

## ФАЗОВЫЙ ПЕРЕХОД ПЕРВОГО РОДА В ВОЗВРАТНОЕ СОСТОЯНИЕ В РАЗБАВЛЕННОМ АНИЗОТРОПНОМ ФЕРРИМАГНЕТИКЕ

*Н.Н.Ефимова, Ю.А.Попков, С.Р.Куфтерина*

*Харьковский государственный университет*

*310077 Харьков, Украина*

Поступила в редакцию 6 августа 1996 г.

Проведено исследование температурной зависимости магнитного вклада в теплоемкость анизотропного возвратного ферримагнетика  $\text{Li}_{0.475}\text{Co}_{0.05}\text{Fe}_{1.575}\text{Ga}_{0.9}\text{O}_4$  с температурой замерзания  $T_f = 80$  К. Установлено, что как при  $T < T_f$ , так и при  $T > T_f$  вплоть до  $T \sim 150$  К  $C_m(T)$  описывается законом спиновых волн  $T^{3/2}$ , но при  $T = T_f$  на зависимости  $C_m(T^{3/2})$  наблюдается аномалия, имеющая черты, характерные для термодинамического фазового перехода первого рода.

PACS: 75.50.Lk

В физике спиновых стекол (СС) большое внимание уделяется так называемым возвратным (reentrant) системам, где при понижении температуры первоначально происходит обычный термодинамический фазовый переход в точке Кюри  $T_c$ , например, парамагнетик – ферримагнетик (ПМ – ФМ), а затем ниже температуры замерзания  $T_f$ , в присутствие спонтанной намагниченности  $\sigma_s \neq 0$  появляются свойства, характерные для СС [1, 2]. Такое состояние принято называть смешанным или ферримагнитным спиновым стеклом (ФСС). В настоящем сообщении представлены результаты исследования магнитной части теплоемкости  $C_m(T)$  возвратного ферримагнетика  $\text{Li}_{0.475}\text{Co}_{0.05}\text{Fe}_{1.575}\text{Ga}_{0.9}\text{O}_4$  (Li-Ga-Co). Здесь в состав слабоанизотропной Li-Ga шпинели были введены малые (1.7 мол.%) стехиометрические добавки ионов  $\text{Co}^{2+}$ . Присутствие ионов  $\text{Co}^{2+}$  в шпинелях, как известно, на порядок и более увеличивает константу кристаллографической кубической анизотропии  $K_1$  и изменяет ее знак [3]. Задача исследований возникла в силу следующего.

Вопрос о существовании перехода при конечной температуре  $T_f$  в состояние СС (ПМ – СС) или смешанное (ФМ – ФСС) в изотропных гейзенберговских магнетиках с короткодействием является дискуссионным, что, помимо прочего, связано с результатами компьютерного моделирования, которые устойчиво дают отрицательный результат [1, 2, 4, 5]; В противоположность этому экспериментально существование  $T_f > 0$  К для обоих типов переходов, как и в классических СС с дальнедействующим РККИ обменом, хорошо определяется по появлению при  $T \leq T_f$  характерных феноменологических признаков [1, 2, 6, 7]. После работ [8, 9] стало традиционным объяснять это противоречие присутствием в реальных СС-системах анизотропии. Согласно [8], величина  $T_f$  уже при наличии даже малой анизотропии становится конечной, причем в приближении, когда обмен сильнее релятивистских взаимодействий,  $T_f$  определяется в основном обменом и очень слабо зависит от величины анизотропии. Можно также предположить, что учет анизотропии "легализует" и переход ФМ – ФСС, но конкретные данные по этому вопросу отсутствуют. Кроме главной проблемы – действительно ли ФСС является самостоятельной магнитной фазой, нет единого мнения и по поводу структуры состояний как при

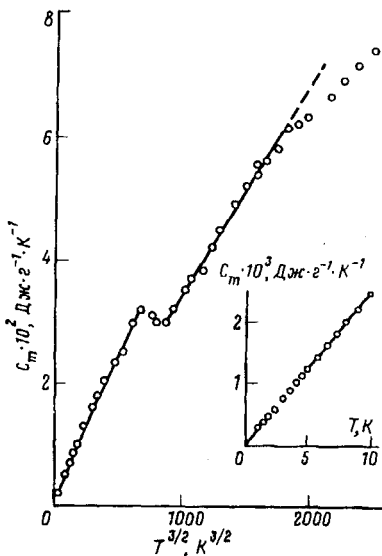
$T < T_f$ , так и при  $T > T_f$ , а вследствие этого, и о механизмах, посредством которых формируется ФСС-состояние.

Результаты исследования концентрационных фазовых  $X-T$ -диаграмм разбавленных слабоанизотропных шпинелей  $\text{Li}_{0.5}\text{Fe}_{2.5-x}\text{Ga}_x\text{O}_4$  ( $\text{Ga}_x\text{S}$ ) и высокоанизотропных гексагональных ферримагнетиков  $\text{BaFe}_{12-x}\text{Ga}_x\text{O}_4$  ( $\text{Ga}_x\text{M}$ ) показали, что роль анизотропии в формировании ФСС-состояний может быть гораздо более активной, чем для СС [7]. В смысле обменного взаимодействия обе системы, хотя и не полностью эквивалентны, но близки, и идентичность их фазовых диаграмм (совпадение в сечении  $T = 4.2\text{K}$  концентрационных границ однотипных магнитных состояний), на первый взгляд, ясно указывает на то, что в формировании всех типов состояний, включая ФСС и СС, доминирует обмен. Следовательно, обменом должны определяться и критические температуры  $-T_c$  и  $T_f$ . Однако линии  $T_f$  на  $X-T$ -диаграмме для  $\text{Ga}_x\text{M}$  расположены гораздо выше, чем для  $\text{Ga}_x\text{S}$ , причем отличие в окрестностях  $X_0$  (мультикритическая точка) составляет более 100 К. При  $X > X_0$  (СС-область) разность значений  $T_f$  с ростом  $X$  довольно резко сокращается, что в известной степени подтверждает выводы [8].

Чтобы проверить, связано ли повышение  $T_f$  с присутствием сильной анизотропии, мы синтезировали более простую, чем  $\text{Ga}_x\text{M}$ , анизотропную модельную систему, введя стехиометрические добавки  $\text{Co}^{2+}$  в шпинель  $\text{Li}_{0.5}\text{Fe}_{1.6}\text{Ga}_{0.9}\text{O}_4$ . Исследования магнитных свойств исходного и кобальтированного образцов показали, что за счет введения  $\text{Co}^{2+}$  (1.7 мол.%) значение  $T_f$  увеличилось от 9 К ( $\text{Ga}_x\text{S}$ ) до 80 К [10], тогда как в системе  $\text{Ga}_x\text{S}$  при любом разбавлении температура замерзания не превышает 40 К [7]. В кобальтированном образце переход в ФСС-состояние проявляется как обычно, то есть в виде возникновения при  $T \leq T_f = 80\text{K}$  долговременной логарифмической релаксации неравновесной намагниченности  $-\sigma_{zfc}(t) \sim S \ln t$ , где  $S$  — коэффициент магнитной вязкости;  $S \rightarrow 0$  при  $T \rightarrow 0$  и обращается в нуль при  $T \geq T_f(H)$  [7, 10]. Неравновесная намагниченность  $\sigma_{zfc}$ , как обычно, измерялась в режиме, соответствующем предварительному охлаждению образца до  $T = 4.2\text{K}$  (то есть до  $T < T_f$ ) в отсутствие поля и последующему отогреву при заданном значении  $H \neq 0$ . Линии критического поведения  $-T_f(H)$ , определенные по обращению в нуль коэффициента магнитной вязкости  $S_H(T)$ , соответствуют линии Алмейда-Таулесса в малых полях и Габе-Тулуза в больших, как и в других исследованных нами разбавленных ферримагнитных системах [7, 10]. В целом СС-поведение в кобальтсодержащем образце выражено сильнее, чем в исходном, — шире области существования как по температуре, так и по полю. Вместе с тем, свойства, характеризующие дальний ФМ порядок, изменяются незначительно, что свидетельствует о слабом влиянии малых добавок  $\text{Co}^{2+}$  на обмен. Так  $T_c$  понижается только на 60 К — от 690 К до 630 К, в обоих случаях при 4.2 К  $\sigma_s \sim 42\text{Гс}\cdot\text{см}^3\cdot\text{г}^{-1}$  [10]. Исследование  $C_m(T)$  Li — Ga — O-шпинелей были проведены с целью получения дополнительной информации о свойствах и механизмах формирования ФСС-состояний в гейзенберговских системах с короткодействием в присутствии сильной анизотропии. В частности, задачей эксперимента было определение наличия (отсутствия) признаков обычных термодинамических фазовых переходов (ФП) в интервале температур (4.2 — 200) К. Такие ФП могут существовать, если ФСС по температуре предшествует (при  $T > T_f$ ) неколлинеарное ФМ состояние [1, 2, 4]. Используемая в работе методика измерения  $C_m(T)$  аналогична [11], там же обсуждался вопрос

о корректности способа выделения  $C_m(T)$ ; методы приготовления поликристаллических образцов и проверки их однофазности описаны в [6, 10].

Полученные результаты представлены на рисунке, где для сравнения (на вставке) приведена также зависимость  $C_m(T)$  для исходного образца. Эти данные были получены с использованием методики [12]. В области температур  $T < 10$  К фоннный вклад пренебрежимо мал [11] и, поскольку рассматриваемые соединения являются диэлектриками, общая теплоемкость определяется исключительно магнитным вкладом. Видно, что при  $T < T_f = 9$  К  $C_m(T) \sim T$ , что типично для неупорядоченных состояний типа СС [1, 2, 11]. Особенности поведения в  $C_m(T)$  исходного образца при  $T > T_f$  описаны в [6]. В отличие от этого, как видно из данных рисунка, для кобальтированного образца  $C_m(T) \sim T^{3/2}$  вплоть до  $T \sim 150$  К, то есть магнитный вклад в теплоемкость обусловлен спиновыми волнами с квадратичным законом дисперсии. Отметим, что хотя при  $T < T_f$  поведение  $C_m \sim T^{3/2}$  нетипично для СС- или ФСС-состояний, наши данные не являются единственным исключением из правил. Например, о таком же поведении СС  $\text{GdAl}_2$  сообщалось в [13].



Температурная зависимость магнитного вклада в удельную теплоемкость возвратного ферримагнетика  $\text{Li}_{0.475}\text{Co}_{0.05}\text{Fe}_{1.575}\text{Ga}_{0.9}\text{O}_4$  в координатах  $C_m - T^{3/2}$ . На вставке - зависимость  $C_m(T)$  исходной шпинели  $\text{Li}_{0.5}\text{Fe}_{1.6}\text{Ga}_{0.9}\text{O}_4$

Другой интересный результат заключается в том, что при температуре  $T = 80$  К, которая согласно результатам исследования долговременной логарифмической релаксации намагниченности  $\sigma_{zfc}$  является температурой замерзания для ФСС-состояния при  $H = 0$ , наблюдается аномалия на зависимости  $C_m(T^{3/2})$ . Это явно указывает на наличие при  $T = 80$  К обычного термодинамического перехода. Как видно из рисунка, при переходе через  $T = 80$  К изменяется наклон прямых  $C_m(T^{3/2})$ , что можно интерпретировать как изменение константы спин-волновой жесткости  $D$ . При этом для  $T < 80$  К значения  $D$  ниже, чем в высокотемпературной области. Если учесть, что константа  $D$  пропорциональна среднему значению  $z$ -проекции намагниченности, то ее изменение при переходе через  $T = 80$  К, вероятнее всего, связано со скачком намагниченности при этой температуре, то есть аномалия, обнаруженная на зависимости  $C_m(T^{3/2})$ , соответствует фазовому переходу первого рода.

Таким образом, в результате комплексного исследования магнитных [10] и тепловых свойств кобальтированной Li – Ga-шпинели непосредственно установлено, что в присутствии сильной анизотропии не только значительно повышается температура замерзания ФСС-состояния, но и переход ФМ – ФСС при  $T = T_f$  имеет черты обычного термодинамического фазового перехода.

Подобный результат, насколько нам известно, получен впервые. Он интересен прежде всего тем, что с очевидностью свидетельствует о необходимости учета анизотропии при рассмотрении вопросов, относящихся к выяснению природы и специфики смешанных состояний. В частности, из полученных нами данных следует, что, по крайней мере, в присутствии сильной анизотропии переход ФМ – ФСС может происходить по типу термодинамического ФП между коллинеарной и неколлинеарной ФМ структурами, и при этом сопровождаться появлением свойств, характерных для СС.

В заключение выражаем благодарность В.А.Первакову, Н.Ю.Тютрюмовой и В.И.Овчаренко за сотрудничество в проведении экспериментов.

- 
1. K.Binder and A.P.Yuang, *Rev. Mod. Phys.* **58**, 801 (1986).
  2. И.Я.Коренблит, Е.Ф.Шендер, *УФН* **157**, 267 (1989).
  3. J.C.Slonczewski, *Phys. Rev. B* **110**, 1341 (1958).
  4. W.M.Saslow and G.Parker, *Phys.Rev. Lett.* **56**, 1074 (1986).
  5. J.R.Thomson, Hong Guo, D.Y.Ryan et al., *Phys. Rev. B* **45**, 3129 (1992).
  6. Н.Н.Ефимова, Ю.А.Попков, С.Р.Куфтерина и др., *ФНТ* **20**, 546 (1994).
  7. Н.Н.Ефимова, Ю.А.Попков, Н.В.Ткаченко, *ФНТ* **15**, 1055 (1989); **16**, 1565 (1990).
  8. V.W.Morris, S.G.Colborne, M.A.Moore et al., *J. Phys. C* **19**, 1157 (1986).
  9. P.Beauvillain, J.P.Renard, M.Malecki M, and J.J.Prejcan, *Europhys. Lett.* **2**, 23 (1986).
  10. Н.Н.Ефимова, С.Р.Куфтерина, *ФНТ* **20**, 338 (1994).
  11. Н.Н.Ефимова, В.А.Перваков, В.И.Овчаренко, *ФТТ* **35**, 2838 (1994).
  12. Э.А.Андерс, Б.Я.Сухаревский, И.А.Волчок, *Теплофизические свойства веществ и материалов*, М.: Изд. стандартов, (1976), с.72.
  13. J.M.D.Coe, S.von Molnar, and R.J.Gambino, *Sol. Stat. Comm.* **24**, 167 (1977).