кластерах. При этом энергетически выгодно образование доменных границ в местах с ослабленным обменом, поскольку энергия границы $\gamma \sim (JK_A)^{1/2}$, K_A — константа анизотропии [21–23].

Воздействие слабого магнитного поля на границу, включающую в себя фрустрированные спины, может быть подобно тем эффектам, которые наблюдаются в СС-области, т.е. при увеличении поля характерная температура понижается. Хотя в принципе такого рода процессы могут присутствовать, с точки зрения развиваемых представлений о магнитной структуре более вероятной представляется ситуация, когда разупорядоченная и упорядоченная (обменно-связанные ферримагнитные кластеры) подсистемы при $T > T_f$ намагничиваются независимо. В этом случае при понижении температуры классические вклады в χ_1 и χ_2 уменьшаются, а связанные с разупорядочением — возрастают. Влияние изменения амплитуды магнитного поля здесь должно быть более эффективным, так как поле действует непосредственно на неупорядоченную подсистему.

Наконец, обсудим поведение в низкотемпературной области $T \leq T_f$, где нелинейные восприимчивости χ_1 и χ_2 практически обращаются в нуль. Прежде всего отметим, что безотносительно к типу упорядочения при $T = T_f$ этот факт может свидетельствовать о возрастании анизотропии, так что в полях $h_0 \leq 4 \Theta$ намагничивание идет преимущественно за счет обратимых процессов. Кроме того, исчезновение χ_1 может указывать на переход при $T = T_f$ в состояние СС, но и в этом состоянии в слабых полях из-за влияния анизотропии χ_2 может отсутствовать [26].

Проанализируем возможные источники анизотропии. В рамках одноионного механизма, ответственного за формирование анизотропии в исходном состоянии — литиевой шпинели, нет причин для ее резкого возрастания при низких температурах, так как имеется только один сорт магнитных ионов (Fe^{3+}), находящихся в S -состоянии, и при уменьшении их числа при замещении $\text{Ga}^{3+} \rightarrow \text{Fe}^{3+}$ анизотропия в целом понижается при всех температурах [21]. Вместе с тем при достаточно сильном диамагнитном разбавлении в структуре возникают предпосылки для появления обменной (однаправленной) анизотропии. Действительно, при замерзании фрустрированных спинов могут появляться соседствующие области с различными типами спинового упорядочения, а именно ферри- и антиферромагнитные. Такого рода ситуация в разбавленных шпинелях с одним сортом магнитоактивных ионов предсказывается теорией протекания [10]. Кроме того, для возникновения обменной анизотропии в ФМ сложных составов не обязательно наличие двух резко разграниченных фаз: эффекты обменной анизотропии наблюдаются и тогда, когда имеются спины с ослабленным взаимодействием и магнитную структуру можно представить как совокупность

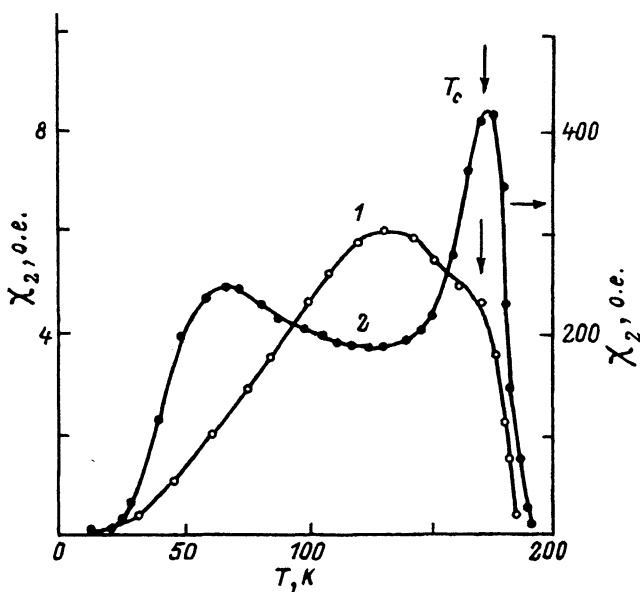


Рис. 5. Температурные зависимости нелинейной восприимчивости χ_2 на третьей гармонике перемещающегося поля с амплитудными значениями $h_0 = 0.4$ (1), 4 Э (2).

взаимопроникающих ФМ и АФМ подсистем [22]. Такой механизм формирования обменной анизотропии реализуется, в частности, в многокомпонентных окислах [27–29]. Кроме этого, в системе неколлинеарных спинов может появиться анизотропия Дзялошинского–Мория [30], вклад которой преобладает над одноионным при очень низких температурах ($T \leq 4.2$ К) и проявляется в виде появления смещенных петель гистерезиса [31].

Для выяснения этого вопроса при $T < T_f$ были предприняты исследования петель гистерезиса. Соответствующие результаты представлены на рис. 6 для температур 4.2 и 10 К. Измерения проведены на образце, предварительно охлажденном до низких температур в присутствии постоянного поля $H = 100$ Э. Как видно из рис. 6, а ($T = 4.2$ К), наблюдается явное свидетельство существования однонаправленной анизотропии — резкая асимметрия петли гистерезиса относительно осей M и H , уменьшающаяся при повторном циклировании. Последнее объясняется тем, что системы с обменной анизотропией находятся, как правило, в метастабильных состояниях, отделенных от равновесного барьерами, высота и ширина которых определяется энергией взаимодействий, формирующих анизотропию [22]. Поэтому, очевидно, наблюдающееся изменение петли гистерезиса при повторном циклировании поля H связано с постепенным переходом в равновесное состояние. При 10 К (рис. 6, б) асимметрия петли гистерезиса много меньше, чем при 4.2 К: по коэрцитивной силе различие значений H_c^+ и H_c^- составляет менее 10 Э, тогда как при 4.2 К — 60 Э. Переход с повышением температуры от асимметричной к симметричной петле гистерезиса наблюдался также для ряда классических СС,

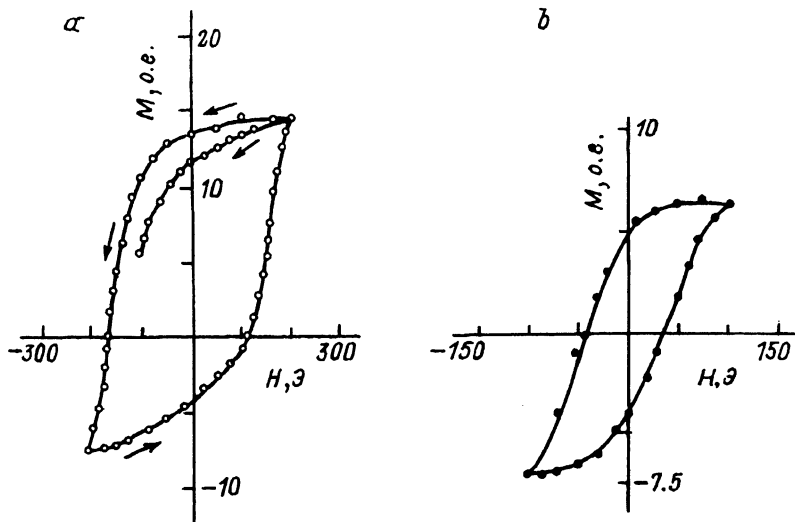


Рис. 6. Петли гистерезиса, измеренные после предварительного охлаждения образца до $T = 4.2$ К в поле $H = 100$ Э при $T = 4.2$ (а), 10 К (б).

что объясняется [31] резкой температурной зависимостью анизотропии Дзялошинского-Мория.

Итак, в рассматриваемой системе существуют по меньшей мере два, на наш взгляд, взаимосвязанных механизма формирования обменной анизотропии и есть все основания считать, что именно обменная анизотропия, возрастающая при понижении температуры ($T \rightarrow T_f^+$), ответственна за уменьшение или даже исчезновение вкладов в χ нелинейных восприимчивостей χ_1 и χ_2 . Следовательно, динамические свойства в слабых полях также можно удовлетворительно объяснить в рамках предложенной модели магнитной структуры.

Таким образом, в настоящей работе с целью выяснения особенностей формирования магнитных состояний в системе разбавленных ферримагнитных окислов $\text{Li}_{0.5}\text{Fe}_{2.5-x}\text{Ga}_x\text{O}_4$, относящихся к гейзенберговским магнетикам с короткодействием, проведены исследования упругого рассеяния нейтронов и динамической восприимчивости в слабых магнитных полях ($h_0 = 0.4 \div 4$ Э и $f = 83.7$ Гц) образца $\text{Li}_{0.5}\text{Fe}_{1.15}\text{Ga}_{1.35}\text{O}_4$, испытывающего двойной переход при понижении температуры из парамагнитной фазы в ферримагнитную (T_c), а затем при $T = T_f$ — в ферримагнитное СС.

Вследствие эффектов кластеризации и резко выраженной неоднородности обменного взаимодействия рассеяние нейтронов связано с областями ближнего порядка — стационарными кластерами — и следует закономерностям, предсказываемым теорией протекания. Зависимость интегральной интенсивности $I_n(T)$ сверхструктурного магнитного рефлекса (111) от температуры повторяет ход температурной зависимости спонтанной намагниченности, определенной в статических магнитных полях кинк-методом и методом Белова-Аррота, но и в области $T > T_c$ $I(T)$ имеет конечное значение. Корреляционный радиус r_c , оцененный по полуширине рефлекса (111), по мере приближения к точ-

ке Кюри ($T \rightarrow T_c^+$) увеличивается ($r_c^{-1} \sim T$) и достигает $\sim 600 \text{ \AA}$ при $T \sim T_c$. В области $T = T_c \div T_f$ $r_c = 600 \text{ \AA}$, а при $T < T_f$ вновь начинает понижаться, так что при $T = 0$ $r_c = 260 \text{ \AA}$.

Наблюдающееся изменение r_c с температурой можно объяснить в рамках модели магнитной структуры, состоящей из двух подсистем, включающих в себя соответственно сильно связанные обменом спины (кластеры) и фрустрированные спины в матрице («свободные»). Формирование кластеров начинается при $T > T_c$, в T_c между ними устанавливаются дальнедействующие корреляции, что обеспечивает сеть обменных связей, проходящих через матрицу. Свободные спины в матрице с понижением температуры постепенно замерзают в собственных случайных молекулярных полях. Взаимодействие между этими спинами уже при $T > T_f$ способствует формированию ближнего СС-порядка. Наличие СС-компоненты влияет на динамические свойства в слабых низкочастотных полях: в области $T_f < T < T_c$ имеются широкие максимумы мнимой восприимчивости $\chi_0''(T)$ и нелинейной восприимчивости на третьей гармонике $\chi_2(T)$, положение которых заметно смещается в область низких температур с ростом поля.

При температуре замерзания T_f по всему кристаллу устанавливается дальний СС-порядок, частично разрушающий упорядочение в ферримагнитной подсистеме. Сохранение спонтанной намагниченности при $T < T_f$ в значительной степени обусловлено специфическими особенностями рассматриваемых объектов — катионным распределением немагнитных ионов в решетке шпинели и сравнительно большой величиной междоузельного обмена, благодаря которому в целом сохраняется ферримагнитный характер связи между упорядоченными областями. В результате замерзания при $T < T_f$ сильно фрустрированных («свободных») спинов появляются предпосылки для возникновения обменной анизотропии. Вследствие увеличения анизотропии при $T < T_f$ за счет обменного вклада в слабых полях h_0 реализуются только обратимые процессы намагничивания, поэтому нелинейные вклады в восприимчивость обращаются в нуль.

Список литературы

- [1] Huang J.A. // J. Magn. & Magn. Mater. 1985. V. 51. N 1–3. P. 1–71.
- [2] Такзей Г.А., Костышин А.М., Гребенюк Ю.П., Сыч И.И. // ЖЭТФ. 1985. Т. 89. № 6. С. 2181–2187.
- [3] Такзей Г.А., Гребенюк Ю.П., Сыч И.И. // ЖЭТФ. 1990. Т. 97. № 3. С. 1022–1030.
- [4] Такзей Г.А., Костышин А.М., Гребенюк Ю.П. // ФТТ. 1987. Т. 29. № 8. С. 2434–2441.
- [5] Такзей Г.А., Барсов С.Т., Гавриленко М.М. и др. // ЖЭТФ. 1991. Т. 100. № 5. С. 1536–1546.
- [6] Wong Pozen, von Molnar S., Palstra T.M. et al. // Phys. Rev. Lett. 1985. V. 55. N 19. P. 2043–2046.
- [7] Yoshizawa H., Mitsuda S., Aruga H. et al. // J. Phys. Soc. Japan. 1989. V. 58. N 4. P. 1416–1426.
- [8] Ефимова Н.Н., Попков Ю.А., Ткаченко Н.В. // ЖЭТФ. 1986. Т. 90. № 4. С. 1413–1420. 1990. Т. 97. № 4. С. 1208–1217; ФНТ. 1990. Т. 16. № 12. С. 1565–1575.
- [9] Ефимова Н.Н., Мамалуй Ю.А. // УФЖ. 1975. Т. 20. № 7. С. 1201–1203.
- [10] Hubsch J., Gavaille G., Bolfa J. // J. Appl. Phys. 1978. V. 49. N 3. P. 1363–1365.
- [11] Beck Paul A. // Phys. Rev. B. 1985. V. 32. N 11. P. 7255–7261.
- [12] Maletta H. // J. Appl. Phys. 1982. V. 53. N 3. P. 2185–2190.
- [13] Shapiro S.M., Maletta H. // J. Appl. Phys. 1985. V. 57. N 6. P. 3485–3487.

- [14] Жилияков С.М., Найденов Е.П. Магнитная структура диамагнитно разбавленных кубических ферримангнетиков. Томск, ТГУ, 1990. 225 с.
- [15] Burke S.K., Rainford B.D. // J. Appl. Phys. 1983. V. 54. N 1. P. 441-448.
- [16] Arai M., Ishikawa J., Saito N., Takei H. // J. Phys. Soc. Japan. 1985. V. 54. N 2. P. 781-794.
- [17] Cowley R.A., Shirane G., Birgeneau R.J. et al. // Phys. Rev. B. 1980. V. 22. N 9. P. 4412-4423.
- [18] Birgeneau R.J., Cowley R.A., Shirane G. et al. // Phys. Rev. B. 1980. V. 21. N 1. P. 317-332.
- [19] Gabay M., Toulouse G. // Phys. Rev. Lett. 1981. V. 47. N 3. P. 201-204.
- [20] Villain J. // Z. Phys. B. 1979. V. 33. N 1. P. 31-42.
- [21] Крупичка С. Физика ферритов и родственных им магнитных окислов. М.: Мир, 1976. 504 с.
- [22] Вонсовский С.В. Магнетизм. М.: Наука, 1971. 1032 с.
- [23] Тикадзуми С. Физика ферромагнетизма. Магнитные характеристики и практические применения. М.: Мир, 1987. 420 с.
- [24] Лесник А.Г. // Металлофизика. 1985. Т. 7. № 1. С. 3-17.
- [25] Goto T., Kanomata T. // J. Appl. Phys. 1985. V. 57. N 6. P. 3450.
- [26] Kouvel J.S., Abdul-Pazzag W. // J. Magn & Magn. Mater. 1985. V. 53. N 1. P. 139-143.
- [27] Poth W.L., Luborski F.E. // J. Appl. Phys. 1964. V. 35. N 3 (part 2). P. 966-967.
- [28] Iizuka T., Iida S. // J. Phys. Soc. Japan. 1966. V. 21. N 4. P. 810.
- [29] Senno M., Towara Y. // Jap. J. Appl. Phys. 1967. V. 6. N 2. P. 509-513.
- [30] Smith D.A. // J. Magn. & Magn. Mater. 1976. V. 1. N 1. P. 214-218.
- [31] Levy P.M., Morgan-Pond C., Fert A. // J. Appl. Phys. 1982. V. 53. N 3. P. 2168-2173.

Харьковский государственный
университет им. А.М.Горького

Поступило в Редакцию
29 сентября 1993 г.