

АНОМАЛЬНОЕ ПОВЕДЕНИЕ МАГНИТОСТРИКЦИИ В СИСТЕМЕ $Y_3Fe_{5-x}Mn_xO_{12}$ ПРИ НИЗКИХ ТЕМПЕРАТУРАХ

В. И. Соколов¹, Э. А. Казей, В. Я. Митрофанов, М. Невржива,¹
А. Я. Фишман

Обнаружена большая величина магнитострикционного эффекта $\Delta l/l$ в $Y_3Fe_{4.77} \times Mn_{0.23}O_{12}$ при низких температурах, индуцированного ян-теллеровскими (ЯТ) центрами Mn^{3+} . Поперечная магнитострикция $(\Delta l/l)_\perp$ характеризуется существенной угловой зависимостью, не типичной для матрицы. Показано, что амплитуда осцилляций $(\Delta l/l)_\perp$ может быть заметно усилена при слабой одноосной деформации кристалла.

1. Наличие ЯТ центров в кубических магнетиках может приводить к нетрадиционной форме угловой зависимости магнитоупругой энергии (магнитострикционного эффекта) и аномально большим величинам соответствующих констант [1]. Сильное влияние таких ионов на магнитострикцию кристалла обусловлено линейным взаимодействием с деформациями в основном состоянии. В результате при заданном направлении намагниченности спин-орбитальное взаимодействие снимает вырождение с эквивалентных ранее направлений локальных ЯТ деформаций, что приводит к магнитострикционному искажению кристалла [2, 3]. Вклад ЯТ ионов в константы магнитострикции в отсутствие случайных полей равен по порядку величины $x_{ЯТ}e_{ЯТ}$, где $x_{ЯТ}$ — концентрация ЯТ центров, $e_{ЯТ}$ — характерная локальная ЯТ деформация ($e_{ЯТ} \sim 10^{-2}$). В результате небольшие концентрации ЯТ центров могут определять поведение магнитострикции всего магнетика, как это имеет место в исследуемой системе.

В случае статического эффекта ЯТ на рассматриваемых центрах Mn^{3+} (основное состояние 5E) могут иметь место лишь тетрагональные локальные деформации, причем каждый из трех уровней энергии оказывается нижайшим в определенной области углов намагниченности. Переход намагниченности через границу указанных областей сопровождается при низких температурах ($T < |D|$, где D — параметр одноионной анизотропии ЯТ центра) скачкообразным изменением типа тетрагональной деформации на ЯТ центрах, т. е. примесного вклада в магнитострикцию [4]. Заметное влияние на магнитоупругие свойства таких кристаллов может оказывать также наличие статических однородных деформаций (типа наведенной ростовой анизотропии).

Специфические анизотропные свойства ЯТ центров, как правило, не наблюдаются. Это связано с тем, что всегда присутствующие в реальных системах случайные кристаллические поля с дисперсией Γ снимают частично или полностью вырождение на ЯТ центрах. При этом вклад ЯТ ионов в магнитоупругие характеристики уменьшается в отношении $|D|/\Gamma$ и восстанавливается (так же как и при $T \gg |D|$) традиционный вид угловых инвариантов. Настоящая работа посвящена экспериментальному и теоретическому исследованию магнитострикционных эффектов при низ-

¹ Сотрудник Института физики АН ЧССР, г. Прага.

ких температурах в кристаллах $Y_3Fe_5O_{12}$, легированных ионами Mn^{3+} . Обнаружены большая величина магнитоупругого эффекта и существенная угловая зависимость поперечной магнитоупругости, отсутствующая в чисто спиновых системах.

2. Кристаллы $Y_3Fe_{5-x}Mn_xO_{12}$ были выращены методом спонтанной кристаллизации из раствора в расплаве с контролем зарождения и перемешиванием расплава с переменной скоростью [5]; для измерений из кристаллов вырезались кубики с размерами $1.5 \times 1.5 \times 1.5$ мм. Концентрация Mn^{3+} определялась по составу шихты и с помощью химического анализа и составляла 0.23. Кристаллы ориентировались рентгеновским методом с точностью $\sim 1^\circ$. Магнитоупругая деформация измерялась емкостным датчиком, включенным в колебательный контур криогенного генератора [6]. Конструкция установки позволяла измерять магнитоупругую деформацию $\Delta l/l = U$ как в продольном (сверхпроводящий соленоид, $H \leq 40$ кЭ), так и в поперечном (сверхпроводящие катушки Гельмгольца, $H \leq 25$ кЭ) магнитных полях.

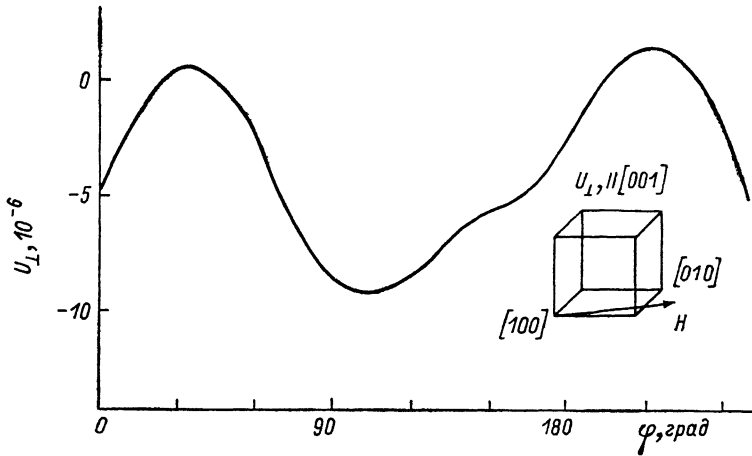


Рис. 1. Угловая зависимость поперечной магнитоупругости U_{\perp} ($\Delta l \parallel [001] \perp H$) от ориентации магнитного поля $H=2$ кЭ в плоскости (001) при $T=4.2$ К кристалла $Y_3Fe_{4.77}Mn_{0.23}O_{12}$ и геометрия опыта.

На рис. 1 показана угловая зависимость поперечной магнитоупругости $U_{\perp}(\varphi)$ кристалла $Y_3Fe_{5-x}Mn_xO_{12}$, измеряемой вдоль направления $[001]$, для магнитного поля $H=2$ кЭ, ориентированного в плоскости (001) при $T=4.2$ К (геометрия опыта показана на вставке). Отсчет угла φ производится от неизвестного направления в плоскости (001). Отличительной особенностью зависимости $U_{\perp}(\varphi)$ является 180° -симметрия вместо ожидаемой для кубического кристалла 90° -симметрии в плоскости (001). Это может быть связано с наведенной ростовой анизотропией, при которой две оси четвертого порядка $[100]$ и $[010]$ в плоскости (001) становятся неэквивалентными. Наличие одноосной ростовой анизотропии в гранатах $Ho_xY_{3-x}Fe_5O_{12}$ с $x \leq 1$ наблюдалось ранее экспериментально на угловых зависимостях вращающего момента в магнитном поле [7]. Как видно из рис. 1, для большинства ориентаций магнитного поля в плоскости (001) величина U_{\perp} отрицательна и только в районе максимумов $\varphi \simeq 212^\circ$ наблюдается небольшая $\sim 10^{-6}$ положительная магнитоупругость.

Полевые зависимости U_{\perp} для различных характерных случаев ориентации магнитного поля в плоскости (001) при $T=4.2$ К показаны на рис. 2. Угол φ соответствует зависимости $U_{\perp}(\varphi)$ на рис. 1. Отметим, что в слабых полях для всех приведенных случаев наблюдается отрицательная магнитоупругость, резко увеличивающаяся с ростом величины магнитного поля и достигающая величины $\sim (6 \div 15) \cdot 10^{-6}$ в поле $H \sim 1$ кЭ. При дальнейшем увеличении поля наблюдается вклад в магнитоупругость другого знака, тем больший, чем ближе ориентация поля к $\varphi \simeq 212^\circ$. Таким образом, за-

висимость $U_{\perp}(\varphi)$ на рис. 1 отражает анизотропию этого второго вклада в магнитострикцию, возникающего в больших полях.

Поведение магнитострикции в слабых полях, на наш взгляд, может быть связано с монодоменизацией кристалла во внешнем магнитном поле. Величина характерного поля ~ 1 кЭ соответствует полю анизотропии

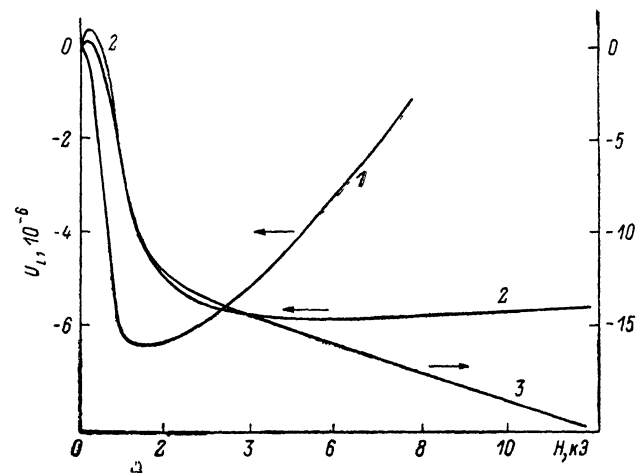


Рис. 2. Изотермы поперечной магнитострикции $U_{\perp}(\Delta l \parallel [001] \perp \mathbf{H})$ при $T=4.2$ К кристалла $\text{Y}_3\text{Fe}_{4.77}\text{Mn}_{0.23}\text{O}_{12}$ для различной ориентации магнитного поля в плоскости (001) (угол φ соответствует зависимости $U_{\perp}(\varphi)$ на рис. 1): $\varphi=192$ (1), 234 (2), 276° (3).

с учетом значительных для наших кристаллов размагничивающих полей ($4\pi M_s/3 \approx 800$ Э). В больших полях характер поведения $U_{\perp}(H)$ определяется истинной монодоменной магнитострикцией.

Продольная магнитострикция $U_{\parallel}(\Delta l \parallel \mathbf{H} \parallel [001])$ для $\text{Y}_3\text{Fe}_{5-x}\text{Mn}_x\text{O}_{12}$ положительна и выходит на насыщение в полях $H \approx 1$ кЭ, достигая вели-

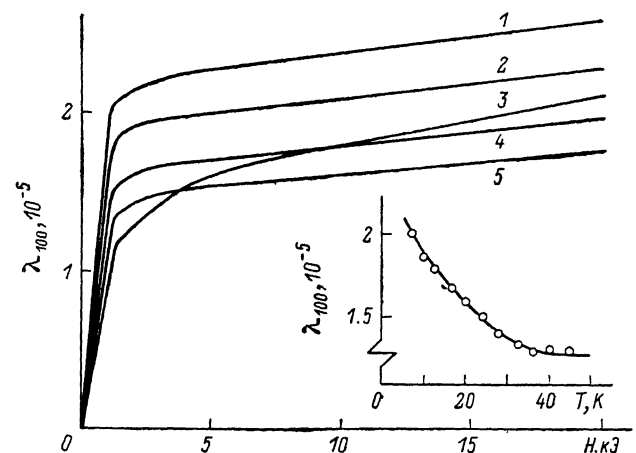


Рис. 3. Изотермы продольной магнитострикции $U_{\parallel}(\Delta l \parallel [001] \parallel \mathbf{H})$ и температурная зависимость магнитострикции насыщения при $H=2$ кЭ (на вставке) кристалла $\text{Y}_3\text{Fe}_{4.77}\text{Mn}_{0.23}\text{O}_{12}$.

$T, \text{K}: 1 - 7.2, 2 - 12.5, 3 - 50.0, 4 - 24.0, 5 - 32.4.$

чины $2 \cdot 10^{-5}$ (рис. 3). Отметим, что для чистого $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ при гелиевых температурах и $\mathbf{H} \parallel [001]$ магнитострикция отрицательна и значительно меньше по величине, $\lambda_{100} = -1 \cdot 10^{-6}$. Это свидетельствует о том, что магнитострикция $\text{Y}_3\text{Fe}_{5-x}\text{Mn}_x\text{O}_{12}$ обусловлена в основном ЯТ ионами Mn^{3+} , хотя их концентрация меньше 5 % от концентрации магнитных ионов. Температурная зависимость магнитострикции насыщения λ_{100} приведена на вставке.

3. Уровни энергии ЯТ иона Mn^{3+} в октаэдрическом граната описываются следующим выражением (статический предел эффекта ЯТ):

$$E_i = E_i^0 + DS(S - 1/2)(\alpha_i^2 - 1/3), \quad i = x, y, z; \quad E_i^0 = V_E(3e_{ii} - e_0)/2 + h_i - H_{ex}S, \quad (1)$$

где D — константа одноионной анизотропии, $D = -(3 \div 5) \text{ см}^{-1}$; S — спин иона Mn^{3+} ; α_i — направляющие косинусы намагниченности; V_E — параметр ЯТ взаимодействия с E_g -деформациями; e_{ij} — тензор деформаций; $e_0 = \Sigma e_{ii}$; h_i — вклад случайных кристаллических полей [3]; H_{ex} — обменное поле, $H_{ex} \sim 100 \div 150 \text{ см}^{-1}$. Здесь пренебрегается эффектами, связанными с туннелированием и наличием тригональных кристаллических полей на ЯТ центре.

Будем считать, что деформации e_{ij} складываются из магнитоэстропического эффекта и статических однородных искажений $e_{ij}^{стат}$, возникающих при росте кристалла. Тогда магнитоэстропический эффект в направлении [001] может быть представлен в виде

$$\Delta l/l = -\lambda_{100}(3\alpha_x^2 - 1)/2 + x_{ЯТ}e_{ЯТ}3(\overline{W_x} - \overline{W_z})/2,$$

$$W_x = (1 + \exp\{(E_x - E_x)/T\} + \exp\{(E_x - E_y)/T\})^{-1},$$

$$W_z^0 = (1 + \exp\{(E_x^0 - E_x^0)/T\} + \exp\{(E_x^0 - E_y^0)/T\})^{-1}, \quad (2)$$

где W_x, W_z^0 — вероятности заселения состояния, отвечающего растяжению октаэдра ближайших к ЯТ центру лигандов вдоль оси Z ($e_{ЯТ} > 0$) с учетом и без учета энергии одноионной анизотропии; черта над W_x и W_z^0 означает усреднение по всем конфигурациям случайных полей, а для энергий E_i можно полагать $e_{ij} = e_{ij}^{стат}$. Отметим, что для рассматриваемого магнетика при малых концентрациях ионов Mn^{3+} тип легких осей ([111]), как правило, не меняется [8, 9].

В отсутствие статических однородных искажений решетки кристалла и случайных низкосимметричных полей основным оказывается состояние с максимальным значением α_x^2 . В результате при $T \ll |D|$ для поперечной магнитоэстропии, когда $\alpha_x = 0$ и $W_x \ll 1$ ($W_x^0 = 1/3$), имеем $\Delta l/l = -x_{ЯТ}e_{ЯТ}/2$. Угловая зависимость поперечной магнитоэстропии определяется изменением заселенности состояния E_x при сближении этого уровня с основным, когда намагниченность поворачивается от оси [100] к оси [110]. Амплитуда осцилляций $U_{\perp}(\varphi)$ растет с увеличением T , достигает максимума при $T \sim |D|$ и быстро спадает при дальнейшем росте температуры. Для продольной магнитоэстропии характерно монотонное спадание с увеличением T от величины $U_{\parallel} = x_{ЯТ}e_{ЯТ}$ при $T = 0$ до величины $U_{\parallel}(T) = 2x_{ЯТ}e_{ЯТ}|D|/T$ при $T > |D|$.

Наличие статических однородных деформаций существенно сказывается на заселенностях уровней при $T \leq |D|$, $|V_E e^{стат}|$, где $e^{стат} = [(e_{E\delta})^2 + (e_{E\epsilon})^2]^{1/2}$ ($e_{E\delta} = (3e_{xx} - e_0)/2$, $e_{E\epsilon} = \sqrt{3}(e_{xx} - e_{yy})/2$). Для некоторых направлений искажений (угла γ : $\text{ctg } \gamma = e_{E\delta}/e_{E\epsilon}$) состояние E_x может стать основным или близким к основному в определенном интервале: изменения угла φ между намагниченностью и осью x в плоскости (001). В результате имеет место более сильная угловая зависимость $U_{\perp}(\varphi)$, а температурная зависимость $U_{\parallel}(T)$ может приобрести немонотонный характер.

Видно, что при низких температурах продольный магнитоэстропический эффект равен нулю, если в отсутствие намагниченности заданному направлению искажения решетки ($-\pi/3 < \gamma < \pi/3$) соответствует упорядочение данных осей октаэдров вдоль оси Z ($W_x^0 \rightarrow 1$ при $T \rightarrow 0$). Энергия магнитной анизотропии при $T < |D|$, понижая величину E_x , не меняет заселенности этого состояния ($W_x \simeq 1$). С ростом температуры U_{\parallel} растет, проходит через максимум при $T \sim |D|$ и падает далее как $1/T$ (рис. 4, кривая 1). Наоборот, в случае статических деформаций, выстраивающих длинные оси ЯТ октаэдров вдоль осей X или Y ($\pi/3 < \gamma < \pi$), магнитная анизотропия может при $T \rightarrow 0$ заметно влиять на заселенность z -состояния. Это имеет место лишь для некоторых направлений искажений

(угла γ), когда параметр $\lambda > 1$ ($\lambda = |Ve^{c_{12}T}/\sqrt{3D}|$), и при всех направлениях в области $\pi/3 < \gamma < \pi$, если $\lambda < 1$. Соответствующая переориентация искажений октаэдров обеспечивает при $T \rightarrow 0$ максимальный про-

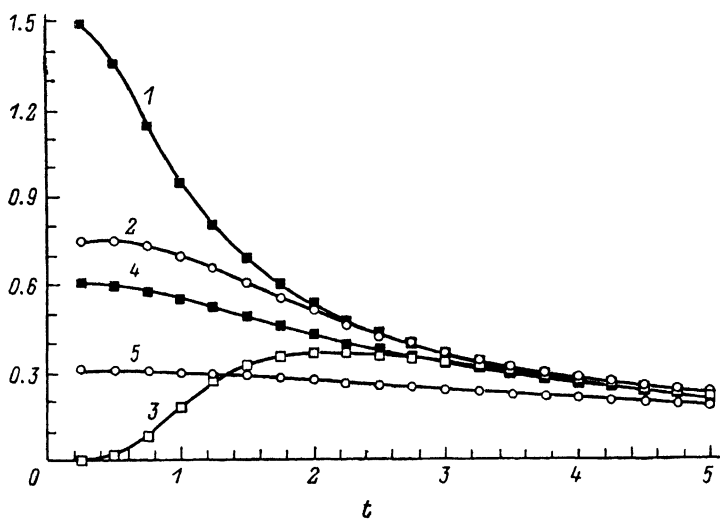


Рис. 4. Теоретическая температурная зависимость продольной магнитоэлектрической $\bar{U}_{\parallel}(t)$.
 $\bar{U}_{\parallel} = U_{\parallel} / x_{\text{ЯТ}} e_{\text{ЯТ}}$, $t = T / |D|$, $\lambda = 1$.

γ, Γ : 1 — $\pi/2, 0$; 2 — $\pi/3, 0$; 3 — $0, 0$; 4 — $\pi/3, 2|D|$; 5 — $\pi/3, 5|D|$.

дольный магнитоэлектрический эффект $U_{\parallel} = 3/2 x_{\text{ЯТ}} e_{\text{ЯТ}}$. Температурная зависимость U_{\parallel} оказывается при этом монотонно убывающей (рис. 4, кривые 2, 3).

Аналогичное рассмотрение показывает, что для поперечной магнитоэлектрической U_{\perp} наиболее существенную угловую зависимость можно ожидать

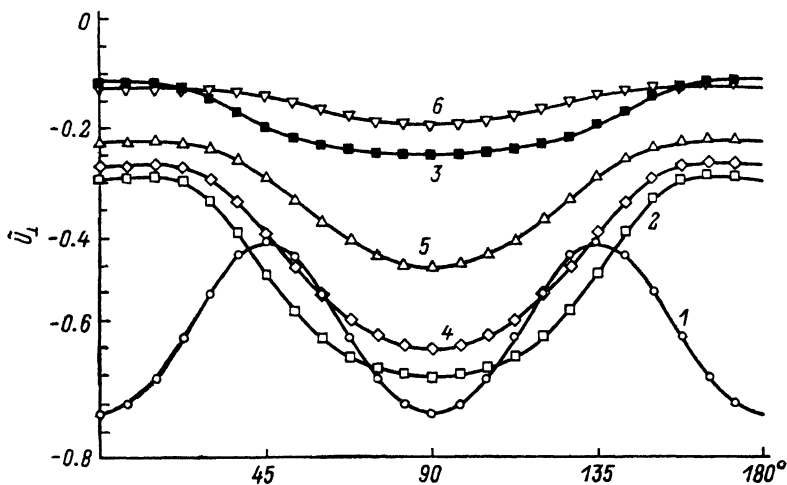


Рис. 5. Теоретическая угловая зависимость поперечной магнитоэлектрической $\bar{U}_{\perp} = U_{\perp} / x_{\text{ЯТ}} e_{\text{ЯТ}}$, $\lambda = 1$, $T / |D| = 1$.

γ, Γ : 1 — $0, 0$; 2 — $\pi/3, 0$; 3 — $\pi/2, 0$; 4 — $\pi/3, |D|$; 5 — $\pi/3, 2|D|$; 6 — $\pi/3, 5|D|$.

при $\gamma \approx \pm \pi/3$. Этим значениям γ отвечает сжатие октаэдра лигандов вокруг ЯТ иона вдоль осей X или Y , сохраняющее двукратное вырождение основного состояния. Снятие этого вырождения при вращении намагниченности в плоскости (001) и определяет поведение $U_{\perp}(\varphi)$. Характерные угловые зависимости U_{\perp} при $\gamma = 0, \pi/3$ и $\pi/2$ приведены на рис. 5 (кривые 1—3).

Анализ влияния случайных кристаллических полей на магнитострикцию ЯТ подсистемы проводился с использованием функции распределения гауссовского типа [3]. Результаты расчетов представлены на рис. 4 (кривые 4, 5) для $U_{\parallel}(T)$ и рис. 5 (кривые 4—6) для $U_{\perp}(\varphi)$. Видно, что характер наблюдаемых эффектов сохраняется, если для исследованных образцов дисперсия случайных полей невелика $\Gamma \sim |D|$. Наличие случайных полей при этом проявляется лишь в некоторой редукции рассматриваемых величин и более слабом спаде температурных зависимостей U_{\parallel} и U_{\perp} . Исчезает также зануление U_{\parallel} при $T \rightarrow 0$ для $\gamma < \pi/3$. Соответствие с экспериментальными кривыми может быть достигнуто при значениях параметров: $\gamma \simeq (\pi/3 \div \pi/4)$, $\lambda \sim 1$ ($e^{\text{стат}} \sim 10^{-4}$) и $\Gamma \simeq (1 \div 4) |D|$.

Следует отметить, что наличие в рассмотренной системе конкурирующей примесной анизотропии, а также наведенной ростовой анизотропии создает условия для реализации промежуточных магнитных состояний — угловых фаз [10, 11] и связанных с ними аномалий поведения различных свойств. Обсуждение этих вопросов выходит за рамки данной работы.

Таким образом, проведенные экспериментальные исследования и теоретическое рассмотрение показывают, что магнитострикционные характеристики кристаллов с ЯТ ионами оказываются исключительно чувствительными к наличию статических однородных деформаций и случайных полей. Это открывает новые возможности для использования магнитострикционных эффектов, в частности, при аттестации образцов, изучении наведенной ростовой анизотропии и т. д.

Авторы признательны М. А. Иванову и П. Новаку за интерес к работе и полезные обсуждения.

Список литературы

- [1] Slonczewski J. C. // J. Appl. Phys. 1961. V. 32. N 3. P. 253S—263S.
- [2] Dionne G. F. // J. Appl. Phys. 1979. V. 50. N 6. P. 4263—4272.
- [3] Falkovskaya L. D., Fishman A. Ya., Ivanov M. A. e. a. // JMMM. 1988. V. 71. N 3. P. 337—354.
- [4] Иванов М. А., Фишман А. Я. // ФТТ. 1988. Т. 30. № 9. С. 2761—2763.
- [5] Nevřiva M. // J. Cryst. Growth. 1987. V. 83. N 4. P. 543—580.
- [6] Казей З. А., Леванидов М. В., Соколов В. И. // ПТЭ. 1982. № 1. С. 196—197.
- [7] Гапеев А. К., Левитин Р. З., Маркосян А. С. и др. // ЖЭТФ. 1974. Т. 67. № 7. С. 232—239.
- [8] Gyorgy E. M., Krause J. T., Le Craw R. G. e. a. // J. Appl. Phys. 1967. V. 38. N 3. P. 1226—1227.
- [9] Kratochvilova E., Novak P., Veltrusky I. e. a. // J. Phys. C. 1985. V. 18. N 8. P. 1671—1676.
- [10] Белов К. П., Звездин А. К., Кадомцева А. М. и др. Ориентационные переходы в редкоземельных магнетиках. М.: Наука, 1979. 320 с.
- [11] Иванов М. А., Фишман А. Я. // ФНТ. 1988. Т. 14. № 3. С. 278—287; ФТТ. 1988. Т. 30. № 9. С. 2761—2763.

Московский государственный университет
им. М. В. Ломоносова
Институт металлургии УрО АН СССР
Свердловск

Поступило в Редакцию
6 апреля 1990 г.