

УДК 537.635

© 1992

ДИНАМИКА СПОНТАННОЙ СПИНОВОЙ ПЕРЕОРИЕНТАЦИИ В Fe_3VO_6 В. Э. Арутюнян, Н. К. Даньшин, К. Кочарян,
Г. Г. Крамарчук, Р. М. Мартиросян

Проведены детальные исследования ферромагнитной резонансной ветви в окрестности спонтанной спиновой переориентации в Fe_3VO_6 . Подтвержден вывод о том, что в отличие от высокочастотной антиферромагнитной ветви здесь отсутствует разрыв частот в точке перехода. В то же время вместо ранее предполагавшегося полного смягчения частот в спектре обнаружена значительная энергетическая щель. Сделаны общие выводы о динамике переориентации в данном соединении, вытекающие из анализа высокочастотного поглощения во всем диапазоне частот релятивистских ветвей магнитного резонанса в Fe_3VO_6 .

Орторомбический кристалл Fe_3VO_6 при температурах $T < T_N = 508$ К является антиферромагнетиком со слабым ферромагнетизмом. При температуре $T = T_{\text{сп}} = 415$ К в нем происходит спонтанная переориентация $\Gamma_2 (F_x G_z) \Leftrightarrow \Gamma_4 (G_x F_z)$. В подавляющем большинстве соединений этого класса (например, в редкоземельных ортоферритах) переход $\Gamma_2 \Leftrightarrow \Gamma_4$, соответствующий повороту векторов антиферромагнетизма G и ферромагнетизма F в xz (ac) плоскости, происходит путем двух фазовых переходов второго рода (ФП-2) через угловую фазу Γ_{24} . Здесь же, и в этом особенность данного соединения, указанная переориентация происходит путем фазового перехода первого рода (ФП-1).

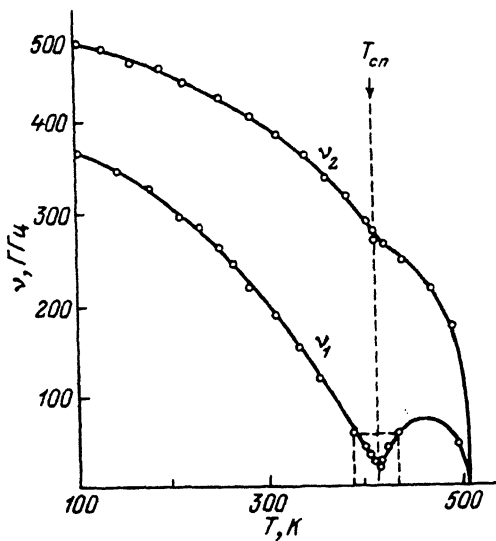
Исследование магнитного резонанса в Fe_3VO_6 предпринималось в ряде работ, но при индуцировании перехода внешним магнитным полем. При спонтанной переориентации спектр магнитного резонанса в Fe_3VO_6 наиболее полно восстановлен в работе [1]. Здесь впервые обнаружена антиферромагнитная релятивистская ветвь магнитного резонанса с характерным для ФП-1 скачком частот в точке спиновой переориентации. Однако оставалась неисследованной ферромагнитная ветвь на самых низких частотах. В то же время с этим участком спектра связаны ответы на ряд принципиальных вопросов, возникающих в процессе предыдущих исследований. В частности, требовалась экспериментальная проверка вывода об отсутствии скачка частот на ферромагнитной ветви $\nu_1(T)$, а также утверждения о полном ее размягчении в точке перехода. Данная работа в основном посвящена детальному экспериментальному исследованию ферромагнитной ветви на низких частотах, но для полноты включает в себя сведения и об антиферромагнитной ветви $\nu_2(T)$. Это дает возможность сделать выводы о динамике переориентации на основе всей совокупности экспериментальных данных во всем диапазоне частот, где существуют релятивистские ветви магнитного резонанса в Fe_3VO_6 .

1. Методика эксперимента

Для исследования магнитного резонанса в диапазоне 75—550 ГГц использовалась квазиоптическая методика (конкретно для данных экспериментов она описана в [1]), заключающаяся в измерении поглощения при прохождении высокочастотного излучения через плоскопараллельный образец при

Рис. 1. Общая температурная зависимость частот магнитного резонанса в Fe_3VO_6 при спиновой переориентации: ν_1 — ферромагнитная ветвь, ν_2 — антиферромагнитная ветвь.

В прямоугольном контуре — низкочастотная часть спектра, представленная в большем масштабе на рис. 2.



сканировании температуры. Для данной задачи — восстановление спектра поглощения при спонтанном переходе $\Gamma_2 \Leftrightarrow \Gamma_4$ — пластины Fe_3VO_6 ($1 \times 6 \times 6$ мм) вырезались в ac -плоскости, в которой происходит поворот векторов F и G . На частотах ниже 75 ГГц использовалась волноводная методика, по которой измерялась отраженная мощность. Образец при этом ac -плоскостью располагался в центре поршня, закорачивающего волновод. Он вырезался из той же пластины Fe_3VO_6 , которая использовалась в квазиоптической мето-

додике, и имел объем около 2.5 мм^3 . В обоих случаях имелась возможность плавно менять направление магнитной составляющей высокочастотного поля h в плоскости ac , т. е. по отношению к вектору слабоферромагнитного момента m . Точность совпадения плоскости образца с плоскостью ac составляла $\sim 1^\circ$. Поскольку условия возбуждения антиферромагнитной ν_2 и ферромагнитной ν_1 ветвей магнитного резонанса различны (в первом случае $h \parallel m$, во втором случае $h \perp m$), то в конечном счете ориентация, в которой вектор h располагается под углом 45° к осям a и c , оказалась для наших целей наиболее предпочтительной. При незначительном снижении чувствительности эта ориентация позволяла с одной установки образца фиксировать резонансное поглощение на всех частотах и в обеих фазах, т. е. на всей плоскости $\nu - T$ существования магнитного резонанса в Fe_3VO_6 .

2. Результаты и обсуждение

На рис. 1 приведен полный спектр релятивистских ветвей магнитного резонанса в Fe_3VO_6 при спонтанной спиновой переориентации $\Gamma_2 \Leftrightarrow \Gamma_4$. Его подробный анализ и сопоставление с теорией проведены в работе [1]. Из этих результатов мы обратимся лишь к тем, которые необходимы для характеристики с единой точки зрения динамики спиновой переориентации с учетом полученных здесь данных на низких частотах. Результаты соответствующего эксперимента в увеличенном масштабе приведены на рис. 2.

Вдали от перехода более высокочастотная ветвь ν_2 на рис. 1 получена при $h \parallel m$, а ветвь ν_1 — при $h \perp m$. Это согласуется с известными правилами отбора для возбуждения соответственно антиферромагнитной и ферромагнитной ветвей магнитного резонанса в данном классе соединений. Однако в непосредственной окрестности $T_{сп}$, которая нас в дальнейшем будет интересовать, измерения на обеих ветвях выполнены при ориентации h под углом 45° к осям a и c . Именно в такой ориентации удалось обнаружить скачок частот в точке перехода на ветви ν_2 и оценить величину соответствующей щели в спектре (без учета ширины резонансной линии, т. е. измеренной между центрами резонансных линий). Она оказалась близкой к 4 ГГц (рис. 1). Указанная щель обнаружена путем анализа формы резонансных линий в непосредственной окрестности $T_{сп}$ при записях поглощения на ряде близких частот. Три из такой серии записей приведены на

Рис. 2. Температурная зависимость частот ферромагнитной ветви магнитного резонанса в непосредственной окрестности $T_{\text{сп}}$.

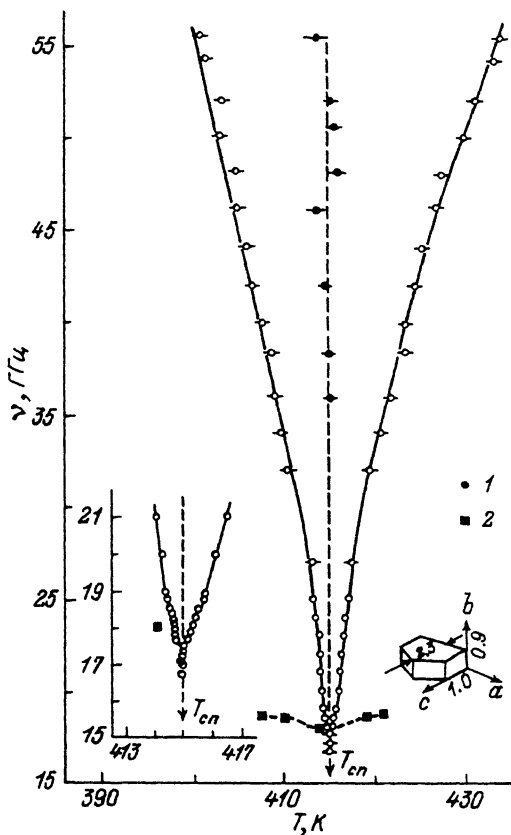
В прямоугольном контуре — часть спектра на минимальных частотах. 1 — нерезонансное поглощение в точке перехода; 2 — диэлектрический резонанс в образце, форма и размеры которого показаны на этом рисунке.

рис. 3. Теоретический расчет ^[1] показывает, что при $T = T_{\text{сп}}$ в температурной зависимости $\nu_2(T)$ имеется щель $\Delta\nu = \nu_2(\Gamma_2) - \nu_2(\Gamma_4)$. Причем ее расчетная величина хорошо согласуется с обнаруженной в эксперименте. Но из тех же расчетов для низкочастотной ветви $\nu_1(T)$ следует, что в точке перехода $\nu_1(\Gamma_2) - \nu_1(\Gamma_4) = 0$. Результаты эксперимента по проверке этого вывода приведены на рис. 2, откуда следует, что в точке перехода $T_{\text{сп}}$ частоты $\nu_1(\Gamma_2)$ и $\nu_1(\Gamma_4)$ совпадают. Это заключение можно сделать лишь с учетом достигнутой точности эксперимента (разрешения по частоте) и магнитодинамического качества образца. Последнее определяется шириной резонансной линии, которая в основном и ограничивает возможность обнаружения щели. В данном случае можно утверждать, что если здесь частотная щель и существует, то она не превышает нескольких сотен мегагерц. Таким образом, согласие теории и эксперимента в этой части можно считать вполне удовлетворительным.

Здесь необходимо сделать следующее замечание. Fe_3VO_6 — слабый ферромагнетик и в нем, по-видимому, существует доменная структура, которая вносит вклад в ширину линии поглощения, и в общем случае эксперименты необходимо проводить в монодоменном состоянии. Однако, как было сказано выше, наблюдаемый в Fe_3VO_6 фазовый переход является спонтанной спиновой переориентацией и приложении к образцу внешнего магнитного поля монодоменизации при температурах, близких к 415 К, привело бы к существенному искажению картины.

Из сопоставления высокочастотных и низкочастотных данных следует, что разрыв в спектре является характерным, но не обязательным признаком ФП-1. Заметим, что ситуация, когда при ФП-1 в частотах АФМР отсутствует щель, не является уникальной для этого класса соединений. Например, скачок резонансных частот не обнаружен и при ФП-1 типа Морина в DyFeO_3 ^[2], тогда как в HoFeO_3 ^[3] в процессе сложной переориентации $\Gamma_2 \leftrightarrow \Gamma_4$ он ярко выражен. Все, как и в случае Fe_3VO_6 , зависит от определенного соотношения констант анизотропии, которое может сделать этот эффект очень слабым.

Обратимся к вышесказанному ранее положению ^[1] о полном размягчении ветви ν_1 в точке $T_{\text{сп}}$. Прежде всего следует заметить, что в общем случае это утверждение некорректно, так как в точке ФП-1 (в отличие от ФП-2) энергия анизотропии, а следовательно, и частота магнитного резонанса, не обращаются



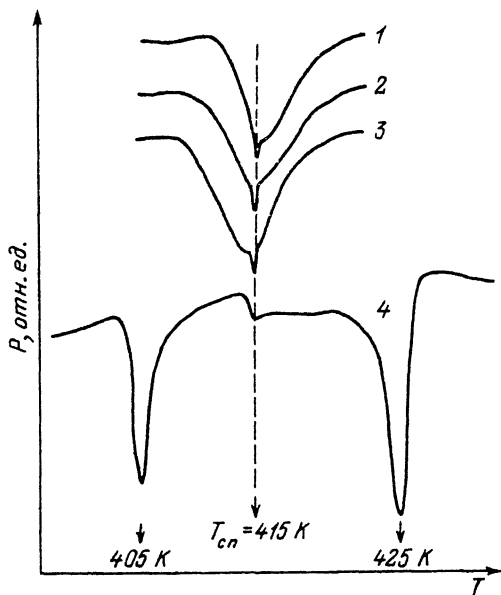


Рис. 3. Записи линий поглощения (P , в относительных единицах) на антиферромагнитной (1—3) и ферромагнитной (4) ветвях магнитного резонанса на различных частотах.

1 — 275, 2 — 273, 3 — 271, 4 — 46.14 ГГц.

в нуль. Остаточная анизотропия, таким образом, обуславливает наличие в точке ФП-1 конечной частотной щели. Природа ее иная, чем у энергетических щелей в точке ФП-2. В последнем случае их наличие и абсолютные величины, как правило, связаны со взаимодействием магниторезонансных ветвей с иными колебательными подсистемами (упругой, электромагнитной, примесной и т. п.) или с механизмом, предложенным в работе [4]. Как видно из рис. 2, в Fe_3VO_6 в точке спонтанной переориентации имеет место частотная щель ~ 17.5 ГГц.

Экспериментальные точки, лежащие ниже этой частоты (см. вставку на рис. 2), связаны с поглощением на крыльях резонансных линий. Об этом свидетельствует тот факт, что соответствующие сигналы быстро затухают при понижении частоты на величину не более ширины резонансной линии $\Delta\nu_1$. Последняя в диапазоне 18—55 ГГц составляет 2—4 и 1.4—2.5 ГГц соответственно в фазах Γ_2 и Γ_4 , тогда как ширина линий этой же ветви, измеренная в квазиоптических экспериментах в фазе Γ_2 , составляет ~ 6 ГГц. Большая ширина резонансных линий на высоких частотах может быть связана с невыполнением в квазиоптической методике условия $L \ll \lambda$ (L — характерный размер образца, в данном случае — толщина пластины; λ — длина волны излучения). Линии поглощения при этом претерпевают дополнительное уширение, возрастающее с увеличением толщины образца. В этом случае в ширину линий, кроме процессов диссипации, имеющих место при резонансе, вносит вклад и интенсивность поглощения. В волноводной методике указанное выше условие удовлетворяется лучше, поэтому измеренные ширины линий здесь более близки к их действительному значению. Кстати, исходное значение ширины линии $\Delta\nu_1$, полученное из измерений коэффициента поглощения на высоких частотах в фазе Γ_2 , составляет ~ 2 ГГц. Эта величина $\Delta\nu_1$ практически совпадает с минимальным значением ширины линии, измеренной на низких частотах в волноводной методике, и, по-видимому, наиболее близка к истинной ширине линий, обусловленной процессами диссипации.

Что можно сказать о природе обнаруженной здесь значительной энергетической щели? С учетом отсутствия скачка частот на нижней ветви магнитного резонанса в Fe_3VO_6 полученный экспериментальный результат может быть объяснен по крайней мере двумя способами. Один из них игнорирует возможный вклад в ее величину за счет взаимодействия магниторезонансной моды с другими колебательными подсистемами Fe_3VO_6 или с механизмом, предложенным в работе [4], тогда как обычно в случае ФП-1 щель определяется остаточной анизотропией, а сама окрестность перехода характеризуется определенным температурным интервалом лабильности фаз (смешанное состояние). Температуры лабильности могут быть оценены путем экстраполяции температурных зависимостей магниторезонансных ветвей к нулевой частоте. Подобранные аналитические зависимости $\nu_1(T)$, наилучшим образом удовлетворяющие экспериментальным точкам в фазах

Γ_2 и Γ_4 , мы оценили температуры лабильности из условия $v_1(T) = 0$. Для фаз Γ_2 и Γ_4 они оказались соответственно 419 и 410 К.

Другое объяснение приведенных на рис. 2 экспериментальных результатов состоит в следующем. Совпадение частот в точке переориентации, о котором упоминалось выше, может означать, что в точке ФП-1 температуры лабильности фаз совпадают. Эта ситуация означала бы, что здесь ФП-1 близок к ФП-2. В этом случае исследуемая магниторезонансная ветвь в самом деле должна полностью размягчаться, так как теперь интервал лабильности $\Delta T = T_{\Gamma_2} - T_{\Gamma_4} = 0$.

Но взаимодействие моды магнитного резонанса с другими колебательными подсистемами или механизм [4] приводит к возникновению наблюдаемой в эксперименте энергетической щели. Для окончательного установления природы щели требуется конкретный теоретический расчет. Вполне вероятно, что объяснение ее происхождения состоит в учете как остаточной анизотропии, так и динамического взаимодействия различных колебательных систем Fe_3BO_6 .

Обратимся теперь к дополнительным линиям поглощения, которые обнаружены в данном эксперименте. С нашей точки зрения, они не связаны с магнитным резонансом. Можно выделить по крайней мере две серии соответствующих экспериментальных точек. Одна из них независимо от частоты удовлетворительно ложится на прямую $T = T_{\text{сп}}$. Как видно из рис. 3, соответствующие ей линии поглощения по форме, интенсивности и ширине значительно отличаются от сигналов магнитного резонанса и наблюдаются на всех частотах. Эту серию линий мы связываем с нерезонансным поглощением, обусловленным некоторым пиком высокочастотной восприимчивости в точке перехода. В волноводной методике эти сигналы представляют собой смесь дисперсии и поглощения и поэтому форма линий зависит от частоты. К тому же в нее определенный вклад дают и крылья резонансных линий, достигающие точки перехода. Но, как видно из рис. 3, эти дополнительные сигналы значительно уже и менее интенсивны, чем резонансные линии.

Еще одна серия дополнительных линий поглощения обнаружена в фазах Γ_2 и Γ_4 на самых низких частотах. Их особенность — слабая по сравнению с линиями магнитного резонанса зависимость от температуры и выраженная чувствительность к форме и размерам образца. Следует заметить, что дополнительные сигналы со слабой зависимостью резонансного поля от температуры наблюдались в Fe_3BO_6 и ранее при изучении магнитного резонанса в миллиметровом диапазоне волн [5]. Они были обнаружены в области $T > 300$ К и связывались с поглощением (при подходе к точке перехода) на зародышах фазы Γ_4 в недрах фазы Γ_2 . Хотя в нашем случае обсуждаемые дополнительные линии также слабо зависят от температуры и обнаруживаются в пределах области смешанного состояния ΔT , они имеют иную, не связанную с магнитным резонансом природу. Об этом свидетельствует обнаруженный нами размерный эффект, который заключается в том, что при уменьшении линейных размеров образца L частоты, на которых появляется данное поглощение, возрастают. При этом вид их температурной зависимости практически не меняется.

Это не что иное, как диэлектрический резонанс, подробно изученный, например, в ErFeO_3 [6]. Образец диэлектрика с высокой диэлектрической проницаемостью ϵ' и малыми потерями ведет себя подобно открытому резонатору, собственные частоты которого определяются его размерами, формой, величиной ϵ' , типом колебаний, а в магнитодиэлектриках — и магнитной проницаемостью μ' . В общем случае собственные частоты объемного твердотельного резонатора, например, в случае сферы диаметром L , пропорциональны $(L\sqrt{\epsilon'\mu'})^{-1}$ [7]. Монокристаллы Fe_3BO_6 обладают довольно высокой и выражено анизотропной диэлектрической проницаемостью: по осям a , b , c они соответственно составляют 23, 14, 18. При направлении h под углом 45° к осям a и c , которое использовалось в наших экспериментах, мы имели дело с некоторым усредненным значением

ϵ' в ac -плоскости. В нашу задачу не входило сопоставление частот поглощения с довольно сложной формой образца, идентификация типов колебаний и т. п. Мы лишь убедились в наличии эффекта. На рис. 2 приведена температурная зависимость частот диэлектрического резонанса лишь для одного (с минимальными размерами) образца из использованных нами в эксперименте (см. вставку на этом рисунке). Если вполне резонно предположить, что на ϵ' не влияет магнитный ФП, то некоторое понижение частот диэлектрического резонанса в точке перехода можно связать с возрастанием μ' . Это соответствует высказанному выше утверждению, что дополнительные линии поглощения в точке перехода обусловлены возрастанием высокочастотной восприимчивости $\chi' = (\mu' - 1)/4\pi$. Следует заметить, что взаимодействие (пересечение) диэлектрической и магнитно-резонансной моды вблизи ФП может внести существенную погрешность в определение как спектра, так и абсолютного значения энергетической щели вследствие магнитодинамического резонанса [8]. Поэтому размеры и форма образца должны быть такими, при которых частота низшей диэлектрической моды в нем превышает величину щели в спектре магнитного резонанса.

Анализируя в целом динамику спонтанной спиновой переориентации в Fe_3VO_6 , можно сделать следующие выводы.

1. Антиферромагнитная и ферромагнитная ветви магнитного резонанса имеют различные характерные особенности в точке ФП-1. Первая имеет разрыв в спектре ~ 4 ГГц, у второй частоты фаз Γ_2 и Γ_4 в точке перехода совпадают.

2. Низкочастотная ветвь сильно размягчается, но в точке перехода имеет значительную энергетическую щель (~ 17.5 ГГц), которая может быть обусловлена как остаточной анизотропией, присущей ФП-1, так и различными механизмами формирования энергетических щелей в точках ФП-2. Для объяснения ее происхождения требуется конкретный теоретический расчет.

3. Область смешанного состояния (сосуществования фаз Γ_2 и Γ_4) составляет не более 10 К и расположена практически симметрично по отношению к температуре переориентации $T_{\text{сп}}$.

4. Высокочастотная восприимчивость имеет особенность в точке перехода, что обуславливает наличие линий нерезонансного поглощения в точке перехода и температурно-независимых частот диэлектрического резонанса в окрестности перехода.

Список литературы

- [1] Арутюнян В. Э., Кочарян К. Н., Мартirosян Р. М. // ЖЭТФ. 1989. Т. 96. № 4 (10). С. 1381—1385.
- [2] Балбашов А. М., Волков А. А., Лебедев С. П. и др. // ЖЭТФ. 1985. Т. 88. № 3. С. 974—987.
- [3] Даньшин Н. К., Жерлицын С. В., Звада С. С. и др. // ФТТ. 1989. Т. 31. № 5. С. 198—204.
- [4] Балбашов А. М., Березин А. Г., Гуфан Ю. М. и др. // ЖЭТФ. 1987. Т. 93. № 1 (7). С. 302—315.
- [5] Головенчик Е. И., Санина В. А. // ФТТ. 1977. Т. 19. № 2. С. 480—484.
- [6] Даньшин Н. К., Ковтун Н. М., Сдвижков М. А. // ФТТ. 1984. Т. 26. № 12. С. 3635—3640.
- [7] Castine M., Courtois L., Dormann I. // IEEE Trans. 1967. V. MMT-15. N 2. P. 694—700.
- [8] Даньшин Н. К., Ковтун Н. М., Сдвижков М. А. // ФТТ. 1986. Т. 28. № 4. С. 1200—1202.

Институт радиофизики и электроники
АН Армении
Аштарак

Поступило в Редакцию
10 декабря 1991 г.
В окончательной редакции
11 марта 1992 г.