

Ширина линии ферромагнитного резонанса гольмий-иттриевых ферритов-гранатов

© В.И. Плис, А.И. Попов

Московский государственный институт электронной техники (Технический университет),
Москва, Россия

E-mail: aip_2001@mail.ru

(Поступила в Редакцию 22 июля 2008 г.)

Теоретически исследованы особенности поведения ширины линии ферромагнитного резонанса гольмий-иттриевых ферритов-гранатов в зависимости от ориентации внешнего магнитного поля при низких температурах. Анализ проводился на основе модели спектра ионов гольмия, согласно которой основным состоянием иона являются два близлежащих уровня (квазидублет), достаточно удаленных от остальных уровней. Проведено сопоставление теоретических результатов с экспериментальными данными.

PACS: 76.50.+g, 75.50.Dd

Редкоземельные ферриты-гранаты обладают большим многообразием уникальных магнитных, магнитоупругих, магнитооптических и резонансных свойств, обусловленных наличием редкоземельных ионов в их составе (см., например, [1]). Эти соединения весьма интенсивно исследовались уже в течение нескольких десятилетий. Несмотря на это, к настоящему времени некоторые из свойств ферритов-гранатов с редкоземельными ионами все еще не нашли своего количественного объяснения. Так, в [2] были обнаружены резкие аномалии поведения ширины линии ферромагнитного резонанса гольмий-иттриевых ферритов-гранатов, содержащих очень малое количество ионов Ho^{3+} . Там же было высказано предположение о том, что причиной возникновения этих аномалий является сближение уровней ионов Ho^{3+} при определенных ориентациях вектора намагниченности этих соединений. Возможность подобного поведения уровней редкоземельных ионов в кристаллах гранатов обусловлена их кристаллической структурой.

Редкоземельные ферриты-гранаты $\text{R}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ (R — редкоземельный элемент или иттрий) имеют кубическую кристаллическую структуру, которая описывается пространственной группой O_h^{10} . В кристаллической решетке граната (элементарная ячейка содержит восемь формульных единиц $\text{R}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$) ионы Fe^{3+} занимают места с октаэдрическим кислородным окружением (a -места) и места с тетраэдрическим кислородным окружением (d -места). Между ионами Fe^{3+} в a - и d -местах существует сильное отрицательное обменное взаимодействие $\text{Fe}(a)\text{--Fe}(d)$ (эффективное поле $H_{a-d} = 2 \cdot 10^6$ Ое), приводящее к антипараллельной ориентации магнитных моментов ионов Fe^{3+} в этих местах, так что в полях $H \ll H_{a-d}$ совокупность магнитных моментов ионов Fe^{3+} можно рассматривать как одну $a\text{--}d$ -подрешетку ионов железа с магнитным моментом M , равным разности магнитных моментов a - и d -подрешеток (при 0 К $M = 5 \mu\text{B}$ на формульную единицу).

Редкоземельные ионы R^{3+} располагаются в местах с додекаэдрическим окружением ионами кислорода, име-

ющих точечную группу симметрии D_2 (c -места), причем в кристаллической решетке имеются шесть неэквивалентных c -позиций, различающихся ориентацией осей додекаэдра. Ориентация осей симметрии шести неэквивалентных c -позиций приведена в таблице. Следовательно, в общем случае необходимо рассматривать шесть различных редкоземельных подрешеток.

Магнитное упорядочение редкоземельных ионов осуществляется за счет отрицательного обменного взаимодействия преимущественно с d -подрешеткой железа. Эффективное поле R–Fe-взаимодействия имеет порядок 10^5 Ое, т.е. оно является взаимодействием существенно более слабым, чем взаимодействие $\text{Fe}(a)\text{--Fe}(d)$. Обменное взаимодействие между редкоземельными ионами на два порядка меньше обменного R–Fe-взаимодействия, и им можно пренебречь. Таким образом, в приближении самосогласованного поля и изотропного обменного R–Fe-взаимодействия в присутствии внешнего магнитного поля \mathbf{H} на редкоземельные ионы в ферритах-гранатах действует магнитное поле

$$\mathbf{H}_{\text{eff}} = \mathbf{H} - \lambda \mathbf{M}_d, \quad (1)$$

где \mathbf{M}_d — намагниченность d -подрешетки ионов железа, λ — параметр молекулярного поля. Для ионов гольмия при низких температурах (порядка $T = 4.2$ К) $\lambda M_d = 125$ кОе. Низкая симметрия кристаллического окружения редкоземельного иона R^{3+} в структуре граната приводит к максимально возможному снятию

Ориентация локальных осей симметрии додекаэдрических мест для шести неэквивалентных позиций редкоземельных гранатов

Локальная ось	Позиция					
	1	2	3	4	5	6
e_z	[001]	[001]	[100]	[100]	[010]	[010]
e_y	[110]	[110]	[011]	[011]	[101]	[101]
e_x	[110]	[110]	[011]	[011]	[101]	[101]

вырождения его основного мультиплета. Для некрамерсовского иона Ho^{3+} в гольмиевом алюминате-гранате основным состоянием является квазидублет со щелью $\sim 5 \text{ cm}^{-1}$ [3], достаточно удаленный от лежащих выше уровней. При этом собственные функции уровней, образующих квазидублет, являются такими, что квазидублет „реагирует“ только на локальную H_z -компоненту внешнего магнитного поля [3].

Если предположить, что спектр ионов в кристаллическом поле в гольмий-иттриевых ферритах-гранатах аналогичен спектру этих ионов в алюминате-гранате (квазидублет, удаленный от лежащих выше уровней) и взаимодействие ионов гольмия с эффективным полем \mathbf{H}_{eff} (см. (1)) существенно меньше по величине энергетического расстояния W между основным квазидублетом и возбужденными уровнями, то в эффективном поле поведение уровней квазидублета иона Ho^{3+} в r -м неэквивалентном месте описывается спин-гамильтонианом (в локальных осях)

$$H = I \left[\sum_{\alpha} q_{\alpha} (H_{\text{eff}\alpha}^r)^2 + \dots \right] - \left[\Delta_0 + \sum_{\alpha} q_{\alpha} (H_{\text{eff}\alpha}^r)^2 + \dots \right] \sigma_z + (\mu_z + \dots) H_{\text{eff}z}^r \sigma_y. \quad (2)$$

Здесь $(1/2)\mu_z$ — среднее значение оператора магнитного момента по волновым функциям основного квазидублета иона гольмия, Δ_0 — расстояние между уровнями квазидублета при $H_{\text{eff}} = 0$, q_{α} и p_{α} — численные коэффициенты, зависящие от спектра и волновых функций иона гольмия в кристаллическом поле феррита-граната, определяющие влияние возбужденных уровней иона гольмия на основной квазидублет, I — единичная матрица размерности 2×2 , σ_z и σ_y — матрицы Паули. Слагаемые более высоких порядков по H_{eff} , чем первый, представляют собой вклад в спин-гамильтониан лежащих выше уровней. В (2) выписаны слагаемые вплоть до второго порядка по H_{eff} (второй порядок теории возмущений по $\mu_B H_{\text{eff}} \ll W$). Уровни энергии, определяемые гамильтонианом (2),

$$E_{1,2}^{(r)} = \sum_{\alpha} q_{\alpha} (H_{\text{eff}\alpha}^{(r)})^2 \pm \frac{1}{2} \Delta_r, \quad (3)$$

где

$$\Delta_r = \left\{ \left[\Delta_0 + \sum_{\alpha} q_{\alpha} (H_{\text{eff}\alpha}^r)^2 + \dots \right]^2 + ((\mu_z + \dots) H_{\text{eff}z}^r)^2 \right\}^{1/2}. \quad (4)$$

Ясно, что в данной модели аномалии поведения ширины линии ферромагнитного резонанса гольмий-иттриевых ферритов-гранатов должны наблюдаться вблизи осей [001] и [110], поскольку в этих случаях происходят сближения нижних уровней ионов гольмия соответственно в местах 3–6 и 1,2 (см. таблицу), что соответствует данным эксперимента.

Перейдем теперь к количественному рассмотрению поведения ширины линии ферромагнитного резонанса гольмий-иттриевых ферритов-гранатов. В работе [4] при использовании соотношений (3), (4), в которых пренебрегалось перенормировкой величины щели Δ_0 слагаемыми $p_{\alpha} (H_{\text{eff}\alpha}^r)^2$, было проведено количественное рассмотрение поведения величины поля ферромагнитного резонанса в гольмий-иттриевых ферритах-гранатах с очень малым содержанием ионов гольмия в зависимости от ориентации внешнего поля в плоскости (110). Сопоставление теоретических результатов, полученных в [4], с данными опыта для $\text{Ho}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ [2] показало их хорошее согласие. Для ширины линии ферромагнитного резонанса подобного количественного анализа проведено не было. Однако данное исследование представляется весьма интересным как вследствие большой чувствительности ширины линии ферромагнитного резонанса к виду спектра редкоземельных ионов, так и с точки зрения адекватности механизмов релаксации спиновой подсистемы.

Перейдем теперь к количественному рассмотрению поведения ширины линии ферромагнитного резонанса в гольмий-иттриевых ферритах-гранатах. В редкоземельных гранатах предпочтительным является механизм медленной релаксации (см., например, [5]). В этом случае для двухуровневой системы (квазидублет ионов Ho^{3+} в эффективном магнитном поле) в предположении равномерного распределения ионов Ho^{3+} по неэквивалентным узлам ширина линии ферромагнитного резонанса $\text{Ho}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ определяется формулой [5]

$$2\Delta H = \frac{N}{24MkT} \sum_{r=1}^6 \left[\left(\frac{\partial \Delta_r}{\partial \vartheta} \right)^2 + \left(\frac{\partial \Delta_r}{\partial \Phi} \right)^2 \right] \times \left(\text{sech} \frac{\Delta_r}{2kT} \right)^2 \frac{\omega \tau_r}{1 + \omega^2 \tau_r^2}. \quad (5)$$

Здесь N — число ионов Ho^{3+} в образце (в расчете на одну молекулу $\text{Ho}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ $N = x$); $\Phi = \varphi \sin \vartheta$; ϑ и φ — соответственно полярный и азимутальный углы, отсчитываемые от осей кристаллографической системы координат, которые определяют направление вектора \mathbf{M} ; ω — частота резонанса; τ — время релаксации. В интересующем нас случае низких температур преобладают прямые процессы релаксации, для которых (см., например, [5]) частота релаксации

$$\frac{1}{\tau_r} = \frac{1}{\tau_0} \text{cth} \frac{\Delta_r}{2kT}. \quad (6)$$

При низких температурах частота релаксации $\frac{1}{\tau}$ редкоземельных ионов не превышает значений 10^9 rad/s , так что для частот $\nu \sim 10 \text{ GHz}$, реализуемых в эксперименте, $\omega \tau \gg 1$.

Рассмотрим случай, когда внешнее магнитное поле \mathbf{H} лежит в плоскости (110) и составляет угол β с осью [001]. Перейдем к системе координат, задаваемой

тройкой ортонормированных векторов $\mathbf{l}_1, \mathbf{l}_2, \mathbf{l}_3$, которые выберем следующим образом:

$$\mathbf{l}_3 = \left(\frac{\sin \beta}{\sqrt{2}}, \frac{\sin \beta}{\sqrt{2}}, \cos \beta \right), \quad \mathbf{l}_2 = [\bar{1}10], \quad \mathbf{l}_1 = \mathbf{l}_2 \times \mathbf{l}_3.$$

Редкоземельные ферриты-гранаты при низких температурах обладают большой магнитной анизотропией, практически полностью обусловленной вкладом редкоземельных ионов. Ориентация вектора намагниченности \mathbf{M} редкоземельных ферритов-гранатов может заметно отличаться от направления внешнего магнитного поля \mathbf{H} . В интересующих нас материалах концентрация ионов гольмия в гольмий-иттриевых ферритах-гранатах чрезвычайно мала (составляет тысячную и менее части от концентрации ионов гольмия в гольмиевом феррите-гранате). Однако, несмотря на это, как показал анализ, отклонение \mathbf{M} от направления \mathbf{H} в данном случае также обусловлено главным образом вкладом ионов гольмия (см. далее рис. 1), значительно по величине (вблизи направлений $[001]$ и $[110]$), и его учет является весьма существенным при количественном описании особенностей поведения ширины ферромагнитного резонанса $\text{Ho}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$. Равновесная ориентация \mathbf{M} определяется из минимизации термодинамического потенциала системы, который запишем в виде (в расчете на одну молекулу $\text{Ho}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$)

$$\Phi = -\mathbf{M}\mathbf{H} - \frac{x}{6} kT \sum_{r=1}^6 \ln \text{ch} \left(\frac{\Delta_r}{2kT} \right) - \frac{K_1}{2} (l_x^4 + l_y^4 + l_z^4), \quad (7)$$

где первое слагаемое представляет собой энергию взаимодействия ионов железа с магнитным полем, второе слагаемое — вклад ионов гольмия, Δ_r определены в (4), а третье слагаемое — энергия анизотропии подрешетки железа с точностью до первой константы кубической анизотропии K_1 (l_α — компоненты вектора $\mathbf{l} = \mathbf{M}/M$). Пренебрежем для простоты перенормировкой величины щели слагаемыми $p_\alpha H_{\text{eff}\alpha}^2$ (см. (4)). Минимизация (7) по \mathbf{l} при \mathbf{H} , лежащем в плоскости $(1\bar{1}0)$, и $H \ll \lambda M_d$ дает

$$\gamma(\beta) = \frac{90}{\pi} \frac{\sin 2\beta}{H(\beta)} B(\beta) Z(\beta), \quad (8)$$

где

$$B(\beta) = \frac{xkTD}{3MH} \left[\frac{\text{th}(Dx_1(\beta))}{x_1(\beta)} - \frac{\text{th}(Dx_2(\beta))}{x_2(\beta)} \right] - H_A \left(\frac{\sin^2 \beta}{2} - \cos^2 \beta \right),$$

$$Z(\beta) = 1 + \frac{\cos 2\beta}{H(\beta)} B(\beta) + \frac{\cos 2\beta}{2H(\beta)} \frac{\partial B(\beta)}{\partial \beta},$$

$$D = \frac{\mu_z \lambda M_d}{2kT}, \quad \delta = \frac{\Delta_0}{\mu_z \lambda M_d},$$

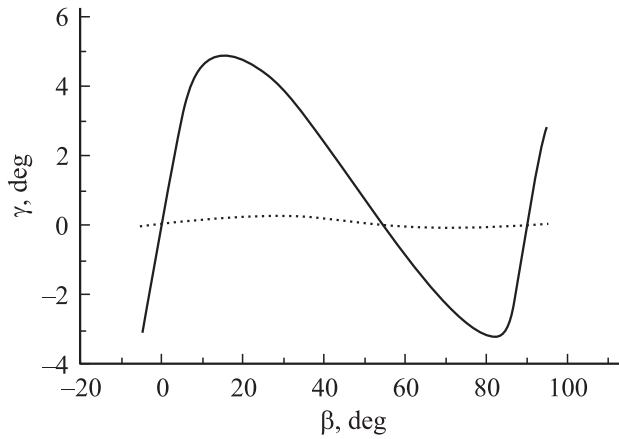


Рис. 1. Изменение угла отклонения вектора намагниченности подрешетки железа от направления резонансного поля в зависимости от его ориентации в плоскости $(1\bar{1}0)$. Сплошная линия — расчет по формуле (8), пунктирная — вклад подрешеток ионов железа.

$H_A = \frac{|K_1|}{M}$ — поле анизотропии иттриевого феррита-граната (при низких температурах $H_A \approx 42$ Oe),

$$x_1(\beta) = \sqrt{\delta^2 + \frac{\sin^2 \beta}{2}}, \quad x_2(\beta) = \sqrt{\delta^2 + \cos^2 \beta}. \quad (9)$$

Величина поля ферромагнитного резонанса в гольмий-иттриевых ферритах-гранатах зависит от ориентации поля $\mathbf{H} = \mathbf{H}(\beta)$ и изменяется в пределах 2.5–4.5 kOe (для $x = 0.003$) [2,4].

На рис. 1 приведена зависимость угла γ от направления внешнего поля, рассчитанная по формуле (8) со следующими параметрами:

$$\lambda M_d = 125 \text{ kOe}, \quad x = 0.003, \quad T = 4.2 \text{ K},$$

$$H_A = 42 \text{ Oe}, \quad M = 5 \mu_B,$$

для величин Δ и μ_z были использованы их значения, определенные из анализа экспериментальных данных для алюмината-граната гольмия [3]: $\Delta = 5 \text{ cm}^{-1}$, $\mu_z = 16.4 \mu_B$.

При расчетах мы использовали экспериментально полученную в [2] зависимость $H(\beta)$. Отметим, что, несмотря на очень малое содержание ионов Ho^{3+} в образце ($x = 0.003$), величина угла отклонения \mathbf{M} и \mathbf{H} практически полностью определяется ионами Ho^{3+} (вклад анизотропии подрешетки железа, как показали расчеты, пренебрежимо мал, максимальная величина угла отклонения составляет $\sim 0.25^\circ$).

Теперь перейдем к анализу поведения ширины линии ферромагнитного резонанса гольмий-иттриевых феррито-гранатов. Как и ранее, пренебрежем перенормировкой величины щели Δ_0 слагаемыми $p_\alpha H_{\text{eff}\alpha}^2$ (см. (4)). В этом случае из (5), (4), (6) при учете соотношений

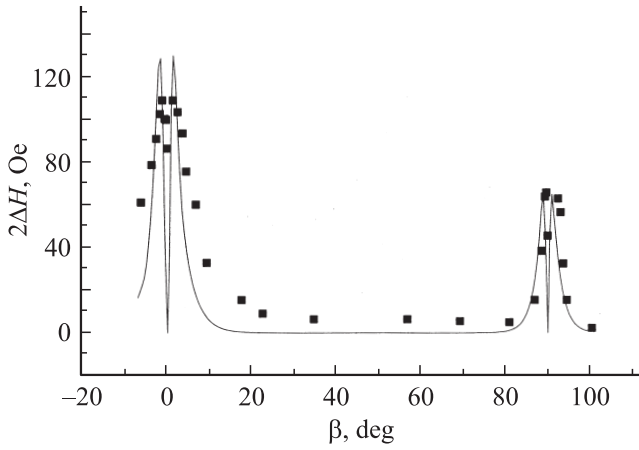


Рис. 2. Зависимость ширины линии ферромагнитного резонанса от ориентации внешнего магнитного поля в плоскости (110). Сплошная линия — расчет по формуле (10), точки — экспериментальные данные, полученные в [2].

$\omega\tau \gg 1, H \ll \lambda M_d$ получим

$$2\Delta H = A \sin^2 \alpha \left[\frac{1 + \cos^2 \alpha}{x_1^2(\alpha) \operatorname{sh}(2Dx_1(\alpha))} + \frac{2 \cos^2 \alpha}{x_2^2(\alpha) \operatorname{sh}(2Dx_2(\alpha))} \right], \quad (10)$$

где $\alpha = \beta + \gamma$, $A = \frac{x(\mu_z \lambda M_d)}{3 \cdot 4 \cdot 5 \mu_B k T \omega_0 \tau}$, $x_{1,2}(\alpha)$ определяются формулой (9).

На рис. 2 приведена зависимость ширины линии ферромагнитного резонанса гольмий-иттриевого феррита-граната от направления внешнего поля, рассчитанная по формуле (10) со следующими параметрами: $\lambda M_d = 125 \text{ kOe}$, $x = 0.003$, $T = 4.2 \text{ K}$; $\nu = 8.9 \text{ GHz}$, для Δ и μ_z были использованы указанные выше значения этих величин [3]. При этом частота релаксации $\frac{1}{\tau_0}$ была выбрана равной $\frac{1}{\tau_0} = 0.9 \cdot 10^9 \text{ rad/s}$, что по порядку величины является типичным значением для редкоземельных ферритов-гранатов. На этом же рисунке нанесены экспериментальные данные, полученные Агеевым и Гуревичем [2], при $x = 0.003$, $T = 4.2 \text{ K}$.

Видно, что имеет место вполне приемлемое общее согласие экспериментальных и теоретических зависимостей ширины линии резонанса от направления магнитного поля, хотя и наблюдаются небольшие отклонения в высоте пиков при $\beta = 0$ и $\beta = \frac{\pi}{2}$. Дальнейшее улучшение согласия теории и эксперимента может быть осуществлено посредством учета перенормировки величины Δ слагаемыми $\rho_\alpha H_{\text{eff}\alpha}^2$ (см. (4)), обусловленными влиянием лежащих выше уровней. Однако проводить данную процедуру в настоящее время представляется неактуальным, поскольку она предъявляет чрезвычайно высокие требования к точности экспериментальных данных, в связи с чем можно указать на небольшое нарушение симметрии расположения экспериментальных значений $2\Delta H(\beta)$ относительно оси $\beta = \frac{\pi}{2}$ (рис. 2).

В заключение отметим, что использование механизма медленной релаксации и модели спектра ионов Ho^{3+} , согласно которой основным состоянием этих ионов в $\text{Ho}_x \text{Y}_{3-x} \text{Fe}_5 \text{O}_{12}$ является квазидублет, представляющий собой два близлежащих синглета, реагирующий на z -локальную компоненту эффективного магнитного поля, позволило количественно описать наблюдаемые на опыте особенности поведения ширины линии ферромагнитного резонанса исследуемого соединения в зависимости от направления внешнего магнитного поля.

Список литературы

- [1] А.К. Звездин, В.М. Матвеев, А.А. Мухин, А.И. Попов. Редкоземельные ионы в магнитоупорядоченных кристаллах. Наука, М. (1985). 296 с.
- [2] А.Н. Агеев, А.Г. Гуревич. ФТТ **11**, 2122 (1969).
- [3] P. Novak, V. Nekvasil, T. Egami, P.J. Flanders, E.M. Gyorgy, L.C. van Viter, W.H. Grodkiewicz. J. Magn. Magn. Matter. **22**, 35 (1980).
- [4] Р.З. Левитин, А.И. Попов, В.В. Снегирев. ФТТ **24**, 3138 (1982).
- [5] А.Г. Гуревич. Магнитный резонанс в ферритах и антиферромагнетиках. Наука, М. (1973). 592 с.