

МАГНИТОРЕЗОНАНСНЫЕ И ТЕПЛОФИЗИЧЕСКИЕ ИССЛЕДОВАНИЯ МАГНИТНОЙ ФАЗОВОЙ ДИАГРАММЫ МОНОКРИСТАЛЛА $GdFe_{2.1}Ga_{0.9}(BO_3)_4$

А. И. Панкрац, Г. А. Петраковский, В. И. Тугаринов, А. В. Карташев, В. Л. Темеров*

*Институт физики им. Л. В. Киренского Сибирского отделения Российской академии наук
660036, Красноярск, Россия*

Поступила в редакцию 30 декабря 2010 г.

Исследованы антиферромагнитный резонанс, теплоемкость, магнитные свойства и магнитная фазовая диаграмма кристалла $GdFe_3(BO_3)_4$, в котором часть ионов железа была замещена диамагнитными ионами галлия. Обнаружено, что температура Нееля при диамагнитном замещении уменьшилась до 17 К по сравнению с 38 К в незамещенном кристалле. Из полевых зависимостей намагниченности и резонансных измерений сделана оценка эффективных полей обмена и анизотропии для $GdFe_{2.1}Ga_{0.9}(BO_3)_4$. По данным магнитных и резонансных измерений построена магнитная фазовая диаграмма кристалла. В $GdFe_{2.1}Ga_{0.9}(BO_3)_4$ спонтанная переориентация отсутствует, и в отсутствие магнитного поля кристалл остается легкоосным во всей области магнитного упорядочения. Обнаружено увеличение критического поля ориентационного перехода в индуцированное легкоплоскостное состояние в магнитном поле вдоль тригональной оси по сравнению с аналогичной величиной в незамещенном кристалле.

1. ВВЕДЕНИЕ

Соединения боратов с общей формулой $RA_3(BO_3)_4$ (R^{3+} — редкоземельный ион или Y^{3+} и $A = Al, Ga, Sc, Cr, Fe$) привлекли внимание как среды для нелинейной оптики и лазерной техники [1–3]. Они кристаллизуются в тригональной сингонии и имеют структуру минерала хантита с высокотемпературной пространственной группой $R32$, которая для кристаллов с малым ионным радиусом R^{3+} при понижении температуры переходит в $P3_121$. В кристаллах с $A = Fe$ и $R = Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er$ обнаружены свойства мультиферроиков [4–7]. Магнитоэлектрический эффект возможен только при определенной магнитной структуре, которая в данном случае определяется сосуществованием двух магнитных подсистем ионов железа и редкоземельных ионов, связанных обменным взаимодействием. Этим стимулируется интерес к исследованию зависимости магнитных свойств редкоземельных ферроборатов от иона R^{3+} .

Исследования АФМР [8] и нейтронные исследования магнитной структуры [9] в $YFe_3(BO_3)_4$ показывают, что подсистема железа представляет собой

легкоплоскостной антиферромагнетик с температурой Нееля $T_N = 38$ К. В редкоземельной подсистеме обменное взаимодействие слабо, однако благодаря взаимодействию редкоземельных ионов с ионами Fe^{3+} магнитный порядок в обеих подсистемах наступает одновременно [8, 10]. Энергия анизотропии редкоземельной подсистемы может иметь тот же знак, что и железная, а может быть легкоосной, что обуславливает возможность реализации ряда магнитных структур кристаллов в зависимости от иона R^{3+} . Особенно интересны в этом плане ферробораты с $R = Gd, Ho$. В ферроборате гадолиния $GdFe_3(BO_3)_4$ вклады редкоземельной и железной подсистем имеют противоположные знаки и близки по абсолютной величине [8, 11]. Поэтому магнитная структура этого кристалла очень чувствительна к действию таких факторов, как температура, магнитное поле, замещение ионами другого сорта в обеих подсистемах, изменяющих соотношение вкладов в полную анизотропию. Различие их температурных зависимостей (данные АФМР [8]) приводит к спонтанному спин-переориентационному переходу в $GdFe_3(BO_3)_4$ с $T_{SR} = 10$ К. Магнитные фазовые диаграммы этого кристалла для магнитных полей, ориентированных вдоль оси кристалла и в

*E-mail: vit@iph.krasn.ru

базисной плоскости, построены по данным АФМР [11], магнитным [12], магнитоотрицательным измерениям и магнитоэлектрическим измерениям [4]. В $\text{HoFe}_3(\text{VO}_3)_4$ спонтанный ориентационный переход происходит при $T_{SR} = 4.7$ К [9], магнитные фазовые диаграммы приведены в работе [13].

Магнитные свойства частично и полностью замещенной диамагнитным ионом Y^{3+} гадолиниевой подсистемы в $\text{GdFe}_3(\text{VO}_3)_4$ были изучены в работе [8]. Представляет интерес изучение влияния замещения диамагнитной примесью подсистемы железа, поскольку в этом случае меняется не только вклад этой подсистемы в магнитную анизотропию кристалла, но и обменное взаимодействие, которое принципиально важно для установления магнитного порядка в кристалле. В работе [14] были исследованы статические магнитные свойства галлий-замещенного ферробората гадолиния $\text{GdFe}_{0.9}\text{Ga}_{2.1}(\text{VO}_3)_4$. На температурной зависимости намагниченности в области $T = 15$ К была обнаружена аномалия, природа которой не была объяснена. В данной работе исследованы магнитный резонанс и теплоемкость соединения $\text{GdFe}_{2.1}\text{Ga}_{0.9}(\text{VO}_3)_4$. Вблизи температуры 17 К обнаружена аномалия теплоемкости, вызванная переходом в магнитоупорядоченное состояние диамагнитно разбавленной подсистемы железа. Установлено, что во всей области магнитного порядка кристалл остается легкоосным. В магнитном поле, приложенном вдоль тригональной оси кристалла, обнаружен переход в индуцированное легкоплоскостное состояние, построена фазовая диаграмма для этой ориентации поля. Сделаны оценки эффективных полей магнитной анизотропии и обменного взаимодействия для разбавленной подсистемы железа.

2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

Монокристаллы $\text{GdFe}_{2.1}\text{Ga}_{0.9}(\text{VO}_3)_4$ были выращены по технологии, описанной в работе [15]. Измерения спектров АФМР проводились на образцах размером до $3 \times 3 \times 3$ мм³ с хорошей огранкой. Грань в виде равностороннего треугольника, совпадающая с базисной плоскостью кристалла, использовалась для ориентирования кристаллов. Резонансные свойства изучены в диапазоне частот 25–80 ГГц в интервале температур 4.2–60 К в магнитных полях $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$ и $\mathbf{H} \perp \mathbf{c}$ на спектрометре магнитного резонанса с импульсным магнитным полем [16]. Измерения теплоемкости были выполнены на монокристаллическом образце размером $2 \times 2 \times 1$ мм³ на РРМС-8.

При температуре 4.2 К для магнитного по-

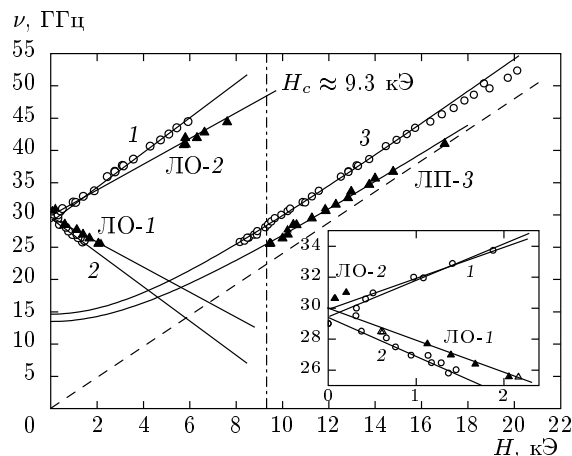


Рис. 1. Частотно-полевые зависимости АФМР при $T = 4.2$ К при $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$: кривые 1, 2, 3 — ветви для $\text{GdFe}_3(\text{VO}_3)_4$ [11], ЛО-1, ЛО-2, ЛП-3 — ветви для $\text{GdFe}_{2.1}\text{Ga}_{0.9}(\text{VO}_3)_4$. Штриховая линия — ветвь парамагнитного резонанса, штрихпунктирная — критическое поле в $\text{GdFe}_{2.1}\text{Ga}_{0.9}(\text{VO}_3)_4$. На вставке: ветви 1, 2 и ЛО-1, ЛО-2 в области начального расщепления спектра

ля, ориентированного вдоль тригональной оси, в $\text{GdFe}_{0.9}\text{Ga}_{2.1}(\text{VO}_3)_4$ наблюдаются те же ветви колебаний (рис. 1), что и в незамещенном $\text{GdFe}_3(\text{VO}_3)_4$ [11]. Для сравнения частотно-полевые зависимости спектров АФМР в $\text{GdFe}_3(\text{VO}_3)_4$ также приведены на рис. 1. В области малых полей две ветви колебаний ЛО-1 и ЛО-2 с линейной зависимостью частот от магнитного поля являются колебаниями легкоосного антиферромагнетика. При достижении некоторого критического значения поля H_c , показанного на рис. 1 штрихпунктирной линией, резонансные ветви ЛО-1 и ЛО-2 пропадают, и вместо них в полях $H > H_c$ наблюдается единственная ветвь колебаний со щелью, значительно изменившейся по сравнению со щелью в незамещенном кристалле. Эту ветвь колебаний нельзя рассматривать как спин-флоп-моду легкоосного антиферромагнетика, так как частота этой моды не равна нулю в поле перехода и сама ветвь располагается не ниже линейной частотно-полевой зависимости для парамагнитного резонанса (штриховая линия на рисунке), как должно быть в случае спин-флоп-резонанса, а выше нее. Такое поведение резонанса, характерное для области полей выше критических как в чистом, так и в диамагнитно разбавленном гадолиниевом ферроборате, дает эмпирические основания идентифицировать эту резонансную моду как колебания легкоплоскостного

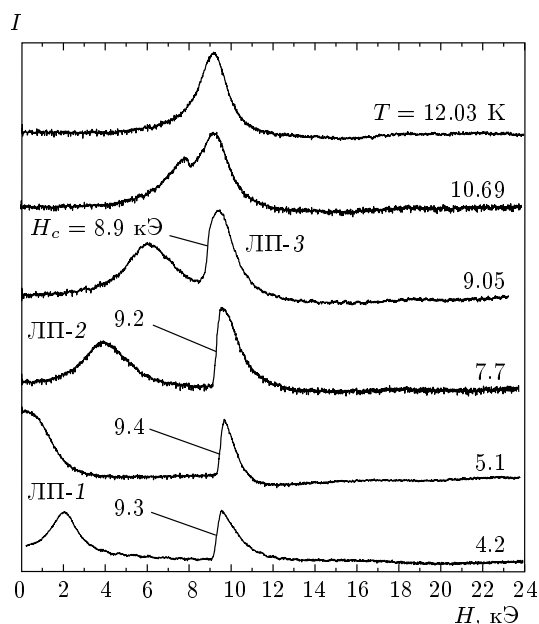


Рис. 2. Температурная эволюция резонансного спектра в $\text{GdFe}_{2.1}\text{Ga}_{0.9}(\text{VO}_3)_4$ при $\nu = 25.56$ ГГц, $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$

антиферромагнетика с некоторым новым значением эффективного поля анизотропии.

Таким образом, фазовый переход при $H = H_c$ можно рассматривать как спин-переориентационный переход из легкоосного в индуцированное полем легкоплоскостное состояние.

Критическое поле спин-переориентационного перехода «легкая ось–легкая плоскость» в результате разбавления галлием при $T = 4.2$ К выросло с $H_c = 6$ кЭ до $H_c = 9.3$ кЭ. Выше этого поля, как видно на рис. 2, появляется новая ветвь колебаний ЛП-3 (рис. 1). Эта ветвь близка к ветви колебаний в индуцированном легкоплоскостном состоянии в $\text{GdFe}_3(\text{VO}_3)_4$ с практически не изменившейся величиной начального расщепления.

На рис. 2 приведены изменения с температурой спектров АФМР в $\text{GdFe}_{2.1}\text{Ga}_{0.9}(\text{VO}_3)_4$ в интервале температур 4.2–12 К на частоте 25.56 ГГц в магнитном поле $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$. При температуре 4.2 К наблюдаются две линии резонансного поглощения. Обозначения рядом с линиями соответствуют обозначениям на частотно-полевой зависимости на рис. 1. Величина резонансного поля линии ЛО-1 с ростом температуры плавно уменьшается до нуля при $T \approx 5$ К (рис. 3). Резонансное поле линии ЛО-2, которая появляется выше $T = 5$ К, плавно растет почти до величины резонансного поля парамагнитного состояния (рис. 3). Линия ЛП-3 при низких температурах прописывает-

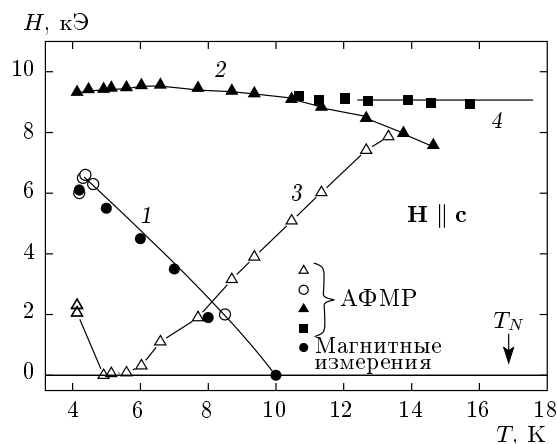


Рис. 3. Температурные зависимости критических полей для $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$: кривая 1 — в $\text{GdFe}_3(\text{VO}_3)_4$ [11], 2 — в $\text{GdFe}_{2.1}\text{Ga}_{0.9}(\text{VO}_3)_4$. Температурные зависимости резонансных полей в $\text{GdFe}_{2.1}\text{Ga}_{0.9}(\text{VO}_3)_4$: кривая 3 — ветви ЛО-1 и ЛО-2; кривая 4 — ветвь ЛП-3. Данные получены при $\nu = 25.56$ ГГц

ся не полностью, так как соответствующее ей поглощение обрывается в критическом поле H_c , из-за чего определить величину резонансного поля при этих температурах затруднительно. Эта особенность в виде обрыва линии для галлий-замещенного кристалла наблюдается вплоть до температуры 12 К благодаря большой ширине линии резонансного поглощения ($\Delta H \approx 1.5$ кЭ при $T = 4.2$ К) и очень слабой зависимости поля перехода H_c от температуры. Из характера температурной зависимости резонансных полей линий ЛО-1, ЛО-2, ЛП-3 можно сделать вывод о том, что с ростом температуры величина щели монотонно уменьшается как для легкоосного, так и для легкоплоскостного состояний.

На основании анализа спектров магнитного резонанса были построены температурные зависимости величины резонансного поля для ветвей ЛО-1, ЛО-2, ЛП-3 и критического поля перехода «легкая ось–легкая плоскость» в Ga-замещенном $\text{GdFe}_3(\text{VO}_3)_4$ для $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$ (рис. 3). Здесь же для сравнения приведены данные для незамещенного $\text{GdFe}_3(\text{VO}_3)_4$, взятые из работы [11]. Видно, что для этого направления магнитного поля критическое поле перехода в индуцированное легкоплоскостное состояние увеличилось по сравнению с незамещенным гадолиниевым ферроборатом. Кроме того, фазовая граница в $\text{GdFe}_{2.1}\text{Ga}_{0.9}(\text{VO}_3)_4$ по сравнению с незамещенным кристаллом имеет очень слабую температурную зависимость, так что тенденции к спонтанному спин-переориентационному

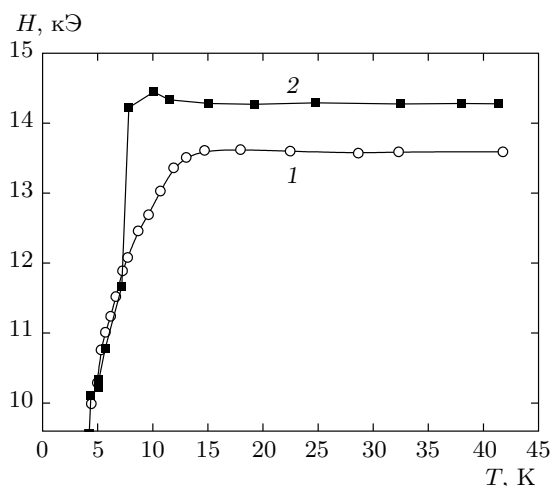


Рис. 4. Температурные зависимости резонансных полей в $GdFe_{2.1}Ga_{0.9}(BO_3)_4$ (1) и $GdFe_3(BO_3)_4$ [11] (2) соответственно при $\nu = 37.63$ ГГц и $\nu = 38.63$ ГГц, $\mathbf{H} \perp \mathbf{c}$

переходу в легкоплоскостное состояние в этом кристалле не обнаружено. Температурная зависимость резонансного поля в легкоосном состоянии (кривая 3), измеренная на частоте 25.56 ГГц, имеет вид, аналогичный зависимости для незамещенного ферробората гадолиния [11]. Зависимость резонансного поля от частоты в индуцированном поле легкоплоскостном состоянии для $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$ вблизи температуры перехода близка к зависимости для ЭПР, поэтому на температурной зависимости резонансных параметров для этой ветви колебаний (линия 4, рис. 3) не наблюдается никаких особенностей, кроме уширения линии при переходе в парамагнитное состояние.

Температурная зависимость резонансного поля $GdFe_{2.1}Ga_{0.9}(BO_3)_4$ для магнитного поля $\mathbf{H} \perp \mathbf{c}$ приведена на рис. 4. На этом же рисунке для сравнения представлена температурная зависимость резонансного поля в $GdFe_3(BO_3)_4$, снятая на близкой частоте [11]. Видно, что в $GdFe_3(BO_3)_4$ наблюдается скачок резонансного поля, вызванный переходом в индуцированное легкоплоскостное состояние. Для $GdFe_{2.1}Ga_{0.9}(BO_3)_4$ ситуация иная: скачок не наблюдается, резонансное поле плавно выходит на плато при $T \approx 16$ К и не меняется с дальнейшим повышением температуры.

На рис. 5 изображены зависимости теплоемкости $GdFe_{2.1}Ga_{0.9}(BO_3)_4$ от температуры для различных значений магнитного поля. На рисунке видно, что аномалия теплоемкости при температуре примерно

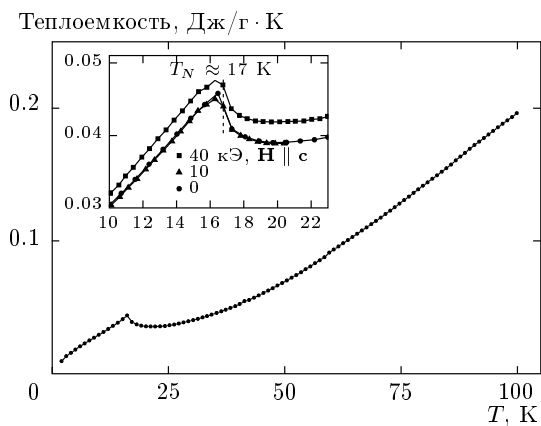


Рис. 5. Температурная зависимость теплоемкости в $GdFe_{2.1}Ga_{0.9}(BO_3)_4$. На вставке: температурные зависимости теплоемкости в области перехода для различных направлений и величин магнитного поля

17 К имеет типичный вид λ -пика и практически не зависит от величины и направления магнитного поля.

3. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Наличие только одного λ -пика в диапазоне температур до 300 К позволяет с уверенностью говорить о том, что эта температура 17 К является температурой Нееля для данного соединения. Температурная зависимость теплоемкости чистого $GdFe_3(BO_3)_4$ приведена в работе [17], сравнение показывает, что температура Нееля при разбавлении подсистемы железа снизилась с 38 К более, чем в два раза. Этот вывод подтверждается измерениями намагниченности, в которых наблюдается аномалия при температуре близкой к 15 К, никаких аномалий выше этой температуры не обнаружено [14]. Температурные зависимости резонансных полей также показывают вблизи 16 К выход на плато, соответствующее линии ЭПР. Уменьшение температуры Нееля вполне закономерно, оно обусловлено уменьшением обменного поля для подсистемы железа при диамагнитном разбавлении. Подобная ситуация наблюдалась при диамагнитном разбавлении в других кристаллах (например, в $Rb_2Mn_xCd_{1-x}Cl_4$ температура Нееля при разбавлении до $x = 0.7$ снизилась с 56 К до 10.7 К [18]).

Построенная по данным теплоемкости, резонансных и магнитных измерений магнитная фазовая

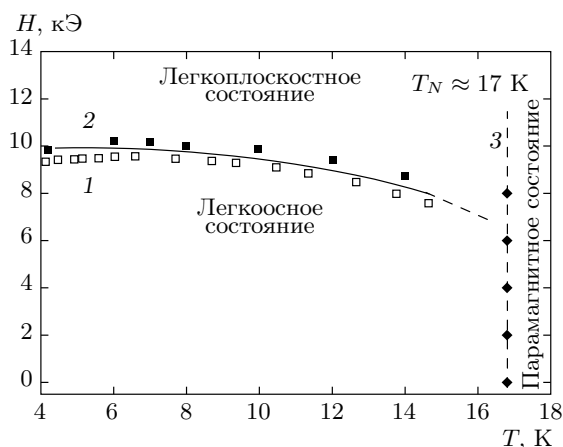


Рис. 6. Магнитная фазовая диаграмма в $\text{GdFe}_{2.1}\text{Ga}_{0.9}(\text{BO}_3)_4$, построенная по данным АФМР (1), статических магнитных измерений (2) и теплоемкости (3)

диаграмма (рис. 6) в $\text{GdFe}_{2.1}\text{Ga}_{0.9}(\text{BO}_3)_4$ для случая $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$ содержит три состояния: парамагнитное выше $T_N = 17$ К, легкоосное и индуцированное легкоплоскостное соответственно ниже и выше фазовой границы. Таким образом, разбавление не только снизило температуру Нееля, но и существенно изменило фазовую диаграмму $\text{GdFe}_3(\text{BO}_3)_4$. Основным отличием является отсутствие спонтанного перехода «легкая ось–легкая плоскость», тогда как в чистом ферроборате гадолиния спонтанный переход наблюдается при $T = 10$ К (рис. 3). Фазовая граница между индуцированным легкоплоскостным и легкоосным состояниями расположена выше (при $T = 4.2$ К $H_c = 10$ кЭ в $\text{GdFe}_{2.1}\text{Ga}_{0.9}(\text{BO}_3)_4$ и $H_c = 6$ кЭ в $\text{GdFe}_3(\text{BO}_3)_4$) и в отличие от $\text{GdFe}_3(\text{BO}_3)_4$ имеет очень слабую зависимость от температуры. В разбавленном кристалле для магнитного поля $\mathbf{H} \perp \mathbf{c}$ индуцированное легкоплоскостное состояние не обнаружено в полях вплоть до 60 кЭ. Все эти факты говорят о сильном изменении внутренних эффективных полей обмена и анизотропии, оценка которых может быть сделана, исходя из анализа данных магнитного резонанса и намагниченности.

Следует отметить, что на данный момент последовательная модель описания индуцированных полем спин-переориентационных переходов в гадолиниевом ферроборате (как в чистом, так и в диамагнитно разбавленном) отсутствует. Поэтому приведенная здесь идентификация состояний фазовой диаграммы основана на эмпирическом подходе. Как отмечалось выше, полная магнитная анизотропия

кристалла $\text{GdFe}_3(\text{BO}_3)_4$ определяется конкуренцией близких по абсолютной величине и имеющих противоположные знаки вкладов подсистем ионов Fe^{3+} и Gd^{3+} . В этом случае даже незначительное изменение одного из вкладов приводит к существенному изменению их баланса, поэтому магнитная структура гадолиниевого ферробората весьма чувствительна и к влиянию магнитного поля, и к диамагнитному замещению в одной из подсистем. Похожая ситуация наблюдается в ферроборате гольмия, в котором конкуренция близких по величине вкладов также приводит к спонтанному переходу между легкоосным и легкоплоскостным состояниями при $T_{SR} = 4.7$ К и зависимости температуры перехода от магнитного поля, приложенного вдоль оси кристалла и в базисной плоскости [9, 13]. В работе [19] в рамках модели кристаллического поля для иона Ho^{3+} и в приближении молекулярного поля удалось количественно описать как спонтанный, так и индуцированный полем спин-переориентационные переходы между легкоосным и легкоплоскостным состояниями в $\text{HoFe}_3(\text{BO}_3)_4$. Проведенные в работе расчеты показывают, что в рамках рассмотренной модели магнитоанизотропный вклад подсистемы гольмия зависит от приложенного магнитного поля, что и приводит к изменению знака полной анизотропии кристалла в критическом поле. По-видимому, аналогичный механизм спин-переориентационного перехода работает и в ферроборате гадолиния.

Магнитный резонанс в гадолиниевом ферроборате в области магнитного порядка определяется связанными колебаниями магнитных моментов ионов Fe^{3+} и магнитных моментов ионов Gd^{3+} , поляризованных обменным взаимодействием с упорядоченной подсистемой железа. Однако собственные частоты железной и гадолиниевой подсистем сильно разнесены (по данным работы [20] собственные частоты подсистемы гадолиния лежат в диапазоне 420–510 ГГц), поэтому наблюдаемый в нашем случае резонансный отклик определяется преимущественно подсистемой железа, и вполне допустимо для описания ветвей колебаний использовать выражения для классического двухподрешеточного антиферромагнетика [21], как было сделано в работе [11]. При этом роль редкоземельной подсистемы сводится к тому, что ее вклад изменяет суммарную величину эффективного поля магнитной анизотропии. Ветви частотно-полевой зависимости (рис. 1) в магнитном поле $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$ ЛО-1 и ЛО-2, наблюдаемые в полях меньше критического ($H < H_c$), хорошо описываются выражениями для антиферромагнетика с легкой осью

анизотропии:

$$\frac{\nu_{1,2}}{\gamma_{\parallel}} = \sqrt{(2H_E + H_A)H_A} \pm H_0 \left(1 - \frac{\chi_{\parallel}}{2\chi_{\perp}}\right). \quad (1)$$

Что касается ветви колебаний ЛП-3 в полях выше критических, то в соответствии с указанными выше эмпирическими основаниями эти колебания аппроксимированы формулой для легкоплоскостного антиферромагнетика:

$$\left(\frac{\nu_3}{\gamma_{\parallel}}\right)^2 = 2H_E|H'_A| + H_0^2. \quad (2)$$

В формулах использованы следующие обозначения: H_0 — напряженность внешнего магнитного поля, H_A и H'_A — эффективные поля магнитной анизотропии относительно оси \mathbf{c} кристалла, имеющие разные знаки и величину в легкоосном и индуцированном поле легкоплоскостном состоянии, H_E — обменное поле, γ — гиромагнитное отношение, χ_{\parallel} и χ_{\perp} — магнитные восприимчивости вдоль главной оси и в базисной плоскости. На рис. 1 сплошными линиями показаны теоретические зависимости (1) для ветвей колебаний ЛО-1 и ЛО-2 со следующими параметрами: $\nu_c = 30.0$ ГГц, $\gamma_{\parallel}(1 - \chi_{\parallel}/2\chi_{\perp}) = 2.0$ МГц/Э. Если воспользоваться значением $\gamma_{\parallel} = 2.808$ МГц/Э, полученным из ЭПР при комнатной температуре, то отношение восприимчивостей $\chi_{\parallel}/(2\chi_{\perp}) = 0.29$ (это близко к экспериментальному значению, равному примерно 0.3, по данным [14]), что существенно выше, чем в незамещенном $\text{GdFe}_3(\text{VO}_3)_4$, где это отношение равно 0.083. Как большое различие величин $\chi_{\parallel}/(2\chi_{\perp})$, так и уменьшение температуры Нееля связаны с уменьшением обменного поля при диамагнитном разбавлении.

В легкоосном состоянии начальное расщепление спектра ν_c в $\text{GdFe}_{2.1}\text{Ga}_{0.9}(\text{VO}_3)_4$ при температуре 4.2 К по сравнению с ферроборатом гадолиния увеличилось на незначительную величину, около 1 ГГц. Этому можно дать следующее качественное объяснение. В легкоосном состоянии вклад подсистемы гадолиния в суммарную анизотропию кристалла превышает по абсолютной величине вклад подсистемы железа, а частичное замещение ионов железа диамагнитными ионами Ga^{3+} дополнительно уменьшает этот вклад, что приводит к увеличению суммарного поля анизотропии. С другой стороны, диамагнитное замещение подсистемы железа уменьшает обменное поле. Конкуренция этих двух факторов приводит к тому, что величина энергетической щели при разбавлении осталась практически неизменной, однако температурная зависимость щели изме-

нилась. Сравним температурные зависимости резонансного поля на рис. 4 в чистом и Ga-замещенном $\text{GdFe}_3(\text{VO}_3)_4$ для ориентации поля $\mathbf{H} \perp \mathbf{c}$. Для незамещенного $\text{GdFe}_3(\text{VO}_3)_4$ на температурной зависимости резонансного поля наблюдается скачок в области 8 К, соответствующий переходу из легкоосного в легкоплоскостное состояние [11], после чего резонансное поле не меняется, так как частотно-полевые зависимости для этой ветви АФМР и ЭПР совпадают. В $\text{GdFe}_{2.1}\text{Ga}_{0.9}(\text{VO}_3)_4$ в диапазоне температур 4.2–16 К наблюдается плавный рост резонансного поля до значения, соответствующего ЭПР. Таким образом, энергетическая щель плавно уменьшается с ростом температуры, достигая нулевого значения при температуре Нееля. Отсутствие скачка резонансного поля говорит о том, что в кристалле $\text{GdFe}_{2.1}\text{Ga}_{0.9}(\text{VO}_3)_4$ в магнитном поле $\mathbf{H} \perp \mathbf{c}$ вплоть до температуры Нееля не наблюдается переход в индуцированное легкоплоскостное состояние, по крайней мере, в магнитных полях до 60 кЭ. Слабая температурная зависимость критического поля перехода в индуцированное состояние при $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$ вплоть до температуры Нееля говорит об отсутствии спонтанного перехода «легкая ось–легкая плоскость», что подтверждается данными магнитных измерений [14].

Оценим величины полей анизотропии и обмена в $\text{GdFe}_{2.1}\text{Ga}_{0.9}(\text{VO}_3)_4$ при температуре 4.2 К, используя данные магнитного резонанса и статических магнитных измерений [14]. Обменное поле для подсистемы железа можно получить из выражения для магнитной восприимчивости χ_{\perp} антиферромагнетика

$$\chi_{\perp} = \frac{M_s}{2H_E}. \quad (3)$$

Для определения величины восприимчивости диамагнитно-разбавленной подсистемы железа в $\text{GdFe}_{2.1}\text{Ga}_{0.9}(\text{VO}_3)_4$ использованы данные статических магнитных измерений в кристаллах $\text{GdFe}_3(\text{VO}_3)_4$ [14] и $\text{YFe}_3(\text{VO}_3)_4$ [6]. Общая намагниченность гадолиниевого ферробората (кривая 2 на рис. 7) складывается из намагниченностей железной и гадолиниевой подсистем $\mu_{\text{FeGd}} = \mu_{\text{Gd}} + \mu_{\text{Fe}}$.

Полевая зависимость намагниченности подсистемы железа $\mu_{\text{Fe}}(H)$, измеренная в $\text{YFe}_3(\text{VO}_3)_4$ [9], имеет существенно меньший наклон (рис. 7, кривая 1), чем общая намагниченность в $\text{GdFe}_3(\text{VO}_3)_4$, что говорит о существенном вкладе гадолиниевой подсистемы $\mu_{\text{Gd}}(H)$. Величина обменного поля, вычисленная из $\mu_{\text{Fe}}(H)$, равна $H_E^{\text{Fe}} \approx 700$ кЭ, значение магнитной восприимчивости для подсистемы железа равно $\chi_{\perp}^{\text{Fe}} \approx 0.107 \cdot 10^{-3}$ см³/г [6].

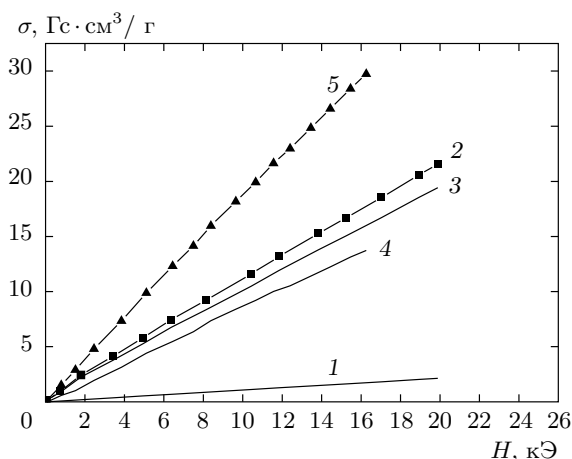


Рис. 7. Полевая зависимость намагниченности в $\text{GdFe}_3(\text{BO}_3)_4$ (2), $\text{YFe}_3(\text{BO}_3)_4$ (1), $\text{GdFe}_{2.1}\text{Ga}_{0.9}(\text{BO}_3)_4$ (5) и расчетный вклад ионов Fe^{3+} (4) и Gd^{3+} (3) в общую намагниченность в $\text{GdFe}_{2.1}\text{Ga}_{0.9}(\text{BO}_3)_4$

С учетом этого значения из полевой зависимости намагниченности $\text{GdFe}_3(\text{BO}_3)_4$ получаем магнитную восприимчивость для подсистемы гадолиния $\chi_{\perp}^{\text{Gd}} \approx 0.96 \cdot 10^{-3} \text{ см}^3/\text{г}$, полевая зависимость гадолиниевой подсистемы также приведена на рисунке. Считая, что в $\text{GdFe}_{2.1}\text{Ga}_{0.9}(\text{BO}_3)_4$ вклад этой подсистемы $\mu_{\text{Gd}}(H)$ не изменяется, из полной намагниченности этого соединения (кривая 5 на рис. 7) [13] получим полевую зависимость намагниченности разбавленной подсистемы железа $\mu_{\text{FeGa}}(H)$ (кривая 4 на рис. 7). Соответствующее ей значение магнитной восприимчивости равно $\chi_{\perp}^{\text{FeGa}} \approx 0.85 \cdot 10^{-3} \text{ см}^3/\text{г}$, отсюда значение обменного поля $H_E^{\text{FeGa}} \approx 63 \text{ кЭ}$. При вычислении этого значения использована намагниченность насыщения подсистемы железа $M_s = 51 \text{ Гс}\cdot\text{см}^3/\text{г}$, рассчитанная с учетом диамагнитного замещения.

Из выражения для энергетической щели $\nu_c = 30 \text{ ГГц}$ получим значение поля анизотропии $H_A^{\text{total}} \approx 0.95 \text{ кЭ}$. Считая, что поле магнитной анизотропии подсистемы гадолиния $H_A^{\text{Gd}} = 1.52 \text{ кЭ}$ [11] осталось неизменным, получим магнитоанізотропный вклад диамагнитно разбавленной подсистемы железа $H_A^{\text{FeGa}} = -0.57 \text{ кЭ}$. По сравнению с $H_A^{\text{Gd}} = -1.44 \text{ кЭ}$ для незамещенного $\text{GdFe}_3(\text{BO}_3)_4$ поле анизотропии H_A^{FeGa} уменьшилось примерно в 2.5 раза. Отметим, что такой способ оценки полей обмена и анизотропии является приближенным, так как намагниченности подсистем железа и гадолиния здесь считаются независимыми, т. е. не учиты-

вается обменное взаимодействие между подсистемами. Тем не менее понятно, что диамагнитное разбавление подсистемы железа уменьшает ее вклад в магнитную анизотропию кристалла, что приводит, в свою очередь, к увеличению полной анизотропии кристалла, стабилизирующей легкоосное состояние. По-видимому, по этой причине кристалл $\text{GdFe}_{2.1}\text{Ga}_{0.9}(\text{BO}_3)_4$ остается легкоосным во всей области существования магнитного порядка, а критическое поле перехода в индуцированное легкоплоскостное состояние увеличилось почти вдвое по сравнению с незамещенным кристаллом.

4. ВЫВОДЫ

Исследование АФМР и теплоемкости в $\text{GdFe}_{2.1}\text{Ga}_{0.9}(\text{BO}_3)_4$ показывает, что диамагнитное разбавление ионов Fe^{3+} ионами галлия ведет не только к уменьшению обменного поля и снижению температуры Нееля, но и к существенному изменению магнитной фазовой диаграммы. По сравнению с незамещенным $\text{GdFe}_3(\text{BO}_3)_4$ критическое поле фазового перехода в индуцированное легкоплоскостное состояние для $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$ существенно увеличилось и имеет слабую зависимость от температуры. Фазовый переход в индуцированное легкоплоскостное состояние в магнитном поле, лежащем в базисной плоскости, не наблюдается, по крайней мере, в полях до 60 кЭ.

Температура Нееля, определенная из теплоемкости, равна 17 К, это значение подтверждается данными по магнитному резонансу и магнитными измерениями. Оценки показывают, что в результате диамагнитного разбавления обменное поле в подсистеме железа уменьшилось с 700 кЭ до 63 кЭ, а вклад этой подсистемы в магнитную анизотропию также уменьшился с 1.44 кЭ до 0.57 кЭ. Такое уменьшение магнитоанізотропного вклада подсистемы железа увеличило суммарное поле анизотропии кристалла, в результате этого в $\text{GdFe}_{2.1}\text{Ga}_{0.9}(\text{BO}_3)_4$ спонтанный переход в легкоплоскостное состояние отсутствует, и кристалл остается легкоосным во всей области существования магнитного порядка.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (грант № 10-02-00765а).

ЛИТЕРАТУРА

1. D. Jaque, J. Alloys. Comp. **323-324**, 204 (2001).

2. X. Chen, Z. Luo, D. Jaque et al., *J. Phys.: Cond. Matter* **13**, 1171 (2001).
3. А. М. Калашникова, В. В. Павлов, Р. В. Писарев и др., *Письма в ЖЭТФ* **80**, 339 (2004).
4. А. К. Звездин, С. С. Кротов, А. М. Кадомцева и др., *Письма в ЖЭТФ* **81**, 335 (2005).
5. А. К. Звездин, Г. П. Воробьев, А. М. Кадомцева и др., *Письма в ЖЭТФ* **83**, 600 (2006).
6. А. М. Кадомцева, Ю. Ф. Попов, Г. П. Воробьев и др., *Письма в ЖЭТФ* **87**, 45 (2007).
7. А. М. Кадомцева, Ю. Ф. Попов, Г. П. Воробьев и др., *ФНТ* **36**, 640 (2010).
8. А. И. Панкрац, Г. А. Петраковский, Л. Н. Безматерных, В. Л. Темеров, *ФТТ* **50**, 77 (2008).
9. C. Ritter, A. Vorotynov, A. Pankrats et al., *J. Phys.: Cond. Matter* **10**, 365209 (2008).
10. P. Fischer, V. Pomjakushin, D. Sheptyakov et al., *J. Phys.: Cond. Matter* **18**, 7975 (2006).
11. А. И. Панкрац, Г. А. Петраковский, Л. Н. Безматерных, О. А. Баюков, *ЖЭТФ* **126**, 887 (2004).
12. С. А. Харламова, С. Г. Овчинников, А. Д. Балаев и др., *ЖЭТФ* **128**, 1252 (2005).
13. A. Pankrats, G. Petrakovskii, A. Kartashev et al., *J. Phys.: Cond. Matter* **21**, 436001 (2009).
14. L. N. Bezmaternykh, S. G. Ovchinnikov, A. D. Balaev et al., *J. Magn. Magn. Mat.* **272**, E359 (2004).
15. L. N. Bezmaternykh, V. L. Temerov, I. A. Gudim, and N. A. Stolbovaya, *Cryst. Rep.* **50**, 97 (2005).
16. В. И. Тугаринов, И. Я. Макиевский, А. И. Панкрац, *ПТЭ* **3**, 1 (2004).
17. R. Z. Levitin, E. A. Popova, R. M. Chtsherbov et al., *Письма в ЖЭТФ* **79**, 531 (2004).
18. Г. А. Петраковский, Л. С. Емельянова, В. Г. Поздняков, В. К. Королев, *ФТТ* **26**, 1200 (1984).
19. А. А. Демидов, Д. В. Волков, *ФТТ* **53**, 926 (2011).
20. А. М. Kuzmenko, А. А. Mukhin, V. Yu. Ivanov et al., *Book of Abstract «MISM-2008»*, Moscow, June 20–25, 648 (2008).
21. А. Г. Гуревич, *Магнитный резонанс в ферритах и антиферромагнетиках*, Наука, Москва (1973).