

АНТИФЕРРОМАГНИТНЫЙ РЕЗОНАНС В ГРАНАТЕ $\text{Ca}_3\text{Fe}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$

К.Л.Белов, Б.В.Милль, В.И.Соколов, О.И.Шевалеевский

Впервые в соединении со структурой граната наблюден антиферромагнитный резонанс. При $T = 4,2^\circ\text{K}$ изучены его угловые и частотная зависимости.

$\text{Ca}_3\text{Fe}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ представляет собой гранат, у которого ионы Fe^{3+} занимают только октаэдрические узлы и изолированы, по крайней мере, двумя ионами кислорода. Магнитные [1, 2], калориметрические [3] и нейтронографические [4, 5] исследования показали, что это соединение антиферромагнитно при гелиевых температурах ($T_N = 12,5^\circ\text{K}$).

Нами синтезированы монокристаллы $\text{Ca}_3\text{Fe}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ (при комнатной температуре $a_0 = 12,325 \text{ \AA}$), на которых мы обнаружили антиферромагнитный резонанс (АФМР) в спин-флоп состоянии.

Исследование АФМР проводилось в диапазоне $26 + 48 \text{ Гц}$ на радиоспектроскопе прямого усиления с проходным резонатором, конструкция которого допускала перестройку в указанном интервале частот. В качестве источников СВЧ мощности использовались стандартные клистронные генераторы. Погрешность измерения частоты составляла $2 \cdot 10^{-3}$. Магнитное поле создавалось сверхпроводящей катушкой Гельмгольца, вращение которой вокруг резонатора позволяло снимать угловые зависимости поля АФМР. Меткой магнитного поля служил сигнал ЭПР от радикала ДФПГ. Сигнал поглощения записывался на двухкоординатном самописце.

Из выращенных монокристаллов изготовлялись сферки, которые после полировки отжигались при $T = 1200^\circ\text{C}$ в течение 24 часов. Ориентация образцов проводилась рентгенографическим методом с точностью не хуже $0,5^\circ$.

Для всех исследованных кристаллов (двенадцать образцов) АФМР при $4,2^\circ\text{K}$ представлял одиночную симметричную линию ширина которой изменялась от образца к образцу в интервале $700 + 900 \text{ э}$. При понижении температуры до $1,5^\circ\text{K}$ ширина линии несколько возросла.

На рис. 1 приведены угловые зависимости резонансного поля (H_0) при $4,2^\circ\text{K}$ на частоте $26,73 \text{ Гц}$ в плоскостях (110) — кривая 1 и (100) — кривая 2 для сферического образца диаметром $1,2 \text{ мм}$. Четырехкратная симметрия H_0 в плоскости (100) и двукратная в (110) свидетельствуют о том, что $\text{Ca}_3\text{Fe}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ является при $4,2^\circ\text{K}$ неискаженным кубическим антиферромагнетиком с направлениями легкого намагничивания по осям $\langle 111 \rangle$, т.е. константа анизотропии $K_1 < 0$.

Зависимость частоты АФМР кубического кристалла от внешнего магнитного поля для $H_0 > \sqrt{2H_E H_A}$ без учета сверхтонкого взаимодействия (ядерные спины большинства изотопов железа близки к нулю) имеет следующий вид [6]:

$$(\omega / \gamma)^2 = H_0^2 + 3B(\theta, \phi) \dot{H}_E H_A, \quad (1)$$

где

$$B(\pi/2, \phi) = - \frac{4 \cos 4\phi}{7 + \cos 4\phi}$$

для плоскости (100), и

$$B\left(\theta, \frac{\pi}{4}\right) = \begin{cases} -1 + \frac{13}{2} \cos^2 \theta - 6 \cos^4 \theta & \text{для } \theta \text{ между } [001] \text{ и } [111] \\ \frac{(2 - \sin^2 \theta)(3 \sin^2 \theta - 1)}{(2 + \sin^2 \theta)} & \text{для } \theta \text{ между } [111] \text{ и } [110] \end{cases}$$

для резонанса в плоскости (110). Здесь θ и ϕ – полярный и азимутальный углы \vec{H}_0 с соответствующими кристаллографическими осями (рис. 1), H_E – обменное поле, H_A – эффективное поле анизотропии, равное $-4K_1/3M_0$ (M_0 – намагниченность подрешеток в основном состоянии).

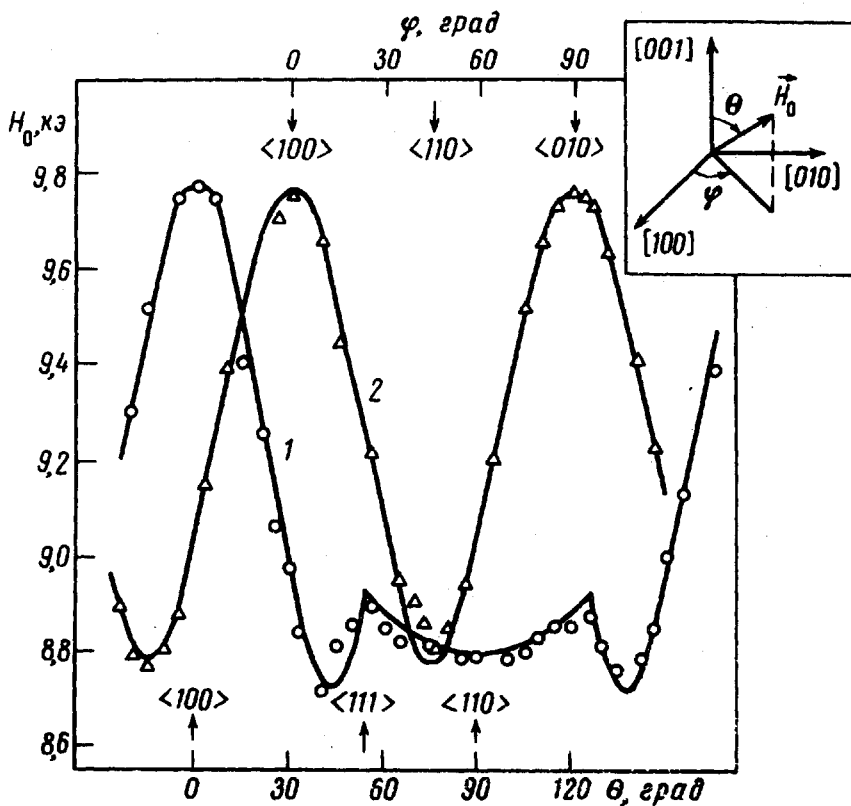


Рис. 1. Угловые зависимости резонансного поля $\text{Ca}_3\text{Fe}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ при $4,2^\circ\text{K}$ на частоте $26,73$ ГГц: 1 – плоскость (110), 2 – плоскость (100)

Из рис. 1 видно, что полученные экспериментальные результаты (точки) хорошо описываются формулой, аналогичной (1), (сплошные линии) с энергетической щелью H_{Δ}^2 :

$$(\omega/\gamma)^2 = H_0^2 + 3V(\theta, \phi) H_E H_A + H_{\Delta}^2. \quad (2)$$

Из зависимости $[(\omega/\gamma)^2 - H_0^2]$ от V мы нашли, что щель $H_{\Delta}^2 = (3,1 \pm 0,3) \text{ кэ}^2$ изотропна и в пределах точности не изменяется в интервале $4,2 \pm 1,6^\circ \text{К}$. Это дает основание полагать, что H_{Δ}^2 имеет магнито-стрикционную природу.

Для поля опрокидывания было найдено: $\sqrt{2H_E H_A} = 3,2 \text{ кэ}$. Используя экспериментальное значение $H_E = 404 \text{ кэ}$ [2], мы нашли поле анизотропии $H_A = 12,8 \text{ э}$.

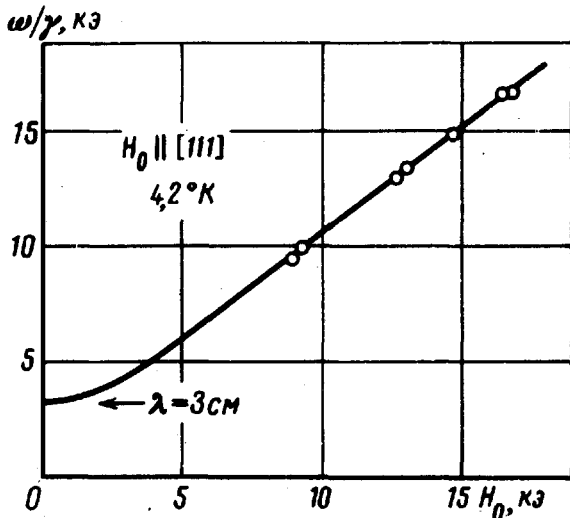


Рис. 2. Зависимость частоты АФМР от внешнего поля вдоль оси $\langle 111 \rangle$ при $4,2^\circ \text{К}$: о — эксперимент, — расчет по (2).

Эти же значения H_E , H_A и H_{Δ}^2 дают наилучшее согласие экспериментальных результатов с частотной зависимостью (2) АФМР вдоль фиксированных кристаллографических направлений (рис. 2).

Найденное значение H_A дает для константы анизотропии $K_1 = -22,3 \times 10^{-4} \text{ см}^{-1}$ (на ион Fe^{3+}). Эту величину можно сравнить с $K_1 = -10 \times 10^{-4} \text{ см}^{-1}$, которая была получена в работе [7] для октаэдрической подрешетки $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ методом ферромагнитного резонанса (для $T = 0^\circ \text{К}$). Очевидно, что это одноионная анизотропия, основной механизм которой для Fe^{3+} в структуре граната связан, согласно Гешвинду [8], с расщеплением S -состояния в кубическом и тригональном кристаллических полях. Однако, если воспользоваться соответствующими параметрами кристаллического поля, определенными из ЭПР ионов Fe^{3+} в диамагнитных галлатах и алюминатах [9], то для $\text{Ca}_3\text{Fe}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ получаем $K_1 = -72 \cdot 10^{-4} \text{ см}^{-1}$, что более, чем в три раза превышает величину, найденную из АФМР. По-видимому, основная причина этого — разная степень искажения октаэдра, окружающего Fe^{3+} . Гранат $\text{Ca}_3\text{Fe}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ имеет довольно симметричный октаэдр: различие в длине ребер не превышает $0,1 \text{ \AA}$ [5], тогда как, например, для $\text{Y}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ эта величина составляет $0,3 \text{ \AA}$ [10].

В заключение отметим, что нами также обнаружен антиферромагнитный резонанс в гранате $\text{Ca}_3\text{Cr}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, у которого октаэдрическая подрешетка состоит из ионов Cr^{3+} .

Авторы благодарны Л.А.Прозоровой и Е.Г.Рудашевскому за полезные советы по технике эксперимента.

Московский
государственный университет
им. М.В.Ломоносова

Поступила в редакцию
6 июня 1974 г.

Литература

- [1] К.П.Белов, Б.В.Милль, В.И.Соколов, Т.Д.Хиен, Г.Роннигер. ФТТ, 12, 1761, 1970.
 - [2] Y.Allain, M.Lecomte. Sol. St. Comm., 14, 119, 1974.
 - [3] Л.Г.Мамсурова, В.И.Соколов. Тезисы 17 Всесоюзного совещания по физике низких температур, Донецк, 1972, стр. 195.
 - [4] R.Plumier. Sol. St. Comm., 10, 5, 1972.
 - [5] W.Prandl. Sol. St. Comm., 10, 529, 1972.
 - [6] D.T.Teaney, M.J.Freiser. Phys. Rev. Lett., 9, 212, 1962.
 - [7] G.P.Rodrigue, H.Meyer, R.V.Jones. J. Appl. Phys., 31, 376. 1960.
 - [8] S.Geschwind. Phys. Rev., 121, 363, 1961.
 - [9] L.Rimai, T.Kushida. Phys. Rev. 143, 160, 1966.
 - [10] F.Euler, J.A.Bruce. Acta Cryst., 19, 971, 1965.
-