

## Особенности магнитного упорядочения в системе $(\text{Fe}_x\text{Cr}_{1-x})_2\text{O}_3$

© Г.П. Воробьев, А.М. Кадомцева, А.С. Москвин, Ю.Ф. Попов, В.А. Тимофеева

Московский государственный университет им. М.В.Ломоносова,  
119899 Москва, Россия

(Поступила в Редакцию 4 июля 1996 г.)

Наблюдались аномальные температурные зависимости магнитного момента для монокристаллов  $(\text{Fe}_x\text{Cr}_{1-x})_2\text{O}_3$ , которые могут быть объяснены антипараллельной ориентацией средних слабоферромагнитных моментов  $d$ -подсистем (слабый ферримагнетизм). Исчезновение линейного магнитоэлектрического эффекта для  $x = 0.1$  ниже 45 К объясняется спонтанным фазовым переходом от конусной спирали к циклоидальной спиновой структуре, что находится в согласии с термодинамическим рассмотрением.

Исследование магнитных свойств монокристаллов смешанной системы  $(\text{Fe}_x\text{Cr}_{1-x})_2\text{O}_3$  имеет принципиальный интерес для магнетизма. Антиферромагнетики  $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$  и  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  хорошо известны в физике твердого тела. Оба имеют одинаковую кристаллическую симметрию (пространственная группа  $R3c$ ), в то время как их магнитные структуры различаются, что приводит к кардинальному различию из свойств. Так, гематит  $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$  является классическим слабым ферромагнетиком, но не обладает линейным магнитоэлектрическим (МЭ) эффектом, и, наоборот: антиферромагнетик  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  обнаруживает линейный МЭ-эффект, но не имеет слабого ферромагнитного момента.

Представляло интерес синтезировать и исследовать монокристаллы системы  $(\text{Fe}_x\text{Cr}_{1-x})_2\text{O}_3$  с целью определения области существования этих свойств и установления существования связи между магнитной и кристаллической симметрией и обменным взаимодействием. Интерес к этим соединениям связан еще и с тем, что в этой системе возможно существование различных типов пространственно-модулированных спиновых структур, что подтвердилось нейтронографическими измерениями на порошках [1] и измерениями МЭ-эффекта на монокристаллах [2]. Данное исследование было предпринято также и потому, что мы ожидали в системе  $(\text{Fe}_x\text{Cr}_{1-x})_2\text{O}_3$  возникновения нового типа магнитного упорядочения — слабого ферримагнетизма, заключающегося в антипараллельной ориентации средних слабоферромагнитных моментов железной и хромовой подсистем, аналогично тому, как это наблюдалось ранее в системе  $\text{YFe}_x\text{Cr}_{1-x}\text{O}_3$  [3].

### Экспериментальные результаты и их обсуждение

С целью обнаружения указанных возможностей магнитного упорядочения  $d$ -ионов в системе  $(\text{Fe}_x\text{Cr}_{1-x})_2\text{O}_3$  исследовались магнитные и магнитоэлектрические свойства в интервале температур 4.2–300 К. Монокристаллы  $(\text{Fe}_x\text{Cr}_{1-x})_2\text{O}_3$

( $x = 0.1, 0.2, 0.25, 0.5, 0.55, 0.8, 0.9$ ) были выращены методом спонтанной кристаллизации из раствора в расплаве. Кристаллы представляли собой пластины, перпендикулярные оси [111], сечением 384 мм и толщиной 0.1–0.2 мм. Химический состав кристаллов определялся методом рентгеноспектрального анализа с точностью до 3%.

Магнитные измерения монокристаллов проводились на торсионных магнитных весах с автокомпенсацией в статических магнитных полях до 12 кОе. МЭ-эффект измерялся в импульсных магнитных полях до 200 кОе по методике, описанной в [2]. Измерения показали, что кристаллы с  $x = 0.1, 0.2$  являются чистыми антиферромагнетиками. Ранее [1] в рассматриваемой системе при  $x < 0.3$  нейтронографически на порошках наблюдалась пространственно-модулированная спиновая структура типа конусной спирали. Наличие конусной спиновой спирали с осью конуса, параллельной  $c$ -оси кристалла, допускает существование линейного МЭ-эффекта. Из термодинамического рассмотрения [2] следует, что в этой системе может также наблюдаться циклоидальная спиновая структура, для которой МЭ-эффект обращается в нуль. Для состава с  $x = 0.1$  мы наблюдали необычную зависимость восприимчивости МЭ-эффекта от температуры (рис. 1): в интервале температур 4.2–45 К линейный МЭ-эффект был равен нулю, а возникал при  $T > 45$  К и сохранялся вплоть до  $T_N = 295$  К. В ходе температурной зависимости восприимчивости при  $T = 150$  К происходила смена знака МЭ-восприимчивости, причину которой мы здесь не обсуждаем. Отметим, однако, что подобное явление наблюдалось также в  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ . Отсутствие МЭ-эффекта в области низких температур до 45 К и его появление при повышении температуры естественно связать со спонтанным фазовым переходом при  $T = 45$  К от циклоидальной спиновой структуры, при которой МЭ-эффект равен нулю, к конусной спирали. При концентрации  $x = 0.25$  линейный МЭ-эффект практически исчезает, при этом возникает небольшой спонтанный момент  $\sim 0.006 \text{ G} \cdot \text{cm}^3/\text{g}$  ( $T = 78$  К). При дальнейшем росте содержания ионов железа в  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  при  $x = 0.3$  спонтанный момент

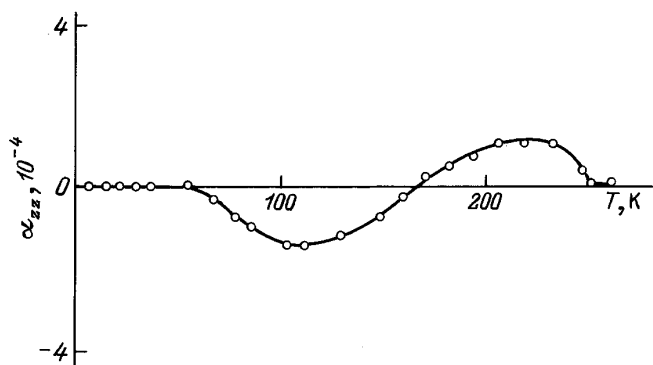


Рис. 1. Температурная зависимость магнитоэлектрической восприимчивости  $\alpha_{zz}$  для монокристалла  $Fe_{0.2}Cr_{0.8}O_3$ .

возрастает в несколько раз и его температурная зависимость становится аномальной. На рис. 2 приведены температурные зависимости намагниченности для нескольких составов. Видно, что для составов с  $x = 0.5$  (кривая 1) магнитный момент с понижением температуры сначала уменьшается, проходит через минимум при 55 К и снова возрастает, напоминая по виду кривые с точкой компенсации. Отсутствие полной компенсации магнитного момента свидетельствует, по видимому, о неоднородности кристаллов по составу, что подтвердилось и данными рентгено-спектрального анализа. Для состава с  $x = 0.55$  (кривая 2) также наблюдается сильное уменьшение магнитного момента с понижением температуры, однако область компенсации магнитного момента сдвинулась по сравнению с предыдущим составом в сторону более низких температур. Для составов с большой концентрацией ионов железа магнитное поведение было более обычным, хотя наблюдалось отклонение температурной зависимости магнитного момента от бриллюэновского вплоть до  $x = 0.8, 0.9$  (кривые 3, 4).

Ранее в работе [1], выполненной на поликристаллических образцах системы  $(Fe_xCr_{1-x})_2O_3$ , в ходе температурной зависимости намагниченности также наблюдались особенности типа точки компенсации, однако удовлетворительного объяснения этих результатов не было дано.

Нам представляется вполне естественным объяснить наблюдаемые аномалии зависимости намагниченности от температуры возникновением слабоферримагнитного упорядочения в смешанной системе  $(Fe_xCr_{1-x})_2O_3$ . Антипараллельное упорядочение магнитных моментов железной и хромовой подсистем может возникать из-за различия знаков параметров антисимметричного обмена Дзялошинского  $d_{Fe-Fe}$ ,  $d_{Cr-Cr}$  и  $d_{Fe-Cr}$ , которое было установлено в работе [4]. Явление поперечного слабоферримагнетизма было впервые обнаружено в системе  $YFe_xCr_{1-x}O_3$  [4], для которой температурная и концентрационная зависимости намагниченности носи-

ли аномальный характер. Основное отличие нового явления — поперечного слабоферримагнетизма — от обычного продольного ферримагнетизма, наблюдаемого, например, в ферритах-гранатах, заключается в том, что оно разыгрывается на фоне основного антиферромагнитного упорядочения, при этом слабый ферримагнетизм может проявляться только в плоскости, перпендикулярной оси антиферромагнетизма. Естественно предположить, что, поскольку исследуемая система  $(Fe_xCr_{1-x})_2O_3$  аналогично  $YFe_xCr_{1-x}O_3$  является системой с конкурирующим антисимметричным обменом, для нее также возможна реализация слабоферримагнитного упорядочения. Однако в нашем случае анализ наблюдаемых экспериментальных результатов является более сложным, так как в отличие от  $YFeO_3$  и  $YCrO_3$  в исходных соединениях  $\alpha-Fe_2O_3$  и  $Cr_2O_3$  магнитные структуры различаются и описываются соответствующими магнитными модами

$$L_{\alpha-Fe_2O_3} = M_1 + M_2 - M_3 - M_4,$$

$$L_{Cr_2O_3} = M_1 - M_2 + M_3 - M_4.$$

Таким образом, в общем случае при интерпретации результатов помимо указанных выше взаимодействий надо еще учитывать конкуренцию обменных взаимодействий различных мод.

Как было показано в работе [2], при малых концентрациях замещающих ионов железа механизм конкуренции обменных взаимодействий приводит к возникновению в этих соединениях пространственно-модулированных спиновых структур, как это наблюдалось при  $x = 0.1$ .

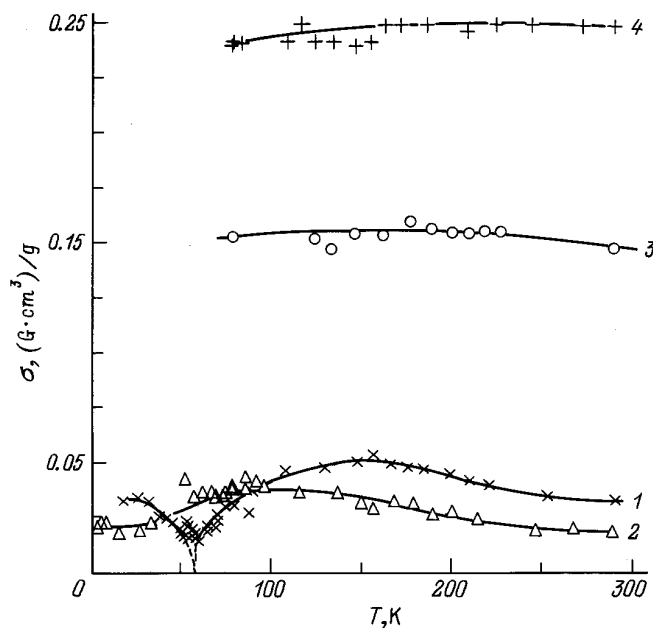


Рис. 2. Температурные зависимости магнитного момента кристаллов  $(Fe_xCr_{1-x})_2O_3$ .  $x$ : 1 — 0.5, 2 — 0.55, 3 — 0.8, 4 — 0.9.

При больших  $x$ , согласно нейтронографии [1], в этой системе превалирует магнитная структура, характерная для  $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ . В этом случае, учитывая различие знаков параметров Дзялошинского для взаимодействующих ионов, можно объяснить наблюдаемые аномалии в температурной зависимости магнитного момента проявлением слабоферромагнитного характера упорядочения. Однако отметим, что количественная интерпретация полученных результатов и их теоретическое рассмотрение для системы  $(\text{Fe}_x\text{Cr}_{1-x})_2\text{O}_3$  из-за сложности различных механизмов взаимодействий не представляются возможными.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (№ 96-02-16569а), INTAS (№ 94-0935) и частично финансировалась за счет гранта Госкомвуза РФ по фундаментальным исследованиям в области фундаментального естествознания, раздел "Физика магнитных явлений" (№ 95-0-74-157).

### Список литературы

- [1] D. Cox, W. Takei, S. Shirane. J. Phys. Chem. Sol. **24**, 405 (1963).
- [2] Ю.Ф. Попов, Д.Ф. Белов, Г.П. Воробьев, А.К. Звездин, А.М. Кадомцева, М.М. Лукина, М.-М. Тегранчи. ЖЭТФ **109**, 2, 1 (1996).
- [3] А.М. Кадомцева, А.С. Москвин, И.Г. Бострем, Б.М. Ванклин, Н.А. Хафизова. ЖЭТФ **72**, 6, 2286 (1977).
- [4] А.С. Москвин, И.Г. Бострем. ФТТ **19**, 9, 1616 (1977).