

Критическое поведение локального параметра порядка в кристаллах $\text{Li}_2\text{Ge}_7\text{O}_{15} : \text{Mn}^{2+}$

© М.П. Трубицын

Днепропетровский государственный университет,
320625 Днепропетровск, Украина

(Поступила в Редакцию 24 июня 1997 г.)

Электронный парамагнитный резонанс (ЭПР) является информативным методом при изучении локальных свойств кристаллов в окрестности структурных фазовых переходов (ФП) [1]. В настоящей работе представлены результаты изучения ЭПР ионов Mn^{2+} (0.06, 0.2%) в кристаллах гептагерманата лития $\text{Li}_2\text{Ge}_7\text{O}_{15}$ (ГГЛ), претерпевающих при $T_C = 283.5$ К переход из параэлектрической фазы (пространственная группа D_{2h}^{14}) в сегнетофазу (группа C_{2v}^5) [2,3]. Спектры измерялись в X-диапазоне на спектрометре Radiopan SE/X 21547. Нагревание и охлаждение образцов осуществлялось в парах азота с использованием стандартного криостата.

Ранее в [4] был проведен расчет параметров спин-гамильтониана (СГ) ионов Mn^{2+} в парафазе ГГЛ и при ФП зафиксировано понижение локальной симметрии парамагнитных центров от моноклинной (группа C_2) до триклинной (группа C_1). Для произвольных ориентаций магнитного поля по отношению к кристаллическим осям ниже T_C наблюдалось расщепление спектральных линий на две компоненты, обусловленное наличием в кристалле сегнетоэлектрических доменов. Цель данной работы состоит в изучении температурного поведения расщепленных компонент в низкотемпературной окрестности T_C .

На рис. 1 представлена температурная зависимость положения сверхтонкой линии $m_j = -5/2$, $M_S = -3/2 \leftrightarrow -5/2$ для ориентации магнитного поля $\angle \mathbf{Hb} = 7^\circ$, $\mathbf{H} \perp \mathbf{c}$. Одиночная линия, наблюдаемая в парафазе, при охлаждении практически линейно смещается в сторону высоких полей ($\sim 7.04 \cdot 10^{-2}$ мТ/К) вследствие термического сжатия решетки. Ниже T_C линия расщепляется на две компоненты, положения которых существенно зависят от температуры. Экспериментальные зависимости вблизи точки ФП можно описать при помощи разложения резонансных полей по степеням локального параметра порядка

$$H_R = H_0 + A\eta_{\text{loc}} + B\eta_{\text{loc}}^2 + \dots, \quad (1)$$

где H_0 — определяет положение линии в парафазе, а коэффициенты разложения A, B зависят от ориентации внешнего магнитного поля относительно осей кристалла. В общем случае $\eta_{\text{loc}}(t)$ является функцией времени. Флуктуирующая часть $\delta\eta_{\text{loc}}(t)$ в первом порядке дает вклад в ширину и форму линии, а статическая $\langle \eta_{\text{loc}} \rangle$ определяет ее положение.

В парафазе $\langle \eta_{\text{loc}} \rangle = 0$ и, согласно (1), центр линии $H_R = H_0$ с учетом эффекта термического дрейфа. Возник-

новение $\pm \langle \eta_{\text{loc}} \rangle \neq 0$ ниже T_C приводит к расщеплению линии на две компоненты, положения которых будут определяться

$$H_{R1,R2}(\pm \langle \eta_{\text{loc}} \rangle) = H_0 \pm A\langle \eta_{\text{loc}} \rangle + B\langle \eta_{\text{loc}} \rangle^2. \quad (2)$$

На вставке к рис. 1 представлен квадрат величины расщепления $\Delta H = H_{R1} - H_{R2} = 2A\langle \eta_{\text{loc}} \rangle$ как функция от приведенной температуры $\tau = T/T_C$. Видно, что для $\tau \lesssim 0.96$ экспериментальная зависимость может быть описана прямой в соответствии с классическим

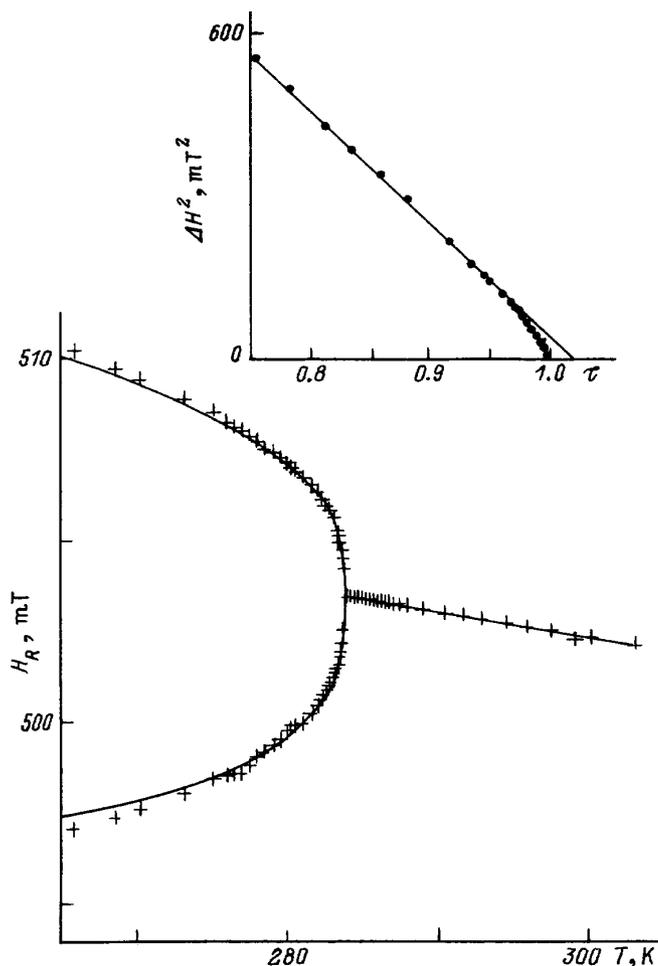


Рис. 1. Температурная зависимость положения сверхтонкой компоненты $m_j = -5/2$, $M_S = -3/2 \leftrightarrow -5/2$ в окрестности T_C . $\angle \mathbf{Hb} = 7^\circ$, $\mathbf{H} \perp \mathbf{c}$. Сплошная линия рассчитана при помощи (4а). На вставке — квадрат величины расщепления ΔH^2 как функция от приведенной температуры $\tau = T/T_C$.

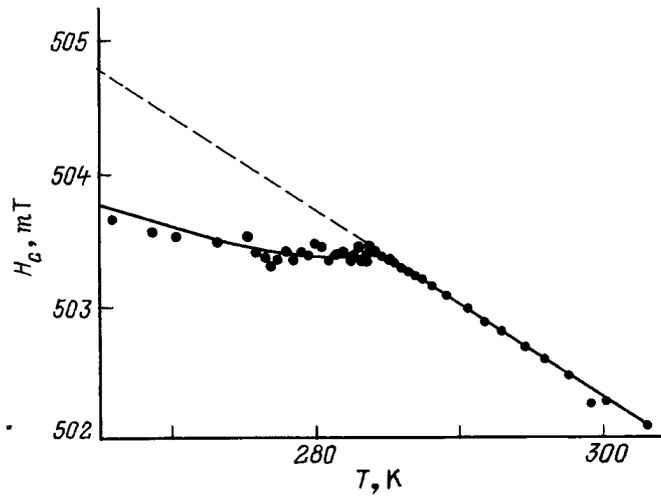


Рис. 2. Температурная зависимость положения линии H_0 выше T_C и центра между расщепленными компонентами H_C ниже точки перехода. Штриховая линия соответствует термическому дрейфу H_0 в парафазе, сплошная линия рассчитана при помощи (4b).

индексом параметра порядка $\beta = 0.5$. В интервале $0.96 \lesssim r < 1$ зависимость $\Delta H^2(\tau)$ отклоняется от поведения, предсказываемого приближением среднего молекулярного поля.

Характер экспериментальной зависимости $H_R(T)$ (рис. 1) указывает, что квадратичный член в разложении (2) также оказывает заметное влияние на положение линий. Центр между расщепленными компонентами H_C при охлаждении ниже T_C отклоняется от линии, соответствующей термическому дрейфу H_0 в парафазе (рис. 2). Из (1) следует, что

$$H_C = (H_{R1} + H_{R2})/2 = H_0 + B\langle\eta_{loc}\rangle^2, \quad (3)$$

т. е. величина отклонения $\Delta H_C = H_C - H_0$ пропорциональна $\langle\eta_{loc}\rangle^2$. Представив локальный параметр порядка как функцию от температуры $\langle\eta_{loc}\rangle \sim (T_C - T)^\beta$, выражения (2), (3) можно переписать в виде

$$H_{R1,R2} = H_0 \pm a(T_C - T)^\beta + b(T_C - T)^{2\beta}, \quad (4a)$$

$$H_C = H_0 + b(T_C - T)^{2\beta}; \quad a \sim A, \quad b \sim B. \quad (4b)$$

Значения параметров в (4a), (4b), рассчитанные для критического интервала $(\tau \sim 0.965)T_C - 10 \text{ K} \leq T < T_C (\tau = 1)$ при помощи метода наименьших средних квадратов, составляют $T_C = 283.82 \text{ K}$, $\beta = 0.32$, $a = 2.427 \text{ mT} \cdot \text{K}^{-\beta}$, $b = -0.149 \text{ mT} \cdot \text{K}^{-2\beta}$. Сопоставление расчетных кривых (сплошные линии на рис. 1, 2) с экспериментальными данными показывает, что температурное поведение измеряемых величин в критическом интервале достаточно хорошо описывается соотношениями (4a), (4b) с неклассическим значением индекса β .

Критическое поведение локального параметра порядка в столь широкой низкотемпературной окрестности T_C может быть связано с особенностями свойств ГЛЛ, позволивших отнести его к классу слабополярных сегнетоэлектриков [5]. Как отметили авторы [6–8], слабость дальнодействующих кулоновских сил в ГЛЛ приводит к проявлению флуктуационных эффектов в значительно более широком интервале температур, чем в обычных сегнетоэлектрических материалах. Полученное для интервала $T_C - 10 \text{ K} \leq T < T_C$ значение $\beta \approx 0.32$ хорошо согласуется с теоретической величиной критического индекса параметра порядка в модели Изинга. Можно заключить, что зафиксированные в ЭПР-эксперименте свойства ГЛЛ в широкой окрестности T_C проявляют черты, характерные для переходов типа упорядочения.

В заключение отметим, что приведенные результаты качественно согласуются с данными работ [7,8], в которых сообщалось о критическом поведении теплоемкости и упругих модулей кристаллов ГЛЛ.

Список литературы

- [1] K.A. Muller, J.C. Fayet. In: Structural Phase Transitions II / Ed. K.A. Muller, H. Thomas **45**, 1 (1991).
- [2] H. Volenkle, F. Wittman, H. Nowotny. Monatsh. Chem. **101**, 46 (1970).
- [3] S. Haussuhl, F. Wallrafen, K. Recker, J. Eckstein. Z. Crystallogr. **153**, 329 (1980).
- [4] М.П. Трубицын, М.Д. Волнянский, А.Ю. Кудзин. Кристаллография **36**, 6, 1472 (1991).
- [5] А.К. Таганцев. Письма в ЖЭТФ **54**, 7, 352 (1987).
- [6] Г.А. Смоленский, И.Г. Синий, А.К. Таганцев, С.Д. Прохорова, В.Д. Миквабия, В. Виндш. ЖЭТФ **88**, 1020 (1985).
- [7] Б.А. Струков, М.Ю. Кожевников, Е.Л. Соркин, М.Д. Волнянский. ФТТ **32**, 9, 2823 (1990).
- [8] Б.А. Струков, М.Ю. Кожевников, Х.А. Низомов, М.Д. Волнянский. ФТТ **33**, 10, 2962 (1991).