

## Анизотропия локальных и сверхтонких магнитных полей на ядрах $^{57}\text{Fe}$ в гексаферрите $\text{SrFe}_{12}\text{O}_{19}$

С. П. Кунцевич

*Харьковский государственный университет, Украина, 310077, г. Харьков, пл. Свободы, 4*

Статья поступила в редакцию 15 апреля 1997 г., после переработки 10 марта 1998 г.

В интервале температур 4,2–295 К измерены локальные магнитные поля и их анизотропия на ядрах  $^{57}\text{Fe}$  в доменных границах для позиций  $4f_1$  ионов  $\text{Fe}^{3+}$  гексаферрита  $\text{SrFe}_{12}\text{O}_{19}$ . При низких температурах определена анизотропия модулей магнитных моментов ионов  $\text{Fe}^{3+}$ . Анизотропия модулей магнитных моментов рассматривается как физическая величина, обуславливающая анизотропию сверхтонкого поля. В приближении молекулярного поля рассмотрена связь анизотропии модулей магнитных моментов с магнитными характеристиками феррита.

В інтервалі температур 4,2–295 К виміряно локальні магнітні поля та їх анизотропію на ядрах  $^{57}\text{Fe}$  у доменних границях для позицій  $4f_1$  іонів  $\text{Fe}^{3+}$  гексафериту  $\text{SrFe}_{12}\text{O}_{19}$ . При низьких температурах визначено анизотропію модулів магнітних моментів іонів  $\text{Fe}^{3+}$ . Анизотропію модулів магнітних моментів розглядається як фізична величина, яка обумовлює анизотропію надтонкого поля. У наближенні молекулярного поля розглянуто зв'язок анизотропії модулів магнітних моментів з магнітними характеристиками феритів.

PACS: 75.50.Gg

### Введение

При изучении низкотемпературных свойств магнитоупорядоченных веществ наиболее часто используется квазиклассический подход. Основой такого подхода является условие постоянства величин модулей магнитных моментов ионов и соответственно намагниченности магнетика. Исходя из этого условия находится равновесная ориентация намагниченности и ее малые колебания. При рассмотрении ряда явлений приближение квазиклассики является недостаточным. Так, в работе [1] отказ от условия сохранения модуля намагниченности позволил создать феноменологическую теорию магнитной релаксации, хорошо объясняющую различие релаксационных постоянных в уравнении Ландау–Лифшица, получаемых из данных о подвижности доменных границ (ДГ) и данных ферромагнитного резонанса (ФМР). Поэтому экспериментальное определение величин анизотропии намагниченности и модулей магнитных моментов ионов представляет большой интерес. Для высокоанизотропных редкоземельных соединений анизотропия модулей магнитных

моментов может быть определена по экспериментальным зависимостям намагниченности от приложенного внешнего магнитного поля в направлениях легкого и трудного намагничивания [2]. Для менее анизотропных оксидных ферромагнетиков, содержащих  $3d$  магнитные ионы, величина эффекта должна быть меньше, и до сих пор анизотропию модулей магнитных моментов ионов и намагниченности наблюдать не удавалось. В связи с этим необходима разработка специальных экспериментальных методик. Существенный прогресс, достигнутый в технике выращивания совершенных кристаллов ферромагнетиков и в методах исследования локальных характеристик магнитных ионов методом ЯМР [3], позволяет использовать методику ЯМР для определения анизотропии модулей магнитных моментов ионов. Как известно, сверхтонкое поле  $H_{hf}$  на ядре магнитного иона в магнитоупорядоченном состоянии при температурах, близких к абсолютному нулю, определяется величиной модуля магнитного момента иона [4]. Поэтому, изучая зависимость  $H_{hf}$  от ориентации намагниченности относительно

кристаллографических осей, можно получить экспериментальную информацию об анизотропии модулей магнитных моментов. При этом нужно иметь в виду следующее обстоятельство. Локальное поле на ядре представляет собой суперпозицию сверхтонкого поля  $H_{hf}$  и дипольного поля  $H_d$ , создаваемого окружающими ядро магнитными ионами. При переориентации локальных магнитных моментов величина дипольного поля может изменяться. Поэтому в многоподрешеточных ферримагнетиках рассматриваемый эффект предпочтительно изучать для ядер в кристаллографических позициях с малой анизотропией дипольных полей. Для гексаферритов типа М такими позициями являются позиции  $4f_1$  ионов  $Fe^{3+}$  подрешетки с. Согласно данным работы [5], при низких температурах расчетное значение анизотропии дипольных полей в позициях  $4f_1$  приблизительно на порядок меньше по сравнению с другими кристаллографически неэквивалентными позициями ионов  $Fe^{3+}$ . Анизотропию локальных полей на ядрах  $\delta H_l$  можно экспериментально определить, изучая ЯМР от ядер в ДГ стационарной методикой.

В магнитноодноосных кристаллах типа М наблюдаются сигналы ЯМР от ядер  $^{57}Fe$  на краю ДГ с частотой  $\nu_d$  и от ядер в середине ДГ с частотой  $\nu_w$  [3]. Для ядер на краю ДГ магнитные моменты ориентированы вдоль оси легкого намагничивания, совпадающей с осью с, а для ядер, находящихся в середине ДГ — в базисной плоскости. Поэтому разность частот  $\delta\nu = \nu_w - \nu_d$  характеризует анизотропию локальных частот и соответственно анизотропию локальных полей  $\delta H_l = H_w - H_d$  при переориентации магнитных моментов от оси с к базисной плоскости.

В данной работе в интервале температур 4,2–295 К измерены локальные поля и их анизотропия на ядрах  $^{57}Fe$  ионов  $Fe^{3+}$  в позициях  $4f_1$  гексаферрита  $SrFe_{12}O_{19}$  (SrM). При низких температурах определена анизотропия сверхтонкого поля, которая интерпретируется как следствие анизотропии модулей магнитных моментов ионов  $Fe^{3+}$ . В приближении молекулярного поля рассмотрена взаимосвязь анизотропии модулей магнитных моментов с магнитными характеристиками феррита.

### Образцы и методика измерений

В качестве образцов использовались кристаллы  $SrFe_{12}O_{19}$  (SrM), выращенные методом раствора в расплаве флюса  $SrO \cdot B_2O_3$ . Синтез кристаллов производился в интервале

температур 1180–1050 °С. Образцы имели 95%-е обогащение изотопом  $^{57}Fe$ . Фазовый состав кристаллов контролировался рентгенографическим методом. Постоянные кристаллической решетки при комнатной температуре:  $a = 0,588$  нм;  $c = 2,299$  нм. ЯМР от ядер в ДГ наблюдался стационарной методикой с помощью устройства, состоящего из высокочастотного усилителя, на вход которого включался контур-датчик с образцом, и измерителя частотных характеристик Х1-42. ЯМР фиксировался по резонансным пикам на частотной характеристике контура-датчика. Напряжение на контуре не превышало  $10^{-2}$  В. Кристалл ориентировался в контуре-датчике так, чтобы радиочастотное поле было ориентировано вдоль оси с, при этом величина сигнала максимальна. ЯМР от ядер в доменах наблюдался с помощью некогерентного спектрометра спинового эха, позволявшего фиксировать зависимость амплитуды сигналов эха от частоты заполнения радиочастотных импульсов.

### Результаты и их обсуждение

Для ядер  $^{57}Fe$  в ДГ в позициях  $4f_1$  ионов  $Fe^{3+}$  были зафиксированы две линии ЯМР. Идентификация линий спектров ЯМР для различных кристаллографических позиций ионов  $Fe^{3+}$  в гексаферритах типа М была дана в работе [7]. На рис. 1 показана записанная с помощью графопостроителя частотная характеристика контура-датчика при температуре 77 К. На ней видны два пика с частотами  $\nu_d$  и  $\nu_w$ . Значения частот приведены в таблице. Для идентификации пиков использовалось то обстоятельство, что частоты сигналов ЯМР ядер на краю ДГ должны мало отличаться от частот

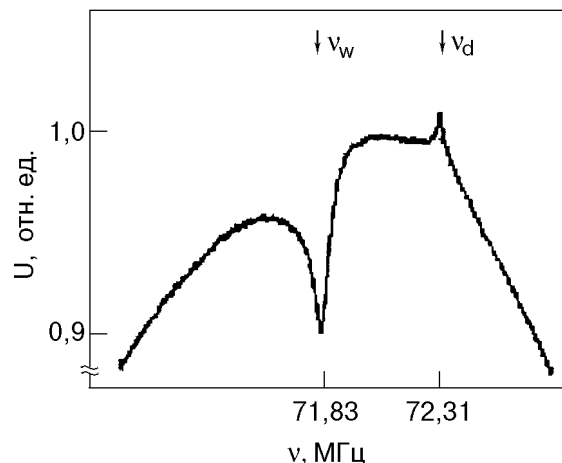


Рис. 1. Зависимость напряжения на контуре-датчике  $U$  от частоты при 77 К.

ЯМР ядер в доменах. Частота сигнала  $\nu_{\parallel}$  для ядер в позициях  $4f_1$  доменов была определена методом спинового эха. Значение  $\nu_{\parallel}$  приведено в таблице. Величина  $\nu_{\parallel}$  мало отличалась от величины частоты  $\nu_d$ , которая была интерпретирована как принадлежащая ядрам на краю ДГ. Для идентификации сигнала от ядер в середине ДГ необходимо знать величину анизотропии локальных частот при переориентации вектора намагниченности от оси  $c$  к базисной плоскости в однодоменном состоянии

$$\delta\nu' = \nu_{\perp} - \nu_{\parallel}, \quad (1)$$

где  $\nu_{\perp}$  соответствует ориентации намагниченности в базисной плоскости, а  $\nu_{\parallel}$  — вдоль оси  $c$ .

Таблица

Характерные частоты ЯМР спектра гексаферрита  $\text{SrFe}_{12}\text{O}_{19}$  при 77 К

$\nu_d$ , МГц	$\nu_w$ , МГц	$\delta\nu$ , МГц	$\delta\nu'$ , МГц	$\nu_{\parallel}$ , МГц	$\nu_{\perp}$ , МГц
72,28	71,83	-0,45	-0,32	72,29	71,97

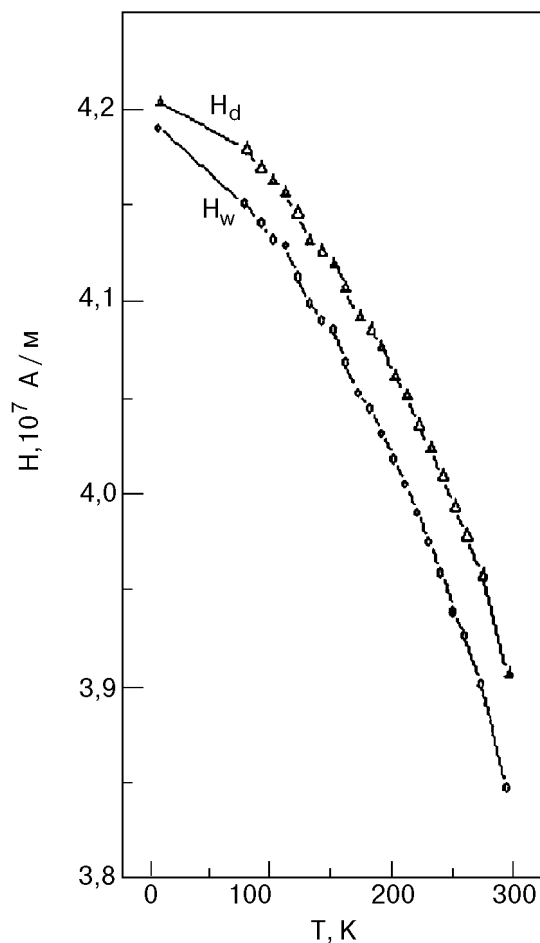


Рис. 2. Температурная зависимость локальных полей на ядрах  $^{57}\text{Fe}$  в середине  $H_w$  и на краю  $H_d$  ДГ.

Величина  $\delta\nu'$  была определена методом спинового эха в поле 1,75 МА/м способом, описанным в работе [3]. Значения  $\delta\nu'$  и расчетная величина  $\nu_{\perp}$  представлены в таблице. Как видно из таблицы, значение  $\nu_{\perp}$  мало отличается от величины  $\nu_w$ , которая была интерпретирована как относящаяся к ядрам в середине ДГ. Используемая стационарная методика наблюдения ЯМР позволяла проследить за температурными изменениями  $\nu_d$  и  $\nu_w$ . По данным этих температурных зависимостей были определены температурные изменения локальных полей на ядрах  $H_d$  и  $H_w$ . Они представлены на рис. 2. Как следует из рисунка, анизотропия локальных полей  $\delta H_l = H_w - H_d$  увеличивается с ростом температуры. В ДГ вследствие возбуждения внутриграницных магнов локальное поле  $H_w$  должно более резко уменьшаться с ростом температуры по сравнению с  $H_d$  [4,6]. Это должно приводить к увеличению  $\delta H_l$ , поскольку  $H_w < H_d$ . На рис. 3 приведена температурная зависимость анизотропии локальных полей  $\delta H_l$ . Как видно на рисунке, наблюдается линейный рост  $\delta H_l$  при увеличении температуры. Линейность свидетельствует о том, что основной вклад в температурные изменения  $\delta H_l$  вносит механизм, связанный с уменьшением локальной намагниченности в середине ДГ по сравнению с ее краем за счет термического возбуждения внутриграницных магнов. Согласно расчетам, проведенным в [6], разница локальных намагниченностей должна линейно

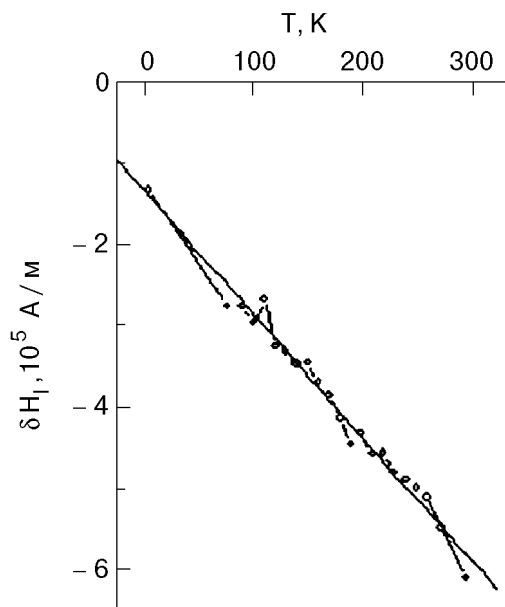


Рис. 3. Температурная зависимость анизотропии локальных полей  $\delta H_l$  на ядрах  $^{57}\text{Fe}$ .

возрастать с ростом температуры. Экстраполяция  $\delta H_i(T)$  к  $T = 0$  К позволяет найти анизотропию локальных полей  $\delta H_i(0) = -144$  кА/м. Величину  $\delta H_i(0)$  можно представить в виде

$$\delta H_i(0) = \delta H_{hf}(0) + \delta H_d(0), \quad (2)$$

где  $\delta H_{hf}(0)$  — анизотропия сверхтонкого поля;  $\delta H_d(0)$  — анизотропия дипольного поля.

Согласно расчетным данным работы [5], для позиций  $4f_1$  подрешетки  $c$  ионов  $Fe^{3+}$  в гексаферрите М-типа при низких температурах  $\delta H_d(0) = 95$  кА/м. Поэтому в соответствии с (2) получаем  $\delta H_{hf}(0) = -239$  кА/м. В магнитоупорядоченных ферримагнетиках  $H_{hf}(0) \gg H_d(0)$  и можно приближенно считать, что  $H_{hf}(0) \approx H_i(0) = 41,9$  МА/м, а относительное изменение  $\delta H_{hf}/H_{hf} = -5,7 \cdot 10^{-3}$ . При рассмотрении анизотропии сверхтонкого взаимодействия обычно подразумевается, что связь между сверхтонким полем и магнитным моментом иона носит тензорный характер [9]. Этот подход соответствует приближению, когда не учитываются релятивистские взаимодействия и принимается, что модуль магнитного момента иона сохраняется при его переориентации. В обзорной работе [8] было показано, что в высокоанизотропных магнетиках взаимодействие всех степеней свободы приводит к тому, что при переориентации магнитных моментов ионов их модуль и модуль намагниченности не сохраняются. Этот вывод подтверждается экспериментальными результатами по измерению анизотропии модуля намагниченности интерметаллических соединений при низких температурах [2]. Поэтому представляется достаточно обоснованным рассматривать анизотропию сверхтонкого поля как следствие анизотропии модулей магнитных моментов ионов  $Fe^{3+}$  в позициях  $4f_1$  и считать, что при переориентации магнитных моментов от направления легкого намагничивания к направлению трудного намагничивания уменьшение сверхтонкого поля связано с уменьшением модуля магнитного момента иона  $Fe^{3+}$   $\delta\mu$ , при этом  $\delta\mu/\mu \approx \delta H_{hf}/H_{hf} = -5,7 \cdot 10^{-3}$ . Представляет интерес на основе этой точки зрения сделать оценочный расчет для наблюдаемого эффекта. В выражении для энергии  $W$  иона  $Fe^{3+}$  в позиции  $4f_1$  ДГ учтем два наибольших слагаемых: обменную энергию  $W_{exc}$  и энергию анизотропии  $W_a$

$$W = W_a + W_{exc}. \quad (3)$$

Приняв во внимание, что внешнее воздействие на ферромагнетик отсутствует, и считая его замкнутой системой, при спиновой переориентации имеем  $\delta W = 0$  и  $\delta W_{exc} = -\delta W_a$ . Откуда следует соотношение

$$\delta W_{exc}/W_{exc} = -\delta W_a/W_{exc}. \quad (4)$$

В позициях  $4f_1$  ионы  $Fe^{3+}$  подрешетки  $c$  имеют три обменные связи с ионами  $Fe^{3+}$  в позициях  $12k$  подрешетки  $a$  и шесть обменных связей с ионами  $Fe^{3+}$  в позициях  $2a$  подрешетки  $b$  [10]. Поэтому в рамках приближения молекулярного поля обменное поле  $H_{exc}$  и обменная энергия  $W_{exc}$  для иона  $Fe^{3+}$  в позициях  $4f_1$  могут быть представлены в виде [11]

$$H_{exc} = 2\mu(3J_{ac} + 6J_{bc})(g\beta)^2, \quad (5)$$

$$W_{exc} = -\mu^2(3J_{ac} + 6J_{bc})(g\beta)^2,$$

где  $\mu$  — магнитный момент иона  $Fe^{3+}$ ;  $g$  — электронный  $g$ -фактор;  $\beta$  — магнетон Бора;  $J_{mn}$  — абсолютные значения интегралов косвенного обмена между ионами подрешеток  $b$ ,  $a$  и  $c$ . Воспользовавшись соотношениями (4) и (5), получаем

$$\frac{2\delta\mu}{\mu} + \frac{\delta J_{ac} + 2\delta J_{bc}}{J_{ac} + 2J_{bc}} = -\frac{\delta W_a}{W_{exc}}. \quad (6)$$

В рамках рассматриваемого приближения считается, что изменение величин магнитных моментов  $\delta\mu$  в позициях  $4f_1$ ,  $12k$  и  $2a$  приблизительно одинаковы. Для ионов в середине ДГ изменение энергии анизотропии численно равно величине энергии анизотропии и поэтому

$$-\delta W_a/W_{exc} = -W_a/W_{exc} \approx H_a/H_{exc}, \quad (7)$$

где  $H_a$  — поле анизотропии феррита SrM. Величина  $-\delta W_a/W_{exc} > 0$ , поскольку при переориентации магнитных моментов от направления легкого намагничивания к направлению трудного намагничивания  $\delta W_a > 0$ , а величина  $W_{exc} < 0$ . Значение поля анизотропии для исследуемого феррита при низких температурах (77 К)  $H_a = 1,37 \cdot 10^6$  А/м. Для обменного поля, воспользовавшись соотношениями (5), величинами  $J_{ac}$ ,  $J_{bc}$  из работы [10] и  $\mu \approx g\beta s$  ( $s = 5/2$ ), получим  $H_{exc} = 464 \cdot 10^6$  А/м. Поэтому из выражения (7) имеем  $W_a/W_{exc} \approx 3 \cdot 10^{-3}$ . Значение  $-\delta W_a/W_{exc}$  одного порядка величины с  $|\delta\mu/\mu|$ , но при этом у величин  $-\delta W_a/W_{exc}$  и  $\delta\mu/\mu$  разные знаки.

Следует заметить, что особенность такого рода, но без учета знаков, отмечали авторы работ [2,12]. Они экспериментально определили, что в интерметаллических соединениях относительная анизотропия намагниченности по порядку величины совпадает с отношением энергии анизотропии к обменной энергии. Воспользовавшись значениями  $-\delta W_a/W_{\text{exc}}$ ,  $\delta\mu/\mu$  и соотношением (6), получаем  $(\delta J_{ac} + 2\delta J_{bc})/(J_{ac} + 2J_{bc}) = 14,4 \cdot 10^{-3}$ . Откуда следует  $\delta J_{ac} + 2\delta J_{bc} > 0$ , что соответствует, согласно (5), уменьшению обменной энергии и изменению расстояний и углов обменных связей в цепочке взаимодействий  $\text{Fe}^{3+}(4f_1) - \text{O}^{2-} - \text{Fe}^{3+}(12k)$  и  $\text{Fe}^{3+}(4f_1) - \text{O}^{2-} - \text{Fe}^{3+}(2a)$ .

Проведенное рассмотрение можно резюмировать следующим образом. Увеличение энергии анизотропии при переориентации магнитных моментов компенсируется уменьшением обменной энергии, при этом увеличиваются интегралы косвенного обмена и изменяются расстояния между магнитоактивными ионами. Изменение межсионных расстояний сопровождается перераспределением спиновой и электронной плотностей с соответствующим уменьшением модулей магнитных моментов ионов  $\text{Fe}^{3+}$ .

1. В. Г. Барьяхтар, *ЖЭТФ* **87**, 1501 (1984).
2. Е. В. Розенфельд, А. В. Королев, *ЖЭТФ* **108**, 862 (1995).
3. С. П. Кунцевич, А. А. Безлепкин, Ю. А. Попков, *ЖЭТФ* **88**, 1820 (1985).

4. Е. А. Туров, М. П. Петров, *Ядерный магнитный резонанс в ферро- и антиферромагнетиках*, Наука, Москва (1969).
5. H. Stepankova, J. Englich, and B. Sedlak, *Czech. J. Phys.* **B33**, 816 (1983).
6. J. M. Winter, *Phys. Rev.* **124**, 452 (1961).
7. R. L. Streever, *Phys. Rev.* **186**, 286 (1969).
8. В. М. Локтев, В. С. Островский, *ФНТ* **20**, 983 (1994).
9. М. И. Куркин, Е. А. Туров, *ЯМР в магнитоупорядоченных веществах и его применение*, Наука, Москва (1990).
10. М. П. Петров, А. В. Куневич, *ЖЭТФ* **63**, 2239 (1972).
11. Д. Смарт, *Эффективное поле в теории магнетизма*, Мир, Москва (1968).
12. А. С. Ермоленко, Е. В. Розенфельд, *ФММ* **48**, 505 (1979).

### Anisotropy of local and ultrafine magnetic fields on $^{57}\text{Fe}$ nuclei in $\text{SrFe}_{12}\text{O}_{19}$ hexaferrite

S. P. Kuntsevich

Local magnetic fields and their anisotropy on the  $^{57}\text{Fe}$  nuclei have been measured in the domain boundaries for the  $4f_1$  sites of the  $\text{Fe}^{3+}$  ions of the  $\text{SrFe}_{12}\text{O}_{19}$  hexaferrite in the range of 4.2 to 295 K. At low temperatures the anisotropy of magnetic moment moduli for the  $\text{Fe}^{3+}$  ions has been determined. This anisotropy is considered as a physical quantity causing the anisotropy of ultra-fine field to occur. The relation between the anisotropy of magnetic moment moduli and the ferrite magnetic characteristics is treated within the approach of molecular field.