

## ФИЗИКА ТВЕРДОГО ТЕЛА

УДК 548:537.611

## НАМАГНИЧЕННОСТЬ НЕОДИМ-ИТТРИЕВЫХ ФЕРРИТОВ-ГРАНАТОВ

К. П. Белов, Н. В. Волкова, Л. А. Скипетрова

*(кафедра общей физики для естественных факультетов)*

В интервале температур от 4,2 К до температуры Кюри изучена намагниченность пяти монокристаллов системы  $Nd_xY_{3-x}Fe_5O_{12}$  ( $x=0,0; 0,5; 0,95; 1,39; 1,72$ ). Из результатов измерений делается вывод, что при гелиевой температуре кристаллографическое направление  $[110]$  является направлением легкого, а  $[111]$ ,  $[100]$  — промежуточного и трудного намагничивания соответственно. Показано, что согласно экспериментально найденных значений намагниченности с рассчитанными по теории Нееля достаточно хорошее, если предположить, что при температурах ниже 77 К в данных соединениях образуется неколлинеарная магнитная структура.

Намагниченность иттриевых ферритов-гранатов, замещенных ионами  $Nd^{3+}$ , впервые исследовалась на поликристаллических образцах в работе [1]. При этом было обнаружено, что при температуре жидкого гелия намагниченность достигает насыщения только в полях  $\sim 100$  кЭ. Магнитный момент при  $T=0$  К оказался значительно меньше теоретической величины, рассчитанной по модели Нееля, предполагающей коллинеарность магнитных подрешеток.

Данная работа проведена с целью выяснения природы этих аномалий. Методом кристаллизации из раствора в расплаве были выращены монокристаллы системы  $Nd_xY_{3-x}Fe_5O_{12}$  ( $x=0,0; 0,50; 0,95; 1,39; 1,72$ ). Как известно ион  $Nd^{3+}$  вследствие своего большого ионного радиуса (0,99 Å) плохо входит в решетку граната и не образует чистого неодимового граната. Состав образцов определялся по поликристаллическому эталону на рентгеновском микроанализаторе. Измерения намагниченности проводились на образцах в форме шариков диаметром 2—4 мм, отклонение формы образцов от сферической не превышало  $\sim 0,5\%$ . Образцы ориентировали на рентгеновском дифрактометре УРС-50 с точностью  $\pm 1^\circ$ . Для измерения намагниченности в интервале от 4,2 К до температуры Кюри применялся вибрационный магнитометр. Ошибка измерения составляла примерно 4—6%.

На рис. 1 приведены кривые намагниченности феррита-граната  $Nd_{0,95}Y_{2,05}Fe_5O_{12}$  при  $T=4,2$  К вдоль различных кристаллографических направлений. Видно, что направление  $[110]$  является направлением легкого намагничивания, а  $[111]$  и  $[100]$  — направлениями промежуточного и трудного намагничивания. Также видно, что намагниченность достигает насыщения в полях  $H \geq 9$  кЭ вдоль всех кристаллографических направлений. Кривые намагниченности для других составов имеют аналогичный вид. На рис. 2 приведены кривые температурной зависимости спонтанной намагниченности  $\sigma_s$  ферритов системы  $Nd_xY_{3-x}Fe_5O_{12}$ , измеренные вдоль оси  $[111]$ . Ниже 30 К величина  $\sigma_s$  незначительно меняется с изменением температуры. В области комнатной температуры значения  $\sigma_s$  исследуемых образцов практически не отличаются от намагниченности насыщения феррита-граната иттрия  $Y_3Fe_5O_{12}$ .

Из полученных нами экспериментальных результатов следует, что введение ионов  $Nd^{3+}$  в феррит-гранат иттрия приводит к увеличению магнитного момента последнего. Это можно объяснить следующим об-

разом. Ион  $Nd^{3+}$  является легким редкоземельным ионом, следовательно, его полный момент равен  $(L-2S)\mu_B$ , где  $L$  и  $S$  — орбитальное и спиновое квантовые числа. Для иона неодима  $L=6$ ,  $S=3/2$ . Таким образом, орбитальная составляющая магнитного момента больше спиновой и полный момент иона  $Nd^{3+}$  направлен параллельно орбитальному. Так как обменное взаимодействие происходит только между спиновыми моментами [2], то антиферромагнитная связь между спинами

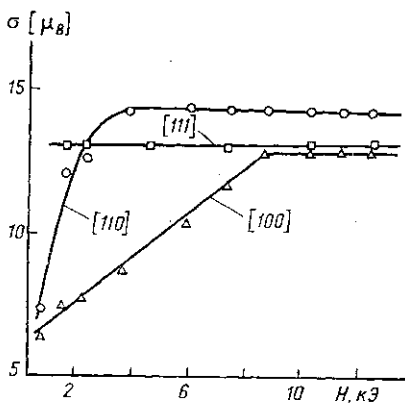


Рис. 1. Кривые намагничивания монокристалла феррита-граната  $Nd_{0,95}Y_{2,05}Fe_5O_{12}$  вдоль различных направлений при температуре 4,2 К

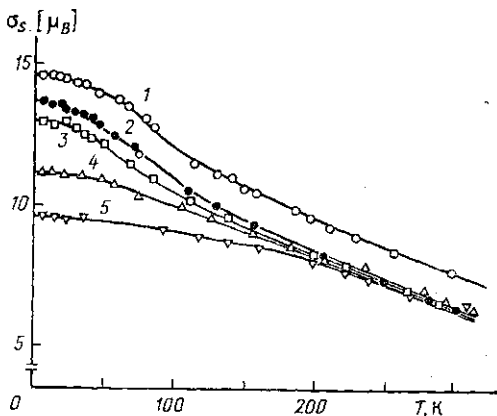


Рис. 2. Температурные зависимости спонтанной намагниченности для гранатов системы  $Nd_xY_{3-x}Fe_5O_{12}$ :  $x=1,72$  (1); 1,39 (2); 0,95 (3); 0,50 (4) и 0 (5)

ионов неодима и результирующим спином железных подрешеток приводит к ферромагнитному упорядочению магнитных моментов ионов  $Nd^{3+}$  и результирующего момента ионов  $Fe^{3+}$  [3, 4]. Этим и объясняется увеличение магнитного момента  $Y_3Fe_5O_{12}$  при введении ионов  $Nd^{3+}$ .

Экспериментальные значения намагниченности вдоль различных кристаллографических направлений, полученные при 4,2 К экстраполяцией зависимости  $\sigma(H)$  к  $H=0$  ( $\sigma_{\text{exp}}^N$ ); значения спонтанной намагниченности, рассчитанные по теории Несля ( $\sigma_0^N$ ) и с учетом образования неколлинеарной магнитной структуры ( $\sigma_0^{\text{ums}}$ ) для ферритов-гранатов системы  $Nd_xY_{3-x}Fe_5O_{12}$

x	$\sigma_{\text{exp}} [\mu_B]$			$\sigma_0^N [\mu_B]$	$\sigma_0^{\text{ums}} [\mu_B]$		
	[111]	[110]	[100]		[111]	[110]	[100]
0,5	11,2	12,6	9,7	13,0	11,25	11,50	11,41
0,95	13,0	14,3	13,0	15,7	12,33	12,85	12,69
1,39	13,9	14,3	—	18,3	13,40	14,17	13,93
1,72	14,8	15,9	—	20,3	14,21	15,16	14,86

В таблице приведены экспериментальные значения намагниченности  $\sigma_{\text{exp}}$  ферритов-гранатов  $Nd_xY_{3-x}Fe_5O_{12}$  вдоль различных кристаллографических направлений, полученные нами при  $T=4,2$  К экстраполяцией  $\sigma(H)$  к  $H=0$ , а также значения спонтанной намагниченности,

рассчитанные по теории Нееля,  $\sigma_0^N$ . При расчете принималось, что магнитные моменты ионов  $Nd^{3+}$  и  $Fe^{3+}$  равны соответственно  $3\mu_B$  и  $5\mu_B$ . Из таблицы следует, что теория Нееля дает завышенные значения спонтанной намагниченности ферритов  $Nd_xY_{3-x}Fe_5O_{12}$  по сравнению с экспериментальными результатами.

Из нейтронографических исследований известно, что многие редкоземельные ферриты-гранаты при гелиевых температурах имеют неколлинеарную магнитную структуру [5—7]. Данных о магнитной структуре неодим-иттриевых ферритов-гранатов в литературе нет. Наилучшее согласие экспериментальных значений намагниченности  $\sigma_{exp}$  с расчетными достигается, если предположить, что в ферритах-гранатах  $Nd_xY_{3-x}Fe_5O_{12}$  в области гелиевых температур образуется неколлинеарная магнитная структура. При этом магнитные моменты ионов  $Nd^{3+}$  направлены вдоль осей типа [110], а магнитные моменты ионов  $Fe^{3+}$  в нулевом поле ориентированы вдоль осей типа [111]. В расчетах предполагалось, что магнитные моменты ионов  $Nd^{3+}$  жестко связаны с кристаллографической решеткой. Для проверки этого предположения были проведены измерения намагниченности некоторых ферритов-гранатов исследуемой системы в импульсных магнитных полях до 250 кЭ. Результаты измерений показали, что действительно, магнитные моменты ионов  $Nd^{3+}$  нельзя заметным образом вывести из направленной намагничивания [110] с помощью полей порядка  $10^5$  Э. Большая магнитная анизотропия ионов  $Nd^{3+}$  в соединениях  $Nd_3Ga_5O_{12}$  и  $Nd_3Sc_{1,35}Fe_{3,65}O_{12}$  наблюдалась ранее Неквасилом и другими при исследовании намагниченности в сильных магнитных полях [8, 9].

Известно, что предельно большая магнитная анизотропия крамерсовских ионов в гранатах (изинговское упорядочение) наблюдается, когда эти ионы имеют нижний изолированный квазидублет [10]. Систему нижних близко расположенных уровней (квазидублет) имеют в ферритах-гранатах ионы  $Ho^{3+}$  и  $Tb^{3+}$  [11, 12].

Ион  $Nd^{3+}$  является крамерсовским. Основное состояние  $4I_{9/2}$  кристаллическим полем ромбической симметрии расщепляется на 5 дублетов. Первый возбужденный дублет в гранатах отстоит от основного уровня примерно на  $100 \text{ см}^{-1}$  [13]. Расщепление основного дублета  $Nd^{3+}$  обменным полем Fe-подрешетки, согласно оценкам авторов работы [14], составляет величину порядка  $10\text{--}90 \text{ см}^{-1}$ . Таким образом, величины расщепления уровней в обменном и кристаллическом полях сравнимы. Поэтому уровни  $Nd^{3+}$  в ферритах-гранатах при определенной ориентации намагниченности могут сильно сближаться или пересекаться. Пересечение уровней приводит к их вырождению и, следовательно, к резкому возрастанию энергии магнитной анизотропии [15].

Известно, что одноионный вклад в магнитную анизотропию крамеровских R3-ионов с изолированным основным состоянием в первом приближении отсутствует [15]. Отличный от нуля одноионный вклад для этих ионов появляется во втором приближении, если учесть влияние возбужденных уровней. Для крамеровских ионов с изолированным основным состоянием магнитная анизотропия обусловлена обменным взаимодействием между редкоземельной и железной подрешетками. Следовательно, большая магнитная анизотропия ферритов-гранатов  $Nd_xY_{3-x}Fe_5O_{12}$  обусловлена в основном сильным анизотропным обменом между ионами  $Nd^{3+}$  и  $Fe^{3+}$ .

При температурах, отличных от абсолютного нуля, кроме основного уровня будут заселены также и возбужденные уровни иона  $Nd^{3+}$ , так как в структуре гранатов нижние энергетические уровни расположены близко друг к другу. Поэтому при  $T \neq 0 \text{ К}$  ионы  $Nd^{3+}$  должны

вносить отличный от нуля одноионный вклад в магнитную анизотропию ферритов-гранатов  $Nd_xY_{3-x}Fe_5O_{12}$ .

В таблице приведены значения спонтанной намагниченности для образцов системы  $Nd_xY_{3-x}Fe_5O_{12}$ , рассчитанные с учетом образования неколлинеарной магнитной структуры ( $\sigma_0^{ums}$ ). Видно, что согласие полученных нами при температуре 4,2 К экспериментальных значений намагниченности  $\sigma_{exp}$  с расчетами  $\sigma_0^{ums}$  удовлетворительное.

Таким образом, экспериментальные результаты  $\sigma_{exp}$  ферритов-гранатов  $Nd_xY_{3-x}Fe_5O_{12}$  могут быть объяснены в предположении, что в этих соединениях при гелиевых температурах имеется неколлинеарная магнитная структура. Это может быть связано также с тем, что ионы  $Nd^{3+}$  имеют очень большую анизотропию и магнитные моменты этих ионов направлены вдоль осей типа [110]. Магнитные моменты ионов  $Fe^{3+}$  в нулевом поле ориентированы по осям типа [111].

Из результатов нейтронографических исследований феррита-граната  $Nd_{1,5}Y_{1,5}Fe_5O_{12}$  следует, что при температурах выше 77 К неколлинеарная магнитная структура в этом соединении не образуется [16]. Так как нейтронографические данные о магнитной структуре образцов системы  $Nd_xY_{3-x}Fe_5O_{12}$  в области гелиевых температур отсутствуют, можно предположить, что образование неколлинеарной магнитной структуры в этих соединениях происходит при  $T < 77$  К. Возникновение неколлинеарной магнитной структуры в области гелиевых температур имеет место и в других редкоземельных ферритах-гранатах, в которых редкоземельные ионы имеют отличный от нуля орбитальный момент [6, 7].

В заключение выражаем благодарность Б. В. Миллю, вырастившему монокристаллы.

#### ЛИТЕРАТУРА

- [1] Geller S., Williams H. J., Sherwood R. C. // Phys. Rev. 1961. 123, N 5. P. 1692. [2] Смарт Д. Эффективное поле в теории магнетизма. М., 1968. [3] White R. L. // J. Appl. Phys. 1961. 32, N 6. P. 1178. [4] Wolf W. P. // J. Appl. Phys. 1961. 32, N 4. P. 742. [5] Tcheou F., Bertaut E. F., Fuess H. // J. de Physique. 1971. 32. Suppl. P. 202. [6] Sayetat F. Тр. Междунар. конф. по магнетизму МКМ-73. М., 1974. Т. 3. С. 371. [7] Guillot M., Marchand A., Tcheou F. // J. Appl. Phys. 1982. 5, N 3. P. 2719. [8] Nekvasil V., Roskovec V., Zoulova F. // Czech. J. Phys. 1974. B24, N 7. P. 810. [9] Roskovec V., Lories J., Nekvasil V. // Czech. J. Phys. 1971. B21, N 12. P. 1316. [10] Griffith J. S. // Phys. Rev. 1963. 132, N 1. P. 316. [11] Силантьев В. И., Попов А. И., Левитин Р. З., Звездин А. К. // ЖЭТФ. 1980. 78, № 2. С. 640. [12] Демидов В. Г., Левитин Р. З., Попов Ю. Ф. // ФТТ. 1976. 18, № 2. С. 596. [13] Kaminski A. A., Bogomolova G. A., Vylegzhanin D. N. et al. // Phys. Stat. Sol. (a). 1976. 38, N 1. P. 409. [14] Clark B. H. // Phys. Rev. 1965. 139, N 6. P. A1944. [15] Круличка С. Физика ферритов и родственных им магнитных окислов. М., 1976. Т. 2. [16] Кузьминов Ю. С. // Кристаллография. 1964. 9, № 2. С. 204.

Поступила в редакцию  
16.01.90