

ВИТОК СПИРАЛИ (История лаборатории)

В.П. Плахтий

«Вначале было Слово» [1]. После окончания Политехнического в апреле 1962 года я предстал перед Г.А. Смоленским, заведующим Лабораторией магнетизма и сегнетоэлектричества в бывшем Институте полупроводников Академии наук бывшего СССР. В действительности, он сказал чуть больше, чем одно Слово: «Ты будешь заниматься нейтронами в Гатчине». В то время на реакторе было три прибора для изучения конденсированного вещества: пучок поляризованных нейтронов, где Г.М. Драбкин со своей командой провел первые эксперименты с поляризованными нейтронами, времяпролетный спектрометр (собственность Института полупроводников) и порошковый дифрактометр (собственность Московского института кристаллографии), который эпизодически использовался неким аспирантом. Когда мой гатчинский босс, Г.М. Драбкин, понял, что мой первый босс собирался инвестировать в эти нейтроны только мою зарплату, равную 83 рублям в месяц (самую низкую зарплату старшего лаборанта по Академии наук), он решил, что этого будет недостаточно для открытия еще одного пучка и что я должен присоединиться к Е.И. Мальцеву, который был ответственным за дифрактометр.

Вместе мы обнаружили сверхструктуру в ViFeO_3 , веществе, которое ранее исследовалось Р.П. Озеровым, и я навсегда понял, что любой новый результат требует совершенной экспериментальной методики [2]. К сожалению, это был первый и последний эксперимент на данном приборе, и, главным образом по политическим причинам, мы потратили пять лет своей жизни на оборудование без какого-либо финансирования. Тем не менее, до 1971 года было опубликовано восемь статей, включая статью по исследованию нейтронной дифракции марганцевой системы $\text{CaMnO}_3 - \text{ViMnO}_3$. В настоящее время манганаты – наиболее популярные системы в физике твердого тела. Несмотря на это, я считаю более важной нашу публикацию с W. Cochran по рентгеновскому рассеянию на алюминате лантана [3]. Это было первым наблюдением мягкой моды с ненулевым волновым вектором. Известно, что механизм мягкой моды, предложенный W. Cochran, ответствен за большинство фазовых переходов второго (или почти второго) рода. К моменту, когда Филиал ФТИ им. Иоффе в Гатчине был трансформирован в Ленинградский институт ядерной физики им. Б.П. Константинова, я был его сотрудником и работал в группе с Г.М. Драбкиным (он был нашим боссом), О.П. Смирновым, В.А. Кудряшовым, И.В. Голосовским. Это был зародыш нашей нынешней лаборатории.

Особенностью нашей группы (лаборатории) является наша специализация. Имея в распоряжении только нейтронное (рентгеновское) рассеяние, мы всегда могли исследовать микроскопические механизмы твердотельных явлений – что хорошо, без возможности исследовать макроскопические свойства, вызванные этими явлениями, – что очень плохо. Мы не обладали ни макроскопическими

методами, ни химической основой для синтеза новых материалов и выращивания кристаллов. В этой ситуации мы должны были найти группы, которые имели эти возможности и были идеологически близки нам. По историческим причинам мы с самого начала сотрудничали с лабораторией Г.А. Смоленского. Но больше всего плодотворных контактов у нас было с группой В.И. Соколова из Московского государственного университета. Мы познакомились на Конференции по низким температурам в Донецке в 1973 году и стали друзьями на следующий же день и навсегда. У нас были очень схожие взгляды на физику и на жизнь в целом. Вместе мы выполнили много работ, используя наши совместные экспериментальные возможности и одинаковые кристаллы превосходного качества, которые были выращены Б.В. Миллем. Даже сейчас, спустя много лет после нашего первого контакта, я время от времени возвращаюсь к темам, которые мы начали вместе.

Я считаю, что лабораторию создали два человека: Г.А. Смоленский, который сказал Слова, и Г.М. Драбкин, который руководил нами в течение почти 20 лет. Очень важным было постоянное взаимодействие с А.С. Боровик-Романовым, чей семинар для нас был высшей оценкой.



В.И. Соколов, 1986



Г.А. Смоленский, 1984



А.С. Боровик-Романов, 1984

Я решил сделать эту статью не слишком формальной. Предположительно, она будет чем-то вроде мемуаров с некоторыми случаями из нашей жизни вперемешку с чисто научным отчетом. Поскольку нет возможности подробно изложить все, что было сделано за 47 лет, я представляю в качестве отдельных разделов главные результаты и направления нашей деятельности, которые, как правило, заканчивались защитой диссертаций.

Научная деятельность

1. Магниторазбавленные ферромагнетики и перколяция связи

Очевидно, первым, что было исследовано при помощи нейтронной дифракции в независимом Ленинградском институте ядерной физики, стали ферромагнетики

со структурой граната, в которых одна подрешетка была магниторазбавленной. Общая формула граната – $\{M1\}_3[M2]_2(M3)_3O_{12}$ с ионами металлов $M1$, $M2$ и $M3$ в трех типах кислородной координации: додекаэдрической (c), октаэдрической (a) и тетраэдрической (d), соответственно. Наиболее известен железо-иттриевый гранат $Y_3Fe_2Fe_3O_{12}$ [4], в котором a - и d -подрешетки имеют противоположные ориентации спинов Fe^{3+} ($S = 5/2$), а этот феррит является ферримагнетиком с самопроизвольным магнитным моментом, равным примерно $5 \mu_B$. Этот ферримагнит имеет очень малую ширину ферромагнитного резонанса и, как следствие, очень высокую эффективность в технике ультравысоких частот. Попытка заменить дорогостоящий иттрий чем-либо еще неизбежно приводила к замене Fe^{3+} немагнитным ионом либо в октаэдрической, либо в тетраэдрической позиции. При низкой концентрации магнитных атомов x самопроизвольный магнитный момент m в обоих случаях исчезает. В целом считалось, что это происходит при $x = 0$. Мы впервые наблюдали [5], что m становится нулевым далеко от $x = 0$.

Бродбент и Хаммерсли [6] рассмотрели математическую модель периодической решетки, состоящей из клапанов (позиций), соединенных трубками (связями), где в произвольную точку подается жидкость. При каком-то критическом числе статистически открытых позиций (связей) жидкость перколирует до бесконечности. Были исследованы две проблемы: перколяция позиций со всеми трубками в открытом положении и перколяция связей со всеми клапанами в открытом положении. Домб и Сайкс [7] наблюдали, что разбавленный ферримагнит является аналогом перколяции позиций. Другими словами, при критической концентрации магнитных атомов (предел перколяции) конечные кластеры объединяются в один бесконечный. Мы предложили идею, что ферримагнит с одной магниторазбавленной подрешеткой имеет аналог в перколяции связей, поскольку одна подрешетка создает связи для другой. Предел перколяции зависит от пространственной размерности, а также от числа связей, как оказалось, хорошо согласующихся ($p_a = 0,39(1)$ и $p_d = 0,25(1)$) с экспериментальными критическими концентрациями $x_a = 0,40(2)$ и $x_d = 0,25(2)$ магнитных атомов в разбавленных октаэдрических и тетраэдрических подрешетках, составляющих связи для тетраэдральных ($z = 4$) и октаэдральных ($z = 6$) подрешеток, соответственно. Я бы хотел упомянуть забавную историю о процессе перевода. В то время я не нашел в русском языке подходящего слова и переводил «percolation» как что-то вроде «просачивания». Впоследствии я был очень удивлен, когда обнаружил в английском варианте нашей статьи слово “filtration” вместо «percolation», что было совершенно непонятно. Теперь слово “percolation” («перколяция») используется и в русскоязычной научной литературе. Эти исследования составили основу моей диссертации, защищенной на одном из первых заседаний Ученого совета в ЛИЯФ.

Двенадцать лет спустя О.П. Смирнов в своей диссертации объяснил расхождение наших экспериментальных данных с теми, что были получены с помощью компьютерного моделирования [8] перколяции позиций, слабыми взаимодействиями между магнитными атомами в той же подрешетке.

**2. Антиферромагнитное упорядочение, спиновая динамика и ковалентная спиновая плотность в гранатах с единственной магнитной подрешеткой.
Квантовый эффект спиновых флуктуаций в нулевой точке**

Начиная с первой публикации [5], мы интересовались магнитным порядком в гранатах с единственной магнитной подрешеткой. Когда магнитные ионы занимают либо октаэдрическую, либо тетраэдрическую решетку, то обычного сверхобменного взаимодействия через промежуточный O^{2-} не происходит. Пара последовательно расположенных двух ионов кислорода обеспечивает наиболее сильное взаимодействие. Сила взаимодействия зависит от пространственной конфигурации связей, и она необязательно больше между атомами с меньшим межатомным расстоянием. В результате, разнообразие магнитных структур наблюдается в изоморфных материалах с немного различными параметрами структуры кристалла. Обзор магнитных структур в антиферромагнитных гранатах, которые были исследованы главным образом в нашей лаборатории и затем были использованы для разработки процедуры анализа симметрии, можно найти в работе [8]. Три магнитные структуры показаны на рис. 1 для гранатов с ионами Fe^{3+} в тетраэдрической подрешетке [9]. Они различаются только немагнитными ионами в позициях $24c$ и $16a$. Тем не менее, неелевская температура варьируется от 67 К для $Na_3Te_2Fe_3O_{12}$ (а) до 7 К для $YCa_2Zr_2Fe_{2.75}Ga_{0.25}O_{12}$ (с) вследствие очень слабой разницы атомных позиций, что приводит к усилению сверхобменных связей.

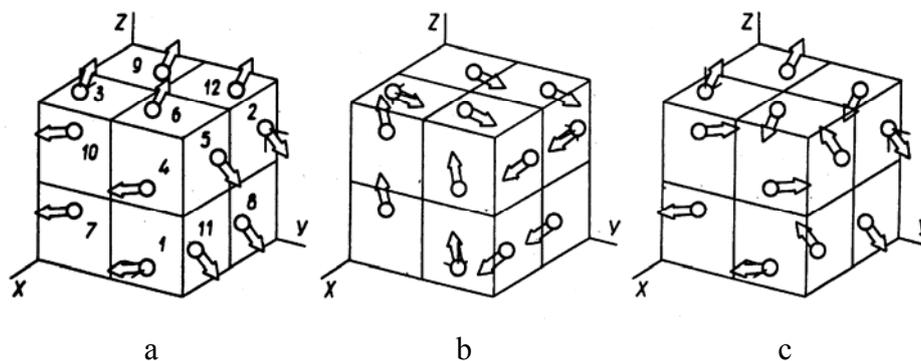


Рис. 1. Спиновые структуры в подрешетке $24d$ гранатов:
а – $Na_3Te_2Fe_3O_{12}$; б – $NaCa_2Sb_2Fe_3O_{12}$ и $Ca_3SbSnFe_3O_{12}$; с – $YCa_2Zr_2Fe_{2.75}Ga_{0.25}O_{12}$

Две магнитные структуры (рис. 2) наблюдались для гранатов с $3d$ -ионами в октаэдрических позициях $16a$, которые образуют две подсистемы, смещенные в результате трансляции $(1/4 \ 1/4 \ 1/4)$. Спины $S = 5/2$ ионов Fe^{3+} (а) в каждой подсистеме $Ca_3Fe_2Ge_3O_{12}$ (FeGeG) [10] и $Ca_3Fe_2Si_3O_{12}$ (FeSiG) [11] упорядочены антиферромагнитно, в то время как спины $S = 3/2$ ионов Cr^{3+} (б) в каждой подсистеме $Ca_3Cr_2Ge_3O_{12}$ (CrGeG) упорядочены ферромагнитно [12]. Данные АФМР показывают, что легкой осью в обоих феррит-гранатах является ось $[111]$ [13], а в хромсодержащем гранате – ось типа $[100]$ [14]. (Спиновое

упорядочение в антиферромагнитных гранатах было темой диссертации И.В. Голосовского.) Все двухкислородные сверхобменные связи характеризуются тремя параметрами: 1) для ближайших соседей вдоль тройной оси, J_1 , 2) в перпендикулярной плоскости, J'_1 , 3) для следующих за ближайшими соседями, J_2 (рис. 2).

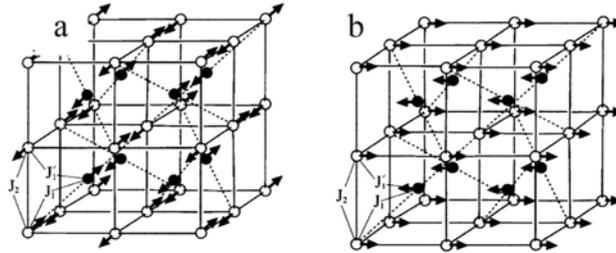


Рис. 2. Упорядоченность спинов Fe^{3+} (а) и Cr^{3+} (б) в позициях 16а: две подсистемы (незакрашенные и закрашенные), смещенные в результате трансляции ($1/4 \ 1/4 \ 1/4$). Пунктирные линии обозначают тройную ось в каждом октете

Их значения были определены из наилучшего соответствия спин-волновых частот, измеренных при помощи неупругого рассеяния нейтронов [15, 16], как показано на рис. 3а, 3б.

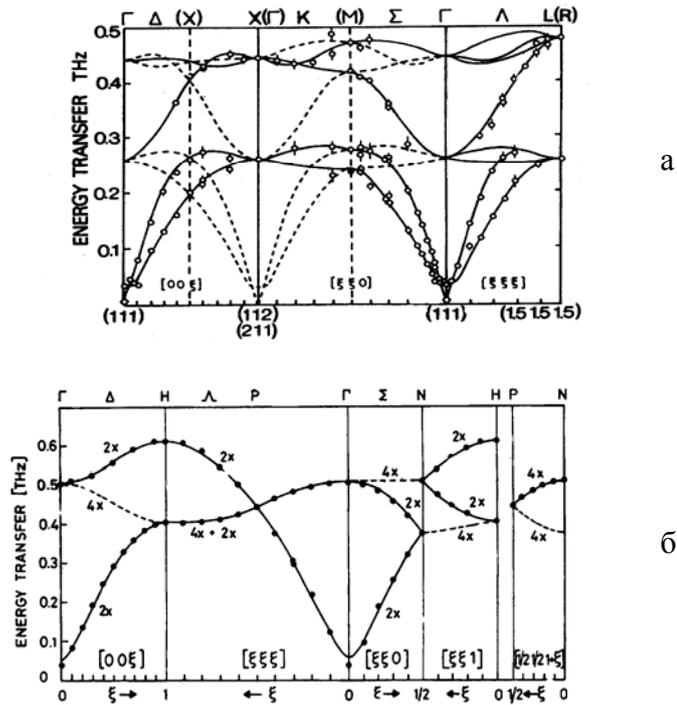


Рис. 3. Измеренные спин-волновые частоты (кружки) и расчетные дисперсионные кривые для $\text{Ca}_3\text{Fe}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ (а) и для $\text{Ca}_3\text{Cr}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ (б)

Превосходное совпадение спин-волновых частот с дисперсионными кривыми, рассчитанными по трем переменным параметрам обмена, плюс с феноменологическим параметром анизотропии свидетельствует о том, что важны только двухкислородные сверхобменные связи. Все пути обмена, которые включают более двух последовательных атомов кислорода, намного слабее. Результаты уточнения,

$$J_1 = -0,909(9) \text{ К}, \quad J'_1 = -0,307(8) \text{ К}, \quad J_2 = -0,615 \text{ К} \quad \text{для FeGeG и}$$

$$\langle J_1 \rangle = (J_1 + 3 J'_1)/4 = -0,528 \text{ К}, \quad J_2 = 0,416 \text{ К} \quad \text{для CrGeG,}$$

довольно необычны, по сравнению с обычным однокислородным сверхобменом. Взаимодействие следующих за ближайшими соседями отрицательно для FeGeG и положительно для CrGeG, что объясняется разным перекрыванием орбиталей кислорода [16]. В случае FeGeG параметры J_1 и J'_1 для ближайших соседей различаются в три раза и, что еще более необычно, взаимодействие J_2 для следующих за ближайшими соседями в два раза сильнее, чем J'_1 . Эти необычные параметры обмена объясняются особенностями двухкислородных связей. Как видно из рис. 4, ионы Fe1 и Fe3, ближайшие соседи по тройной оси, соединены тремя кислородными парами, в то время как только две кислородные пары с более длинными межатомными расстояниями соединяют Fe3 и Fe2 в перпендикулярной плоскости. Перекрывание этих кислородных орбиталей намного слабее, чем между O12 и O21, что обеспечивает взаимодействие J_2 между следующими за ближайшими соседями: Fe1 и Fe2 [17].

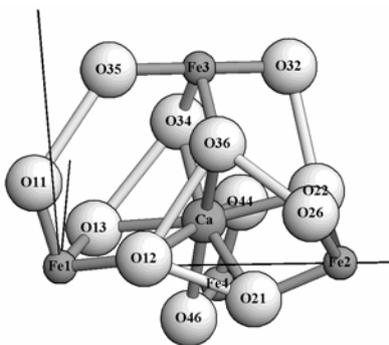


Рис. 4. Фрагмент структуры граната с четырьмя ионами Fe^{3+} в октаэдрических позициях, соединенных двухкислородными сверхобменными связями. Ион Ca^{2+} – в центре

Параметры обмена также очень чувствительны к ковалентной спиновой плотности, переданной от магнитного иона к лиганду. В рассматриваемых гранатах эта спиновая плотность не нейтрализуется, как в случае обычного сверхобмена, через один ион кислорода [18]. Чтобы получить эту ковалентную передачу момента, мы измерили [19] момент, порожденный магнитным полем, достаточно сильным, чтобы повернуть антиферромагнитные подрешетки перпендикулярно полю. Так как порожденная полем ферромагнитная компонента равна $m(H) = \chi H$ и достигает

значения момента лиганда, m_O , когда антиферромагнитные подрешетки становятся параллельными \mathbf{H} при H , равном полю, при котором происходит переворот спина H_E , то $m_O = m(H)H_E/H$. Измерение флип-отношения предоставляет экспериментальные данные, используемые в расчетах магнитного момента, а также в реконструкции спиновой плотности методом максимальной энтропии (ММЭ), как показано на рис. 5 для FeGeG. Уточнение методом наименьших квадратов флип-отношений для 183 отражений, из которых 16 были независимыми и имели вклады только от кислорода, приводит к $m_O = 0,12(2) \mu_B$ с полем переворота спина, равным $H_E = 40,4 \text{ Т}$ [20].

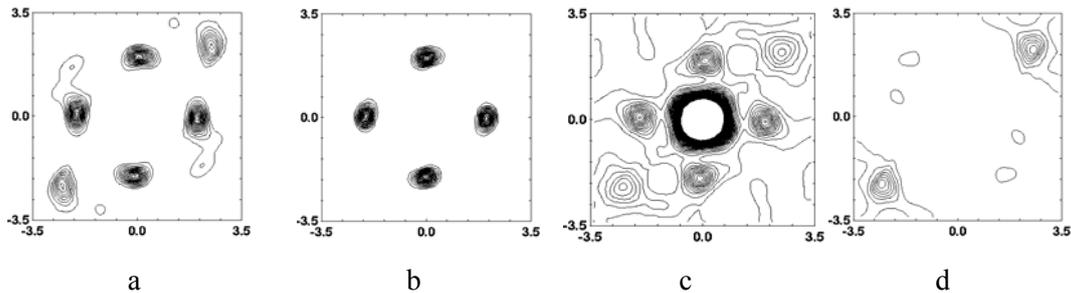


Рис. 5. Сечение трехмерной спиновой плотности (через Fe^{3+} и четыре O^{2-} -лиганда), восстановленной при помощи метода максимальной энтропии (ММЭ) с использованием: а) полного набора флип-отношений, измеренных при температуре 2 К (64 независимых отражения); б) 16 независимых отражений, имеющих вклад только от кислорода; в) всех отражений, за исключением отражений со вкладом Fe^{3+} ; д) 46 отражений со вкладом только от позиций 24с после вычитания расчетной амплитуды магнитной структуры кислорода. Изоконтурные плотности с интервалом $0,002 \mu_B/\text{Å}^3$. Контурные в позиции Fe^{3+} ограничены значением $0,1 \mu_B/\text{Å}^3$ для ясности. Координаты на осях даны в Å

Для граната FeSiG та же процедура приводит к $m_O = 0,22(3) \mu_B$, что коррелирует с более сильными взаимодействиями $J_1 = -1,16(4) \text{ К}$, $J'_1 = -0,96(4) \text{ К}$, $J_2 = -1,24(4) \text{ К}$.

В случае FeGeG и FeSiG спины в каждой подсистеме упорядочены антиферромагнитно. Из соображений симметрии следует, что эффективное поле, создаваемое одной системой на атомах другой, компенсируется в приближении статического молекулярного поля. Системы магнитно разъединены, и основное состояние бесконечно вырождено по отношению к относительной ориентации спиновых подсистем. Взаимодействие должно развиваться только динамически. На одном из семинаров в Заречном во время неофициальной вечеринки я просил Е.Ф. Шендера, который занимался тем же самым, подумать об этом динамическом взаимодействии. Идея Шендера [21] была очень проста. В динамике происходит обменное взаимодействие между поперечными компонентами спина: один, если спины разных подсистем являются ортогональными, и два, если они являются коллинеарными. Поскольку взаимодействие антиферромагнитное, коллинеарная конфигурация должна быть стабилизирована квантовыми спиновыми

флуктуациями в нулевой точке. Это взаимодействие приводит к анизотропии эффективного обмена и, как следствие, к щели в спектре спиновых волн [21]:

$$\omega_Q = -0,49(2J_1 + 6J_1')S^{1/2}. \quad (1)$$

Используя приведенные выше параметры обмена, получаем $\omega_Q = 0,05$ ТГц. Эта квантово-обменная щель наблюдалась в спин-волновом спектре в нашем эксперименте [15] и отчетливо видна на рис. 3а при $q = 0$. Ее значение, равное 0,033(4) ТГц, находится в удовлетворительном согласии с расчетным значением и значительно выше, чем щель в 0,007 ТГц (рис. 3а) вследствие обычной анизотропии в этом гранате.

Литература

1. John, chapter 1, verse 1 – *The New Oxford Annotated Bible*, 1977, p. 1286.
2. V.P. Plakhty, E.I. Maltzev, D.M. Kaminker. *Izv. Akad. Nauk SSSR, Ser. Fiz.* **28**, 1964, p. 436.
3. V. Plakhty, W. Cochran. *Phys. Stat. Solidi.* **29**, 1968, K81.
4. E.F. Bertaut F. Forrat, A. Herpin, P. Meriel. *C. R.* **243**, 1956, p. 898.
5. V. Plakhty, I. Golosovsky, V. Kudryashev, N. Parfenova, O. Smirnov. *Pis'ma v ZhETF* **18**, 1973, p. 85 [*JETP Lett.* **18**, 1973].
6. S.R. Broadbent and J.M. Hammersley. *Proc. Cambridge Phil. Soc.* **53**, 1957, p. 629.
7. C. Domb and M.F. Sykes. *Phys. Rev.* **122**, 1961, p. 77.
8. Yu.A. Izyumov, V.E. Naish, and R.P. Ozerov. *Neutron diffraction of magnetic materials*. New York & London: Consultants Bureau, 1991.
9. V.P. Plakhty, I.V. Golosovsky, M.N. Bedrizova, O.P. Smirnov, V.I. Sokolov, B.V. Mill, N.N. Parfenova. *Phys. Stat. Solidi.* (a) **39**, 1977, p. 683; V.P. Plakhty, I.V. Golosovsky. *Phys. Stat. Solidi.* (b) **53**, 1972, K37.
10. R. Plumier. *Solid State Commun.* **10**, 1972, p. 5; W. Prandl. *ibid* **10**, 1972, p. 529.
11. V. Plakhty, I. Golosovsky. *Sov. Phys. Solid State* **14**, 1973, p. 2387.
12. W. Prandl. *Solid State Commun.* **11**, 1972, p. 645.
13. K.P. Belov, B.V. Mill, V.I. Sokolov, O.I. Shevaleevsky. *Sov. Phys. JETP Lett.* **20**, 1974, p. 42.
14. V.I. Sokolov, O.I. Shevaleevsky. *Sov. Phys. JETP* **45**, 1977, p. 1245.
15. Th. Brueckel, B. Dorner, A.G. Gukasov, V.P. Plakhty, W. Prandl, E.F. Shender, O.P. Smirnov. *Z. Phys. B – Condensed Matter* **72**, 1988, p. 477.
16. Th. Brueckel, Yu. Chernenkov, B. Dorner, V.P. Plakhty, and O.P. Smirnov. *Z. Phys. B – Condensed Matter* **79**, 1990, p. 389.
17. V. Plakhty, I. Golosovsky, A. Gukasov, O. Smirnov, Th. Brueckel, B. Dorner, P. Burlet. *Z. Phys.* **B 92**, 1993, p. 443.
18. J. Hubbard and W. Marshall. *Proc. Phys. Soc.* **86**, 1965, p. 561.
19. V.P. Plakhty, A.G. Gukasov, R.J. Papoular, O.P. Smirnov. *Europhys. Lett.* **48**, 1999, p. 233.
20. K.P. Belov and V.I. Sokolov. *Sov. Phys. Usp.* **20**, 1977, p. 149.
21. E. Shender. *Sov. Phys. JETP* **56**, 1982, p. 178.



Лаборатория физики кристаллов.

Стоят (слева направо): В.И. Федоров, С.В. Гаврилов, О.П. Смирнов, Е.В. Москвин, В.А. Поляков, Ю.П. Черненко, И.А. Зобкало, А.М. Голубев, И.В. Голосовский; сидят: В.И. Смуров, П.А. Карнаева, В.П. Плахтий, Е.И. Федорова

От Отдела исследований конденсированного состояния:

К великому сожалению Владимир Петрович Плахтий не дожид до юбилейной даты реактора ВВР-М. Он многое сделал для науки, но мог бы сделать еще больше, если бы не нелепая его кончина.

В последние годы он проявлял большой интерес к проблемам мультиферроиков и спиновой киральности. Последняя стала его путеводной звездой. О проблеме киральности и вкладе в нее В.П. Плахтия можно прочесть в кратком обзоре А.И. Огорокова в этом сборнике (раздел «Проблемы киральности»). Ниже мы публикуем некоторые фрагменты статей и отчетов Владимира Петровича.

Мультиферроики

В последние несколько лет активно исследуются соединения, получившие общее название мультиферроиков, сочетающее, в частности, магнитное и сегнетоэлектрическое упорядочение. Один из таких классов представлен

семейством изоморфных соединений $M_3V_2O_8$ ($M = Ni, Co, Cu$). Первые публикации по этим соединениям появились 2–3 года назад, однако работа идет такими темпами, что составленный нами в 2005 году план наших исследований уже оказался устаревшим. В частности, спиновое упорядочение в $Co_3V_2O_8$, планировавшееся нами как результат исследований 2006 года, опубликовано [1]. Кроме того, в теоретической работе [2] было показано, что в магнитной структуре типа поперечной спиновой волны, наблюдавшейся в $Co_3V_2O_8$, электрическая поляризация запрещена.

В $Ni_3V_2O_8$ было обнаружено несколько магнито-упорядоченных фаз, причем в одной из них, показанной на рис. 1, спиральная спиновая структура несоизмерима с периодом кристаллической решетки. Макроскопические измерения показали наличие в этой фазе спонтанной электрической поляризации вдоль оси b в соответствии с теорией [2]. Целью нашей работы был поиск полярных атомных смещений в сегнетомагнитной фазе по отношению к параэлектрической и сравнение полученной ионной поляризации со спонтанной поляризацией $P_b \approx 100$ ($\mu C/m^2$), — суммой ионной и электронной составляющих.

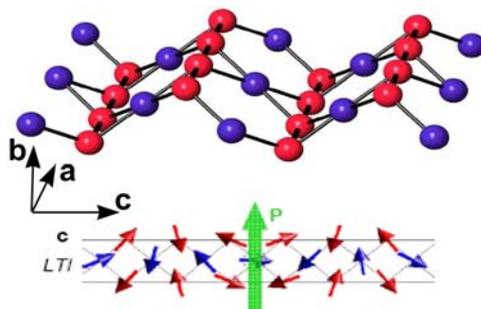


Рис. 1

Эксперимент проводился на 48-счетчиковом дифрактометре, установленном на горизонтальном экспериментальном канале ГЭК-1 реактора ВВР-М ПИЯФ при длине волны нейтронов $\lambda = 1,384$ Å. Поликристаллический образец синтезировался по керамической технологии в группе С.Н. Барило Института твердого тела и полупроводников Национальной Академии Республики Беларусь. Измерения проводились при $T = 4,2$ К, вблизи нижнего предела сегнетомагнитной фазы, где $P(T)$ достигает указанного выше максимума, и при $T = 7,5$ К, где поляризация отсутствует. На рис. 2. показаны экспериментальные данные и результаты профильного анализа для $T = 4,2$ К, а в Таблице конечные значения координат u и параметров элементарной ячейки b при двух температурах. Именно по этим параметрам можно, в принципе, определить полярные смещения атомов, дающие вклад в ионную поляризацию.

В Таблице отсутствуют данные для ионов V^{5+} в связи с тем, что ядро ванадия имеет очень малую амплитуду когерентного рассеяния, и положение этих ионов в элементарной ячейке определяется с очень большой ошибкой. Что касается

остальных ионов, то их смещения из положений в параэлектрической фазе не превышают $0,01 \text{ \AA}$. Заметим, что смещения ионов в титанате бария, спонтанная поляризация которого примерно в 2,5 раза больше, составляют, по данным [3], $\Delta x(\text{Ti}) \approx 0,06 \text{ \AA}$, $\Delta x(\text{O1}) \approx -0,06 \text{ \AA}$, $\Delta x(\text{O2}) \approx -0,07 \text{ \AA}$, $\Delta x(\text{O3}) \approx -0,017 \text{ \AA}$. Рассчитанная по смещениям ионов спонтанная поляризация равна $1600 \mu\text{C}/\text{m}^2$ в сравнении с экспериментальным значением $\sim 3000 \mu\text{C}/\text{m}^2$. (Разница связана с электронной составляющей поляризации.)

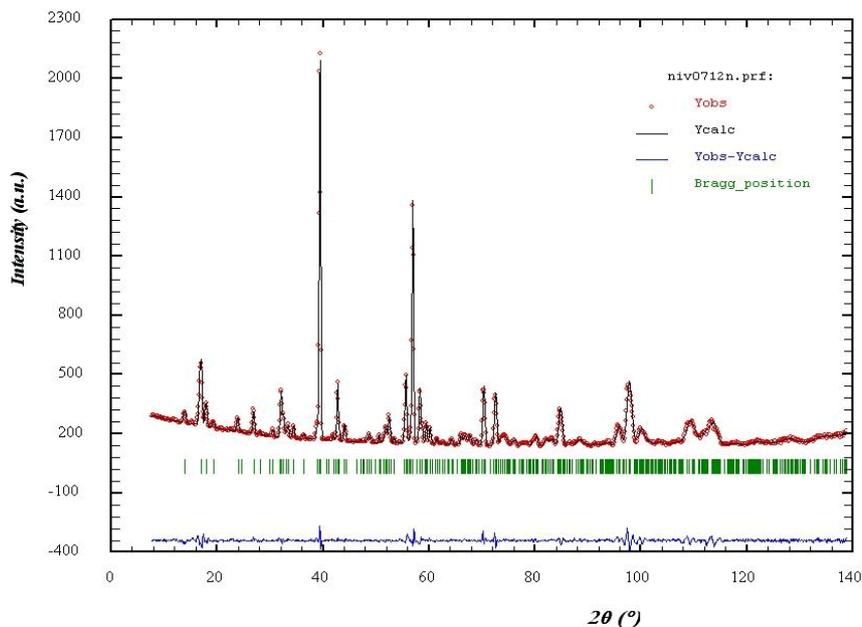


Рис. 2. Нейтронограмма керамического образца $\text{Ni}_3\text{V}_2\text{O}_8$, измеренная при $T = 4,2 \text{ K}$. Точки – экспериментальные значения интенсивности; проведенная через них линия – расчет по методу наименьших квадратов (программа FullProf); вертикальными отрезками указаны положения 417 брегговских отражений; внизу показана разница между экспериментальными и расчетными значениями интенсивности

Таблица

	$Y (\text{Å})$		$\Delta Y (\text{Å})$
$T (\text{K}) \rightarrow$	4,2	7,5	
Ni1	0	0	0
Ni2	1,478(4)	1,476(4)	0,002(6)
O1	2,814(9)	2,808(9)	0,006(13)
O2	-0,018(9)	-0,010(9)	-0,008(13)
O3	1,363(4)	1,361(4)	0,002(6)

Таким образом, принимая во внимание, что спонтанная поляризация $\text{Ni}_3\text{V}_2\text{O}_8$ в 16–30 раз меньше, полученные значения атомных смещений можно считать

разумными. Кроме того, значительный вклад должны вносить смещения ионов V^{5+} , которые следует определить из дифракции рентгеновских лучей.

1. Y. Chen, J.W. Lynn, Q. Huang, F.M. Woodward *et al.* Phys. Rev. **В 74**, 2006, 014430.
2. M. Mostovoy. Phys. Rev. Lett. **96**, 2006, 067601.
3. G. Shirane, H. Danner, and R. Pepinsky. Phys. Rev. **105**, 1957, 856.

Определение спиновой и атомной структур в трех магнито-упорядоченных фазах. Определение спиновой плотности на ионах кобальта и лигандах в высокотемпературной магнитоупорядоченной фазе (Руководители проекта д. физ.-мат. наук. В.П. Плахтий, к. физ.-мат. наук Ю.П. Черненко)

В соединениях $R\text{BaCo}_2\text{O}_{5.5}$ (R – редкая земля или иттрий) все ионы кобальта имеют формальную валентность $3+$ и могут находиться в трех спиновых состояниях, с различной конфигурацией $3d$ -электронов: низкоспиновом (LS, $S = 0$, $t_{2g}^6 e_g^0$), промежуточном (IS, $S = 1$, $t_{2g}^5 e_g^1$) и высокоспиновом (HS, $S = 2$, $t_{2g}^4 e_g^2$) с очень близкими энергиями. Ионы кобальта находятся в двух разных кислородных полиэдрах, октаэдрах и пирамидах, в плоскостях (a , c), чередующихся вдоль оси b . В этой сильно коррелированной фермионной системе появляется возможность связанных фазовых переходов с одновременным изменением кристаллической структуры, спиновой структуры, спинового состояния и орбитального состояния, что проявляется в таких макроскопических свойствах, как гигантское магнетосопротивление. В ПИЯФ проводится систематическое изучение этих соединений методами дифракции нейтронов и рентгеновских лучей. Некоторые эксперименты выполнены в Лаборатории Леона Бриллюэна (Франция) и в Институте Лауэ-Ланжевена (Франция). Монокристаллы выращиваются в Институте физики твердого тела и полупроводников Национальной Академии наук Республики Беларусь (к.ф.-м.н. С.Н. Барило), а их обработка, устраняющая двойникование, производится в Max-Planck-Institut für Festkörperforschung (Stuttgart, Germany) В. Хинковым.

Показано, что структурный фазовый переход при $T \approx 322$ К из фазы $R\text{tm}m$ ($a_p \times 2a_p \times 2a_p$) в фазу $R\text{t}ma$ ($2a_p \times 2a_p \times 2a_p$), где a_p – параметр ячейки перовскита, совпадает с аномалией температурной зависимости проводимости (рис. 3), что может быть следствием предложенного нами ранее упорядочения орбиталей [1, 2] и связанной с ним спиновой блокады [3].

По данным нейтронной дифракции на недвойникованном кристалле определены направления и величины спинов при $T = 248$ К и $T = 220$ К. С помощью дифракции рентгеновских лучей доказано, что, как и предполагалось нами ранее [2], магнитный переход в низкотемпературную фазу сопровождается удвоением кристаллической ячейки, $c \approx 4c_p$ (рис. 4).

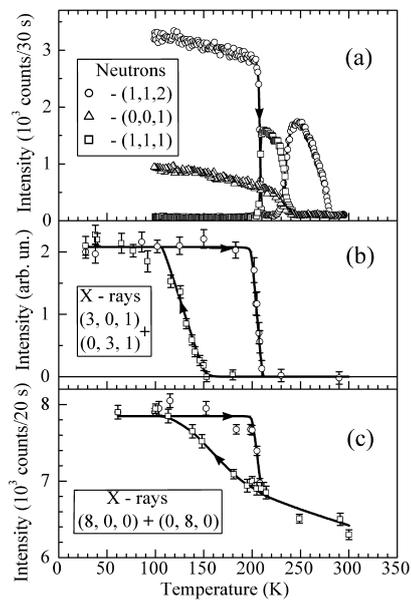


Рис. 3. Температурная зависимость интенсивности брегговских (нейтронных, магнитных) отражений от недвойникового кристалла (а) и рентгеновских отражений, сверхструктурного (б) и основного (с) от двойникового кристалла

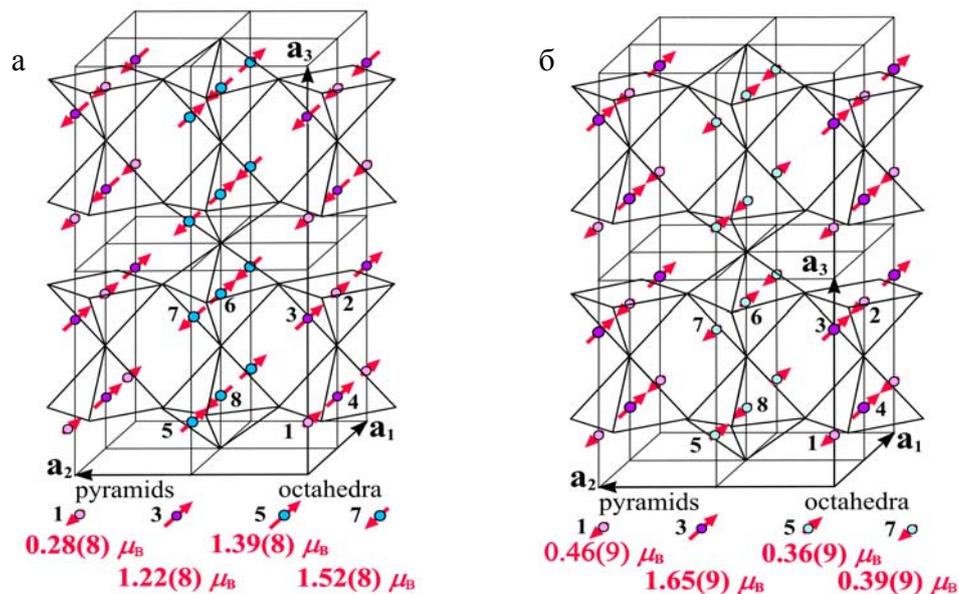


Рис. 4. Направления и величины магнитных моментов в двух магнитоупорядоченных фазах $\text{DyBaCo}_2\text{O}_{5.5}$, определенные из сравнения экспериментальных магнитных интенсивностей с интенсивностями, рассчитанными для моделей магнитной структуры, построенных из базисных функций неприводимых представлений для пространственной группы Pnma с волновым вектором $\mathbf{k} = 0$ для $T = 220 \text{ K}$ (а) и для $T = 248 \text{ K}$ (б)

Постулированная для соответствующей фазы $TbBaCo_2O_{5.5}$ группа $Pcca$ [2], являющаяся высшей подгруппой $Pnma$ с волновым вектором $\mathbf{k} = \mathbf{c}^* / 2$, не удовлетворяет систематике погасаний сверхструктурных рентгеновских отражений при $T = 100$ К. Аргумент подгрупповой связи не может быть использован при переходе I рода, и этот результат является естественным. Остается перебирать все группы с подходящим законом погасания для нахождения базисных функций их неприводимых представлений и построения моделей магнитных структур.

На рис. 5 показана проекция плотности намагниченности «спиновой плотности» вдоль оси a . Обращает на себя неожиданно большая величина момента, наведенного на Dy^{3+} , по сравнению с той, которую можно было бы ожидать из магнитных измерений.

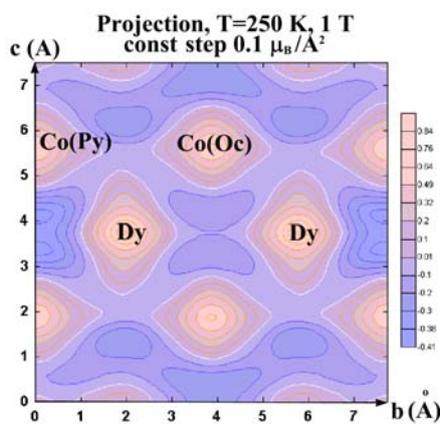


Рис. 5

Работа докладывалась на Международной конференции по магнетизму MCM2006 (Kyoto, 20–24 August 2006, Abstract book, p. 385) и направлена в журнал Phys. Lett. A.

1. Yu.P. Chernenkov, V.P. Plakhty, V.I. Fedorov *et al.* Phys. Rev. **B 71**, 2005, 184105.
2. V.P. Plakhty, Yu.P. Chernenkov, S.N. Barilo *et al.* Phys. Rev. **B 71**, 2005, 214407.
3. A. Mignan, V. Caignaerti, B. Raveau, D. Khomskii, G. Sawadsky. Phys. Rev. Lett. **93**, 2004, 026401.

Изучение природы модуляции кристаллической структуры $CsCuCl_3$ с волновым вектором несоразмерной спиновой спирали Дзялошинского. Определение атомной структуры ниже температуры Нееля
(Руководитель проекта д. физ.-мат. наук. В.П. Плахтий)

$CsCuCl_3$ ниже $T_i = 423$ К относится к одной из энантиоморфных пространственных групп $P6_122$ от $P6_522$, описывающих отдельные домены. На рис. 6 показана элементарная ячейка для группы $P6_122$. Ионы Cu^{2+} занимают

6-кратное положение с координатами иона 1 ($x, 0, 0$), где $x = 0,0616$ [1], причем сдвиги шести атомов в цепочке вдоль оси z образуют правовинтовую спираль с периодом, равным c . Ниже $T_N = 10,20$ К спины Cu^{2+} ($S = 1/2$) упорядочиваются, образуя треугольную структуру в базисной плоскости, как показано на рис. 7 (a), (b), с вектором киральности $+C_T$ или $-C_T$, причем знак не зависит от структурной киральности, связанной со смещениями ионов меди.

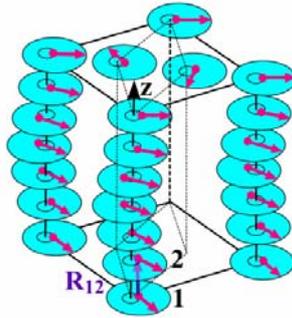


Рис. 6. Структура CsCuCl_3 . R_{12} – радиус-вектор между соседними ионами меди в цепочке. Стрелками показан поворот спинов при трансляции вдоль z

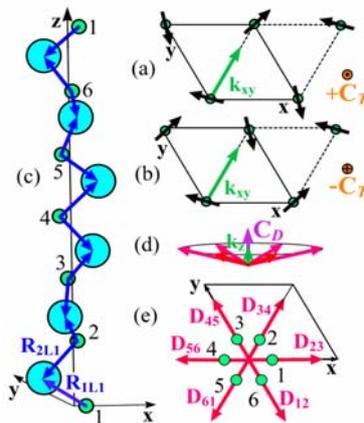


Рис 7. Треугольное упорядочение спинов в плоскости (001) с киральностью $+C_T$ (a) и $-C_T$ (b) и волновым вектором k_{xy} . (c) – цепочка косвенных обменных связей между ионами меди $n, n+1$ через лиганды хлора, Ll . (d), (e) – направления шести векторов Дзялошинского $D_{n, n+1}$, вектора киральности C_D для несоразмерной спиновой спирали, связанной с взаимодействием Дзялошинского–Мория, и положение шести ионов меди в проекции на плоскость (001)

Как было показано в [2], вектор Дзялошинского $D_{1,2}$ [3] для антисимметричного косвенного обменного взаимодействия $E_D = D_{1,2}[\mathbf{S}_1 \times \mathbf{S}_2]$ выра-

жается как векторное произведение радиус-векторов $\mathbf{R}_{1,L1}$ и $\mathbf{R}_{2,L1}$, показанных на рис. 7 (с). Таким образом, энергия Дзялошинского

$$E_D = d_{1,2}[\mathbf{R}_{1,L1} \times \mathbf{R}_{2,L1}][\mathbf{S}_1 \times \mathbf{S}_2] \quad (1)$$

зависит от координат ионов меди 1 и 2 так же, как и от положения лиганда L_1 . Поэтому можно было ожидать, что магнитное упорядочение может влиять на статическое или динамическое изменение структуры, связанное с (1). В первой нашей работе [4], выполненной на трехосном спектрометре (ТАС) IN20, с помощью анализа поляризации были обнаружены ядерные вклады в магнитные спутники, соответствующие длиннопериодной несоразмерной спирали, как показано на рис. 8а.

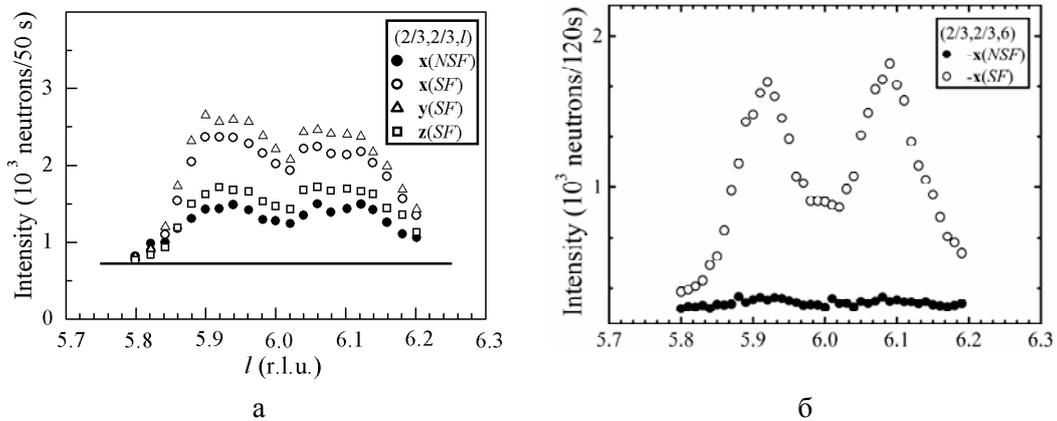


Рис. 8. Q_1 – сканы через магнитные спутники 2/3, 2/3, 6^\pm при $T = 1,9$ К:
а – спектрометр IN20 с горизонтальной фокусировкой,
б – спектрометр IN22 без фокусировки

Однако при систематических измерениях ядерные вклады, пропорциональные интенсивности без обращения вектора поляризации при его начальном направлении вдоль вектора рассеяния, не были зарегистрированы. В первой работе из-за горизонтальной фокусировки сфера Эвальда имела значительную толщину, что приводило к большой вероятности двукратного рассеяния, которое, в основном, идет без переворота вектора поляризации [5].

1. K. Adachi, N. Achiva, M. Meketa. J. Phys. Soc. Jpn. **49**, 1980, 545.
2. A.I. Moskvin, I.G. Bostrem, Sov. Phys. Solid State **19**, 1977, 1532.
3. I.E. Dzyaloshinskii. Sov. Phys. JETP **19**, 960, 1964.
4. V.P. Plakhty, J. Wosnitzer, J. Kulda, Th. Brueckel, W. Schweika, D. Visser, S.V. Gavrillov, E.V. Moskvin, R.K. Kremer, M.G. Banks. Phys. B **385–386**, 2006, 288.
5. V. Plakhty, Yu. Chernenkov, J. Schweizer, M. Bedrizova. Sov. Phys. JETP **53**, 1981, 1291.

Исследование сильно коррелированных фермионных систем и спиновой киральности с помощью дифракции нейтронов (Руководители проекта: проф. В.П. Плахтий, к. ф.-м. н. Ю.П. Черненко, к. ф.-м. н. О.П. Смирнов, к. ф.-м. н. И.В. Голосовский)

1. Исследование аномальной киральной критичности металлического гольмия

Критические явления в металлическом гольмии, как и в Dy, Tb, постоянно изучаются экспериментально и теоретически с момента открытия в них геликоидального магнитного упорядочения. Тем не менее, аномальная критичность при этом переходе до сих пор активно дискутируется. Интересно отметить, что величины критических индексов неоднократно менялись в соответствии с новыми теоретическими предсказаниями. В нашей работе ставилась задача определения всех критических индексов на одном и том же кристалле в связи с большим разбросом литературных данных, полученных на разных кристаллах. Измерения обычных критических индексов, параметра порядка β , восприимчивости γ и обратной корреляционной длины ν проводились на реакторе ВВР-М ПИЯФ. Соответствующие киральные индексы, β_C , γ_C и ν_C , измерялись на реакторе ИЛЛ с использованием разработанной в ПИЯФ методики, успешно применявшейся ранее при исследовании киральной критичности. Индекс теплоемкости α определялся в Исследовательском центре Россендорф.

В результате проведенных исследований получены следующие значения критических индексов: $\alpha = 0,04(2)$, $\beta = 0,410(5)$, $\gamma = 1,01(3)$, $\nu = 0,64(7)$, $\beta_C = 0,90(3)$, $\gamma_C = 0,69(5)$, $\alpha_C = \alpha$. Следует отметить, что при этом выполняется установленное ранее соотношение $2\beta < \beta_C$. Кроме того, показано, что деформация кручения, создаваемая при приложении механических усилий и необходимая для получения неравновесной заселенности киральных доменов, изменяет (уменьшает) величину α в пределах всего лишь трех стандартных ошибок. Это свидетельствует о ее малом влиянии на другие индексы.

Гольмий, как и исследовавшийся ранее треугольный магнетик CsMnBr₃ имеют одинаковую симметрию, поэтому фазовые переходы в обоих случаях должны относиться к одному классу универсальности $Z_2 \times SO(2)$, предсказанному теоретически и установленному экспериментально для CsMnBr₃. Наиболее чувствительным к киральной симметрии является критический индекс теплоемкости α , который в случае CsMnBr₃ равен 0,40(2) и на порядок превосходит полученную нами величину $\alpha = 0,04(2)$. Более того, в случае гольмия скейлинг оказывается неприменимым, в особенности для киральных индексов. Вместо скейлингового соотношения $\alpha + 2\beta_C + \gamma_C = 2$ экспериментальные значения приводят к $\alpha + 2\beta_C + \gamma_C = 2,53(8)$, что на семь стандартных ошибок превосходит следующую из скейлинга величину 2.

Дальнейшей целью работы было выяснение причины этого нарушения и соответствующего физического механизма, который был объяснен появлением несоизмеримости (рис. 9).

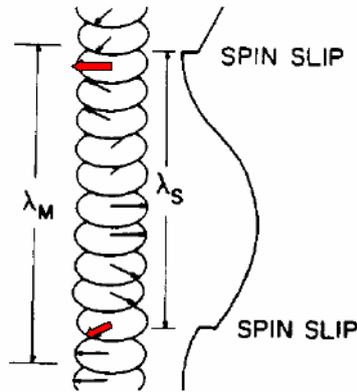


Рис. 9. Образование несоизмеримой магнитной структуры с волновым вектором $q_z = 2/11$ из-за наличия двух спинов в элементарной ячейке и анизотропии в базисной плоскости [11]. Наличие одного спина вместо двух на расстоянии пяти элементарных ячеек приводит к образованию границ

На рис. 10 показан профиль магнитного сателлита $(0, 0, 1^-)$ при продольном сканировании (вдоль q_z). При нормальной критичности этот профиль должен описываться функцией Лоренца (L), половина ширины которого на половине высоты определяется корреляционной длиной ζ , расходящейся согласно скейлингу как $\zeta \propto \tau^{-\nu}$, где $\tau = (T - T_N)/T_N$ и температура Нееля $T_N \approx 132$ К.

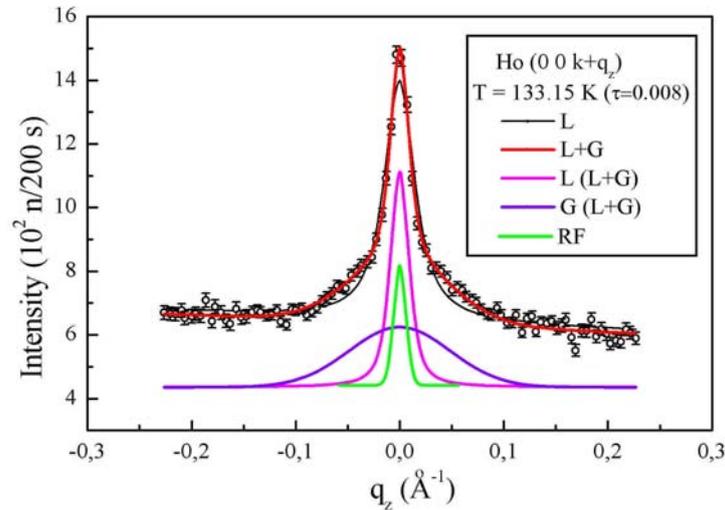


Рис. 10. Критическое рассеяние вблизи магнитного сателлита $(0, 0, 1^-)$

На рисунке видно, что для описания экспериментальной кривой следует добавить также функцию Гаусса (G). Результаты подгонки по методу наименьших квадратов сверткой этих двух функций с функцией разрешения (кривая RF) показаны кривой (L+G).

Таким образом, при приближении к критической точке существует два типа флуктуаций:

1. Флуктуации, не имеющие четких границ и характеризующиеся средней длиной корреляции ζ . В импульсном пространстве им соответствует функция Лоренца. Именно на такие флуктуации и распространяется теория скейлинга.
2. Случайно распределенные по размерам ограниченные флуктуации, которым в импульсном пространстве соответствует функция Гаусса с шириной, определяемой средним размером флуктуаций Z . Так как к теории скейлинга эти флуктуации никакого отношения не имеют, то очевидно, что скейлинг может быть нарушен. Остается выяснить возможную природу границ.

Ранее в нашей работе предсказывалось, что взаимодействие спиновой киральности с фононами может привести к смягчению фононной моды с волновым вектором, равным вектору магнитной спирали. В связи с тем, что интенсивность рассеяния на фоне обратна пропорциональна квадрату его частоты, то в эксперименте, представленном на рис. 10, который проводился без анализа поляризации, пик, близкий по форме к Гауссиану, может появиться из-за рассеяния на фоне. Контрольный эксперимент с рассеянием рентгеновского синхротронного излучения действительно позволил обнаружить такой пик, однако при рассеянии нейтронов его относительная интенсивность была бы пренебрежимо мала.

Как известно, в элементарной ячейке гольмия имеется два слоя с разностью фаз между ними, задаваемой симметрией. Однако это обстоятельство обычно не принимается во внимание, хотя поворот спинов в спирали относится не к отдельным слоям, а к элементарным ячейкам. Если к тому же принять во внимание анизотропию в базисной плоскости, то можно получить участки спирали с поворотом пары спинов, разделенные границами, содержащими лишь один спин, направленный вдоль одной из осей, задаваемых анизотропией. Пример для участков размером $1\frac{1}{2}$ слоев приведен на рис. 2.

Было показано, что в гольмии вблизи температуры происходит так называемый “lock-in” переход к соразмерному периоду $18/5$ элементарных ячеек ($20,2 \text{ \AA}$), что согласуется со средним размером флуктуаций, оцененным по ширине Гауссиана.

Таким образом, можно сделать вывод, что нарушение скейлинга заложено в самой природе спиновой спирали.

2. Исследование влияния взаимодействия Дзялошинского–Мория на кристаллическую решетку в киральных магнетиках методом поляризационного анализа рассеянных нейтронов

Эксперимент проводился на трехосном спектрометре поляризованных нейтронов D20, установленном на высокопоточном реакторе ИЛЛ (Гренобль,

Франция), так как ожидавшиеся эффекты как ядерного, так и магнитного рассеяния слишком слабы для наблюдения на существующем дифрактометре поляризованных нейтронов ПИЯФ. Длина волны нейтронов составляла $\lambda = 2,35 \text{ \AA}$.

На рис. 11 узлы кристаллической обратной решетки показаны незатемненными кругами, причем диаметр круга пропорционален логарифму интенсивности. Сплошной и пунктирный контур соответствуют энантиоморфным доменам $P6_122$ и $P6_522$. Очевидно, что объем, занимаемый разными доменами, может быть определен с высокой точностью из интенсивностей отражений (11).

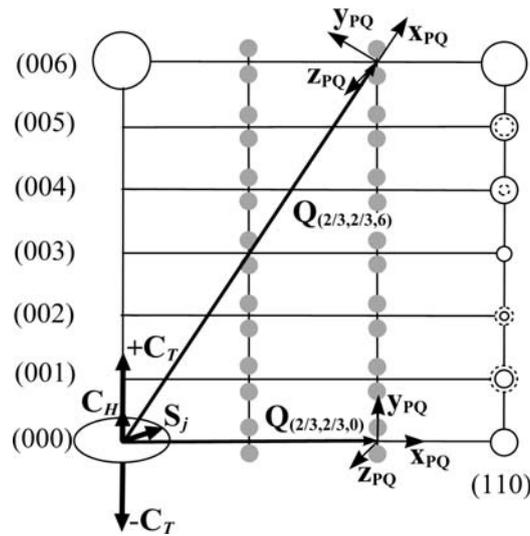


Рис. 11. Диаграмма рассеяния для $(2/3, 2/3, 0^\pm)$ и $(2/3, 2/3, 6^\pm)$. Пояснения в тексте

Магнитная структура представляет собой треугольное упорядочение спинов Cu^{2+} ($S = 1/2$) в плоскости (001) и геликоидальное упорядочение вдоль оси [001] с периодом спирали, равным $11,8c = 214 \text{ \AA}$, характерным для спирали Дзялошинского. Магнитные узлы обратной решетки представляют собой набор сателлитов с волновым вектором

$$\tau^\pm = (\mathbf{a}^* + \mathbf{b}^*)/3 \pm 0,085\mathbf{c}^*, \quad (2)$$

где \mathbf{a}^* , \mathbf{b}^* и \mathbf{c}^* – векторы обратной решетки. Магнитные узлы должны иметь индексы $(n/3, n/3, l \pm 0,085)$ при условиях, что n не кратно 3, а l не кратно 6 [1]. Тем не менее, в работе [2], кроме сателлитов $(1/3, 1/3, 0^\pm)$ и $(1/3, 1/3, 6^\pm)$, наблюдались сателлиты узлов с другими значениями l , как показано на рис. 3 серыми кругами. Интенсивность дополнительных сателлитов была в 10–50 раз слабее.

На рис. 12 показано сканирование вдоль l основных сателлитов $(2/3, 2/3, 0^\pm)$ и $(2/3, 2/3, 6^\pm)$ с переворотом (SF) и без переворота (NSF) спина нейтрона при начальной поляризации вдоль осей X_{PQ} , Y_{PQ} , Z_{PQ} (см. рис. 3). Соотношение интенсивностей $I_{\mathbf{x}}^{SF}(2/3, 2/3, 0^\pm) = I_{\mathbf{y}}^{SF}(2/3, 2/3, 0^\pm)$, $I_{\mathbf{z}}^{SF}(2/3, 2/3, 0^\pm) = 0$ харак-

терно для геликоида с осью вдоль оси $[0,0,1]$ и спинами в плоскости $(0,0,1)$. Небольшие примеси I_z^{SF} и I_x^{NSF} являются результатом неполной поляризации пучка. Очевидной особенностью спутников $(2/3, 2/3, 6^\pm)$ является значительная интенсивность I_x^{NSF} $(2/3, 2/3, 6^\pm)$ ядерного рассеяния, свидетельствующая о модуляции кристаллической структуры с периодом спирали Дзялошинского.

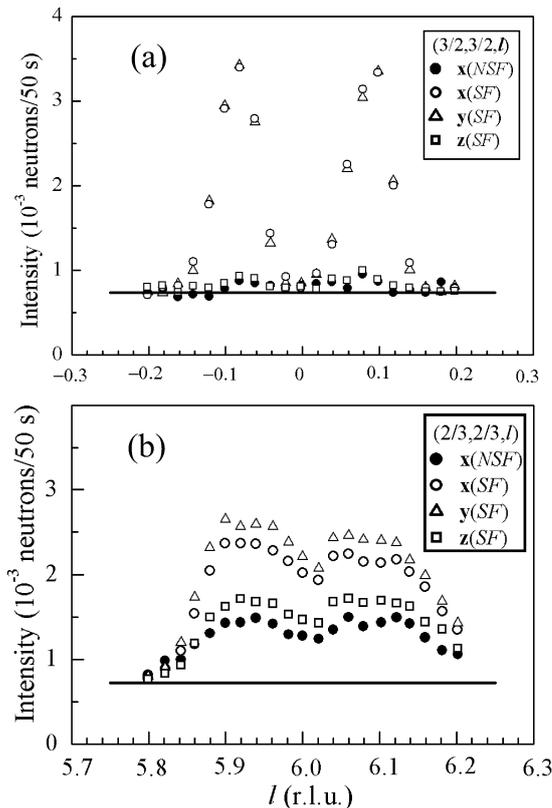


Рис. 12. Анализ поляризации для отражений (a) – $(2/3, 2/3, 0^+)$ и (b) – $(2/3, 2/3, 6^+)$

Влияние взаимодействия Дзялошинского–Мория на кристаллическую решетку в киральных магнетиках обнаружено впервые, и микроскопическая природа явления пока неизвестна. Для ее выяснения следует, прежде всего, определить из ядерных вкладов в магнитные спутники атомные смещения, происходящие в результате этого взаимодействия. Очевидно, что их нужно искать в виде комбинаций базисных функций неприводимых представлений группы волнового вектора спирали Дзялошинского [3]. Был предварительно проведен поляризационный анализ для всех спутников, представленных на рис. 11.

Несмотря на очень малую интенсивность, удалось обнаружить ядерные вклады почти во все магнитные спутники. Это дает уверенность в возможности набора массива ядерных вкладов в магнитные спутники, достаточного для определения

атомных смещений. Пока рано говорить о причине этих смещений, но можно сделать предположение, используя результаты работы [4], где было показано, что

$$\mathbf{D}_{ij} = D [\mathbf{R}_{iL} \times \mathbf{R}_{jL}], \quad (3)$$

где \mathbf{R}_{iL} , \mathbf{R}_{jL} – радиус-векторы от ближайших i, j ионов Cu^{2+} до промежуточного лиганда (L) Cl^{1-} . При магнитном упорядочении минимум энергии (1) может достигаться за счет изменения $\mathbf{R}_{iL} \times \mathbf{R}_{jL}$, т. е. положения промежуточного лиганда.

Таким образом, благодаря поляризационному анализу нам удалось впервые установить сильную связь взаимодействия Дзялошинского–Мория с кристаллической решеткой. Показана возможность определения атомных смещений с волновым вектором спирали Дзялошинского.

1. K. Adachi. Helical Magnetic Structure in CsCuCl_3 . / K. Adachi, N. Achiwa, M. Mekata. J. Phys. Soc. Jpn. **49**, 1980, p. 545–553.
2. M. Mekata. Magnetic ordering in CsCuCl_3 . / M. Mekata, Y. Ajiro, T. Sugino, A. Oohara, K. Ohara, S. Yasuda, Y. Oohara, H. Yoshizawa. J. Magn. Magn. Mat. **140–144**, 1995, p. 1987–1988.
3. I.E. Dzyaloshinskii. Commun. Phys. **2**, 1977, p. 69–71.
4. А.С. Москвин, И.Г. Бострем. ФТТ **19**, 1977, с. 1616–1626.