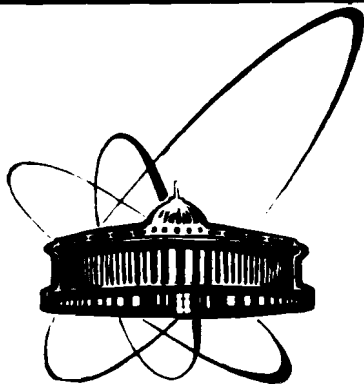


89-578



ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
ДУБНА

P14-89-578

Г 303

Д.Георгиев, Ким Чир Сен, С.Низиол,
В.В.Нитц, А.А.Яковлев

АНОМАЛЬНОЕ ПОВЕДЕНИЕ Cr_2O_3
ПРИ СПИН-ФЛОП ПЕРЕХОДЕ

Направлено в журнал "Europhysics Letters"

1989

Введение

Cr_2O_3 - коллинеарный антиферромагнетик с ромбоэдрической атомной структурой, с магнитными моментами, направленными по ромбоэдрической оси, $T_N = 306$ К. В магнитном поле, параллельном этой оси, происходит спин-флоп переход - фазовая диаграмма показана на рис.1 /1/.

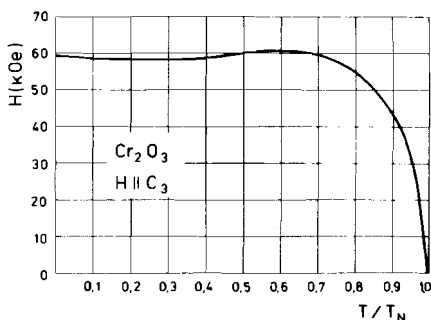


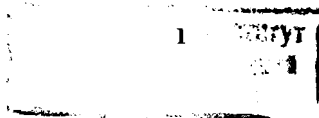
Рис.1. Фазовая диаграмма Cr_2O_3 в магнитном поле, направленном вдоль ромбоэдрической оси /1/.

В данной работе приведены результаты нейтронографического изучения этого перехода в монокристаллическом образце при действии импульсного магнитного поля.

1. Методика

Измерения выполнены на пучке реактора ИБР-2. Для этого использовался спектрометр СНИМ-2 /2,3/, предназначенный для исследования методом времени пролета состояний и процессов, индуцированных в магнитоупорядоченных веществах импульсным магнитным полем.

Монокристаллический образец Cr_2O_3 имеет размеры приблизительно $5 \times 5 \times 6$ мм. После пространственной ориентации на гониометре он был приклеен эпоксидной смолой к нижнему концу алундового теп-



ловода азотного криостата /4/. Импульсный магнит типа МИТ /3/ с горизонтальным направлением магнитного поля вместе с азотным криостатом помещался в центр дифрактометра НД-3. Криостат можно вращать вместе с образцом вокруг вертикальной оси, которая параллельна оси $[10\bar{1}]$ кристалла. В любом случае производилась такая относительная ориентация магнита, криостата с образцом, первичного пучка и детектора, что поле было перпендикулярно плоскости (222) с точностью около 45° в горизонтальной плоскости и 10° - в вертикальной. По теоретическим оценкам неоднородность осевой компоненты магнитного поля в объеме образца не превышает 1%, а радиальная

2. Экспериментальные результаты

На рис.2а показана нейтрограмма I_0 дифракционного отражения (444), полученная при угле рассеяния $2\theta = 170^\circ$ и температуре 147 К. При этом длительность измерения равна 15 мин (при $f = 5 \text{ с}^{-1}$), но эта нейтрограмма и все последующие приведены к 30 мин. На этом же рисунке показана зависимость магнитного поля от времени, причем импульс поля и дифракционный пик совмещены с учетом времени пролета нейтронов от образца детектора. Ширина временного канала, номер которого отложен по горизонтальной оси, $\tau = 8 \text{ мкс}$.

Далее, на рис.2б представлены разностные нейтрограммы $(I_H - I_0)$ для указанного ряда значений амплитуды H_m магнитного поля. Нейтрограммы показаны в хронологическом порядке, все они были получены при $f = 5/2 \text{ с}^{-1}$, причем для № 1-3 фактическая длительность измерений равна 60 мин, для №4 и №5 - по 30 мин, №6 - 15 мин.

Между первоначальным измерением I_0 (при $H = 0$) и тем, которое под номером 1, были измерены нейтрограммы при $H = 61, 64, 67, 70, 73 \text{ кЭ}$, но соответствующие разности $(I_H - I_0)$ в среднем близки к нулю и поэтому здесь не приводятся.

На рис.3 представлен ряд разностных нейтрограмм отражения (242) при $2\theta = 90^\circ$, $T = 147 \text{ К}$ для указанной последовательности

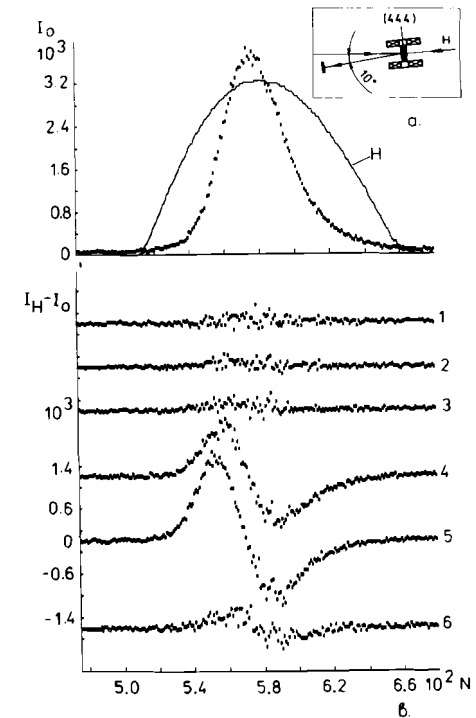


Рис.2. а) Нейтрограмма I_0 отражения (444) при $T = 147 \text{ К}$, $2\theta = 170^\circ$ и положение импульса магнитного поля.

Здесь же показана геометрия этого измерения.

б) Последовательность разностных нейтрограмм $(I_H - I_0)$

при ряде значений амплитуды магнитного поля:

1 - $H_m = 76 \text{ кЭ}$, 2 - 80 кЭ, 3 - 83 кЭ, 4 - 89 кЭ,

5 - 95 кЭ, 6 - 98 кЭ.

значений H_m . Нейтрограммы пронумерованы в хронологическом порядке. Причем, как и для (444), сначала был получен спектр $I_0(H=0)$ для (242) и эта нейтрограмма вычиталась из всех последующих, полученных в магнитном поле.

Для перехода от (444) к отражению (242) необходимо было изменить угол между направлением поля и первичным пучком. В обоих слу-

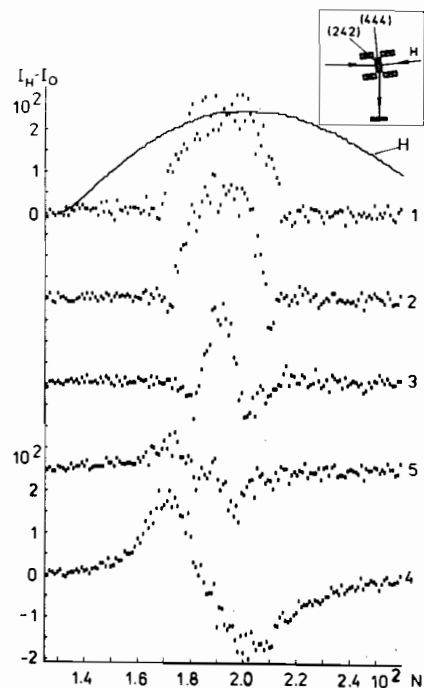


Рис.3. Последовательность разностных нейтронограмм ($I_n - I_0$), полученных для отражения (242) при $T = 147$ К, $2\theta = 90^\circ$ со следующими значениями амплитуды поля: 1 - 92 кЭ, 2 - 86 кЭ, 3 - 80 кЭ, 4 - 76 кЭ, 5 - 78 кЭ.

чаях, (444) и (242), стремились обеспечить строгую перпендикулярность поля к плоскости (222). Но точность воспроизведения направленного компонента в этом же объеме не превышает 1% от осевой. Импульсы магнитного поля имеют форму полупериода синусоиды (с некоторым затуханием). Длительность их около 1100 мкс. Магнит предварительно был проградуирован. Импульс магнитного поля измерялся индукционным датчиком-катушкой диаметром 10 мм с 30,5 витками медного провода толщиной 0,16 мм. Этот датчик при градуировке вводился в центр магнита вместо образца. Величина и форма импульса тока при

градуировке и в процессе физических измерений регистрировались стандартным токовым трансформатором (ТНШЛ-5000/5). Причем градуировка, т.е. определение зависимости $I(H)$, производилась до значений тока, превышающих 30 кА. Во всем измеряемом диапазоне (0-30 кА) сохраняется пропорциональность между H и I с коэффициентом 3,8 Э/А. Расчетная величина этого коэффициента равна 3,7 Э/А.

Температура образца автоматически поддерживалась постоянной с точностью 1%. Разность температур между различными точками образца не превышала 1,5 К.

Расстояние от образца до детектора $L_2 = 2,125$ м, эффективная толщина рабочего объема детектора $\delta L_2 \approx 0,02$ м. Мозаичность образца существенно меньше угловой расходимости $\Delta\theta_K$ первичного пучка нейтронов для тех длин волн, при которых производились измерения. Временное разрешение записывается следующим образом ^{/5/}:

$$\Delta t = T_2 \sqrt{\left(\frac{\delta L_2}{L_2}\right)^2 + \left(\frac{\Delta\theta_K}{\tan\theta_0}\right)^2}$$

где $T_2 = 253 \cdot \lambda_0 \cdot L_2$ - время пролета нейтронами расстояния от образца до детектора (Δt , T_2 - в мкс, λ_0 - в Å, L_2 - в м). Величина $\Delta\theta_K$, согласно измерениям ^{/2/}, близка к $1,5 \cdot 10^{-3}$ рад для используемых нейтронов. Вся активная поверхность детектора диаметром 9 см была открыта для рассеянных нейтронов.

ления поля относительно оси [222] при переходе от (444) и (242) - в пределах $45'$.

3. Обсуждение результатов

Следует отметить, что представленные результаты очень неполны и имеют даже случайный характер. Неожиданные особенности в спектрах выявились лишь при последующей обработке проведенных измерений. Предстоит более систематические эксперименты с Cr_2O_3 , но так как это связано с некоторыми техническими изменениями, мы сочли необходимым представить уже имеющиеся экспериментальные результаты.

Прежде всего, что следовало ожидать в результатах, исходя из того, что известно о Cr_2O_3 ?

Дифракционный пик (444) практически не должен был изменяться в магнитном поле. Амплитуда рассеяния, отнесенная к одной элементарной ячейке, равна в этом случае $\mathcal{F}(444) = [4,2 + i \cdot 4,6 \cdot F_{(444)} \cdot \sin \alpha] \cdot 10^{-12} \text{см}^2$, где $F_{(444)}$ - магнитный формфактор иона Cr^{+3} , близкий в данном случае к 0,2, α - угол между вектором антиферромагнетизма $\vec{\ell}$ и ромбоэдрической осью. Отсюда следует, что магнитная добавка к первоначальному чисто ядерному рассеянию не должна превышать 2,5%.

Иная ситуация в случае (242). Для этого отражения $\mathcal{F}(242) = [0,42 + i \cdot 5,33 \cdot F_{(242)} \cdot P] \cdot 10^{-12} \text{см}^2$, где P - угловой фактор, изменяющийся, вообще говоря, между 0 и 1 в зависимости от проекции вектора $\vec{\ell}$ на (242), а магнитный формфактор F в данном случае близок к 0,5. При $H = 0$ $P = 0,62$ и, следовательно, $\mathcal{F} \approx 1,7 \cdot 10^{-12} \text{см}^2$. В "опрокинутом" состоянии (при $H > H_{\text{кр}}$), когда $\vec{\ell}$ лежит в плоскости (222), величина P зависит от характера отклонения направления H от ромбоэдрической оси и, соответственно, эффективное значение \mathcal{F} может принимать значения между $2,7 \cdot 10^{-12} \text{см}^2$ ($\vec{\ell}$ в плоскости (242)) и $2,14 \cdot 10^{-12} \text{см}^2$ ($\vec{\ell}$ образует наибольший угол, равный 38° , с плоскостью (242), оставаясь в плоскости (222)). Следовало ожидать, что рассматриваемая фазовая перестройка при действии импульса поля проходит через образование множества зародышевых доменов новой фазы и дальнейшее быстрое заполнение ими кристалла путем движения доменных границ. При таком "нормальном" поведении кристалла разностный спектр для (242) должен представлять собой положительный пик с резкими перепадами интенсивности на подъеме и спаде этого пика. По соображениям, основанным скорее на аналогиях, связанных, например, с процессами переориентации магнитных моментов в пленках или в ферромагнитных пластинках, чем на непосредственных экспериментальных данных, ожидалось, что характерное время переориентации в Cr_2O_3 , во всяком случае, меньше, чем временное разрешение нашего метода.

В соответствии с приведенным выше выражением, временное разрешение для измерений (444) и (242) близко к 10 мкс.

Если иметь в виду нейтронограммы №№ 1-3 рис.3, то ожидаемые скачки, т.е. резкое возрастание и резкое уменьшение интенсивности, в случае отражения (242) наблюдаются. Но сопоставление положений этих скачков с временной зависимостью поля показывает, что резкие изменения интенсивности происходят при значениях поля, значительно больших, чем критическое поле, равное 60 кЭ. Значения магнитного поля, при которых наблюдаются положительные скачки (при возрастании величины поля) для нейтронограмм №№ 1-3 равны, соответственно: 68 кЭ, 69 кЭ, 71 кЭ \pm 2 кЭ. Отрицательные скачки происходят в моменты времени, когда величины поля практически близки к соответствующим амплитудным значениям: 92, 86 и 80 кЭ, что, по крайней мере, противоречит гистерезисному характеру фазовой перестройки. Это свидетельствует о том, что увеличение интенсивности при действии поля связано не с быстрыми прямым и обратным спин-флип переходами в кристалле, а определяется более сложными кинетическими процессами. Увеличение интенсивности начинается при одном и том же значении поля, равном в данном случае приблизительно 69 кЭ. Длительность же процесса определяется не величиной поля при различных значениях амплитуды импульса, а какими-то другими факторами. Но, пожалуй, наиболее удивительным результатом является колебательный характер изменения интенсивности при некоторых определенных значениях амплитуды магнитного поля: $H_m \approx 95$ кЭ для (444) и $H_m \approx 76$ кЭ для (242).

Возможность существенного изменения интенсивности (444) при изменении направления вектора $\vec{\ell}$ обусловлена тем, что случайным образом на сферу Эвальда попали еще две симметрично расположенные точки обратной решетки: (231) и (132) (см. рис.4). Амплитуда рассеяния для этих отражений существенно зависит от направления $\vec{\ell}$: $\mathcal{F}_{(231)} \approx 1,35 (1 + iP) \cdot 10^{-12} \text{см}^2$ ($F_{231} \approx 0,5$, $0 \leq P \leq 1$). Таким об-

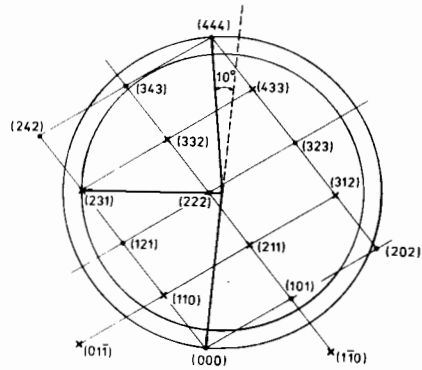


Рис.4. Сечения сферы Эвальда для отражения (444) при $2\theta = 170^\circ$.

разом, кроме "чистого" отражения (444), имеем положительные вклады от сумм последовательных отражений [(231)+(213)] и [(132) + (312)] и отрицательные вклады, т.е. уменьшение интенсивности за счет "чистых" отражений (231) и (132). Поэтому, если медленно изменять направление вектора \vec{e} , "конкуренция" между всеми этими процессами может приводить как к увеличению, так и к уменьшению наблюдаемой интенсивности. Роль "многократных" отражений в данном случае повышается еще и тем, что "чистое" отражение (444) относительно подавлено из-за большого угла рассеяния, т.к. его интенсивность пропорциональна величине $\Delta\lambda = \lambda_0 \cdot \Delta\theta_k / \tan\theta_0$ ($\theta_0 = 85^\circ$).

Интенсивность изменяется таким образом, как будто при некотором определенном характере изменения величины поля, т.е. dH/dt , "включается" механизм медленного, когерентного по объему образца (или значительной части его) поворота намагниченностей подрешеток. Этот поворот имеет характер осциллирования с характерным периодом в несколько сот мкс. Так как временное разрешение Δt намного меньше временной ширины дифракционных пиков (444) и (242), относительные изменения интенсивностей $(I_n - I_0)/I_0$, представленные

на рис.5, соответственно, для нейтронограмм № 5 рис.26 и № 4 рис.3, характеризуют изменение во времени дополнительной рассеивающей способности кристалла. На этом же рисунке нанесены соответствующие импульсы поля. Видно, что дополнительная рассеивающая способность осциллирует с затуханием, причем, как видно в случае (444), колебания ее продолжают даже после окончания импульса поля.

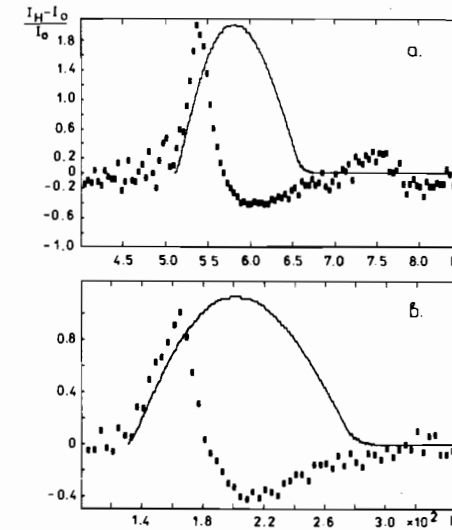


Рис.5. а) Относительное изменение интенсивности рассеяния $(I_n - I_0)/I_0$ для (444) при $T = 147$ К, $H_m = 95$ кЭ, $2\theta = 170^\circ$ - получено из нейтронограммы № 5 на рис.26. Здесь же показан соответствующий импульс магнитного поля.
б) То же для (242) - из нейтронограммы № 4 рис.3.

Представляется странным, что anomalous когерентное поведение проявилось при совершенно различных значениях H_m в случаях (444) и (242): для (242) - при значениях H_m , когда процесс "нормальной" скачкообразной переориентации еще не начинается, а для (444) - при больших значениях H_m , когда, казалось бы, процессы

"нормальной" переориентации уже пройдены. Но в связи с этим заметим, что кинетика фазовой перестройки при спин-флип переходе, по видимому, весьма чувствительна к изменению угла между направлением поля и осью анизотропии, а измерения (444) и (242), как уже отмечалось, производились при двух независимых, т.е. не точно воспроизводимых ориентациях кристалла относительно направления поля.

Если рассматривать последовательность нейтронограмм для (242), то выявляется два процесса, которые почти не перекрываются по значениям амплитуды магнитного поля. При относительно больших значениях H_m наблюдается ступенчатое изменение интенсивности (№№1,2,3 рис.3). И только при $H_m = 78$ кЭ, когда резкий переход, сопровождающийся ступенчатым изменением интенсивности, становится невозможным, начинает проявляться медленный колебательный процесс, и эффект от него значительно возрастает при $H_m = 76$ кЭ. При этом обращает на себя внимание резкое смещение во времени начала возрастания интенсивности - на спектре №5 по сравнению с №3 рис.3 это смещение равно около 200 мкс. При нарастании амплитуды колебательного процесса (см. №4 рис.3) его начало еще более смещается к началу импульса магнитного поля. Особенно хорошо видно на рис.5, что при резонансных значениях H_m интенсивность начинает возрастать почти с начала импульса поля или даже раньше его. Наблюдаемый характер изменения рассеяния может свидетельствовать, с одной стороны, о том, что колебательный процесс "включается" при определенной начальной скорости изменения поля, а с другой - возможно, о сильном проявлении неупругого рассеяния нейтронов, в результате которого время пролета нейтронами расстояния от образца до детектора уменьшается. Если последнее действительно имеет место, то исходя из нормированной нейтронограммы для (444) на рис.5а придется допустить существенное увеличение вероятности передачи энергии, равной около 10^{-2} эВ.

Отметим, что признаки колебательного поведения проявляются и на спектрах №1 и №2 рис.3 для (242): заметна тенденция к уменьшению интенсивности как до, так и после положительного пика.

Наблюдаемый медленный колебательный процесс проявляется, главным образом, так, будто происходит смещение во времени дифракционного пика. Связать это с изменением межплоскостного расстояния, например, магнитострикционного характера, не представляется возможным - в случае спектра №5 рис.2б смещение эквивалентно сжатию кристалла на 0,5%.

В связи с резким расхождением наблюдаемого изменения интенсивностей рассеяния с фазовой диаграммой окиси хрома возникает сомнение в доброкачественности образца. Анализ химического состава образца не проводился. Единственное контрольное измерение состояло в определении температурной зависимости интенсивности отражений (121) и (242). Интенсивность пика (121) мало изменяется при возрастании температуры, а в температурной зависимости пика (242) проявляется резкий характерный излом при $T = 306 \pm 2$ К, что согласуется со значением точки Нееля $T_N = 306$ К.

Заключение

Если в измерениях и в обработке результатов не было допущено каких-либо принципиальных методических погрешностей, из анализа этих результатов следуют выводы:

1. Ступенчатого изменения интенсивности при значениях магнитного поля, соответствующих фазовой диаграмме окиси хрома, не происходит. Наблюдаются скачки в интенсивности при значительно больших значениях поля. При этом характер изменения интенсивности пика (242) свидетельствует о более сложном поведении кристалла в импульсном магнитном поле.

2. При определенных "резонансных" значениях амплитуды импульса поля наблюдается необычное колебательное поведение магнитной

структуры. Характерное время этого изменения структуры - около 400 мкс. Интенсивность изменяется таким образом, как будто при определенной начальной скорости нарастания поля dH/dt "включается" механизм медленного когерентного изменения направления намагниченностей в широком угловом диапазоне. При этом когерентность колебательного поведения сохраняется в течение всего времени последующего изменения магнитного поля /с некоторым затуханием/.

3. Дополнительной особенностью резонансного когерентного поведения является заметное проявление неупругого рассеяния нейтронов с передачей энергии от кристалла около 10^{-2} эВ.

Интерпретировать такие результаты по существу пока не удастся. Предстоит провести более систематические измерения.

Авторы благодарны Г.А.Варенику за помощь в техническом обеспечении измерений, Ю.М.Останевичу и другим участникам обсуждения результатов за плодотворную дискуссию.

Литература

1. Foner G., Phys. Rev., 130, N 1, 183, 1963.
2. Ананьев Б.Н. и др., ОИЯИ, P13-89-517, Дубна, 1989.
3. Вареник Г.А. и др., ОИЯИ, P13-89-518, Дубна, 1989.
4. Андросов А.В. и др., ОИЯИ, P13-11559, Дубна, 1978.
5. Нитц В.В., ОИЯИ, 3-5372, Дубна, 1970.

Рукопись поступила в издательский отдел
3 августа 1989 года.

Георгиев Д. и др. P14-89-578
Аномальное поведение Cr_2O_3 при спин-флоп переходе

Описаны нейтронно-дифракционные измерения монокристалла окиси хрома при спин-флоп переходе, индуцированном импульсным магнитным полем. Наблюдаемый характер изменения интенсивности противоречит фазовой диаграмме Cr_2O_3 . Проявляется необычное резонансное поведение магнитной структуры, при котором намагниченности подрешеток как бы когерентно по макроскопическому объему образца медленно изменяют свое направление.

Работа выполнена в Лаборатории нейтронной физики ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1989

Перевод авторов

Georgiev D. et al. P14-89-578
Anomal Behaviour of Cr_2O_3 Under Spin-Flop Transition

Neutron measurements of the spin-flop transition, induced by the pulse magnetic field in the Cr_2O_3 single crystal are described. The observed intensity variation is contradictory to the Cr_2O_3 phase diagram. Strange resonance behaviour of a magnetic structure is expressed, under which the magnetizations of sublattices, as if were coherent in the macroscopic volume of a sample, slowly change their direction.

The investigation has been performed at the Laboratory of Neutron Physics, JINR.

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1989