

УДК 538.69, 537.611.46

О ТЕМПЕРАТУРНОЙ ЗАВИСИМОСТИ ЧАСТОТ АФМР И КОНСТАНТ АНИЗОТРОПИИ В $YFeO_3$

А. Э. Егоян, А. А. Мухин

Из анализа температурных зависимостей частот антиферромагнитного резонанса (АФМР) определены различные вклады в константы анизотропии $YFeO_3$ в ас- и аб-плоскостях, обусловленные одноионной анизотропией, дипольным взаимодействием и анизотропным обменом. Конкуренцией этих вкладов объясняется наблюдавшееся ранее немонотонное поведение квазиферромагнитной моды АФМР в диапазоне температур 50–500 К.

Ортоферрит иттрия относится к широкому классу редкоземельных слабых ферромагнетиков $RFeO_3$ (R – редкоземельный ион), имеющих искаженную структуру перовскита, описываемую пространственной группой D_{2h}^{16} [1]. Магнитные свойства $YFeO_3$ определяются только ионами Fe^{3+} , что делает этот ортоферрит удобным объектом для изучения различных магнитных взаимодействий в d -подсистеме: изотропного и анизотропного $Fe-Fe$ обмена, энергии магнитной анизотропии [1, 2] и вкладов в нее от различных механизмов (одноионный, обменный и др.) [3–5].

В литературе появились новые данные по $YFeO_3$, полученные методом диэлектрической субмиллиметровой спектроскопии [6, 7] и антиферромагнитного резонанса (АФМР) [8], которые позволяют получить дополнительную информацию о магнитных взаимодействиях в $YFeO_3$. В частности, наблюдаемая в [6, 7] немонотонная температурная зависимость частоты квазиферромагнитной моды АФМР свидетельствует о конкуренции различных вкладов (например, обменного и одноионного) в магнитную анизотропию $YFeO_3$. В данной работе на основе данных [6, 7] определены различные вклады в энергию анизотропии и другие параметры $YFeO_3$, что позволило описать наблюдаемые магнитные и резонансные свойства $YFeO_3$ в широком интервале температур и магнитных полей.

Для анализа магнитных и резонансных свойств $YFeO_3$ будем исходить из термодинамического потенциала (ТП), который в двухподрешеточном приближении после минимизации по вектору ферромагнетизма F ($|F| \ll |G|$) имеет вид (напр., [9]):

$$\Phi = \Phi_0(G) - (1/2)\chi_{\perp}H^2 + (1/2)(\chi_{\perp} - \chi_{\parallel})(\mathbf{H}\mathbf{g})^2 - m(T)(H_xg_z - H_zg_x) + \\ + (1/2)K_{ac}g_z^2 + (1/2)K'_{ab}g_y^2 + (1/4)K_2g_z^4 + (1/4)K'_2g_y^4 + (1/2)K''_2g_z^2g_y^2, \quad (1)$$

где $\mathbf{g} = \mathbf{G}/G_0(T)$ - единичный вектор вдоль вектора антиферромагнетизма; $\mathbf{F} = (\mathbf{M}_1 + \mathbf{M}_2)/2M_0$; $\mathbf{G} = (\mathbf{M}_1 - \mathbf{M}_2)/2M_0$; $\mathbf{M}_1, \mathbf{M}_2$ - намагниченности подрешеток; $\chi_{\perp} = M_0/2H_E$, χ_{\parallel} - соответственно поперечная и продольная восприимчивости; $m(T) = \chi_{\perp}H_DG_0(T)$ - слабоферромагнитный момент; H_E, H_D - поля соответственно изотропного и антисимметричного обмена; M_0 - магнитный момент насыщения Fe -подрешеток ($M_0 \approx 5\mu_B$ в расчете на один ион Fe^{3+}); $K_{ac,ab}, K_2, K'_2, K''_2$ - константы анизотропии; $G_0(T) = |\mathbf{G}|$ - приведенная намагниченность подрешеток.

Магнитная анизотропия в $YFeO_3$ стабилизирует фазу $\Gamma_4(G_xF_z)$ при всех температурах ниже точки Нееля (т.е. $K_{ac,ab} > 0$) [1, 2]. Основные вклады в энергию анизотропии $YFeO_3$ дают следующие механизмы: анизотропный $Fe-Fe$ обмен ($K_{ac,ab}^{ex}$), магнитодипольное взаимодействие ($K_{ac,ab}^{dip}$) и кристаллическое поле (одноионный вклад) [3-5]. Последнее состоит из двух вкладов: кубического ($K_{ac,ab}^{cub}$) и низкосимметричного (орторомбического $K_{ac,ab}^{orth}$), обусловленного искажениями кислородных октаэдров, окружающих ионы Fe^{3+} .

В результате константы анизотропии с учетом различной температурной зависимости указанных вкладов можно представить в следующем виде [9-11]:

$$K_{ac,ab}(T) = K_{ac,ab}^{ex}(T) + K_{ac,ab}^{dip}G_0^2(T) + \\ + K_{ac,ab}^{orth}\rho_2(T) + K_{ac,ab}^{cub}\rho_4(T), \quad (2)$$

где $\rho_n(T) = \langle Y_n^0 \rangle_T / \langle Y_n^0 \rangle_0$, $\langle Y_n^0 \rangle_T$ - сферические гармоники, усредненные с матрицей плотности $\rho = \exp(S_z x)$, $x = (1/S)B_s^{-1}(G_0(T))$; B_s^{-1} - обратная функция Бриллюэна; $S = 5/2$ - спин иона Fe^{3+} . Зависимость $G_0(T)$ вычислим в приближении молекулярного поля из уравнения $G_0 = B_s(3ST_N G_0 / (S + 1)T)$.

Обменный вклад $K_{ac,ab}^{ex}(T)$ включает наряду с антисимметричным обменом Дзялошинского - Мория также другие обменно-релятивистские вклады как квадрупольного, так и недипольного типа. Поэтому температурная зависимость $K_{ac,ab}^{ex}(T)$

определяется не только традиционными слагаемыми квазидипольного типа пропорциональными $G_0^2(T)$ (в приближении молекулярного поля), но и слагаемыми с несколько иной температурной зависимостью [11] (индексы ab и ac для простоты опущены):

$$K^{ex}(T) = K^{ex(0)}G_0(T)^2 + K^{ex(1)}\rho_2(T) + K^{ex(2)}\rho_2(T)^2 + K^{ex(3)}G_0(T)\rho_3(T). \quad (3)$$

Вводя функции $f_0 = G_0^2$, $f_1 = \rho_2 - G_0^2$, $f_2 = \rho_2^2 - G_0^2$, $f_3 = \rho_3 G_0 - G_0^2$, $f_4 = \rho_4 - G_0^2$, представим константы анизотропии в виде

$$K(T) = \sum_{i=0}^4 K^{(i)} f_i(T); \quad (4)$$

где $K^{(0)} = K(0) = K^{dip} + K^{orth} + K^{cub} + \sum_{i=0}^4 K^{ex(i)}$; $K^{(1)} = K^{ex(1)} + K^{orth}$; $K^{(2)} = K^{ex(2)}$; $K^{(3)} = K^{ex(3)}$; $K^{(4)} = K^{cub}$.

Кубический вклад в константы анизотропии ортоферритов исследован в [5] в приближении кубического кристаллического поля. Он определяется одной константой (K_0^{cub}) и может быть представлен в виде

$$K_{ac,ab}^{cub} = \alpha_{ac,ab} K_0^{cub}, \quad K_2(0) = \alpha_2 K_0^{cub}, \\ K'_2(0) = \alpha'_2 K_0^{cub}, \quad K''_2(0) = \alpha''_2 K_0^{cub}, \quad (5)$$

где $\alpha_{ac} = -1.132$; $\alpha_{ab} = -4.024$; $\alpha_2 = 4.64$; $\alpha'_2 = -8.544$; $\alpha''_2 = -6.0$. Эти коэффициенты зависят от ориентации кислородных октаэдров комплекса $Fe^{3+} - 6O^{2-}$ относительно кристаллографических осей. Мы определили их по результатам работы [5], в которой они получены для другого вида разложения энергии анизотропии.

Обратимся к температурным зависимостям резонансных частот двух мод АФМР, полученных в [6, 7] (рис. 1). Поведение этих частот определяется соответствующими константами анизотропии в ac - и ab -плоскостях:

$$\nu_{1,2} = (\gamma/2\pi)(2H_E K_{ac,ab}(T)/M_0)^{1/2}, \quad (6)$$

где γ — гиромагнитное отношение. Отметим качественное различие в поведении $\nu_1(T)$ и $\nu_2(T)$: монотонное уменьшение $\nu_2(T)$ с ростом T и наличие слабовыраженного максимума для $\nu_1(T)$. Это свидетельствует о различном характере температурной зависимости $K_{ac}(T)$ и $K_{ab}(T)$, определяемом конкуренцией разных вкладов в $K_{ac}(T)$ и $K_{ab}(T)$.

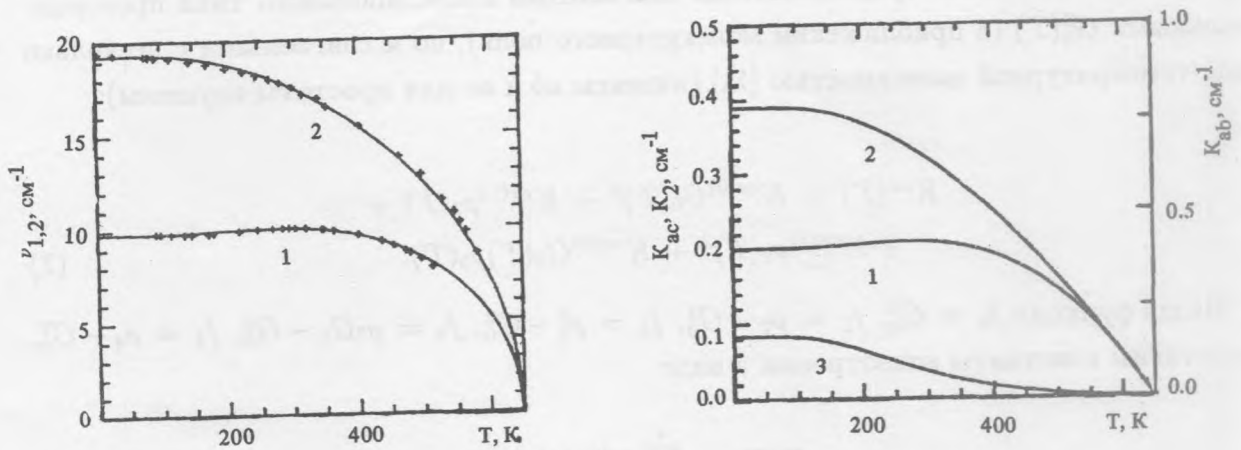


Рис. 1. Зависимость от температуры частот мод АФМР: 1 – квазиферромагнитная мода (ν_1), 2 – квазиантиферромагнитная мода (ν_2). Сплошные линии – теория, точки – эксперимент [6, 7].

Рис. 2. Зависимость от температуры констант анизотропии $YFeO_3$: 1 – $K_{ac}(T)$, 2 – $K_{ab}(T)$, 3 – $K_2(T)$.

Однако выделить все вклады в $K_{ac,ab}$, в виде, представленном в (4), весьма сложно, так как функции $f_i(T)$ ($i = 1, 2, 3, 4$) ведут себя подобным образом (т.е. равны нулю при $T = T_N$ и $T = 0$) и достигают минимума при промежуточных температурах. Поэтому удобно перейти к их линейным комбинациям φ_i : $\varphi_0 = f_0$, $\varphi_1 = f_1$, $\varphi_2 = f_2 - k_{21}\varphi_1$, $\varphi_3 = f_3 - k_{32}\varphi_2 - k_{31}\varphi_1$, $\varphi_4 = f_4$. Коэффициенты $k_{i,j}$ определяются из условия ортогональности функций $\varphi_{1,2,3}$ и равны:

$$k_{21} = (f_2, \varphi_1) / (\varphi_1, \varphi_1) = 3.4597, \quad k_{32} = (f_3, \varphi_2) / (\varphi_2, \varphi_2) = 2.2218,$$

$$k_{31} = (f_3, \varphi_1) / (\varphi_1, \varphi_1) = 3.7956,$$

где $(f_i, \varphi_j) = \int_0^{T_N} f_i(T)\varphi_j(T)dT$. Поведение функций $\varphi_{2,3}$ в отличие от φ_1 носит осциллирующий характер, что позволяет в принципе выделить их вклад в $K_{ac}(T)$ и $K_{ab}(T)$. Поскольку кубический вклад, пропорциональный f_4 , можно определить через K_2 (см. (5)), оставим его без изменений. В результате температурную зависимость $K_{ac}(T)$ и $K_{ab}(T)$ можно параметризовать следующим образом:

$$K(T) = \sum_{i=0}^4 \tilde{K}^{(i)} \varphi_i(T), \quad (7)$$

где $\tilde{K}^{(0)} = K^{(0)} = K(0)$, $\tilde{K}^{(1)} = K^{(1)} + k_{21}K^{(2)} + k_{31}K^{(3)}$, $\tilde{K}^{(2)} = K^{(2)} + k_{32}K^{(3)}$, $\tilde{K}^{(3)} = K^{(3)}$, $\tilde{K}^{(4)} = K^{(4)}$.

При такой параметризации роль различных вкладов существенно меняется. Во-первых, они имеют качественно различную температурную зависимость и, во-вторых, амплитуда функций φ_i ($i = 0, 1, 2, 3$) при переходе от φ_0 к φ_3 сильно уменьшается: $|\varphi_0| < 1$, $|\varphi_1| < 10^{-1}$, $|\varphi_2| < 2 \cdot 10^{-2}$, $|\varphi_3| < 10^{-4}$. В результате вкладом $\tilde{K}^{(3)}\varphi_3$, можно практически пренебречь (т.к. f_3 с хорошей точностью выражается в виде линейной комбинации $\varphi_{1,2}$), а остальные вклады – включать в $K(T)$ по мере необходимости для описания тех или иных особенностей эксперимента с учетом иерархии величин функций φ_i .

Т а б л и ц а 1
Значения констант анизотропии и вкладов $\tilde{K}_{ac,ab}^{(i)}$

Константы анизотропии и вклады, $с.м^{-1}$	Данная работа		Модельные расчеты [3], <i>ac</i> -плоскость
	<i>ab</i> -плоскость	<i>ac</i> -плоскость	
$K(0) = K^{dip} + K^{orth} +$ $+ K^{cub} + \sum_{i=0}^4 K^{ex(i)}$	0.77 ± 0.01	0.201 ± 0.003	0.26
$\tilde{K}^{(1)} = K^{orth} + K^{ex(1)} +$ $+ k_{21}K^{ex(2)} + k_{31}K^{ex(3)}$	0.33 ± 0.1	-0.51 ± 0.03	-0.22
$\tilde{K}^{(2)} = K^{ex(2)} + k_{32}K^{ex(3)}$	0.24 ± 0.2	0.0 ± 0.1	
$\tilde{K}^{(4)} = K^{cub}$	-0.072	-0.02	
$\tilde{K}^{ex(0)} = K(0) - K^{dip} - K^{(1)} -$ $- K^{(2)} - K^{(4)} = K^{ex(0)} - k_{21} \times$ $\times K^{ex(2)} - (1 - k_{31} - k_{32})K^{ex(3)}$	0.17	0.61	0.38
K^{dip}	0.12	0.1	0.1

Из условия наилучшего согласия экспериментальных и теоретических зависимостей частот $\nu_{1,2}(T)$ (рис. 1), а также низкотемпературных кривых намагничивания $YFeO_3$ при $T = 4.2 K$ в поле $H \parallel a$ -оси, индуцирующем ориентационный переход

в фазу $\Gamma_2(G_2F_x)$ [2], мы определили отдельные вклады и суммарное значение констант анизотропии (табл. 1), а также величины остальных параметров, характеризующих $YFeO_3$: $K_2(0) = 0.083 \text{ см}^{-1}$, $K_2'(0) = -0.153 \text{ см}^{-1}$, $K_2''(0) = -0.107 \text{ см}^{-1}$, $\chi_{\perp} = 1.12 \cdot 10^{-5} \text{ см}^3/\text{г}$, $m(0) = 1.56 \text{ Гс} \cdot \text{см}^3/\text{г}$, $H_E = 6.4 \cdot 10^4 \text{ Э}$, $H_D = 1.4 \cdot 10^5 \text{ Э}$. Одноионный кубический вклад $K_{ac,ab}^{(4)} = K_{ac,ab}^{cub}$ выражался с помощью (3) через константу анизотропии 4-го порядка $K_2(0)$, которая определялась из кривой намагничивания при $H \parallel a$ -оси и значения соответствующего порогового поля H_x^{cr} перехода $\Gamma_{24} \rightarrow \Gamma_2$.

Наблюдаемые отличия в поведении $\nu_1(t)$ и $\nu_2(T)$ обусловлены разными знаками вкладов $\tilde{K}_{ac}^{(1)}$ и $\tilde{K}_{ab}^{(1)}$ в соответствующие константы анизотропии. Отрицательный знак вклада $K_{ac}^{(1)}$ определяет наличие слабого максимума в поведении $\nu_1(T)$ и $K_{ac}(T)$ в области $T \approx 300 \text{ К}$ (рис. 1, 2).

В таблице 1 в последнем столбце приведены для сравнения значения одноионного вклада в $\tilde{K}_{ac}^{(1)}$ (т.е. K_{ac}^{orth}) и вклада в $\tilde{K}^{ex(0)}$ от антисимметричного обмена, полученные в [3] на основе модельных расчетов. Хотя их значения и меньше найденных нами вкладов, они тем не менее дают нужный знак и порядок величины вкладов. Различие может быть обусловлено обменно-релятивистскими вкладами квазидипольного и недипольного типа [11], которые в [3] не учитывались. Значения магнитодипольного вклада $K_{ac,ab}^{dip}$, который рассчитывается точно, брались из работ [4, 5].

Сравнивая найденные значения констант анизотропии $YFeO_3$ (табл. 1) с полученными ранее ($K_{ac} = 0.24 \text{ см}^{-1}$ [3], $K_{ac} = 0.16 \text{ см}^{-1}$, $K_2 = 0.12 \text{ см}^{-1}$ [2]), отметим, что в целом они согласуются друг с другом, хотя и имеется определенный разброс значений, связанный, по-видимому, с различием образцов $YFeO_3$ и погрешностями определения констант анизотропии с помощью различных экспериментальных методик. С этой точки зрения наиболее точный и прямой метод определения констант анизотропии основан на данных АФМР для резонансных частот. Расчет температурной зависимости порогового поля H_x^{cr} , индуцирующего переход $\Gamma_{42} \rightarrow \Gamma_2$, с использованием полученных нами параметров $YFeO_3$, показал хорошее согласие с независимыми экспериментальными данными [3, 12].

Таким образом, в настоящей работе на основе экспериментальных данных [6, 7] для частот АФМР и низкотемпературной кривой намагничивания $YFeO_3$ [2] найден полный набор параметров иттриевого ортоферрита, позволяющих согласованно описать его магнитные и резонансные свойства в широком интервале температур и магнитных полей. Предложена параметризация температурной зависимости констант анизотропии в виде последовательности убывающих функций φ_i – комбинаций сферических гармоник,

позволяющая реально сократить число констант, необходимых для описания эксперимента.

Определены различные вклады в константы анизотропии K_{ac} , K_{ab} в $YFeO_3$. Показано, что отрицательный знак вклада $\tilde{K}_{ac}^{(1)}$, включающего одноионную анизотропию K_{ac}^{orth} и обменно-релятивистский недипольный вклад, определяет слабовыраженный максимум в поведении квазиферромагнитной моды АФМР и $K_{ac}(T)$. Эта ситуация, по-видимому, не является уникальной и может иметь место в других ортоферритах, например, в $GdFeO_3$, где в области температур $T = 100 - 300 K$ наблюдается поведение частоты ν_1 , подобное $YFeO_3$ [7].

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект 93-02-17123).

ЛИТЕРАТУРА

- [1] Белов К. П., Звездин А. К., Кадомцева А. М., Левитин Р. З. Ориентационные переходы в редкоземельных магнетиках. М., Наука, 1979.
- [2] Jacobs J. S., Burne H. F., Levinson L. H. J. Appl. Phys., **42**, 1631 (1971).
- [3] Кадомцева А. М. и др. ЖЭТФ, **81**, 700 (1981).
- [4] Vidaux R., Bougee S. E., Hamman J. J. Phys. Chem. Solids, **35**, 1645 (1974).
- [5] Москвин А. С., Бострем И. Г. ФТТ, **21**, 1081 (1979).
- [6] Волков А. А. и др. Письма в ЖЭТФ, **39**, 140 (1984).
- [7] Мухин А. А., Прохоров А. С., в сборнике Труды ИОФАН, М., Наука, **25**, 162 (1990).
- [8] Балбашов А. М. и др. Письма в ЖЭТФ, **41**, 391 (1985).
- [9] Звездин А. К., Матвеев В. М., Мухин А. А., Попов А. И. Редкоземельные ионы в магнитоупорядоченных кристаллах. М., Наука, 1985.
- [10] Callen E. R., Callen H. V. J. Phys. Chem. Sol., **27**, 1271 (1966).
- [11] Москвин А. С., Бострем И. Г., Сидоров М. А., ЖЭТФ, **103**, 249 (1993).
- [12] Семенов В. А. Автореферат диссертации канд. физ.-мат. наук, М., МГУ, 1985.