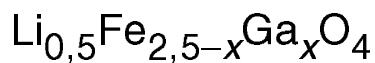


Магнитные превращения в возвратной области x – T диаграммы спин-стекольной системы



Н. Н. Ефимова, С. Р. Куфтерина

Харьковский государственный университет, Украина, 310077, г. Харьков, пл. Свободы, 4

А. Г. Андерс, С. В. Старцев, А. М. Гуревич, В. Н. Еропкин

*Физико-технический институт низких температур им. Б. И. Веркина НАН Украины,
Украина, 310164, г. Харьков, пр. Ленина, 47*

E-mail: aanders@ilt.kharkov.ua

Статья поступила в редакцию 6 мая 1998 г.

Для возвратных шпинелей $\text{Li}_{0,5}\text{Fe}_{2,5-x}\text{Ga}_x\text{O}_4$ с $x = 0,9; 1,2$ на температурных зависимостях теплоемкости C при температурах $T_1 = 13,4$ К ($x = 0,9$) и $14,2$ К ($x = 1,2$) обнаружены максимумы, характерные для фазового перехода первого рода. Этот переход отождествляется с превращением коллинеарной ферримагнитной структуры в неколлинеарную, которая по температуре предшествует состоянию ферримагнитного спинового стекла, существующего в интервале температур $0 \text{ К} \leq T \leq T_f$, где температуры перехода T_f составляют 9 К ($x = 0,9$) и 12 К ($x = 1,2$).

Для зворотних шпінелей $\text{Li}_{0,5}\text{Fe}_{2,5-x}\text{Ga}_x\text{O}_4$ з $x = 0,9; 1,2$ на температурних залежностях теплоемкості C при температурах $T_1 = 13,4$ К ($x = 0,9$) та $14,2$ К ($x = 1,2$) знайдено максимуми, характерні для фазового переходу першого роду. Цей перехід ототожнюється з перетворенням колінеарної феримагнітної структури в неколінеарну, котра по температурі попередє стану феримагнітного спинового скла, який існує в інтервалі температур $0 \text{ К} \leq T \leq T_f$, де температури переходу T_f становлять 9 К ($x = 0,9$) і 12 К ($x = 1,2$).

PACS: 75.50.Lk

В настоящей работе представлены результаты исследования температурных зависимостей теплоемкости C возвратных ферримагнетиков $\text{Li}_{0,5}\text{Fe}_{2,5-x}\text{Ga}_x\text{O}_4$ с $x = 0,9$ и $1,2$, предпринятые с целью изучения последовательности магнитных превращений, происходящих в этой области концентраций при изменении температуры. Объекты исследования принадлежат к числу гейзенберговских магнетиков с короткодействующим обменом, поэтому изучение эволюции магнитных состояний как при увеличении степени разбавления x , так и при понижении температуры ($x = \text{const}$) не утратило своей актуальности. Проблема заключается в том, что обменный механизм формирования неупорядоченных состояний типа спинового стекла (СС) в таких системах остается дискуссионным, поскольку результаты машинного моделирования (отсутствие спин-

стекольного перехода при $T_f > 0$ К) [2,3] находятся в противоречии с имеющимися экспериментальными данными [1,4,5], а последовательной теории еще не существует. Вместе с тем экспериментальные фазовые x – T – H диаграммы гейзенберговских систем с короткодействием в целом соответствуют общему каноническому типу, характерному для классических спин-стекольных систем типа Cu – Mn , Au – Fe и т.д. [1,4,5]. Это позволяет в известной мере опираться на результаты теории среднего поля с бесконечным радиусом взаимодействия и при исследовании спин-стекольных систем с короткодействием.

В рамках среднеполевого подхода [6] показано, что на x – T диаграмме гейзенберговских систем имеется возвратная область, в которой при понижении температуры магнитные состояния должны сменять друг друга в

последовательности: ПМ \rightarrow ФМ $\rightarrow M_1 \rightarrow M_2$, здесь ПМ и ФМ – пара- и ферромагнитное состояния соответственно, а M_1 и M_2 – неколлинеарные состояния с сохранившимся дальним порядком. Переход $M_1 \rightarrow M_2$, подобно переходу ПМ \rightarrow СС («чистое» спиновое стекло), проявляется в виде спонтанного нарушения репличной симметрии при температуре T_f . Экспериментально во всех случаях T_f регистрируется по появлению ярко выраженных СС свойств, например, существованию при $T \leq T_f$ процессов долговременной релаксации по логарифмическому закону неравновесной намагниченности σ_{ZFC} [1,4,5]. Вследствие этого M_2 принято отождествлять с состоянием ферромагнитного спинового стекла (ФСС), в котором при $T < T_f$ сосуществуют два типа магнитного порядка, а именно, ферромагнитный и спин-стекольный [1,4,7]. Характер превращения $M_1 \rightarrow M_2$ и сам факт его существования долгое время являлись предметом многих экспериментальных исследований, которые, тем не менее, не внесли окончательной ясности [1,4,7].

Нужно отметить, что в предшествующих исследованиях в превращении $M_1 \rightarrow M_2$ основное внимание, как правило, было сосредоточено на «спин-стекольном» аспекте проблемы. Анализируя экспериментальные результаты, в том числе полученные для Li–Ga шпинелей [5,8], мы предположили, что возникновение дальнедействующих корреляций между поперечными составляющими спинов в фазе M_1 , рассмотренное в работе [6], связано не с образованием некоторого, отличного от M_2 , спин-стекольного состояния, а с формированием упорядоченной неколлинеарной ФМ структуры, для Li–Ga шпинелей – ферримагнитной (ФМ*). В таком случае переходы ФМ $\rightarrow M_1$ или ФМ* $\rightarrow M_1$ должны иметь признаки термодинамического фазового перехода [9]. Результаты проверки этого предположения и представлены в настоящей работе,

Исследование температурных зависимостей теплоемкости C образцов $\text{Li}_{0,5}\text{Fe}_{2,5-x}\text{Ga}_x\text{O}_4$ с $x = 0,9$ и $1,2$ в интервале температур 12–16 К проведено с использованием той же методики, что и ранее для интервала 2–20 К [8]. Полученные результаты представлены на рис. 1.

Как обсуждалось ранее [10], в Li–Ga шпинелях теплоемкость, обусловленную фононным вкладом, можно полагать равной теплоемкости изоструктурного немагнитного галлата лития LiGa_2O_4 . При $T = 15$ К его величина не

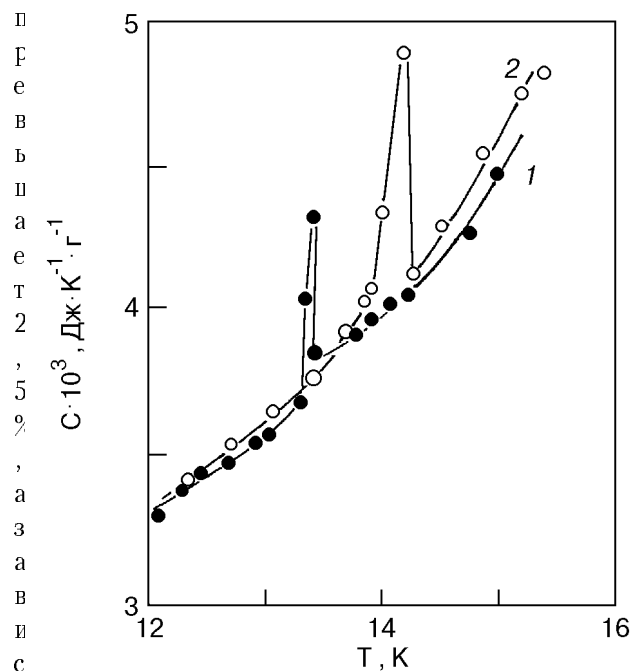


Рис. 1. Температурные зависимости теплоемкости C разбавленных шпинелей $\text{Li}_{0,5}\text{Fe}_{2,5-x}\text{Ga}_x\text{O}_4$ с $x = 0,9$ (1) и $1,2$ (2).

степь $C(T)$ не имеет никаких особенностей и следует закону T^3 [8,10]. В отличие от этого для магнитных шпинелей наблюдаются резко выраженные узкие симметричные максимумы при $T = 13,4$ К ($x = 0,9$) и $T = 14,2$ К ($x = 1,2$). Кроме того, по предварительным данным, в окрестностях этих температур существует гистерезис теплоемкости $C(T)$. В совокупности это позволяет отнести обнаруженный фазовый переход к фазовым переходам первого рода (ФП-I) [11]. Важно отметить, что в обоих случаях значения температур, соответствующих максимуму $C(T)$ и в дальнейшем обозначаемых как $T_1(x)$, превышают величины T_f , которые составляют ~ 9 К для $x = 0,9$ и ~ 12 К для $x = 1,2$ [5,12]. Ниже T_f , как сообщалось в [8], магнитный вклад в теплоемкость линейно изменяется с температурой ($C_m \sim T$), что принято считать одним из признаков неупорядоченных состояний ФСС и СС типов [1,3,7,10]. Таким образом, согласно результатам настоящей работы, в Li–Ga шпинелях с $x = 0,9$ и $x = 1,2$ ФСС состоянию предшествует по температуре неколлинеарное упорядоченное состояние.

С учетом результатов предыдущих исследований [5,8,12] в возвратной области x – T диаграммы системы $\text{Li}_{0,5}\text{Fe}_{2,5-x}\text{Ga}_x\text{O}_4$ для рассматриваемого интервала концентраций $0,9 \leq x \leq 1,2$ картина магнитных превращений при понижении температуры выглядит следующим образом: ПМ \rightarrow коллинеарная

ферромагнитная (ΦM^*) структура \rightarrow локально неколлинеарная ΦM^* структура \rightarrow неколлинеарная упорядоченная ΦM^* структура \rightarrow ФСС. В этой схеме превращений имеется два обычных термодинамических ФП — второго рода в T_c ($\text{ПМ} \rightarrow \Phi\text{M}^*$) и первого рода в T_1 между коллинеарной и неколлинеарной ΦM^* структурами, идентифицируемыми в макроскопическом смысле. Переход в ФСС состояние при $T = T_f$ регистрируется, как обычно, по появлению спин-стекольных свойств и максимуму на температурной зависимости мнимой части динамической восприимчивости $\chi''(T)$ [5,12].

Результаты настоящей работы можно сравнить с результатами компьютерного моделирования, где обычно рассматриваются малые концентрации немагнитных ионов [1–3]. В большинстве случаев в машинных экспериментах для гейзенберговских систем с короткодействием получаются лишь два типа состояний, а именно, коллинеарное ФМ при $T \leq T_c$ и локально неколлинеарное ФМ (коллинеарная в макроскопическом смысле ФМ структура с нарушениями в виде областей локальной неколлинеарности) при дальнейшем понижении температуры вплоть до $T = 0$ К [2,3]. Можно предположить, что обнаруженный нами ФП-I при $T_f < T_1 < T_c$, как и переход в СС состояние при $T_f > 0$ К [13], не может существовать в изотропных гейзенберговских системах с короткодействующим обменом. В реальных же объектах практически всегда присутствует анизотропия, которая, как известно, в большей или меньшей степени влияет на формирование неколлинеарных спиновых структур различных типов [14–16]. В частности, согласно результатам нейтронографических исследований и результатам симметричного анализа, в Li–Ga шпинелях при рассматриваемых концентрациях может существовать неколлинеарная упорядоченная ферромагнитная структура зонтичного типа [17]. Однако структуры такого типа формируются лишь при наличии анизотропии [16].

Таким образом, результаты исследования теплоемкости $C(T)$ разбавленных шпинелей $\text{Li}_{0,5}\text{Fe}_{2,5-x}\text{Ga}_x\text{O}_4$ с $x = 0,9$ и $x = 1,2$, свидетельствующие о наличии при температуре $T_1(x)$ ($T_f(x) < T_1(x) < T_c(x)$) фазового перехода первого рода типа порядок — порядок, существенным образом дополняют сложившиеся представления о температурной эволюции магнитных состояний в возвратной области x – T диаграмм реальных спин-стекольных гейзенберговских систем с

короткодействующим обменом. Они показывают, что на фазовой диаграмме подобных систем должна существовать дополнительная линия $T_1(x)$. В настоящее время мы продолжаем исследования, которые в совокупности с результатами данной работы и [18] позволят полностью определить положение линии $T_1(x)$ на x – T диаграмме Li–Ga шпинелей.

1. K. Binder and A. P. Yuong, *Rev. Mod. Phys.* **58**, 801 (1986).
2. W. M. Saslow and G. Parker, *Phys. Rev. Lett.* **56**, 1074 (1985).
3. J. P. Thomson, Hong Guo, D. H. Ryan, M. J. Zuckermann, and Martin Grant, *Phys. Rev.* **B45**, 3129 (1992).
4. C. Y. Huang, *J. Magn. Magn. Mater.* **51**, 1, (1985).
5. Н. Н. Ефимова, Ю. А. Попков, Н. В. Ткаченко, *ЖЭТФ* **90**, 1413 (1986); *ФНТ* **15**, 1055 (1989); *ФНТ* **16**, 1565 (1990).
6. M. Gabay and G. Toulouse, *Phys. Rev. Lett.* **47**, 201 (1981).
7. И. Я. Коренблит, Е. Ф. Шендер, *УФН* **157**, 267 (1989).
8. Н. Н. Ефимова, С. Р. Куфтерина, А. Г. Андерс, С. В. Старцев, А. М. Гуревич, В. Н. Еропкин, *ФНТ* **24**, 337 (1998).
9. К. П. Белов, *Ферриты в сильных магнитных полях*, Наука, Москва (1972).
10. Н. Н. Ефимова, В. А. Перваков, В. И. Овчаренко, Н. Ю. Тютрюмова, *ФТТ* **35**, 2838 (1993).
11. Р. Уайт, Т. Джебелл, *Дальний порядок в твердых телах*, Мир, Москва (1982).
12. Н. Н. Ефимова, Ю. А. Попков, С. Р. Куфтерина, М. Халиби, В. А. Перваков, В. И. Овчаренко, Н. Ю. Тютрюмова, *ФНТ* **20**, 546 (1994).
13. B. W. Morris, S. G. Colborne, M. A. Moore, A. J. Bray, and J. Canisius, *J. Phys.* **C19**, 1157 (1986).
14. С. В. Вонсовский, *Магнетизм*, Наука, Москва (1971).
15. Dc M. F. Bertaut, *Compt. Rend.* **250**, 85 (1960); *ibid.* **252**, 76 (1961); *ibid.* **252**, 252 (1961).
16. B. Boucher, R. Buhl, and M. Perrin, *Phys. Chem. Solids* **31**, 2251 (1970).
17. V. I. Maltzev, *Phys. Status Solidi* **B128**, 193 (1985).
18. Н. Н. Ефимова, *Письма в ЖЭТФ* **67**, 329 (1998).

Magnetic transformation in the reentrant region of x – T diagram of spin-glass $\text{Li}_{0,5}\text{Fe}_{2,5-x}\text{Ga}_x\text{O}_4$ system

N. N. Efimova, S. R. Kufferina, A. G. Anders, S. V. Startsev, A. M. Gurevich, and V. N. Eroplkin

The temperature dependences of heat capacity C of reentrant $\text{Li}_{0,5}\text{Fe}_{2,5-x}\text{Ga}_x\text{O}_4$ ($x = 0.9; 1.2$) have maxima at $T_1 = 13.4$ К ($x = 0.9$) and 14.2 К ($x = 1.2$). The maxima are typical of the first-order phase transition. The transition is interpreted as a transformation of the collinear ferrimagnetic structure into a noncollinear one which in temperature precedes the state of ferrimagnetic spin glass existing in the region 0 К $< T < T_f$.