

# СПИН-ФЛОП-ПЕРЕХОД, ИНДУЦИРУЮЩИЙ МАГНИТОСТРИКЦИОННЫЕ И МАГНИТОДИЭЛЕКТРИЧЕСКИЕ АНОМАЛИИ В МОНОКРИСТАЛЛЕ $\alpha$ -MnS

**Г. М. Абрамова<sup>\*</sup>, А. Л. Фрейдман, С. А. Скоробогатов, А. М. Воротынов, С. М. Жарков,  
М. С. Молохеев, А. И. Панкрац**

*Институт физики им. Л. В. Киренского Красноярского научного центра  
Сибирского отделения Российской академии наук  
660036, Красноярск, Россия*

Поступила в редакцию 16 августа 2023 г.,  
после переработки 24 октября 2023 г.  
Принята к публикации 24 октября 2023 г.

В магнитных полях до 90 кЭ в температурном диапазоне 4.2–300 К выполнены экспериментальные исследования магнитных и магнитострикционных свойств монокристалла альфа-моносульфида марганца ( $\alpha$ -MnS) с кубической (NaCl-типа) структурой. Обнаружены аномалии в полевых зависимостях намагниченности и продольной магнитострикции, коррелирующие с поведением диэлектрической проницаемости вещества. Установлено, что в области температур ниже 130 К при изменении магнитного поля наблюдается магнитный переход типа спин-флоп (H<sub>sf</sub> ~ 50–70 кЭ), обусловленный магнитной анизотропией в плоскости легкого намагничивания. Изотермические исследования продольной магнитострикции и относительного изменения диэлектрической проницаемости при этих же температурах показали, что обе характеристики достигают значений порядка 10<sup>-3</sup> в полях 50–70 кЭ, испытывая аномалии при спин-флоп-переходе.

**DOI:** 10.31857/S004445102403009X

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Интенсивное исследование соединений 3d-элементов (MnO,  $\alpha$ -MnS, NiO) с гранецентрированной кубической (ГЦК) структурой NaCl-типа (пространственная группа Fm $\bar{3}$ m, центросимметричная решетка) обусловлено обнаружением в них ряда физических свойств, важных для развития магноники и страйнтроники, таких как спин-фононное взаимодействие, гибридизация фононных и магнонных мод, размерные эффекты, спин-флоп-переход [1–9].

Известны три структурные модификации моносульфида марганца [10], среди которых только альфа-фаза ( $\alpha$ -MnS) является изоструктурной и изомагнитной окислам MnO и NiO. Вещества группы MnO являются коллинеарными антиферромагнетиками второго типа с ГЦК-решеткой NaCl-типа [11, 12]. Антиферромагнитный переход в  $\alpha$ -MnS

при температуре Нееля T<sub>N</sub> = 150 К сопровождается ромбоэдрическим искажением кубической гранецентрированной решетки [13–16], которое в случае MnO подтверждается методом инфракрасной спектроскопии. В отличие от MnO [17] в  $\alpha$ -MnS с аналогичной кристаллической и магнитной структурой искажения решетки NaCl-типа методом инфракрасной спектроскопии не обнаружено [18]. Однако в результате исследования  $\alpha$ -MnS и его твердых растворов методом мессбауэровской спектроскопии [19, 20] установлено локальное искажение октаэдрических позиций кубической гранецентрированной решетки в антиферромагнитном состоянии. В области магнитного перехода обнаружена аномалия температурного коэффициента расширения решетки [21], подтверждающая взаимосвязь магнитных и структурных свойств  $\alpha$ -MnS. Изменение электрических и диэлектрических свойств кристалла  $\alpha$ -MnS в магнитоупорядоченной фазе обнаружено в работах [22, 23]. Одним из возможных механизмов, объясняющих взаимосвязь электрических, диэлектрических, магнитных и структурных свойств явля-

\* E-mail: agm@iph.krasn.ru

ется обменно-стрикционный механизм, важность которого для соединений типа MnO,  $\alpha$ -MnS и NiO обсуждалась в работах [11–13, 24–27]. Магнитострикция  $\alpha$ -MnS ранее не изучалась за исключением его твердых растворов  $Fe_xMn_{1-x}S$  [28], температурные зависимости намагниченности  $\alpha$ -MnS исследованы в магнитных полях до 50 кЭ [23]. Возможность спин-флоп-перехода в соединении MnO впервые рассмотрена в работе [29]. Результаты экспериментальных исследований для поликристалла MnO и для монокристалла NiO представлены в работах [30] и [8].

В данной статье представлены результаты экспериментального исследования влияния сильных магнитных полей до 90 кЭ на намагниченность и продольную магнитострикцию монокристалла  $\alpha$ -MnS. При намагничивании кристалла вдоль оси [100] в области  $T < 130$  К обнаружен скачок намагниченности, обусловленный спин-флоп-переходом, который вызван магнитной анизотропией в «легкой» плоскости. Исследования продольной магнитострикции и относительного изменения диэлектрической проницаемости показали, что обе характеристики испытывают аномалии при спин-флоп-переходе.

## 2. ОБРАЗЦЫ И ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ МЕТОДИКИ

Технология синтеза монокристалла альфа-мносульфида марганца ( $\alpha$ -MnS) представлена в работе [31]. Образцы были протестированы методом рентгеноструктурной дифракции в интервале 100–300 К. Рентгенограммы порошкообразного образца  $\alpha$ -MnS для последующего уточнения структуры методом Ритвельда получены на дифрактометре D8-ADVANCE ( $K_\alpha$ -излучение Cu) с использованием линейного детектора VANTEC. Эксперименты проведены при помощи температурной камеры Anton Paar TTK450. Расчеты и обработка массивов экспериментальных данных проведены с использованием программы DDM [32]. Было выполнено уточнение параметров ячейки, шкального фактора, профильных параметров и смещения нуля. Экспериментальная (точки) и теоретическая (сплошные линии) рентгенограммы исследуемого образца  $\alpha$ -MnS при  $T = 300$  К приведены на рис. 1.

Установлено, что при этой температуре кристаллическая структура вещества соответствует кубической гранецентрированной решетке типа NaCl (пр. группа  $Fm\bar{3}m$ ) с параметром элементарной ячейки  $a = 5.224(7)$  Å, результат согласуется с табличными данными (International Centre for Diffraction Data, 2016, Card 00-006-0518 green) и результатата-

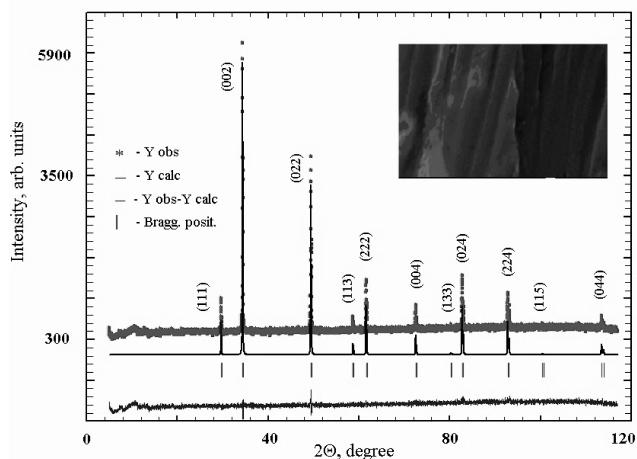


Рис. 1. Рентгенограммы монокристалла  $\alpha$ -MnS при  $T = 300$  К: экспериментальная (точки) и теоретическая (сплошные линии). Вставка: SEM-скан поверхности кристалла

ми [13, 14]. Дополнительных структурных линий на рентгенограммах, указывающих на наличие примесных фаз, не обнаружено. Микроструктура монокристалла  $\alpha$ -MnS и его элементный химический состав исследовались методом сканирующей электронной микроскопии (SEM) и EDS на оборудовании JEOL JSM-7001F с рентгеновским дисперсионным спектрометром (Oxford Instruments). На вставке рис. 1 показан один из SEM-сканов образца (разрешение 100 нм). Исследовались обе стороны плоскопараллельного монокристалла в разных точках поверхности. На основании результатов анализа более 10 измеренных спектров сделан вывод, что какие-либо дополнительные примеси в образце отсутствуют, а состав образца  $\alpha$ -MnS в среднем соответствует содержанию  $Mn_{0.992}S_{1.008}$ . Исходный монокристалл имел форму параллелепипеда с гранями, совпадающими с плоскостями типа (100) решетки типа NaCl и впоследствии был разделен на три части, каждая из которых далее использовалась для измерения диэлектрических ( $2 \times 3 \times 1$  мм<sup>3</sup>), магнитных ( $2 \times 2 \times 1$  мм<sup>3</sup>), резонансных и магнитострикционных свойств ( $2 \times 2 \times 7$  мм<sup>3</sup>). Измерения магнитострикции выполнены на емкостном дилатометре [33], разработанном на базе измерительной установки PPMS, позволяющей проводить измерения магнитострикции и коэффициента линейного температурного расширения при температурах от 1.85 до 350 К, магнитных полях до 90 кЭ. Измерялась продольная магнитострикция в магнитном поле, приложенном вдоль направления [100] образца. Температура измерительной ячейки в процессе полевых измерений поддерживалась постоянной с точностью  $\pm 0.5^\circ$ .

Учитывались паразитные емкости соединительных проводов и измерительной ячейки. Относительная ошибка измерения не превышала 5%. Измерения намагниченности выполнены на магнитометре PPMS-9T в интервале температур 4.2–300 К в магнитных полях до 90 кЭ для ориентации магнитного поля  $H \parallel [100]$ . Измерение диэлектрической проницаемости  $\epsilon_r$  выполнено с помощью измерителя RLC Agilent Technologies E4980A. На противоположные плоскости пластинки толщиной  $d = 1$  мм наносился проводящий клей на эпоксидной основе с серебряным наполнителем. При измерении диэлектрической проницаемости  $\epsilon_r$  переменное ( $f = 100$  кГц) электрическое поле  $E = 1600$  В/м было ориентировано в направлении [010] и перпендикулярно магнитному полю  $H \parallel [100]$ . Для подтверждения повторяемости результатов циклические измерения намагниченности и магнитострикции в магнитном поле выполнялись многократно при каждой заданной температуре.

### 3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

На рис. 2 приведены полевые зависимости намагниченности кристалла  $\alpha$ -MnS, измеренные при температурах 200 и 300 К в магнитных полях до 90 кЭ (здесь 3 — данные работы [23]).

В интервале температур  $T \geq 150$  К намагниченность кристалла  $\alpha$ -MnS имеет линейную зависимость, характерную для парамагнетиков. Температурные зависимости магнитной восприимчивости для изучаемого монокристалла  $\alpha$ -MnS, измеренные в магнитных полях до 50 кЭ, приведены в работе [23]. Полученные данные близки к результа-

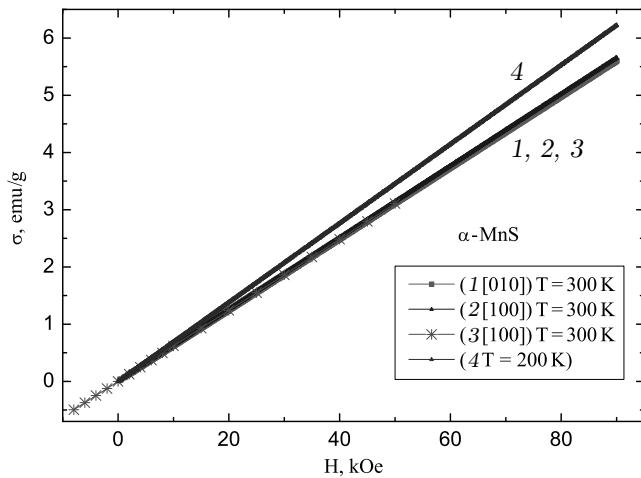


Рис. 2. Полевые зависимости намагниченности монокристалла  $\alpha$ -MnS, измеренные при  $T = 300$  К (1, 2 — данные настоящей работы, а 3 — [23]) и  $T = 200$  К (4)

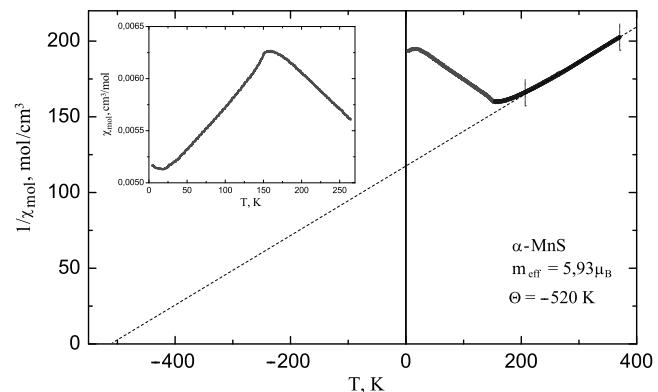


Рис. 3. Температурная зависимость обратной молярной восприимчивости монокристалла  $\alpha$ -MnS, измеренная в магнитном поле  $H = 500$  Э (красный) и 30 кЭ (синий). Вертикальными линиями показан линейный участок на температурной зависимости обратной молярной восприимчивости. На вставке — температурная зависимость прямой молярной восприимчивости монокристалла  $\alpha$ -MnS

там [14, 34]. При температурах выше температуры Нееля обратная магнитная восприимчивость  $1/\chi(T)$  монокристалла  $\alpha$ -MnS (рис. 3) соответствует закону Кюри – Вейсса с отрицательной парамагнитной температурой Кюри – Вейсса  $\Theta = -520 \pm 5$  К и эффективным магнитным моментом  $\mu_{\text{eff}} = (5.93 \pm 0.01) \mu_B$ . Приведенные экспериментальные значения  $\Theta$  и  $\mu_{\text{eff}}$  являются усредненными по всей серии измерений в различных полях. Полученное значение эффективного магнитного момента  $\mu_{\text{eff}}$  согласуется с теоретическим значением  $5.916 \mu_B$  с величинами  $g = 2$ ,  $S = 5/2$ .

Значения температуры Нееля  $T_N$  и парамагнитной температуры Кюри – Вейсса  $\Theta$  позволяют оценить параметры 180-градусного и 90-градусного обменов  $J_2(180^\circ) = -4.2$  К,  $J_1(90^\circ) = -5.3$  К с помощью известных соотношений [35] для антиферромагнетиков с ГЦК-решеткой и магнитным упорядочением второго типа:

$$k_B T_N = -(2/3)S(S+1)6J_2$$

и

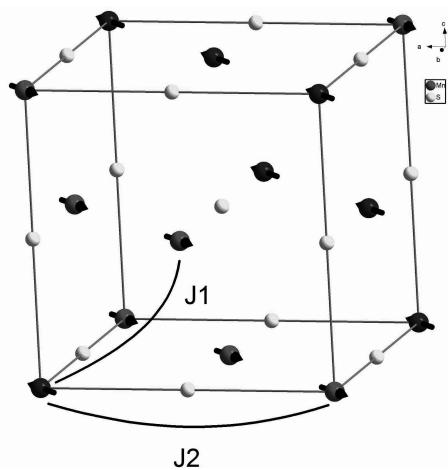
$$k_B \Theta = (2/3)S(S+1)[12J_1 + 6J_2]$$

с гамильтонианом обменного взаимодействия

$$H = 2J_1 \sum_{i=1}^{12} S_i S_{i+1} + 2J_2 \sum_{j=1}^6 S_j S_{j+1},$$

где суммирование по  $i$  ведется по ближайшим 12 соседям, по  $j$  — по 6 вторым соседям.

Магнитное упорядочение второго типа в ГЦК-решетке и соответствующие обменные интегралы  $J_1$  и  $J_2$  представлены на рис. 4.

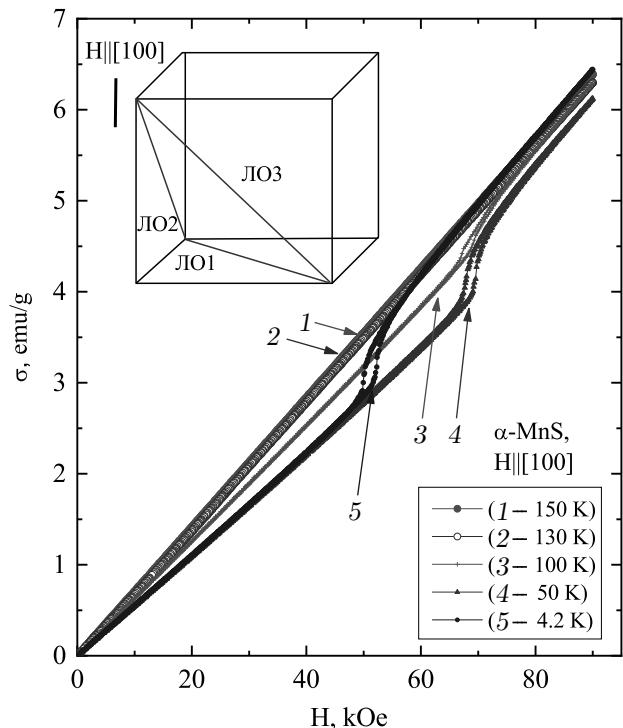


**Рис. 4.** Кристаллографическая ячейка  $\alpha$ -MnS с магнитным упорядочением второго типа. Показаны пути обмена  $J_2(180^\circ)$  и  $J_1(90^\circ)$  через ионы серы. Синим и красным цветом обозначены ионы марганца, принадлежащие различным подрешеткам

В работах [14, 16] предполагалось, что в области  $T_S = 130$  К в моносульфиде марганца с ГЦК-структурой ( $\alpha$ -MnS) при понижении температуры ромбоэдрическое сжатие кристаллической решетки сменяется ромбоэдрическим удлинением.

В результате экспериментальных исследований установлено, что в магнитоупорядоченном состоянии полевые зависимости намагниченности и магнитострикции кристалла  $\alpha$ -MnS существенно различаются в температурных областях выше и ниже 130 К.

В области 130–150 К полевые зависимости намагниченности  $\sigma(H)$  монокристалла  $\alpha$ -MnS сохраняют линейный характер в полях до 90 кЭ. Величины продольной магнитострикции  $\lambda_{\parallel}$  в магнитных полях до 90 кЭ в этом интервале температур типичны для изоструктурных и изомагнитных соединений MnO, NiO [36, 37] и не превышают значений  $\lambda_{\parallel} = +(1 \pm 0.5) \cdot 10^{-5}$ . Механизм изменения магнитострикции в изоструктурных антиферромагнетиках MnO, NiO неоднократно обсуждался в литературе [11, 12, 16, 36, 37] и связывался с формированием сложной доменной структуры, включающей магнитные  $S$ - и структурные  $T$ -домены. При температурах ниже  $T_S = 130$  К магнитные и магнитострикционные свойства монокристалла  $\alpha$ -MnS резко изменяются. Обнаружено, что при изменении величины магнитного поля в интервале от –90 кЭ до 90 кЭ в области критического магнитного поля  $\pm H_c$  наблюдается скачкообразное и обратимое изменение величины намагниченности  $\pm \sigma(H)$ , сопровождающееся магнитным гистерезисом. На рис. 5 приведены по-



**Рис. 5.** Полевые зависимости намагниченности монокристалла  $\alpha$ -MnS, измеренные при разных температурах. На вставке: три возможных направления легких осей анизотропии (ЛО) типа  $\langle 110 \rangle$  в ГЦК-решетке типа NaCl обозначены цифрами 1, 2, 3

левые зависимости намагниченности кристалла  $\alpha$ -MnS, измеренные в магнитных полях до 90 кЭ при различных температурах.

Результаты экспериментального исследования, в частности, различие в величинах магнитной восприимчивости до и после перехода, а также наличие гистерезиса свидетельствуют, что при заданной температуре в области  $H_c = H_{sf}$  монокристалл  $\alpha$ -MnS претерпевает магнитный переход типа спин-флоп. При охлаждении образца до температуры жидкого гелия наблюдается уменьшение величины  $H_c = H_{sf}$  примерно от 70 кЭ для  $T = 100$  К до примерно 50 кЭ при 4.2 К с одновременным ростом величины скачка намагниченности. Из представленных выше экспериментальных результатов следует, что критическое поле  $H_{sf} \sim 50$  кЭ, найденное при  $T = 4.2$  К для кристалла  $\alpha$ -MnS, практически совпадает с полем спин-флоп-перехода в NiO [8] и MnO [30]. Обнаруженный экспериментально спин-флоп-переход в NiO ( $H_{sf} = 54$  кЭ при  $T = 5$  К) объясняется [8] в рамках модели [29] поворотом магнитных моментов ионов никеля в плоскостях типа  $\langle 111 \rangle$ , перпендикулярных тригональной оси  $\langle 111 \rangle$ , от направления  $[1\bar{1}\bar{2}]$  к направлению  $[1\bar{1}0]$ . В отличие от NiO [8]

и MnO [30], в которых наличие спин-флоп-перехода фиксировалось по косвенным признакам (из анализа температурных зависимостей магнитной восприимчивости в поликристаллических образцах [30] или из полевых зависимостей производных от намагниченности по полю для монокристалла [8]), для  $\alpha$ -MnS полевые зависимости намагниченности (рис. 5) имеют классический вид спин-флоп, проявляющийся в виде скачка намагниченности в области критического поля.

Обсудим природу спин-флоп-перехода, наблюдаемого в кристалле  $\alpha$ -MnS в магнитном поле при  $H \parallel [100]$ . В результате нейтронографических исследований [16, 21, 38] при  $H = 0$  установлено, что магнитная структура  $\alpha$ -MnS при  $T = 4.2$  К описывается в рамках представления, учитывающего направление вектора распространения антиферромагнитной структуры  $\mathbf{Q} = k(1/2, 1/2, 1/2)$ , который соответствует удвоению магнитной ячейки относительно кристаллографической и выделяет направление ромбоэдрической деформации кубической решетки  $\langle 111 \rangle_Q$ . В магнитных плоскостях типа  $(111)$ , перпендикулярных направлению  $\langle 111 \rangle$ , магнитные моменты ионов  $Mn^{2+}$  ориентированы вдоль оси типа  $[1\bar{1}0]$ .

Анализ экспериментальных данных, представленных выше, выполнен в предположении, что  $\alpha$ -MnS аналогично MnO и NiO является легкоплоскостным антиферромагнетиком, в котором в результате ромбоэдрических искажений формируется сложная доменная структура, состоящая из структурных Т-доменов и магнитных S-доменов. Вследствие кубической симметрии параметров состояния в реальном кристалле возможны четыре направления ромбоэдрических искажений  $\langle 111 \rangle$ , что вызывает формирование структурных Т-доменов четырех типов. Перпендикулярно направлению искажения  $\langle 111 \rangle$  располагаются ферромагнитно-упорядоченные плоскости типа  $(111)$ , являющиеся легкими плоскостями анизотропии. Соседние плоскости  $(111)$  связаны между собой антиферромагнитным обменом. На вставке рис. 5 показана такая плоскость  $(111)$  для одного из четырех возможных Т-доменов. Вследствие слабой тригональной анизотропии в легких плоскостях существуют три возможных направления легких осей анизотропии (ЛО) типа  $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ . Поскольку плоскость содержит три таких направления, обозначенных на рисунке ЛО<sub>1</sub>, ЛО<sub>2</sub> и ЛО<sub>3</sub>, в области кристалла, занятой одним Т-доменом, формируются три типа магнитных S-доменов с различными направлениями антиферромагнитного вектора  $\mathbf{L} = \mathbf{M}_1 - \mathbf{M}_2$ . При намагничивании вдоль одной из легких осей анизотропии (ЛО<sub>1</sub>,

ЛО<sub>2</sub> или ЛО<sub>3</sub>) спин-флоп-переход сопровождается поворотом вектора  $\mathbf{L}$  от направления соответствующей ЛО (например,  $[1\bar{1}0]$  для ЛО<sub>1</sub>) к трудной оси  $[\bar{2}11]$ . Очевидно, что при ориентации поля  $\mathbf{H} \parallel [100]$  в магнитном домене с ЛО<sub>1</sub> спин-флоп-переход не происходит, так как вектор  $\mathbf{L}$  уже перпендикулярен к направлению поля  $\mathbf{H}$ , и полевая зависимость намагниченности в этом домене определяется магнитной восприимчивостью  $\chi_{\perp}$ . В остальных S-доменах с ЛО<sub>2</sub> и ЛО<sub>3</sub> антиферромагнитные векторы составляют одинаковый угол  $\pi/4$  с направлением поля, и полевые зависимости намагниченности в этих доменах в области полей  $H < H_{sf}$  определяются суперпозицией восприимчивостей  $\chi = (\chi_{\perp} + \chi_{\parallel})/2$ .

В рамках псевдокубической симметрии решетки легкие плоскости остальных трех типов Т-доменов совмещаются с исходной легкой плоскостью, показанной на вставке рис. 5, последовательным вращением на угол  $\pi/2$  вокруг направления поля  $\mathbf{H} \parallel [100]$ . Это объясняет, почему для этого направления поля, несмотря на наличие Т-доменов, спин-флоп-переход происходит одновременно при одинаковом для всех Т-доменов значении  $H_{sf}^{100}$  и поэтому имеет четко выраженную форму.

Таким образом, наблюдаемый при ориентации магнитного поля  $\mathbf{H} \parallel [100]$  скачок намагниченности является отражением спин-флоп-переходов, происходящих в S-доменах с ЛО<sub>2</sub> и ЛО<sub>3</sub>. А истинное критическое поле  $H_{sf}$  переходов для этих направлений может быть определено как проекция соответствующего критического поля  $H_{sf}^{100}$  на ЛО<sub>2</sub> и ЛО<sub>3</sub>. Следовательно, истинное значение критического поля спин-флоп-перехода в легкой плоскости для направления  $[100]$ :  $H_{sf} = H_{sf}^{100} \cos(\pi/4) = 36.2$  кЭ при  $T = 4.2$  К. Это значение позволяет определить эффективное поле анизотропии в легкой плоскости как  $H_{A3} = H_{sf}^2/2H_E$ . Необходимое для этих вычислений значение эффективного обменного поля можно оценить из полевой зависимости намагниченности для области  $H > H_{sf}$  (рис. 5), в которой намагниченность определяется магнитной восприимчивостью  $\chi_{\perp} = M_0/H_E$  [39], где  $M_0$  — намагниченность антиферромагнитных подрешеток. Таким образом, склонение антиферромагнитных подрешеток наступает в магнитном поле  $H = 2H_E$ . Из экспериментального значения  $\chi_{\perp} = 7.15 \cdot 10^{-5}$  см<sup>3</sup>/г и намагниченности насыщения  $M_S = 5\mu_B/\text{ф. ед.}$  для иона  $Mn^{2+}$  получается величина обменного поля  $H_E = 2.2 \cdot 10^6$  Э (или 297 К). С использованием этого параметра получаем эффективное поле анизотропии в легкой плоскости кристалла  $\alpha$ -MnS при  $T = 4.2$  К как  $H_{A3} = 290$  Э. Если сравнить с полем

анизотропии относительно главной оси анизотропии  $\langle 111 \rangle H_{A1} = 12.5$  кЭ (получено из щели для высокочастотной ветви антиферромагнитного резонанса  $\omega_c = 22$  см<sup>-1</sup> [18]), то такое соотношение выглядит типичным для легкоплоскостных антиферромагнетиков, в которых анизотропия в легкой плоскости определяется инвариантами более высокого порядка, чем анизотропия относительно главной оси кристалла. В то же время абсолютное значение поля  $H_{A3}$  оказалось неожиданно большим для S-иона Mn<sup>2+</sup>. Это значение почти в три раза превышает аналогичный параметр для NiO ( $H_{A3} = 110$  кЭ [8]), магнитоанизотропные свойства которого определяются ионом Ni<sup>2+</sup> с сильной спин-орбитальной связью. Для монокристалла MnO по данным антиферромагнитного резонанса [40] магнитная анизотропия в легкой плоскости при  $T = 77$  К не обнаружена. Для сравнения еще можно привести эффективное поле анизотропии  $H_{A3} = 3.3$  кЭ в легкой плоскости ромбоэдрического кристалла YFe<sub>3</sub>(BO<sub>3</sub>)<sub>4</sub> [41], магнитные свойства которого также определяются S-ионом Fe<sup>3+</sup>.

Учитывая, что при исследовании полевых зависимостей намагниченности кристалла  $\alpha$ -MnS в области температур 130–150 К спин-флоп-переход не проявляется, можно предположить, что появление относительно сильной анизотропии в легкой плоскости при  $T < 130$  К обусловлено сменой знака ромбоэдрических искажений решетки при этой температуре и усилением этих искажений при дальнейшем понижении температуры. Отметим еще одну особенность спин-флоп-перехода в  $\alpha$ -MnS. В опрокинутом состоянии при  $H > H_{sf}$  антиферромагнитные векторы  $\mathbf{L}$  во всех доменах ориентированы перпендикулярно приложенному магнитному полю. Следовательно, при спин-флоп-переходе фактически происходит монодоменизация кристалла. Однако совпадение полевых зависимостей намагниченности в области  $H < H_{sf}$  при магнитоциклизации говорит о том, что при обратном переходе из опрокинутого состояния доменная структура восстанавливается. Наиболее вероятная причина восстановления доменной структуры заключается в том, что в кристалле существуют локальные (скорее всего ростовые) напряжения, ориентация которых различается в различных областях кристалла. В результате, при переходе вупорядоченное состояние в каждой конкретной области кристалла эти напряжения способствуют выбору определенного типа домена Ti с одной из четырех возможных осей ромбоэдрических искажений типа  $\langle 111 \rangle$ . Поскольку приложение внешнего магнитного поля не изменяет этих напряжений,

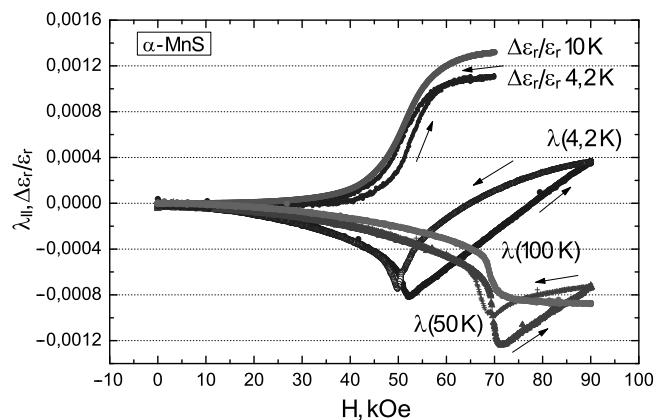


Рис. 6. Полевые зависимости относительной диэлектрической проницаемости ( $\Delta\epsilon_r/\epsilon_r$ ) и продольной магнитострикции  $\lambda_{\parallel} = \delta l/l$  для монокристалла  $\alpha$ -MnS

то при уменьшении поля и переходе из монодоменного спин-флоп-состояния в коллинеарную фазу исходная доменная структура восстанавливается так же, как и при переходе из парамагнитного в магнитоупорядоченное состояние. На рис. 6 приведены полевые зависимости магнитострикции  $\lambda_{\parallel}$  монокристалла  $\alpha$ -MnS, измеренные при температурах 4.2, 50 и 100 К.

Отметим три яркие особенности магнитострикции, характерные для области температур ниже 130 К. Прежде всего, из сопоставления данных, представленных на рис. 5 и 6, следует, что в области спин-флоп-перехода наблюдается аномальное изменение продольной магнитострикции  $\lambda_{\parallel}$  в магнитном поле. Скачок магнитострикции при  $H_{sf}$  возрастает при понижении температуры, подобно скачку намагниченности образца, и достигает отрицательных значений порядка  $10^{-3}$ , что на два порядка превышает значения, наблюдаемые для образца  $\alpha$ -MnS в температурном интервале 130–150 К.

Кроме того, существенно различается характер полевой зависимости магнитострикции выше и ниже спин-флоп-перехода. Если при  $H < H_{sf}$  магнитострикция нелинейно зависит от магнитного поля, то при  $H > H_{sf}$  ее абсолютная величина линейно уменьшается с ростом поля. Интересной особенностью  $\lambda_{\parallel}(H)$  в области выше спин-флоп-перехода является необычный полевой гистерезис, наблюдаемый при  $T = 4.2$  и 50 К. При уменьшении поля в области  $H_{sf} = 90$  кЭ наблюдается существенно нелинейное изменение магнитострикции, которое практически зеркально отображает поведение при  $H \leq H_{sf}$ . Гистерезисное поведение  $\lambda_{\parallel}(H)$  выше спин-флоп-перехода хорошо воспроизводится

при магнитоциклизации. Отметим, что величина  $\lambda_{\parallel}(H)$  для кристалла  $\alpha$ -MnS оказалась на порядок выше, чем в  $Fe_xMn_{1-x}S$  [28]. Данные о поведении магнитострикции для MnO и NiO в сильных магнитных полях нам не известны.

Отметим, что оцененное выше поле анизотропии в легкой плоскости кристалла  $\alpha$ -MnS является эффективным полем, которое, скорее всего, содержит не только вклад магнитной кристаллографической анизотропии, но и другие вклады — в первую очередь вклад ростовой анизотропии и магнитоупругий вклад. Возможно, именно значительный магнитоупругий вклад является причиной необычно большого значения эффективного поля анизотропии в легкой плоскости кристалла.

На рис. 6 также представлены полевые зависимости изменения действительной части диэлектрической проницаемости ( $\delta\epsilon_r/\epsilon_r$ ), измеренные при  $T = 4.2$  К и  $T = 10$  К ( $f = 100$  кГц). Результаты свидетельствуют, что обнаруженное ранее [23] изменение ( $\delta\epsilon_r/\epsilon_r$ ) монокристалла  $\alpha$ -MnS в области  $H_c \sim 50$  кЭ при 4.2 К коррелирует с магнитным переходом типа спин-флоп и магнитострикционным процессом. При этом относительное изменение величины ( $\delta\epsilon_r/\epsilon_r$ ) при  $H = H_{sf}$  имеет порядок  $10^{-3}$ , соизмеримый с изменением величины магнитострикции  $\lambda_{\parallel}$ . Поскольку аномальные изменения ( $\delta\epsilon_r/\epsilon_r$ ) и  $\lambda_{\parallel}$  для  $\alpha$ -MnS в магнитном поле происходят одновременно при спин-флоп-переходе, а также, учитывая одинаковый порядок изменения этих характеристик при переходе, можно предположить, что магнитодиэлектрический эффект связан с изменением магнитострикции.

#### 4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Выполнены исследования намагниченности и магнитострикции монокристалла  $\alpha$ -MnS с кубической гранецентрированной решеткой типа NaCl в широком диапазоне температур 4.2–300 К и магнитных полей до 90 кЭ. Обнаружено, что в области температур ниже 130 К при изменении магнитного поля, ориентированного вдоль кристаллографической оси [001], наблюдается скачок намагниченности при достижении критического поля, которое в зависимости от температуры меняется в интервале 50–70 кЭ. Показано, что этот скачок обусловлен спин-флоп-переходом, происходящим в легкой плоскости типа (111) кристалла и обусловлен магнитной анизотропией в этой плоскости.

Изотермические исследования продольной магнитострикции и относительного изменения диэлектрической проницаемости при этих же температурах показали, что обе характеристики достигают значений порядка  $10^{-3}$  в полях 50–70 кЭ, испытывая аномалии при спин-флоп-переходе.

**Благодарности.** Авторы благодарны О. А. Бажкову и Д. А. Балаеву за плодотворное обсуждение экспериментальных результатов, а также центру коллективного пользования ФИЦ КНЦ за предоставленную возможность выполнения экспериментальных работ.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. M. B. Jungfleisch, W. Zhang, and A. Hoffmann, Phys. Lett. A **382**, 865 (2018).
2. A. A. Bukharaev, A. K. Zvezdin, A. P. Pyatakov et al., Physics-Uspekhi **61**, 1175 (2018)
3. A. V. Chumak, V. I. Vasyuchka, A. A. Serga et al., Nature Physics **11**, 453 (2015).
4. E. Aytan, B. Debnath, F. Kargar et al., Apl. Phys. Lett. **111**, 252402 (2017).
5. S. Palchoudhury, K. Ramasamy, R. Gupta et al., Front. Mater. **5**, 83 (2019).
6. S. Baierl, J. H. Mentink, M. Hohenleutner et al., Phys. Rev. Lett. **117**, 197201 (2016).
7. D. A. Balaev, A. A. Krasikov, S. I. Popkov et al., J. Magn. Magn. Mater. **539**, 168343 (2021).
8. F. L. A. Machado, P. R. T. Ribeiro, J. Holanda et al., Phys. Rev. B **95**, 104418 (2017).
9. R. B. Pujary, A. C. Lokhande, A. A. Ayday et al., Materias and Design. **108**, 511 (2016).
10. C. N. R. Rao and K. P. R. Picharody, Prog. Sol. St. Chem. **10**, 207 (1976).
11. W. L. Roth, J. de Physique, suppl. C7 **38**, C7-151 (1977).
12. M. E. Lines and E. D. Jones, Phys. Rev. **141**, 525 (1966).
13. B. Morosin, Phys. Rev. B **1**, 236 (1970).
14. H. H. Heikens, G. A. Wiegers, and C. F. Bruggen, Sol. St. Commun. **24(3)**, 205 (1977).
15. H. van der Heide, C. F. van Bruggen, G. A. Wiegers, and C. Haas, J. Phys. C: Sol. St. Phys. **16**, 855 (1983).

16. W. Kleemann and F. J. Schafer, *J. Magn. Magn. Mater.* **25**, 317 (1982).
17. T. R. Ch. Kant, F. Mayr, and A. Loidl, *Phys. Rev. B* **77**, 024421 (2008).
18. J. V. Gerasimova, G. M. Abramova, V. S. Zhandun et al., *J. Raman Spectrosc.* **50**, 1572 (2019).
19. A. Tomas, L. Brossard, J. L. Dormann et al., *J. Magn. Magn. Mater.* **31**, 755 (1983).
20. G. M. Abramova, Yu. V. Knyazev, O. A. Bayukov et al., *Phys. Sol. St.* **63**, 68 (2021).
21. G. Abramova, Ju. Schefer, N. Aliouane et al., *J. Aloys Compd.* **632**, 563 (2015).
22. S. S. Aplesnin, L. I. Ryabinkina, G. M. Abramova et al., *Phys. Sol. St.* **46**, 2067 (2004).
23. G. Abramova, A. Freydman, E. Eremin et al., *J. Supercond. Nov. Magn.* **35**, 277 (2022).
24. D. S. Rodbel and J. Owen, *J. Appl. Phys.* **35**, 1002 (1964).
25. T. Yildirim, A. B. Harris, and E. F. Shender, *Phys. Rev. B* **58**, 3144 (1998).
26. M. A. Carpenter, Z. Zhang, and Ch. J. Howard, *J. Phys.: Cond. Matt.* **24**, 156002 (2012).
27. Z. Zhang, N. Church, S.-Ch. Lappe et al., *J. Phys.: Cond. Matt.* **24**, 215404 (2012).
28. G. M. Abramova, G. Petrakovskiy, R. Zuberek, et al., *JETP Lett.* **90**, 207 (2009).
29. F. Keeper and W. O'Sullivan, *Phys. Rev.* **108**, 627 (1957).
30. D. Bloch, J. L. Feron, R. Georges et al., *J. Appl. Phys.* **38**, 1474 (1967).
31. Г. М. Абрамова, А. Л. Фрейдман, В. В. Соколов, Патент RU 2 793 017 C1 (2023).
32. L. A. Solovyov, *J. Appl. Crystallogr.* **37**, 743 (2004).
33. А. Л. Фрейдман, С. И. Попков, С. В. Семенов, и др., Письма в ЖТФ **44**, 79 (2018).
34. J. J. Banewicz and R. Lindait, *Phys. Rev.* **104**, 318 (1956).
35. Дж. Смарт, *Эффективное поле в теории магнетизма*, Мир, Москва (1968).
36. P. de V. du Plessis, S. J. van Tonder, and L. Alberts, *J. Phys. C: Solid State Phys.* **4**, 2565 (1971).
37. T. R. McGuire and W. A. Crapo, *J. Appl. Phys.* **33**, 1291 (1962).
38. S. Steger and V. Yu. Pomjakushin, VP Report PSI, Switzerland (2008).
39. E. A. Turov, *Physical Properties of Magnetically Ordered Crystals*, Academic, New York (1965).
40. V. S. Mandel, V. D. Voronkov, and D. E. Gromzin, *J. Exp. Theor. Phys.* **36**, 521 (1973).
41. A. Pankrats, G. Petrakovskii, L. Bezmatemyik et al., *Phys. Sol. St.* **50**, 79 (2008).