

# Моделирование магнитных свойств марганцевого оксида $Pb_3Mn_7O_{15}$

© С.С. Аплеснин<sup>\*,\*\*</sup>, А.И. Москвин<sup>\*</sup>

<sup>\*</sup> Сибирский государственный аэрокосмический университет им. М.Ф. Решетнева, Красноярск, Россия

<sup>\*\*</sup> Институт физики им. Л.В. Киренского Сибирского отделения Российской академии наук, Красноярск, Россия

E-mail: apl@iph.krasn.ru

(Поступила в Редакцию 4 июля 2008 г.)

Методом Монте-Карло вычислены магнитная восприимчивость, теплоемкость, спин-спиновые корреляционные функции для марганцевого оксида  $Pb_3Mn_7O_{15}$ . Найдены две критические температуры, связанные с образованием модулированной структуры вдоль гексагональной оси выше  $T_1 \approx 20$  К и исчезновением дальнего магнитного порядка при  $T_2 \approx 70$  К. Оценены параметры антиферромагнитного обменного взаимодействия в гексагональной плоскости ( $J_1 \sim 7$  К) и два типа обмена — соответственно антиферромагнитное ( $J_2 \sim 3$  К) и ферромагнитное ( $K \sim 50$  К) взаимодействия между плоскостями.

PACS: 75.10.-b, 75.40.Mg, 75.40.Cx

## 1. Введение

Магнитные системы с фрустрированными обменными взаимодействиями [1], которые образуются не только в стохастических магнетиках [2], но и в химически упорядоченных соединениях из-за топологии решетки [3], обладают высоким вырождением и необычными магнитными свойствами [4]. Это отражается в богатом разнообразии фаз и фазовых переходов [5] и обуславливает их высокую чувствительность к различного рода возмущающим взаимодействиям. К этому классу соединений относится  $Pb_3Mn_7O_{15}$  [6] с конкурирующими ферромагнитным и антиферромагнитным обменными взаимодействиями.

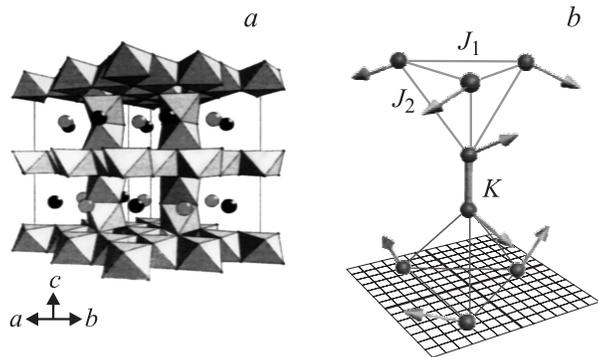
Рентгеновские исследования [6] кристаллов показали, что они кристаллизуются в гексагональной сингонии, пространственная группа  $R\bar{6}_3/mc_2$ , с параметрами элементарной ячейки  $a = 10.0287(4)$  Å,  $c = 13.61376(6)$  Å. На элементарную ячейку приходится четыре формульные единицы. Кристаллическая структура имеет ярко выраженный слоистый характер, что оказывает сильное влияние на ряд физических свойств. Каждый ион марганца находится в октаэдрическом окружении ионов кислорода. Ионы марганца  $Mn^{3+}$  и  $Mn^{4+}$  содержатся в кристалле в соотношении 4:3 и распределены по четырем неэквивалентным позициям (рис. 1, *a*). Ионы свинца расположены посередине между слоями и занимают две неэквивалентные позиции Pb1 и Pb2. Магнитную структуру этого соединения можно представить в виде двух элементарных гексагонально плотноупакованных ячеек, соединенных ферромагнитными обменными взаимодействиями, изображенными на рис. 1, *b*.

Экспериментальные результаты [6] позволяют выделить несколько характерных температурных диапазонов, в которых формируются различные магнитные состояния кристалла. От высоких температур и до  $\sim 200$  К поведение намагниченности характерно для парамагнитного состояния. Начиная с  $T \sim 160$  К на кривой температурной зависимости намагниченности наблюда-

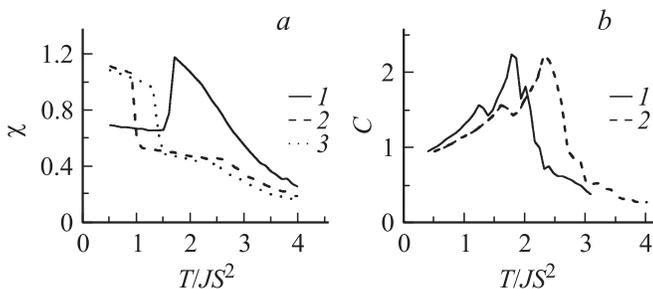
ется небольшой, но сильно уширенный пик, связанный с возникновением ближнего магнитного порядка. При  $T_2 \approx 70$  К [6] ясно виден острый узкий пик, который свидетельствует об установлении дальнего магнитного порядка. Ниже 70 К  $Pb_3Mn_7O_{15}$  находится в нескомпенсированном антиферромагнитном состоянии со спонтанным слабоферромагнитным моментом ( $0.06 \mu_B$  на формульную единицу при 2 К), лежащим в базисной плоскости кристалла. При  $T_1 \sim 20$  К наблюдаются еще один магнитный фазовый переход и гистерезис в температурном поведении восприимчивости ниже 45 К, измеренной на образцах, охлажденных в поле  $H = 500$  Ое и в отсутствие магнитного поля [6].

## 2. Модель

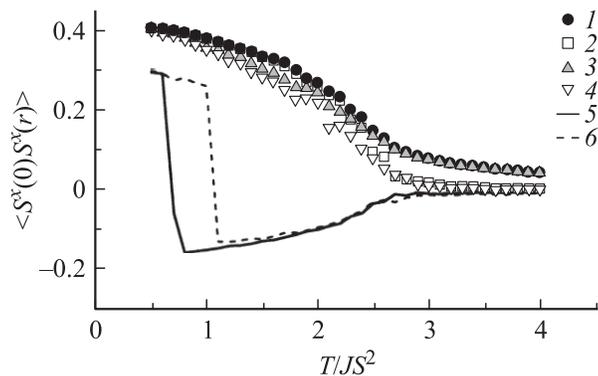
Часть элементарной ячейки этого кристалла представляет собой гексагональную плотноупакованную (ГПУ) решетку с антиферромагнитными обменными взаимодействиями ( $J$ ). Магнитная структура ГПУ-решетки с различными типами взаимодействия анализировалась в классической модели Гейзенберга [7]. В зависимости от величины межплоскостного взаимодействия и значения константы одноионной анизотропии ( $D$ ) найдена фазовая диаграмма магнетика на плоскости анизотропия—температура. В области параметров  $0 < D < J$  обнаружены три характерные точки, связанные с изменением спиновой структуры. При понижении температуры из области, в которой спины полностью парамагнитны, сначала возникает ближний порядок в различных слоях ГПУ-решетки ( $T = T_3$ ). Дальнейшее понижение температуры приводит к возникновению спиновых корреляций между слоями и к появлению вектора модуляции по продольной компоненте спина при  $T = T_2$ . После достижения температуры  $T = T_1$  вклад в магнитный структурный фактор вносят поперечные компоненты спинов. Поэтому качественные оценки для трех температур, при которых наблюдаются аномалии в



**Рис. 1.** *a)* Схематическое представление кристаллографической структуры  $Pb_3Mn_7O_{15}$ . Катионы Mn расположены в центре кислородных октаэдров, ионы Pb показаны светлыми (позиция Pb1) и темными (позиция Pb2) кружками. *b)* Магнитная структура с тремя параметрами обмена.



**Рис. 2.** Зависимость восприимчивости  $\chi = M/H$  (*a*) и теплоемкости  $C = dE/dT$  (*b*) от температуры, нормированной на величину обмена в плоскости, для  $J_2/J_1 = -0.5$ ;  $K/J_1 = 2$  (1), 8 (2), 20 (3) ( $J_1 = \text{abs}(J_1)$ ).



**Рис. 3.** Спин-спиновые корреляционные функции в гексагональной плоскости на расстоянии  $r = 1$  (1, 3), 6 (2, 4) и перпендикулярно плоскости на расстоянии  $r = 3$  (5, 6) для  $J_2/J_1 = -0.5$ ;  $K/J_1 = 8$  (1, 2, 5) и 20 (3, 4, 6).

магнитной восприимчивости в  $Pb_3Mn_7O_{15}$ , можно получить из фазовой диаграммы, приведенной в работе [7].

Согласно экспериментальным данным [6], между критическими температурами выполняются следующие соотношения при  $T_2 = 70$  К:  $T_3/T_2 = 2.3$ ,  $T_1/T_2 = 0.3$  и  $T_{ir}/T_2 = 0.64$ , где  $T_{ir}$  — температура, соответствующая

образованию гистерезиса восприимчивости образца, охлажденного в поле и без поля. Используя известные величины коэрцитивного магнитного поля  $H_c = 20$  кОе, парамагнитной температуры Кюри  $\Theta = -520$  К [6], оценим с помощью соотношения  $\theta = 2/3S(S+1)zJ$  (где  $S$  — величина спина,  $z$  — число ближайших соседей) среднее значение обмена  $J \sim 5$  К и эффективную константу анизотропии  $D/J \sim 0.3$ , для которой моделирование магнитной структуры ГПУ-решетки [7] приводит к следующим значениям:  $T_3/T_2 = 1.5$ ,  $T_{ir}/T_2 = 0.7$ . Однако кристаллическая структура  $Pb_3Mn_7O_{15}$  имеет более сложный вид, и моделирование магнитной структуры необходимо провести с учетом упорядочения ионов марганца в марганцевом феррите.

Для формирования спонтанного момента необходимо учесть ферромагнитное взаимодействие между ГПУ-плоскостями. Рассмотрим модель Гейзенберга с изотропными обменными взаимодействиями

$$H = - \sum_{i,j}^L (J_{1,i,j} S_i S_j + J_{2,i,k} S_i S_k + K_{nm} S_n S_m + H_i S_i),$$

где  $J_1 < 0$  — обменное взаимодействие в гексагональной плоскости,  $J_2 < 0$  и  $K > 0$  — соответственно антиферромагнитное и ферромагнитное обменные взаимодействия между ионами марганца, расположенными в двух неэквивалентных позициях между плоскостями,  $S$  — классический спин с компонентами  $S(\cos \theta, \sin \theta \sin \varphi, \cos \theta \cos \varphi)$ ,  $H$  — внешнее магнитное поле. Для вычисления магнитных характеристик используется метод Монте-Карло (МК) с периодическими граничными условиями на решетке размером  $N = 18 \times 18 \times 18$  и числом шагов 5 000–10 000 МК/spin. Магнитная структура определялась из спин-спиновой корреляционной функции, а температуры, при которых происходят изменения в магнитной структуре, — по аномалиям в температурном поведении восприимчивости  $\chi = M/H$ , где  $M$  — величина намагниченности, индуцируемая внешним магнитным полем  $H$ , и теплоемкости  $C = dE/dT$ , определенной по изменению энергии  $E$  от температуры  $T$ .

На рис. 2 приведены зависимости восприимчивости от температуры для ряда параметров ферромагнитного обменного взаимодействия. Для параметров  $K/J < 6$  восприимчивость имеет вид характерный для антиферромагнетика (рис. 2, *a*). Это связано с конкуренцией ферромагнитных и антиферромагнитных взаимодействий, пара спинов имеет в ближайшем окружении шесть спинов, связанных антиферромагнитным обменом. При увеличении ферромагнитного обмена  $K/J > 6$  пары спинов через ГПУ-плоскости упорядочиваются ферромагнитным образом, что подтверждается расчетом спин-спиновых корреляционных функций (рис. 3) в направлении  $OZ$ , перпендикулярном гексагональной плоскости. С повышением температуры ферромагнитное упорядочение спинов исчезает, и возникает модулированная структура. Спин-спиновая корреляционная функция на расстоянии

$r = 3$  меняет знак при  $T = T_1$ , а корреляции между спинами вдоль одного из направлений решетки в базисной плоскости сохраняют положительный знак и исчезают при температуре Нееля. Теплоемкость, изображенная на рис. 2,  $b$ , имеет ярко выраженный максимум при  $T = T_N$ . Сравнение отношения  $T_1/T_N$ , вычисленного методом МС, с экспериментом  $T_1/T_2 \approx 0.3$  и  $T_N/JS^2 = 2.5$  позволяет оценить параметры обмена  $J_1 \sim 7$  К,  $J_2 \sim 3$  К,  $K \sim 50$  К.

### 3. Заключение

Итак, низкотемпературный переход в  $\text{Pb}_3\text{Mn}_7\text{O}_{15}$  вызван образованием модулированной структуры в направлении  $[001]$  при  $T > 20$  К. Ниже этой температуры пары спинов упорядочиваются ферромагнитно, что приводит к образованию спонтанного магнитного момента. Максимум теплоемкости соответствует исчезновению дальнего магнитного порядка. Найдены эффективные параметры обменных констант в  $\text{Pb}_3\text{Mn}_7\text{O}_{15}$ .

Авторы благодарят Н.В. Волкова за обсуждение кристаллической и магнитной структур  $\text{Pb}_3\text{Mn}_7\text{O}_{15}$  и за предоставление опубликованных результатов.

### Список литературы

- [1] S. Khmelevskiy, J. Kudrnovsky, B.L. Gyorffy, P. Mohn, V. Drchal, P. Weinberger. *Phys. Rev. B* **70**, 224 432 (2004).
- [2] K. Binder, A.P. Young. *Rev. Mod. Phys.* **58**, 801 (1986).
- [3] N. Mohapatra, K.K. Iyer, S. Rayaprol, E.V. Sampathkumaran. *Phys. Rev. B* **75**, 214 422 (2007).
- [4] I.S. Suzuki, M. Suzuki. *Phys. Rev. B* **73**, 094 448 (2006).
- [5] T. Hamasaki, T. Ide, H. Kuroe, T. Sekine, M. Hase, I. Tsukada, T. Sakakibara. *Phys. Rev. B* **77**, 134 419 (2008).
- [6] N.V. Volkov, K.A. Sablina, O.A. Bayukov, E.V. Eremin, G.A. Petrakovskii, D.A. Velicanov, A.D. Balaev, A.F. Bovina, P. Boni, E. Clementyev. *J. Phys.: Cond. Matter* **20**, 055 217 (2008).
- [7] С.С. Аплеснин, Р.С. Гехт. *ЖЭТФ* **96**, 2163 (1989).