

Магнитная и магнито-решеточная динамика в GdMn_2O_5 Е. И. Головенчик¹⁾, В. А. Санина

Физико – технический институт им. А. Ф. Иоффе РАН, 194021 Санкт-Петербург, Россия

Поступила в редакцию 26 июня 2003 г.

В диапазоне частот 20–300 ГГц и интервале температур 5–50 К исследована динамика магнитоэлектрических кристаллов RMn_2O_5 ($R = \text{Eu}$ и Gd), обладающих магнитным и ферроэлектрическим дальним порядком с близкими температурами перехода $T \simeq 36$ К и $T \simeq 30$ К для кристаллов с $R = \text{Eu}$ и Gd , соответственно. В GdMn_2O_5 были обнаружены смешанные магнито-решеточные возбуждения, которые были наиболее интенсивны вблизи температуры перехода $T \simeq 30$ К на частотах, близких к частотам антиферромагнитного резонанса Mn-подсистемы. Во внешнем магнитном поле в GdMn_2O_5 наряду с антиферромагнитным резонансом Mn-подсистемы наблюдался также и ферромагнитный резонанс Gd-подсистемы. В EuMn_2O_5 подобной динамики не наблюдалось.

PACS: 75.47.Lx, 76.50.+g, 77.80.–e

Кристаллы RMn_2O_5 (R – редкоземельные ионы от Rг до Lu, Y или Bi) являются магнитоэлектриками, обладающими одновременно антиферромагнитным и ферроэлектрическим дальним порядком с близкими температурами Нееля и Кюри $T_{N,C} \simeq 30$ –40 К (при комнатной температуре простр. группа $Pbam$). В ряде кристаллов с различными R-ионами ранее были изучены магнитные, диэлектрические, магнитоэлектрические свойства [1–6], а также проведены нейтронные исследования [7, 8]. При температурах $T \leq T_N$ в RMn_2O_5 обычно реализуется несоразмерная магнитная структура с вектором распространения $\mathbf{k} = (1/2, 0, z)$, где величина $z \simeq 0.3$ –0.38 и зависит от типа R-иона. Вблизи температур 15–20 К в этих кристаллах имеется еще один фазовый переход, при котором изменяются магнитные и структурные свойства.

В настоящей работе приведены результаты изучения динамических свойств RMn_2O_5 с немагнитным в основном состоянии 7F_0 ионом Eu^{3+} и ионом Gd^{3+} ($^8S_{7/2}$), обладающим максимальным спиновым моментом среди R-ионов. Динамика кристаллов с $R = \text{Eu}$ и Gd оказалась существенно различной. Приводятся также результаты магнитных и диэлектрических исследований GdMn_2O_5 .

В EuMn_2O_5 реализуется несоразмерная антиферромагнитная структура и ферроэлектрическое упорядочение с близкими температурами Нееля и Кюри $T_{N,C} \simeq 36$ К [3, 8]. В GdMn_2O_5 антиферромагнитное упорядочение возникает в Mn-подсистеме при температуре, близкой к значению T_N в EuMn_2O_5 , но вблизи температуры $T \simeq 30$ К имеется добавочный фазо-

вый переход [6]. Как следует из результатов данной работы, в низкотемпературной фазе GdMn_2O_5 (при $T \leq 30$ К) реализуются однородные магнитное (антиферромагнитное в Mn- и ферромагнитное в Gd-подсистемах) и ферроэлектрическое упорядочения.

Динамические исследования проводились на квази-оптическом спектрометре (в схеме на проход). В качестве источника излучения использовались лампы обратной волны, в качестве приемников – охлаждаемые жидким гелием детекторы на основе InSb. Монокристаллы выращивались методом спонтанной кристаллизации, описанным в [2], и представляли собой хорошо ограниченные параллелепипеды с размерами $5 \times 4 \times 4$ мм, из которых вырезались пластинки толщиной ~ 0.5 мм, перпендикулярные осям кристалла $\mathbf{a}, \mathbf{b}, \mathbf{c}$. Пластинки располагались развитой плоскостью перпендикулярно направлению распространения электромагнитной волны. При этом переменные электрическое и магнитное (\mathbf{e} и \mathbf{h} , соответственно) поля ориентированы в плоскости образца. Постоянное магнитное поле H_0 величиной до 2 Тл прикладывалось также в плоскости образца. При фиксированных частотах и температурах изучались зависимости от магнитного поля относительного коэффициента поглощения $\Gamma_{F,T} = 1 - P(H) / P_{\max}$, где $P(H)$ и P_{\max} – мощности СВЧ сигналов, прошедшие через образец при текущем значении поля, и том его значении, при котором наблюдалось максимальное прохождение. Кроме того, в отсутствие магнитного поля, при фиксированных частотах, изучались также температурные зависимости относительного коэффициента поглощения $\Gamma_F = 1 - P(T) / P_{\max}$. Из зависимостей $\Gamma_{F,T}(H_0)$ и $\Gamma_F(T)$ строились частотные и полевые зависимости коэффициента поглощения при

¹⁾e-mail: e.golovenchits@mail.ioffe.ru

фиксированных температурах (спектры магнитных резонансов).

Резонансные поглощения при развертке магнитного поля наблюдались лишь в $GdMn_2O_5$ и только при ориентации $H_0 \parallel a$ (см. рис.1). Видны два харак-

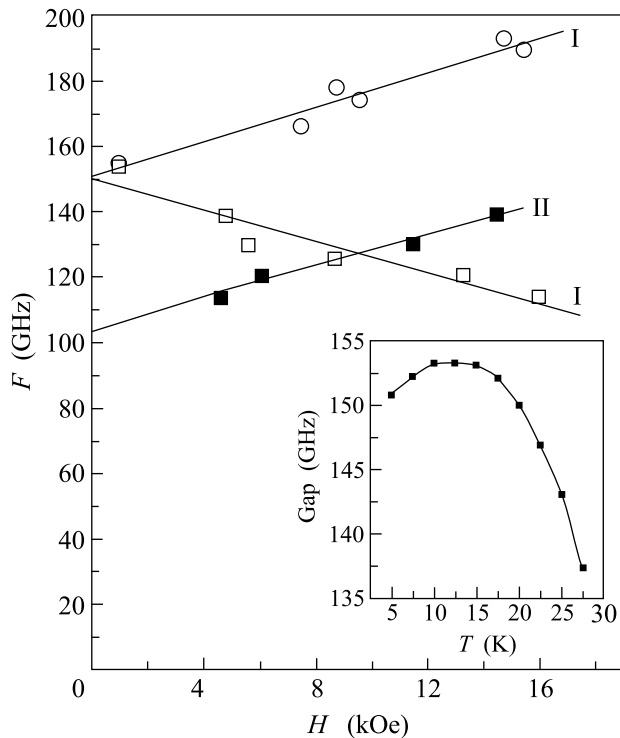


Рис.1. Зависимость частоты магнитных резонансов от внешнего магнитного поля H_0 , ориентированного вдоль оси a пластинки $GdMn_2O_5$ с развитой плоскостью ac (образец 2 по классификации рис.2). $h \parallel c$. $T = 5$ К. На вставке: Температурная зависимость щели для спектра I

терных спектра со щелями 150 ГГц (I) и 100 ГГц (II), линейно зависящих от величины поля. Из вставки к рис.1 видно, что при повышении температуры величина щели спектра I падает, достигая при $T \approx 30$ К 130 ГГц. Отметим, что температурные зависимости интенсивности сигналов I и II различны. Для сигналов I интенсивность изменяется с температурой как параметр порядка с критической температурой ~ 40 К, для сигналов II – значительно более резко падает с ростом температуры, стремясь к нулю при $T \approx 30$ К.

В отличие от магнитных резонансов, интенсивность которых падала при приближении к температуре ~ 30 К, в отсутствие внешнего магнитного поля наблюдались также линии поглощения, зависимость интенсивности от температуры для которых имела максимум при $T \approx 30$ К. Вид $\Gamma(T)$ при этом зави-

сел от ориентации переменного электрического поля относительно осей a, b, c кристалла (см. рис.2). По-

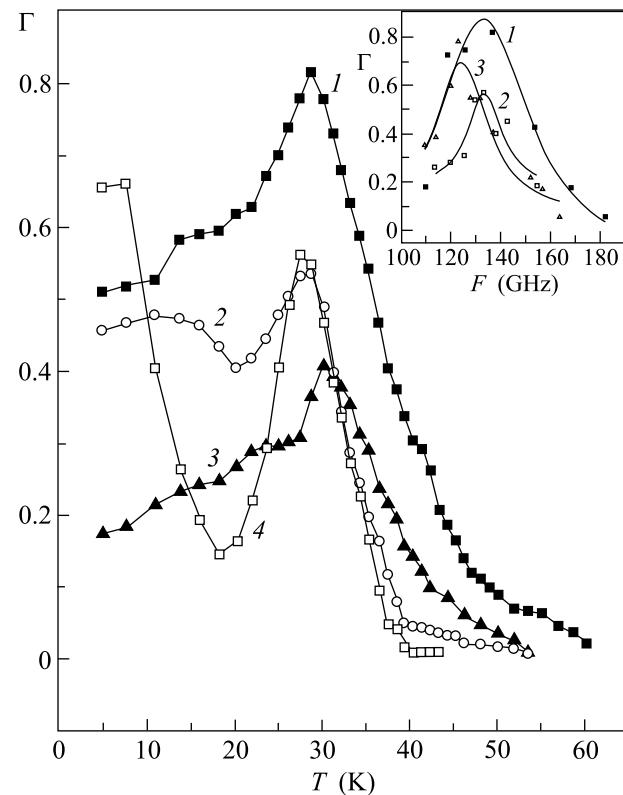


Рис.2. Зависимость от температуры относительного коэффициента поглощения Γ при $H_0 = 0$ для образцов $GdMn_2O_5$: 1 – с развитой плоскостью ab , $e \parallel a$, частота $F = 137$ ГГц; 2 – плоскость ac , $e \parallel a$, частота $F = 129.9$ ГГц; 3 – плоскость ab , $e \parallel b$, частота $F = 135.1$ ГГц; 4 – плоскость bc , $e \parallel c$, частота $F = 132.1$ ГГц. На вставке: Зависимость величины Γ в максимуме линии поглощения от частоты вблизи температуры $T = 30$ К для образцов 1, 2 и 3

видимому, эти линии обусловлены динамикой решетки вблизи фазового перехода при $T \approx 30$ К и возбуждаются главным образом переменным электрическим полем. Для линий поглощения вблизи $T \approx 30$ К наблюдался температурный гистерезис. Интенсивность линий зависела от частоты и была максимальной вблизи 130 ГГц (см. вставку к рис.2). Обращает на себя внимание факт близости этой частоты с величиной щели магнитных резонансов (сигналов I) при $T \sim 30$ К (см. вставку к рис.1). На линии электрической природы с максимумом поглощения вблизи $T \sim 30$ К также влияло внешнее магнитное поле (см. рис.3). Наиболее отчетливым это влияние было при ориентации $H_0 \parallel a$. При этом максимум поглощения

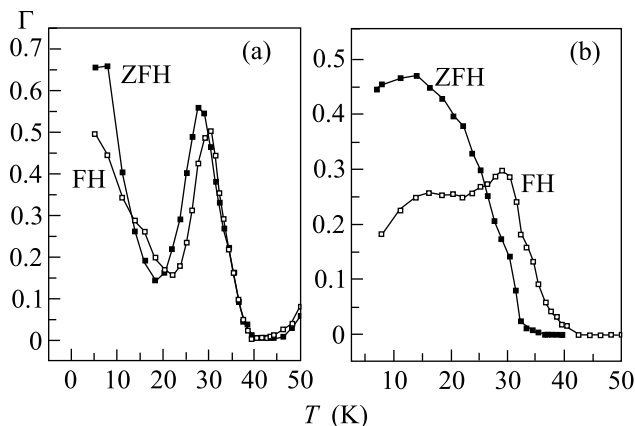


Рис.3. Те же зависимости, что на рис.2 для образцов 4 (a) и 1 (b), снятые как при $H_0 = 0$ в режиме медленного нагрева (ZFH) после предварительного медленного остывания до $T \approx 5$ К, так и в режиме медленного нагрева в магнитном поле $H_0 \neq 0$ (FH). Магнитное поле прикладывалось при $T = 5$ К. Для образца 4 – $H_0 = 1.6$ Тл, $H_0 \parallel c$, частота $F = 132.1$ ГГц. Для образца 1 – $H_0 = 1.86$ Тл, $H_0 \parallel a$, частота $F = 168.5$ ГГц

смещался к частоте, соответствующей частоте сигнала I при данном значении магнитного поля.

Близость частот линий магнитных резонансов (I) и линий поглощения электрической природы, а также влияние на последние магнитного поля H_0 говорят о том, что эти линии имеют смешанный магнито-решеточный характер. Как видно из рис.2, линии с максимальным поглощением вблизи 30 К не полностью разрешены с линиями магнитных резонансов и при низких температурах, так что и низкотемпературные возбуждения также в некоторой степени имеют смешанный характер.

В EuMn_2O_5 в широком диапазоне частот 30 – 300 ГГц наблюдались слабоинтенсивные сигналы поглощения вблизи температуры 36 – 40 К, соответствующей фазовому переходу в несоразмерное магнитное и ферроэлектрическое состояния. Эти линии поглощения практически не зависели от магнитного поля и частоты.

Результаты магнитных и диэлектрических исследований GdMn_2O_5 представлены на рис.4. Видно, что вблизи 30 К имеет место максимум действительной части диэлектрической восприимчивости (Real ϵ), аналогичный тому, который в EuMn_2O_5 наблюдался вблизи 36 К [2, 3]. Принимая во внимание также исследования магнитоэлектрической восприимчивости и пиротока [4] можно утверждать, что наблюдаемая аномалия диэлектрической восприимчивости характеризует переход в ферроэлектрическое состояние с поляризацией вдоль оси **b**. Максимум

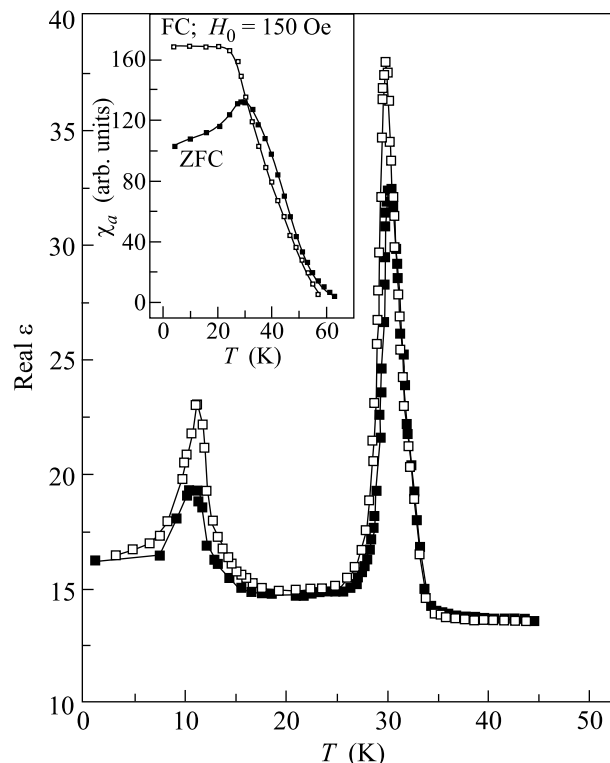


Рис.4. Зависимость действительной части диэлектрической восприимчивости от температуры для GdMn_2O_5 на частоте 10 кГц при ориентации $e \parallel b$. Черные точки сняты при нагреве образца, а светлые – при его охлаждении. На вставке: температурная зависимость магнитной восприимчивости (в произвольных единицах) для GdMn_2O_5 . Частота 10 кГц, $h \parallel a$, $h \approx 4$ Э. Кривые сняты в режиме охлаждения образца при отсутствии внешнего магнитного поля (ZFC) и в поле $H_0 \approx 40$ Э, $H_0 \parallel a$ (FC)

Real ϵ при $T \approx 30$ К в GdMn_2O_5 имелся при ориентации e вдоль всех главных осей кристалла, но при $e \parallel b$ величина скачка была на два порядка больше. На вставке к рис.4 представлена магнитная восприимчивость GdMn_2O_5 , снятая индукционным методом. Видно, что при ориентации $h \parallel a$ температурная зависимость восприимчивости имеет ферромагнитный характер. Она насыщается в слабом магнитном поле и падает, начиная с температуры ~ 30 К, обнаруживая при этом хвост, затянутый до более высоких температур. Мы полагаем, что эта восприимчивость характеризует Gd-подсистему, находящуюся в подмагничивающем поле Mn-подсистемы.

Обращаясь к интерпретации результатов по динамике, отметим, что вид спектров магнитных резонансов I на рис.1 характерен для антиферромагнитного резонанса (АФМР) антиферромагнетиков с анизотропией типа “легкая ось” в случае, когда маг-

нитное поле параллельно этой оси (в нашем случае оси \mathbf{a} кристалла). Как известно, в этом случае зависимость частот АФМР от магнитного поля имеет вид $\omega_{1,2} = \sqrt{2H_E H_A} \pm \gamma H_0$, где H_E , H_A – обменное поле и поле анизотропии, соответственно, а величина γ – гиромангнитное отношение. Для спектра I величина $\gamma \simeq 2.75 \pm 0.15$ и соответствует значению g -фактора, близкому к 2. Естественно отнести эти сигналы к антиферромагнитной подсистеме ионов Mn. Для сигналов II зависимость $\omega(H_0)$ имеет вид $\omega = \Delta\omega + \gamma H_0$ с тем же линейным наклоном от поля, что и для спектра I, соответствующим спиновому значению $g \simeq 2$. Мы относим этот спектр к подсистеме ионов Gd. При этом щель $\Delta\omega$, видимо, индуцирована эффективным обменным полем от взаимодействия Mn–Gd. Учитывая данные по магнитной восприимчивости и большую интенсивность сигналов II, мы относим их к ферромагнитному резонансу (ФМР) Gd-подсистемы. Характер наблюдаемых АФМР и ФМР свидетельствует о том, что магнитное состояние кристалла GdMn_2O_5 при $T \leq 30$ К является однородным. Напомним, что в кристаллах RMn_2O_5 с другими R-ионами обычно реализуется несоразмерная магнитная структура.

Нейтронные исследования EuMn_2O_5 [8] показали, что в этих кристаллах при $T \simeq 30$ К имеется добавочный фазовый переход из несоразмерной в соизмеримую пространственно-модулированную магнитную структуру с вектором $\mathbf{k} = (1/2, 0, 1/3)$. В работе [9] в EuMn_2O_5 вблизи $T \simeq 30$ К в сильном магнитном поле $H_0 \simeq 20$ Тл, ориентированном вдоль оси \mathbf{c} , наблюдался фазовый переход из пространственно-модулированной в однородную антиферромагнитную структуру, сопровождающийся скачком поляризации и появлением линейного магнитоэлектрического эффекта.

Мы полагаем, что в GdMn_2O_5 однородное ферромагнитное упорядочение Gd-подсистемы вблизи температуры 28–30 К возникает за счет поляризационного Gd–Mn–Gd обмена [10]. В этом случае на Mn-подсистему действует эффективное однородное обменное поле со стороны Gd-подсистемы. Максимальный вклад в поляризационный обмен изотропен [10] и компонента этого поля вдоль оси \mathbf{c} кристалла, возможно, приводит к однородному антиферромаг-

нитному состоянию в Mn-подсистеме (аналогично переходу в EuMn_2O_5 в сильном внешнем магнитном поле [9]). Отметим, что структурный фазовый переход (возникновение ферроэлектрического упорядочения) в GdMn_2O_5 смещен по температуре в сторону более низких температур по сравнению с кристаллами RMn_2O_5 с другими R-ионами. Он происходит одновременно с возникновением однородных магнитных состояний в Mn- и Gd-подсистемах. Благодаря однородному магнитному состоянию в GdMn_2O_5 наблюдается сильный линейный МЕ-эффект [6] и сильная связь магнитных и структурных состояний, приводящая к смешанной динамике, обнаруженной и изученной в данной работе.

Таким образом, наличие в кристаллах манганитов RMn_2O_5 магнитных R-ионов с достаточно сильным поляризационным обменным взаимодействием R–Mn–R существенно влияет как на магнитные, так и магнитоэлектрические и структурные свойства.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант #02-02-16140а) и частичной поддержке Программы “Фундаментальные исследования” (грант “Квантовая макрофизика”) и Программы Отделения физических наук РАН.

1. S. C. Abrahams and J. L. Burnstein, Phys. Rev. **46**, 3776 (1967).
2. В. А. Санина, Л. М. Сапожникова, Е. И. Головенчиц и др., ФТТ **30**, 3015 (1988).
3. Е. И. Головенчиц, В. А. Санина и А. В. Бабинский, ЖЭТФ **112**, 284 (1997).
4. T. Doi and K. Kohn, PhaseTrans. **38**, 273 (1992).
5. A. Inomata and K. Kohn, J. Phys.: Condens. Matter **8**, 2673 (1996).
6. H. Tsujino and K. Kohn, Sol. St. Comm. **83**, 639 (1992).
7. C. Wilkinson, F. Sinclair, P. Gardner et al., J. Phys. C: Solid State Phys. **14**, 1671 (1981).
8. V. Polyakov, V. Plakhty, M. Bonnet et al., Physica **B297**, 208 (2001).
9. Yu. F. Popov, A. M. Kadomtseva, G. P. Vorob'ev et al., JMMM **188**, 237 (1998).
10. Е. И. Головенчиц и В. А. Санина, ФТТ, **26**, 1640 (1984).