

СООБЩЕНИЯ
ОБЪЕДИНЕННОГО
ИНСТИТУТА
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
ДУБНА

P14-94-431

С.А.Буйко, Д.Георгиев, К.Крежов, В.В.Нитц, Г.Пасажов

АНТИФЕРРОМАГНЕТИЗМ, ИНДУЦИРОВАННЫЙ
ВНЕШНИМ МАГНИТНЫМ ПОЛЕМ
В ОРТОФЕРРИТЕ ГОЛЬМИЯ

1994

Антиферромагнетизм, индуцированный внешним магнитным полем в ортоферрите гольмия

Представлены результаты нейтронографических исследований монокристалла HoFeO_3 на спектрометре СНИМ-2 с использованием импульсного магнитного поля. Измерялся индуцированный магнитным полем слабый антиферромагнетизм в подсистемах ионов Fe^{+3} и Ho^{+3} в диапазоне 79-154 К. Получена температурная зависимость антиферромагнитной восприимчивости подсистемы Ho^{+3} , подчиняющаяся закону Кюри — Вейсса.

Работа выполнена в Лаборатории нейтронной физики им. И.М.Франка ОИЯИ.

Сообщение Объединенного института ядерных исследований. Дубна, 1994

Перевод авторов

Bujko S. et al.

P14-94-431

Induced Antiferromagnetism in HoFeO_3

Results from neutron diffraction studies of single crystal HoFeO_3 in pulsed magnetic field by means of the spectrometer SNIM-2 of JINR (Dubna) are presented. The weak antiferromagnetism induced by the applied field in the Fe^{3+} - and Ho^{3+} -ions sublattices is measured in the temperature range 79-154 K. The temperature dependence of the antiferromagnetic susceptibility of the holmium subsystem is derived and found to obey the Curie — Weiss law.

The investigation has been performed at the Frank Laboratory of Neutron Physics, JINR.

Communication of the Joint Institute for Nuclear Research, Dubna, 1994

Введение

Кристаллическая симметрия HoFeO_3 описывается ромбической пространственной группой $D_{2h}^{16} - P_{\text{bnn}}$. В каждой ячейке содержится четыре молекулы, расположение ионов Fe^{3+} и Ho^{3+} показано на рис.1. Такая структура связана с возможностью неколлинеарного антиферромагнитного упорядочения и слабого ферромагнетизма при антиферромагнитном упорядочении. При $T < T_N = 647 \text{ K}$ железные подрешетки упорядочены антиферромагнитно, а подрешетки гольмия находятся в парамагнитном состоянии, если исключить из рассмотрения самые низкие температуры (для ионов Ho^{3+} в HoFeO_3 температура Нееля равна $4.5 - 6.5 \text{ K}$ ^[1,2]). Но под влиянием обменного Ho-Fe-взаимодействия ионы гольмия испытывают упорядочение, характер которого, в свою очередь, определяется конфигурацией упорядочения ионов железа.

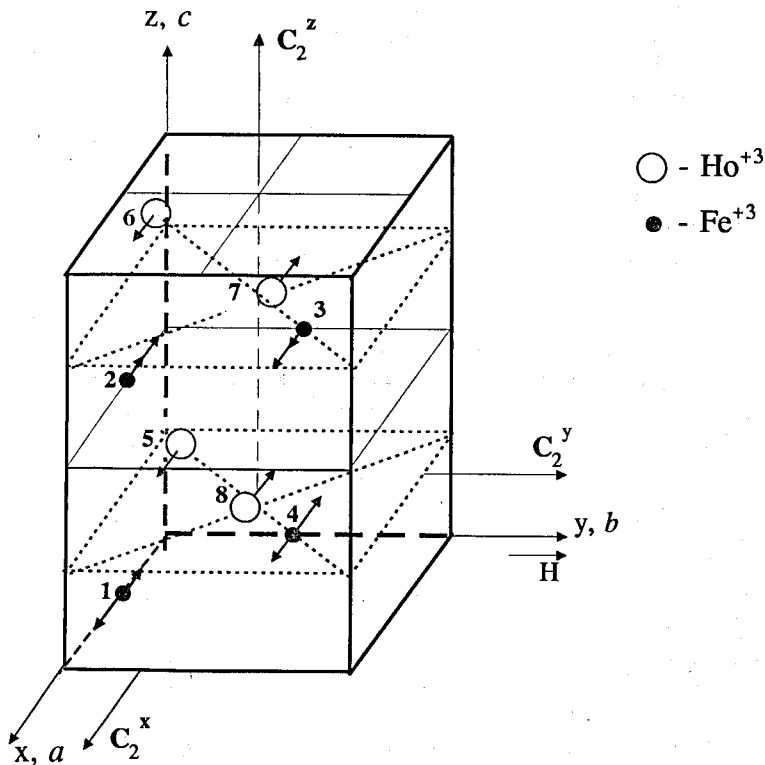
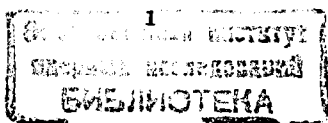


Рис.1. Расположение магнитных ионов в элементарной ячейке. Длинными стрелками при ионах железа показаны первоначальные намагниченности. Короткие стрелки при этих ионах и стрелки при ионах гольмия обозначают, соответственно, намагниченности типа C_x и c_x , индуцированные магнитным полем.



Как обычно, при рассмотрении возможных магнитных структур используем следующие векторы ферро- и антиферромагнетизма:

$F = M_1 + M_2 + M_3 + M_4$, $G = M_1 - M_2 + M_3 - M_4$, $C = M_1 + M_2 - M_3 - M_4$, $A = M_1 - M_2 - M_3 + M_4$ для ионов Fe^{3+} и $f = M_5 + M_6 + M_7 + M_8$, $g = M_5 - M_6 + M_7 - M_8$, $c = M_5 + M_6 - M_7 - M_8$, $a = M_5 - M_6 - M_7 + M_8$ для ионов Ho^{3+} (M_i - намагниченности соответствующих подрешеток).

При условии $T_2 = 63 < T < T_N$ реализуется состояние Γ_4 (G_x, A_y, F_z, f_z) - антиферромагнитное упорядочение типа G по оси x для ионов Fe^{3+} с указанными, малыми по величине, дополнительными компонентами. При температуре $T < T_1 = 51$ К имеем состояние Γ_2 (G_z, C_y, F_x, f_x, c_y) - основной вектор антиферромагнетизма G направлен по оси z . При изменении температуры от T_1 до T_2 происходит поворот вектора G от оси z к оси x . При этом повороте в плоскости xz не равны нулю все компоненты, соответствующие состояниям Γ_2 и Γ_4 . При действии внешнего магнитного поля, направленного по оси y , в температурной области $T_2 < T < T_N$ в дополнение к Γ_4 индуцируется примесь состояния Γ_3 (C_x, F_y, A_z, c_x, f_y), т. е. антиферромагнитное упорядочение железа и гольмия типа (C, c) по оси x . Степень этого упорядочения пропорциональна величине поля и определяется для ионов железа, главным образом, антисимметричным обменным $Fe-Fe$ -взаимодействием^{13/}, а для ионов гольмия - антисимметричным и анизотропно-симметричным обменными $Ho-Fe$ -взаимодействиями^{14/}. Таким образом, экспериментальное исследование антиферромагнитного упорядочения, индуцированного полем H_y , позволяет определять константы этих взаимодействий, что имеет существенное значение при изучении редкоземельных ортоферритов.

Однако экспериментальное выделение соответствующих антиферромагнитных составляющих является непростой задачей, т.к. эти взаимодействия на несколько порядков слабее, чем основное обменное взаимодействие, ответственное за упорядочение ионов железа. Этим можно объяснить, что такие исследования до сих пор не производились.

Дифракция нейтронов предоставляет в этом отношении уникальные возможности, т.к. индуцированным компонентам антиферромагнетизма (C, c) соответствуют отдельные пики, не связанные с ядерной дифракцией и с другими компонентами намагниченностей подрешеток. И тем не менее такие эксперименты на стационарных реакторах трудновыполнимы из-за необходимости использования достаточно большого магнитного поля.

Сочетание импульсного реактора ИБР-2 с его малой частотой повторения всплеск мощности и, соответственно, с большим импульсным потоком нейтронов, и импульсного магнитного поля сделало возможным изучение на спектрометре СНИМ-2 индуцированного слабого антиферромагнетизма. В данной работе представлены первые результаты, полученные с $HoFeO_3$.

СНИМ-2 представляет собой сочетание нейтронного спектрометра (НС-3^{15/}) с импульсной магнитной установкой (ИМУ-2^{16/}). Измерения производились с монокристаллом $HoFeO_3$, имеющим размеры $3 \times 6 \times 8$ мм³. Предварительно сориентированный образец приклеивается к нижнему концу тепловода (стержень из BeO -керамики длиной 100 мм с диаметром 7 мм), верхний конец которого находится при гелиевой температуре. Аппендикс криостата с образцом вводится в центр импульсного магнита с вертикальным направлением поля и все это располагается в центре НС-3 на выходе зеркального нейтронного волновода на расстоянии 30 м от активной зоны реактора. Точная ориентация кристалла и переход от одной вертикальной плоскости к другой производится поворотом всего криостата вокруг вертикальной оси. Диапазон допустимых температур образца в криостате 30 - 400 К. Неоднородность температуры в объеме образца с указанными размерами не более 1 К. Точность стабилизации ее в пределах 1%. Регистрация рассеянных нейтронов производится детектором, размещенным на поворотном плече дифрактометра на расстоянии 2.17 м от образца. В качестве детектора используется гелиевый счетчик цилиндрической формы с рабочим объемом диаметром 90 мм и эффективной толщиной в регистрируемом пучке около 10 мм. Размеры этого детектора обеспечивают регистрацию всего пучка, рассеянного при дифракции на монокристалле.

Импульсы магнитного поля имеют форму полупериода синусоиды (с некоторым затуханием) с длительностью (по основанию) около 700 мкс. Необходимая при обработке измерений форма импульса измеряется с помощью индуктивного датчика поля, помещаемого вместо образца. Неоднородность аксиальной составляющей поля в объеме образца с указанными размерами не превышает 1%, а радиальная составляющая составляет не более 1% от аксиальной. Заданная амплитуда импульсов поддерживается с точностью 0.4%.

Для получения абсолютных значений индуцированных компонент C_x и c_x необходимо знать интенсивность и форму спектра первичного пучка. Для этого использовался образец ванадия, помещаемый на место образца. Регистрация рассеянных при этом нейтронов производилась тем же гелиевым детектором. Спектр показан на рис.2.

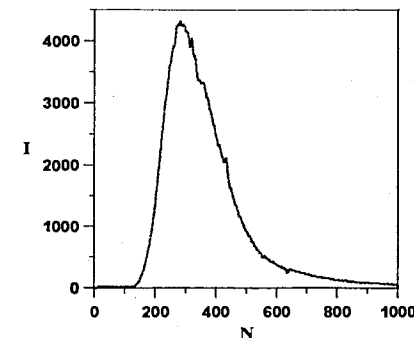


Рис.2. Форма первичного пучка нейтронов. Ширина временного канала $\tau = 64$ мкс.

При регистрации изменений отражающей способности в переменном поле важен вопрос о временном разрешении метода. Следует принимать во внимание, что за счет конечной энергетической ширины нейтронов, испытывающих дифракцию и воспринимающих информацию о состоянии образца, происходит некоторое "перемешивание" этой информации за время от момента рассеяния до момента регистрации. Так как мозаичность кристалла существенно меньше угловой расходимости $\Delta\theta$ первичного пучка, величина временного разрешения может быть представлена в виде δt :

$$\delta t = T \left[\left(\frac{\Delta L}{L} \right)^2 + \left(\frac{\Delta\theta}{\text{tg}\theta} \right)^2 \right]^{0.5} \quad (1)$$

где $T = 252.43 \times L \cdot \lambda$ - время пролета расстояния L от образца до детектора, ΔL - неопределенность пролетного расстояния, связанная с размерами образца и эффективной толщиной детектора, θ - угол Брэгга (δt и T выражаются в мкс, λ - в Å, L и ΔL - в м). В данном случае $L = 2.17$ м, $\Delta L = 0.01$ м, $\Delta\theta \cong 1.5 \cdot 10^{-3}$ рад. Следовательно, значение δt составляет $5 \div 10$ мкс, в зависимости от λ , если ширина канала временного анализатора не превышает этого значения.

Экспериментальные данные и их анализ

Ниже представлены результаты измерений двух дифракционных отражений, чувствительных к указанным компонентам векторов антиферромагнетизма, которые присутствуют в смеси состояний Γ_4 и Γ_3 : (102) с компонентами C_x , c_x и (201) с компонентами c_x , A_y , A_z .

Компонента A_y не равна нулю при $H = 0$. Ее определению были посвящены наши дифракционные измерения^{18/} (см. также более раннюю работу с использованием поляризованных нейтронов^{19/}). В линейном по величине поля приближении она не должна изменяться. Компонента A_z индуцируется полем H_y , но с полным основанием ее можно пренебрегать, так как в гамильтониане она инвариантно связана лишь с компонентой C_x ^{14/}, т.е. может проявляться только в квадратичном по величине поля приближении, в отличие от компонент C_x и c_x , входящих в гамильтониан в комбинациях $C_x F_y$ и $c_x F_y$, соответственно. Таким образом, измерение двух дифракционных отражений позволяет определять величины индуцированного по оси x антиферромагнетизма раздельно в железной и редкоземельной подсистемах.

На рис.3 приведена серия нейтронограмм для отражения (102), полученная при амплитуде импульсов $H_m = 77.0$ кЭ, $2\theta = 91.7^\circ$ и указанных значений температуры. При обработке этих и других подобных данных следует нормировать нейтронограммы на "стандартную" форму дифракционного пика, который может быть получен при низких температурах без магнитного поля. В качестве примера на рис.4 показана серия измерений (102) при $H_m = 87.55$ кЭ, $2\theta = 91.7^\circ$ вместе с пиком (102), полученным при $T = 26$ К, т.е. в состоянии Γ_2 , когда присутствуют достаточно

большие по величине компоненты C_y и c_y , также характерные для (102). Нормировка в данном случае состоит в делении спектра с магнитным полем на "стандартный" пик и умножении на площадь "стандартного" пика (конечно, с вычетом фоновых подложек). Получаемая таким образом отражающая способность кристалла не зависит от фактической величины амплитуды рассеяния в "стандартном" пике - он характеризует в данном случае просто временную зависимость прилета нейтронов с фиксированной длиной волны, которые участвуют в рассеянии.

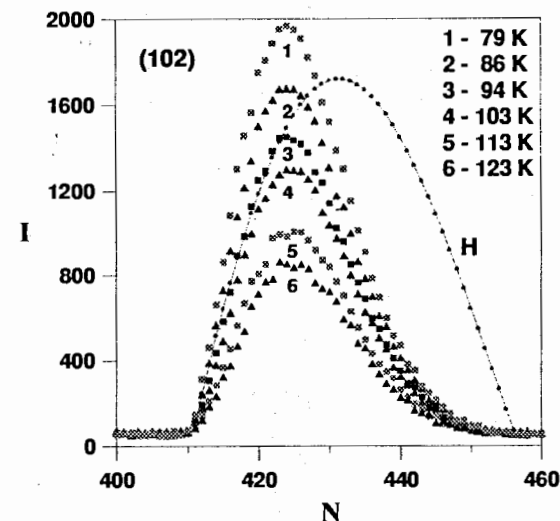


Рис.3 Нейтронограммы при $H_m = 77$ кОе, $\tau = 16$ мкс.

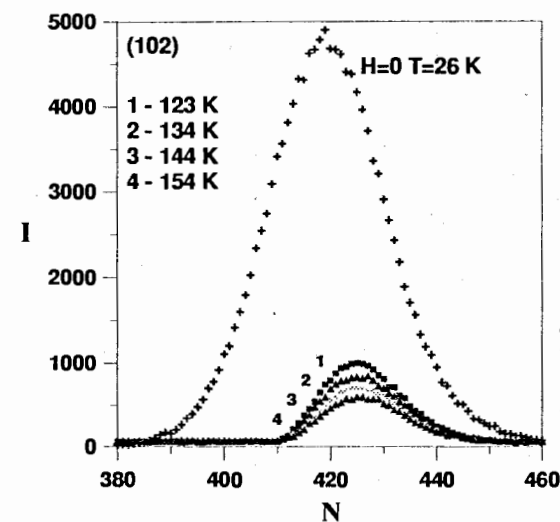


Рис.4 Соотношение между индуцированными дифракционными пиками при $H_m = 87.55$ кОе и "стандартным" пиком, полученным при $T = 26$ К.

Далее принималось во внимание, что при малых значениях индуцированных компонент выполняется кинематическое приближение, т.е. интенсивность рассеяния пропорциональна квадрату амплитуды рассеяния. В качестве последней используем здесь амплитуду рассеяния, отнесенную к одной паре ионов железа и гольмия и выраженную в единицах спина. Соответственно для двух рассматриваемых плоскостей она может быть записана следующим образом:

$$F_{(102)} = f_{Fe(102)} \cdot S_{Fe,x} + f_{Ho(102)} \cdot \cos(2\pi \cdot \delta x) \cdot S_{Ho,x}, \quad (2)$$

$$F_{(201)} = f_{Ho(201)} \cdot \sin(4\pi \cdot \delta x) \cdot S_{Ho,x}, \quad (3)$$

где f_{Fe} и f_{Ho} - магнитные формфакторы для соответствующих отражений, $S_{Fe,x}$ и $S_{Ho,x}$ - индуцированные по оси x компоненты эффективных спинов, $\delta x = 0.018$ - смещение иона гольмия от ребра элементарной ячейки по оси x .

На рис.5 и 6 показаны результаты обработки спектров, представленных на рис.3 и рис.4 для (102). Видно, что на начальных участках амплитуда рассеяния пропорциональна величине поля. Последующее отклонение от линейной зависимости связано с нарушением квадратичной зависимости интенсивности рассеяния от амплитудного фактора из-за экстинкции нейтронов в монокристалле.

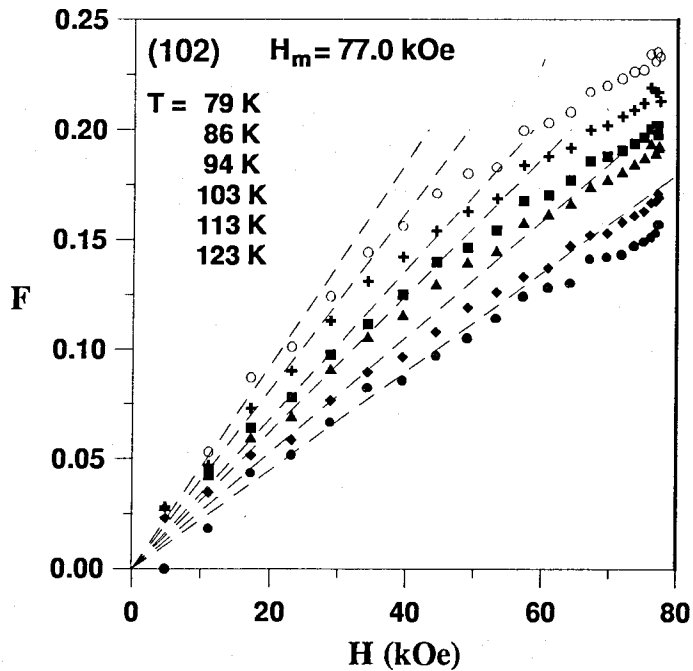


Рис.5

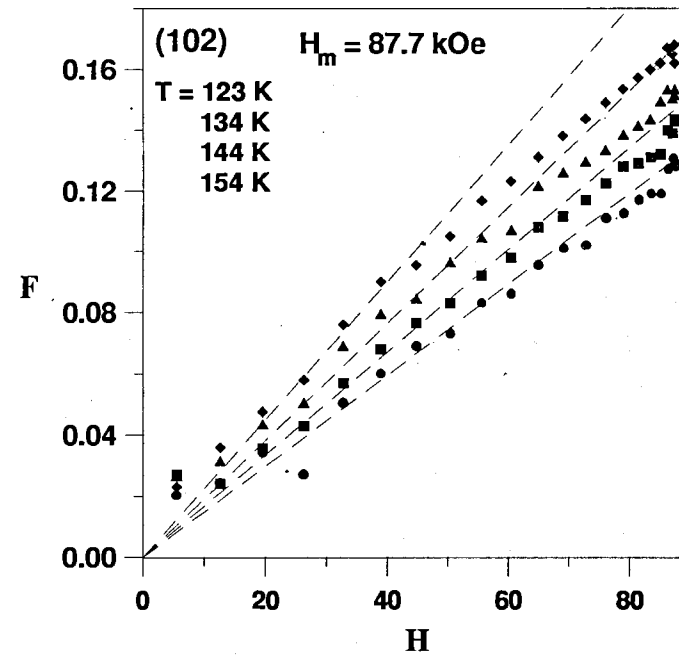


Рис.6

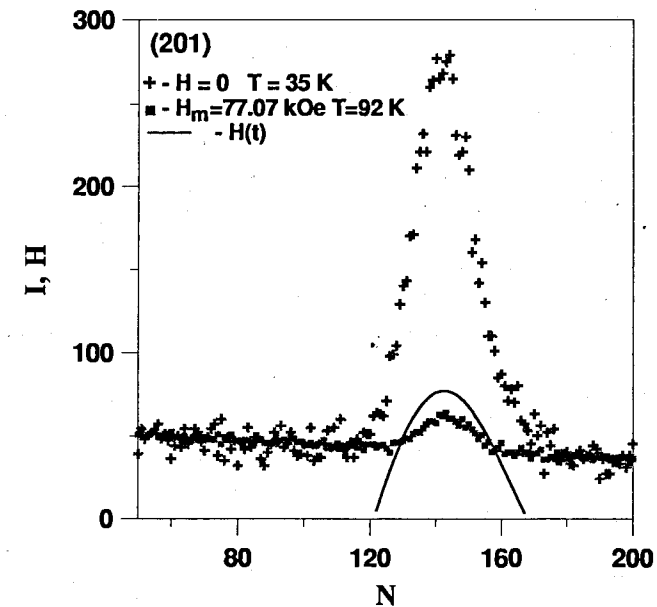


Рис.7

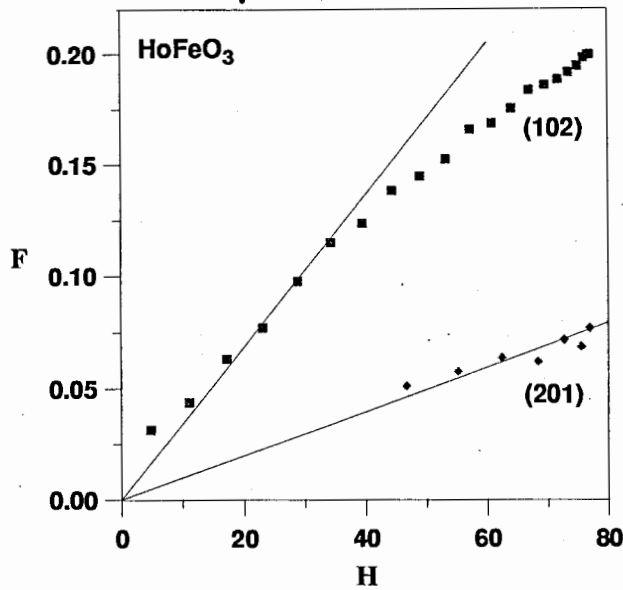


Рис.8

Нейтронная диаграмма для (201), полученная при $H_m = 77.1$ кЭ, $\tau = 16$ мкс, $T = 92$ К, $2\theta = 90^\circ$, приведена на рис.7, вместе с соответствующим "стандартным" пиком и импульсом магнитного поля.

Амплитудные факторы для отражений (102) и (201), полученные при относительно близких значениях температуры (94 К и 92 К, соответственно), представлены на рис.8. При обработке экспериментальных данных используем следующие значения магнитных факторов ^{/10,11/}: $f_{Fe(102)} = 0.715$, $f_{Ho(102)} = 0.866$, $f_{Ho(201)} = 0.79$. Пренебрегая различием амплитуд рассеяния при $T = 92$ и 94 К, получаем при среднем значении $T = 93$ К антиферромагнитные восприимчивости для ионов железа и гольмия: $S_{Fe,x}/N_y = -2.02 \cdot 10^{-6}$ Ое⁻¹, $S_{Ho,x}/N_y = 5.58 \cdot 10^{-6}$ Ое⁻¹. Такому соотношению знаков в значениях восприимчивостей соответствует изменение намагниченностей подрешеток, показанное стрелками на рис.1.

Имея целью извлечение из полученных данных антиферромагнитной восприимчивости гольмиевой подсистемы, пренебрегаем температурной зависимостью восприимчивости подрешеток железа в рассматриваемом температурном диапазоне. Это вполне допустимо, т.к. прикладываемое поле перпендикулярно вектору G основного антиферромагнетизма ионов железа, причем намагниченности подрешеток близки к насыщению. Поэтому величина индуцированного слабого антиферромагнетизма типа С для ионов железа не может существенно зависеть от температуры. В таком приближении получаем из рис.5 и 6 температурную зависимость антиферромагнитной восприимчивости ионов гольмия, показанную на рис.9, которая, как видно,

хорошо удовлетворяет закону Кюри - Вейсса с положительным значением постоянной $\theta \cong 9.6$ К:

$$\chi_{af} = \frac{0.975 \cdot 10^{-3} \mu_B}{(T - 9.6) Oe} \quad (4)$$

Соответствие закону Кюри-Вейсса является лишь следствием того, что ионы гольмия в $HoFeO_3$ находятся в парамагнитном состоянии. А положительный знак в значении θ не должен вызывать удивления, т.к. в отличие от обычной магнитной восприимчивости, используемая в данной работе "антиферромагнитная восприимчивость" при асимптотическом продлении в область низких температур должна расходиться именно в собственной точке Нееля редкоземельной подсистемы, соответствующей антиферромагнитному упорядочению типа "с".

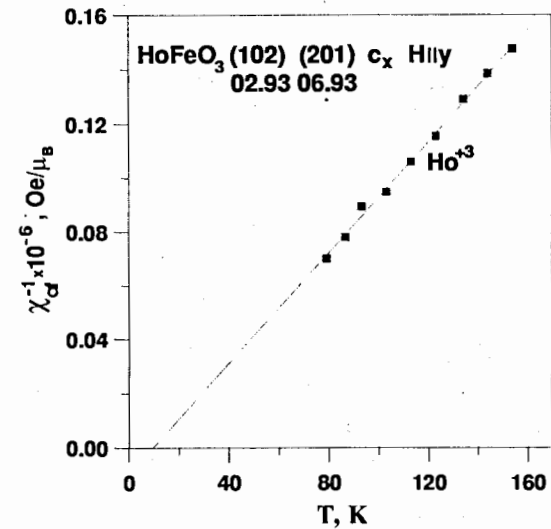


Рис.9. Температурная зависимость антиферромагнитной восприимчивости ионов Ho^{+3} .

Не следует ожидать совпадения полученного значения θ с известными значениями точки Нееля для Ho^{+3} (4.55 К^{/11/}, 6.5 К^{/12/}), т.к. эти значения соответствуют низкотемпературной конфигурации G_2 , в которой взаимодействия, ответственные за антиферромагнитное упорядочение гольмиевой подсистемы, несколько иные, чем в состоянии G_4 . К тому же, авторы данной работы не ручаются за высокую точность полученного значения θ , имея в виду, в частности, сложность выделения линейных участков на рис.5 и 6. Кроме того, при экстраполяции в область низких температур следовало бы учитывать тепловое расширение кристалла, которое в данной работе не принималось во внимание.

Литература

1. I. Grambow, P. Kronauer, J. Schneider, M. Shuchert, Z. Naturforsch., v.22a, 828, 1967.
2. J. Mareschal, J. Sivardiere, J. Phys., v.30, 967, 1969.
3. G. Gorodetsky, D. Treves, Phys. Rev., v.135A, 97, 1964.
4. T. Yamaguchi, J. Phys. Chem. Solids, v.35, 479, 1974.
5. Б.Н. Ананьев и др., ОИЯИ, P13-89-517, Дубна, 1989.
6. Г.А. Вареник и др., ОИЯИ, P13-89-518, Дубна, 1989.
7. В.В. Нитц, ОИЯИ, 3-5372, Дубна, 1970.
8. Д. Георгиев, К. Крежов, В.В. Нитц, ОИЯИ, P14-94-430, Дубна, 1994.
9. В.П.Плахтий, Ю.П.Черненко, Ж.Швейцер, М.Н.Бедризова, ЖЭТФ, т.80, вып.6, 2465, 1981.
10. R. Nathans, S.J. Pickart, H.A. Alperin, Bull. Amer. Soc., V.5, 455, 1960.
11. E.F. Bertaut et al., Proc. Intern. Conf. Magnetism, Nottingham, 1964, p. 275

Рукопись поступила в издательский отдел
1 ноября 1994 года.