

# Ферромагнитный резонанс в поликристаллических гексаферритах $\text{Co}_{2-x}\text{Zn}_x\text{W}$

© В.А. Журавлев

Томский государственный университет,  
634050 Томск, Россия

E-mail: ptica.rff@elefot.tsu.ru

(Поступила в Редакцию 5 августа 1998 г.)

Излагаются результаты экспериментального исследования спектров ферромагнитного резонанса в поликристаллических гексаферритах системы  $\text{Co}_{2-x}\text{Zn}_x\text{W}$  в диапазоне частот 16–32 GHz. Показано, что при интерпретации экспериментальных данных необходимо учитывать анизотропию эффективного магнитомеханического отношения (или  $g$ -фактора). Проведено сопоставление эксперимента с расчетом, выполненным на основе уравнения движения, обеспечивающего сохранение длины механического момента. Определены концентрационные зависимости компонент тензора магнитомеханического отношения и полей анизотропии данной системы гексаферритов при комнатной температуре. Обсуждаются причины отличия полей анизотропии, измеренных в области спинпереориентационного перехода, от результатов, даваемых другими методами.

Наблюдаемая на поликристаллических ферритах с большой магнитокристаллической анизотропией сложная структура линии ферромагнитного резонанса (ФМР) — дополнительные максимумы поглощения и ступеньки — была объяснена Шлеманом в рамках модели “независимых зерен”. В работах [1–3] им было показано, что особенности на кривых ФМР имеют место при величинах намагничивающих полей, соответствующих стационарным направлениям на угловой зависимости резонансного поля  $H_R(\Theta, \Phi)$  монокристаллических зерен — кристаллитов, из которых состоит поликристалл. Здесь  $\Theta, \Phi$  — полярный и азимутальный углы вектора намагничивающего поля относительно кристаллографических осей кристаллита. Эти направления  $(\Theta_i, \Phi_i)$  соответствуют максимумам, минимумам и седловым точкам поверхности  $H_R(\Theta, \Phi)$  и удовлетворяют условию  $\text{grad}H_R(\Theta, \Phi) = 0$ . В гексагональных кристаллах, энергия магнитокристаллической анизотропии которых имеет вид

$$F_a = k_1 \sin^2 \theta + k_2 \sin^4 \theta + k_3 \sin^6 \theta + k_4 \sin^6 \theta \cos 6\varphi, \quad (1)$$

где  $\theta, \varphi$  — углы вектора намагниченности,  $k_i$  — константы анизотропии, единственными стационарными направлениями для сферического образца при  $|k_1| \gg |k_2|, |k_3|$  являются направления вдоль гексагональной оси ( $\Theta_1 = \theta_1 = 0$ ) и в базисной плоскости ( $\Theta_{2,3} = \theta_{2,3} = \pi/2, \Phi_2 = \varphi_2 = \pi/6, \Phi_3 = \varphi_3 = 0$ ). Для этих направлений резонансные частоты ФМР образца сферической формы могут быть легко получены, например, методом Сула–Смита [4], см. ниже формулы (4) при  $\gamma_{\parallel} = \gamma_{\perp} = \gamma$ . Здесь  $\gamma = ge/2mc$  — магнитомеханическое отношение,  $g$  — эффективный  $g$ -фактор,  $e$  и  $m$  — заряд и масса электрона соответственно,  $c$  — скорость света.

Наличие аналитических выражений (4) дает возможность определения полей анизотропии по особенностям на экспериментальной кривой ФМР поликристаллов.

Этим методом в работах [2,5,6] были найдены поля анизотропии ряда ферритов с гексагональной структурой, а в [7,8] — ферритов с кубической и тетрагональной структурами. Измерения в [2,5–7] проведены на одной частоте, поэтому при вычислении полей анизотропии в [2,5,6] предполагалось, что  $g$ -фактор равен двум, а в [7] его оценки не проводились. Однако известно, см., например, [8–10], что у гексаферритов  $g$ -фактор заметно отличается от двух и, кроме этого, в одноосных материалах при некоторых условиях он может быть анизотропным [11–13].

Если  $|k_1| \approx |k_2|, |k_3|$ , что выполняется в окрестности спинпереориентационных фазовых переходов [14], то на угловых зависимостях  $H_R(\Theta, \Phi)$  возможно появление дополнительных стационарных направлений [15] при углах  $\Theta$ , отличных от 0 и  $\pi/2$ , и, следовательно, необходима предварительная идентификация наблюдаемых на опыте максимумов и ступенек резонансных кривых с соответствующими им стационарными направлениями. При этом нужно иметь в виду, что в реальных материалах из-за затухания однородной прецессии особенности на резонансных кривых сглажены и величины полей, при которых они наблюдаются, как правило, отличаются от полей  $H_R(\Theta_i, \Phi_i)$  соответствующих стационарных направлений (см. [15], а также рис. 1 данной статьи).

Таким образом, для повышения точности оценки полей анизотропии из опытов по ФМР на поликристаллических гексаферритах необходимо, во-первых, проведение исследований в диапазоне частот для определения величины  $g$ -фактора и возможной его анизотропии. Во-вторых, необходимо сопоставлять не величины полей максимумов и ступенек на экспериментальных кривых с формулами (4), а сравнивать форму расчетной и экспериментальной кривых. Методика расчета резонансной кривой поликристаллических гексаферритов в приближении “независимых зерен” при произвольном соотношении между константами анизотропии была предложена в работе [15]. Однако расчетные соотношения в [15],

полученные на основе решения уравнения движения вектора намагниченности Ландау–Лифшица, к средам с анизотропным  $g$ -фактором не применимы, поскольку это уравнение не обеспечивает сохранения длины векторов магнитного и механического моментов, а также выполнения закона сохранения энергии. Обобщение расчета [15] проведено далее.

В работе [12] было получено уравнение движения, удовлетворяющее условиям сохранения модуля механического момента и энергии в средах с анизотропным  $g$ -фактором. Оно применено для анализа ФМР в гексагональных кристаллах с двумя коллинеарными подрешетками и учетом в энергии анизотропии членов с  $k_1, k_2$  в [13], где показано, что при анализе низкочастотного — ”ферромагнитного” типа колебаний можно также, как и в случае изотропного  $g$ -фактора, рассматривать ферромагнитный кристалл как ферромагнетик с эффективными параметрами. Выражение для плотности свободной энергии кристалла может быть записано

$$F = F_h + F_a = -IH[\gamma_{\perp} \sin \Theta \sin \theta \cos(\Phi - \varphi) + \gamma_{\parallel} \cos \Theta \cos \theta] + F_a, \quad (2)$$

здесь  $F_h$  — зеемановская энергия,  $H$  — величина намагничивающего поля,  $I$  — модуль вектора механического момента,  $\gamma_{\parallel}, \gamma_{\perp}$  — компоненты тензора эффективного магнитомеханического отношения для направлений, параллельного и перпендикулярного гексагональной оси соответственно. Второе слагаемое — энергия анизотропии, записывается аналогично (1), но разложение ведется по степеням вектора механического момента. Угловая зависимость резонансного поля может быть найдена из решения системы уравнений

$$\begin{aligned} F'_{\theta}(\theta_0, \varphi_0, \Theta, \Phi) &= 0, \\ F'_{\varphi}(\theta_0, \varphi_0, \Theta, \Phi) &= 0, \\ \omega^2 &= (I \sin \theta_0)^{-2} [F''_{\theta\theta} F''_{\varphi\varphi} - (F''_{\theta\varphi})^2]. \end{aligned} \quad (3)$$

В (3) первые два уравнения определяют равновесную ориентацию механического момента — углы  $\theta_0, \varphi_0$ , а третье — резонансную частоту однородной прецессии при заданных углах  $\Theta, \Phi$ . Система (3) решалась численно методом последовательного уточнения корней, начиная с  $\Theta = \Theta_3, \Phi = \Phi_3$ . Углы  $\Theta, \Phi$  изменялись в пределах  $\pi/2 \geq \Theta \geq \Delta\Theta, 0 \leq \Phi \leq \pi/6$  с заданным шагом  $\Delta\Theta, \Delta\Phi$ . Для каждого направления поля за нулевое приближение выбиралось решение (3) для предыдущего случая. Корни системы (3) для исходного направления  $H_R(\Theta_3, \Phi_3) = H_3$  и направления вдоль гексагональной оси  $H_R(\Theta_1, \Phi_1) = H_1$  находятся из резонансных частот для стационарных направлений

$$\begin{aligned} \omega_1/\gamma_{\parallel} &= H_1 + (\gamma_{\perp}/\gamma_{\parallel})H_{a1}, \\ (\omega_{2,3}/\gamma_{\perp})^2 &= (H_{2,3} \pm H_{\Phi})(H_{2,3} - H_{\Theta} \pm H_{\Phi}/6). \end{aligned} \quad (4)$$

Здесь  $H_{a1} = 2k_1/M$ ,  $H_{\Theta} = 2(k_1 + 2k_2 + 3k_3)/M$ ,  $H_{\Phi} = 36k_4/M$  — поля анизотропии,  $\omega$  — круговая

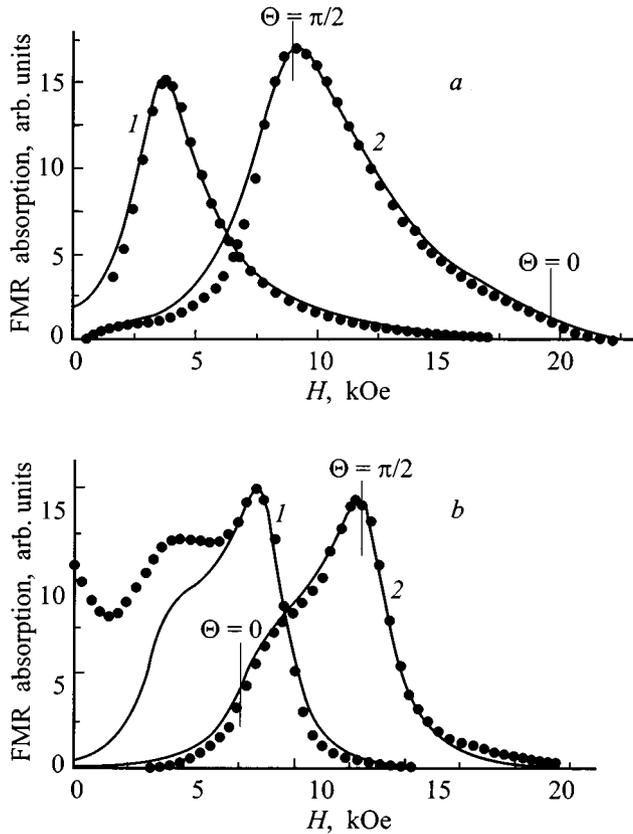
частота,  $M = \gamma_{\perp}I$  — намагниченность насыщения,  $H_i$  — величины резонансных полей. Резонансная кривая поликристалла рассчитывается с учетом конечности ширины линии кристаллитов ( $\Delta H = \alpha(\omega/\gamma_{\perp})$ ,  $\alpha$  — постоянная затухания в уравнении движения) по формуле

$$W(h) = \frac{1}{4\pi} \times \int_0^{\pi} \int_0^{2\pi} \frac{1}{\pi} \frac{\alpha}{[h - h_R(\Theta, \Phi)]^2 + \alpha^2} \sin \Theta d\Theta d\Phi, \quad (5)$$

где  $h_R(\Theta, \Phi) = \gamma_{\perp}H_R(\Theta, \Phi)/\omega$ .

Экспериментальное исследование спектров ФМР проведено при комнатной температуре в диапазоне частот 16–32 GHz на образцах сферической формы диаметром 0.6–0.8 mm, изготовленных из поликристаллических гексаферритов системы  $\text{BaCo}_{2-x}\text{Zn}_x\text{Fe}_{16}\text{O}_{27}$  ( $\text{Co}_{2-x}\text{Zn}_x\text{W}$ ) с  $0.5 \leq x \leq 1.6$ . Выбор материалов обусловлен тем, что гексаферриты этой системы довольно хорошо изучены: известна магнитная структура, построены магнитные фазовые диаграммы, исследованы их характеристики — поля анизотропии, намагниченность насыщения в статических и импульсных полях как на монокристаллических [16], так и на поликристаллических [17] образцах в широком диапазоне температур. У материалов с малым содержанием ионов цинка при комнатной температуре реализуется магнитное упорядочение типа плоскости, а с большим — оси легкого намагничивания. Спин-переориентационный фазовый переход (СПФП) через промежуточную фазу с конусом легкого намагничивания (КЛН) при комнатной температуре наблюдается вблизи концентрации  $x \approx 1.3$  [17,18]. Таким образом, на данных материалах можно сопоставить результаты измерения полей анизотропии методом ФМР с результатами, полученными другими методами, и провести сравнение теории с экспериментом для различных типов магнитного упорядочения.

Эксперимент проводился по следующей методике: на фиксированных частотах указанного выше диапазона, с использованием проходных прямоугольных многомодовых резонаторов с колебаниями  $TE_{10n}$  и стандартной аппаратуры — панорамных измерителей КСВн — записывались кривые ферромагнитного резонанса. Затем определялись поля, соответствующие наблюдаемым на кривых ФМР ступенькам, максимумам и строились их частотные зависимости. Обработкой этих зависимостей методом наименьших квадратов по формулам (4) находились величины  $\gamma_{\parallel}, \gamma_{\perp}$  и приближенные значения полей анизотропии. Затем, путем подбора величин полей анизотропии и постоянной затухания  $\alpha$ , добивались максимального совпадения формы расчетной и экспериментальной кривых на нескольких частотах, получая уточненные значения полей  $H_{a1}, H_{\Theta}, H_{\Phi}$ . На рис. 1 представлены экспериментальные (точки) и расчетные (сплошные линии) резонансные кривые двух составов исследованных материалов с плоскостью (а) и осью (б)



**Рис. 1.** Линии ФМР гексаферритов  $\text{Co}_{2-x}\text{Zn}_x\text{W}$ . *a* —  $x = 1$ , 1 —  $f = 16.886$  GHz,  $\alpha = 0.23$ ; 2 —  $f = 32.720$  GHz,  $\alpha = 0.19$ ; *b* —  $x = 1.5$ , 1 —  $f = 21.468$  GHz,  $\alpha = 0.15$ ; 2 —  $f = 32.720$  GHz,  $\alpha = 0.11$ . Вертикальные отрезки на резонансных кривых указывают положение стационарных направлений.

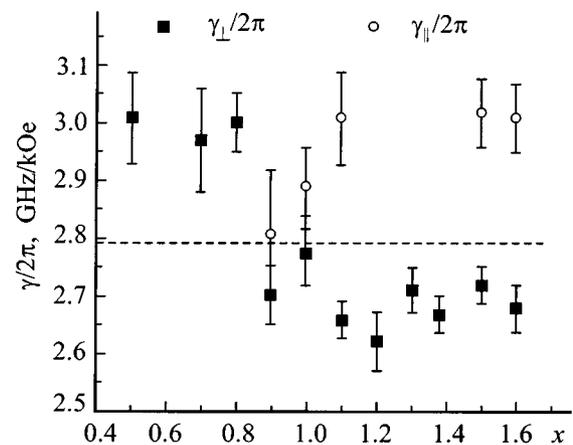
легкого намагничивания. Хорошее соответствие расчета и эксперимента наблюдается и для всех других концентраций ионов  $\text{Zn}^{2+}$ , за исключением низкополевых ( $H \rightarrow 0$ ) участков кривых ФМР образцов некоторых составов, у которых наблюдаются дополнительные потери из-за совпадения частоты измерений с полосой частот естественного ферромагнитного резонанса [18]. Типичная в этом случае резонансная кривая приведена на рис. 1, *b* для частоты 21.468 GHz. Отметим, что параметр затухания  $\alpha$  убывает с увеличением частоты и концентрации  $x$ , причем его величина ( $\alpha \approx 0.3-0.1$ ) такова, что соответствует довольно большой собственной ширине линии кристаллита  $\Delta H \approx 2-1$  kOe.

На рис. 2 приведены концентрационные зависимости измеренных магнитомеханических отношений вдоль гексагональной оси —  $\gamma_{\parallel}/2\pi$  и в базисной плоскости —  $\gamma_{\perp}/2\pi$ . Прямая линия, параллельная оси абсцисс, — величина  $\gamma/2\pi = 2.8$  GHz/kOe ( $g = 2$ ). Видно, что при большой концентрации ионов  $\text{Zn}^{2+}$  магнитомеханическое отношение анизотропно, причем  $\gamma_{\parallel} - \gamma_{\perp} > 0$ . С уменьшением  $x$  эта разница уменьшается и вблизи

состава с  $x = 0.9$   $\gamma_{\parallel} \approx \gamma_{\perp}$ . Для составов с  $x \leq 0.8$  вопрос об анизотропии  $g$ -фактора остается открытым, поскольку ступенька на резонансных кривых в направлении трудного намагничивания нами не наблюдались (поле  $H_1 \geq 20$  kOe). Величина  $\gamma_{\parallel}$  в области концентраций  $1.2 \leq x \leq 1.4$  не может быть определена, поскольку в окрестности СПФП анизотропия мала и особенности на линии ФМР слабо выражены.

Поле анизотропии в базисной плоскости удалось оценить только сверху, поскольку в эксперименте не наблюдалось расщепления максимумов для резонансных полей  $H_2, H_3$ . При этом учет  $H_{\Phi}$  оказывает такое же влияние на резонансную кривую, как увеличение параметра затухания  $\alpha$ . Получено, что  $H_{\Phi} < 1.5$  kOe для всех концентраций ионов  $\text{Zn}^{2+}$ , это коррелирует с результатами, приведенными в [18].

Результаты измерений концентрационных зависимостей полей анизотропии представлены в таблице. Погрешность их определения составляет  $\pm 0.3$  kOe. Вне области спинпереориентационного фазового перехода величины полей анизотропии хорошо соответствуют данным, полученным другими методами как на монокристаллических [16], так и на поликристаллических текстурированных [17] образцах. В окрестности СПФП ( $1.2 \leq x \leq 1.4$ ) при оценке полей анизотропии считалось, что  $\gamma_{\parallel}/2\pi = 3$  GHz/kOe, поскольку именно такие величины магнитомеханического отношения наблюдаются как до, так и после данного диапазона концентраций. Величины и знаки полученных для этих составов полей  $H_{\Theta}, H_{a2}$  отличаются от измеренных на этих же материалах в работе [17,18]. Поле  $H_{\Theta}$  меняет знак при  $x \approx 1.42$  и, кроме этого, у составов с  $x = 1.3, 1.38$  наблюдается конус трудного намагничивания (КТН), тогда как, согласно [17,18], у состава с  $x = 1.3$  при комнатной температуре должны выполняться соотношения:  $H_{\Theta} \geq 0, H_{a1} < 0, H_{a2} \geq |H_{a1}|$  характерные для КЛН.



**Рис. 2.** Концентрационная зависимость компонент тензора магнитомеханического отношения гексаферритов  $\text{Co}_{2-x}\text{Zn}_x\text{W}$ .

Поля анизотропии гексаферритов системы  $\text{Co}_{2-x}\text{Zn}_x\text{W}$ 

Концентрация	$H_{\Theta}$ , кОе	$H_{a1}$ , кОе	$H_{a2}$ , кОе
0.5	-13	-	-
0.7	-11.8	-	-
0.8	-10.4	-	-
0.9	-10	-10	-
1	-7.7	-7.7	-
1.1	-5.8	-4.8	-1
1.2	-5.2	-4.2	-1
1.3	-2.5	-1	-1.5
1.38	-1	0.5	-1.5
1.5	2.1	3.6	-1.5
1.6	4.5	5.5	-1

Хотя применимость модели "независимых зерен" к материалам с полями анизотропии, сравнимыми по величине с намагниченностью насыщения, каковыми являются гексаферриты  $\text{Co}_{2-x}\text{Zn}_x\text{W}$  с  $1.2 \leq x \leq 1.4$ , не бесспорна, полученное расхождение измеренных полей  $H_{\Theta}$ ,  $H_{a2}$  с данными [17,18] не связано с методической погрешностью. Одно из возможных объяснений обусловлено наличием анизотропии  $g$ -фактора. Поскольку длина вектора намагниченности при этом зависит от ориентации по отношению к кристаллографическим осям, то разложение  $F_a$  по его степеням будет содержать слагаемые вида [12]

$$F_a = \beta_1 M^2 + \beta_2 M^4 + \beta_3 M_z^2 + \beta_4 M^2 M_z^2 + \beta_5 M_z^4 + \dots, \quad (6)$$

где  $\beta_i$  — константы анизотропии. Для изотропного  $g$ -фактора в этом разложении останутся только слагаемые, пропорциональные  $\beta_3$  и  $\beta_5$ . Воспользовавшись связью между  $I$  и  $M$ , можно выразить константы, входящие в (1) через константы, описывающие анизотропию магнитного момента (6). При этом  $k_i$  будут зависеть от констант  $\beta_i$ , характеризующих как анизотропию модуля, так и  $z$ -компоненты вектора намагниченности. Различные методики определения полей анизотропии могут содержать разные комбинации констант  $\beta_i$  что и может быть причиной наблюдаемого расхождения полей анизотропии, измеренных нами, с данными работ [16–18], в которых анизотропия  $g$ -фактора не учитывалась.

Кроме этого, зависимость типа магнитного упорядочения (КТН или КЛН) от наличия или отсутствия магнитного поля, наблюдаемое для состава с  $x = 1.3$ , указывает на неадекватность учета анизотропных взаимодействий в окрестности СПФП с помощью разложения (1). В работах [19,20] показано, что введение немагнитных ионов в гексаферриты может приводить к локальным искажениям симметрии обменных связей и появлению благоприятных условий для возникновения анизотропного и антисимметричного обменных взаимодействий, причем по порядку величины обменные интегралы этих взаимодействий сравнимы с интегралом изотропного обмена.

Таким образом, проведенные в работе исследования ФМР в гексаферритах системы  $\text{Co}_{2-x}\text{Zn}_x\text{W}$  показали, что по крайней мере для составов с  $x \geq 0.9$  существует заметная анизотропия эффективного  $g$ -фактора. Поля анизотропии, измеренные по особенностям на резонансных кривых поликристаллов вне области СПФП, согласуются с литературными данными. В окрестности СПФП наблюдается расхождение величин и знаков полей анизотропии, измеренных разными методами, что может быть связано с недостатками традиционного феноменологического подхода и необходимостью разработки более общей трактовки наблюдаемых в таких материалах явлений на основе многоподрешеточной модели с гамильтонианом, учитывающим наряду с энергией анизотропии энергию анизотропного и антисимметричного обменных взаимодействий, как было предложено в [19,20].

## Список литературы

- [1] E. Schlomann. J. Phys. Radium **20**, 327 (1959).
- [2] E. Schlomann, R.V. Jones. J. Appl. Phys. **30**, 177 (1959).
- [3] E. Schlomann. J. Phys. Chem. Solids **6**, 257 (1958).
- [4] А.Г. Гуревич. Магнитный резонанс в ферритах и антиферромагнетиках. Наука, М. (1973). 591 с.
- [5] Е.П. Найден, Г.И. Рябцев, В.А. Журавлев, В.И. Голещихин. ФТТ **27**, 10, 3155 (1985).
- [6] В.С. Корогодов, В.А. Журавлев, В.И. Голещихин. Изв. вузов. Физика **5**, 118 (1987).
- [7] М.М. Брезгунов, А.Е. Петров. Изв. АН ЛатвССР. Сер. физ. и тех. наук **3**, 57 (1980).
- [8] I. Onyszkiewicz, J. Pietrzak. Phys. Stat. Sol. **A73**, 641 (1982).
- [9] L.M. Silber, C.E. Patton, H.F. Nagvi. J. Appl. Phys. **54**, 4071 (1983).
- [10] E.I. Rayess, J.B. Sokoloff, C. Vittoria, W. Spurgeon. J. Appl. Phys. **67**, 9, 5527 (1990).
- [11] Е.А. Туров. Физические свойства магнитоупорядоченных кристаллов. Изд-во АН СССР, М. (1963). 224 с.
- [12] Л.Б. Власов, Б.Х. Ишмухаметов. ФММ **11**, 1, 3 (1961).
- [13] A.G. Gurevich, V.A. Sanina, E.I. Golovenchits, S.S. Starobinets. J. Appl. Phys. **40**, 3, 1512 (1969).
- [14] А.И. Мицек, Н.П. Колмакова, Д.И. Сирота. ФММ **41**, 3, 464 (1976).
- [15] В.А. Журавлев, В.С. Корогодов, В.И. Голещихин. Изв. вузов. Физика **2**, 58 (1984).
- [16] A. Paoluzi, F. Licci, O. Moze, G. Turilli, A. Deriu, G. Albanese, E. Calabrese. J. Appl. Phys. **63**, 5074 (1988).
- [17] Е.П. Найден, В.И. Малец, Г.И. Рябцев. Phys. Stat. Sol. (a) **120**, 209 (1990).
- [18] В.А. Журавлев, В.И. Суляев, Е.П. Найден, В.И. Кириченко. Изв. вузов. Физика **9**, 107 (1990).
- [19] M. Acquarone. J. Phys. C: Sol. Stat. Phys. **12**, 1373 (1979).
- [20] M. Acquarone. Phys. Rev. B: Condens Matter. **24**, 3847 (1981).