ОБНАРУЖЕНИЕ ВКЛАДА ПРОДОЛЬНОЙ ВОСПРИИМЧИВОСТИ В ЧАСТОТУ МЯГКОЙ МАГНИТОРЕЗОНАНСНОЙ МОДЫ В SmFeO₃

В. Д. Бучельников*

Челябинский государственный университет 454021, Челябинск, Россия

Н. К. Даньшин^{**}, Ю. И. Непочатых

Донецкий физико-технический институт Национальной академии наук Украины 340114, Донецк, Украина

В. Г. Шавров***

Институт радиотехники и электроники Российской академии наук 101999, Москва, Россия

Поступила в редакцию 9 августа 2000 г.

Экспериментально и теоретически исследованы особенности поведения спектра мягкой магниторезонансной моды в ортоферрите самария в области индуцированного внешним магнитным полем ориентационного фазового перехода (ОФП) Г₄ ↔ Г₂₄. Эти особенности могут быть объяснены соотношением вкладов от взаимодействия подсистем ортоферрита и от учета продольной восприимчивости. Показано также, что вклад продольной восприимчивости в щель мягкой магниторезонансной моды в ортоферрите может быть существенным и в малых полях, т.е. в окрестности спонтанных ОФП. Это обусловлено тем, что спонтанные ОФП в ортоферрите самария происходят при высоких температурах, при которых продольная восприимчивость сравнима по величине с поперечной восприимчивостью.

PACS: 75.40.–s, 76.50.+g

1. ВВЕДЕНИЕ

Впервые наиболее убедительное доказательство вклада продольной восприимчивости в резонансные частоты упорядоченных магнетиков было получено в работе [1] на примере слабых ферромагнетиков YFeO₃ и DyFeO₃, относящихся к редкоземельным (P3) ортоферритам. Выбор этих соединений и методики обнаружения соответствующего эффекта не был случаен — статические свойства P3-ортоферритов к тому времени были достаточно полно и однозначно установлены в большом числе теоретических и экспериментальных работ и, в частности, обнаружены подходящие для поставленных целей магнитные фазовые переходы. Соответствующие сведения являются стартовыми представлениями, без которых невозможно ни построение теории динамических свойств этих магнетиков, ни правильная интерпретация соответствующих динамических экспериментов. Подробные сведения о кристаллической и магнитной структурах РЗ-ортоферритов, которыми пользовались и мы, содержатся в монографии [2], поэтому здесь ограничимся лишь краткой характеристикой объекта исследования. Большинство РЗ-ортоферритов содержат две магнитные подсистемы — железа и редкой земли (соответственно d- и f-подсистемы) — и относятся к пространственной группе D_{2h}^{16} . При температуре T_N , которая для разных РЗ-ортоферритов находится в пределах 600-700 К, происходит упорядочение спинов железа в слабо скошенную антиферромагнитную (слабоферромагнитную) структуру F_z , G_x , со-

^{*}E-mail: buche@cgu.chel.su

^{**}E-mail: danshin@host.dipt.donetsk.ua

^{****}E-mail: shavrov@mail.cplire.ru

ответствующую неприводимому представлению Г₄ указанной выше пространственной группы. Здесь *F_z*, *G_x* — компоненты векторов ферромагнетизма $\mathbf{F} = \mathbf{M}_1 + \mathbf{M}_2$ и антиферромагнетизма $\mathbf{G} = \mathbf{M}_1 - \mathbf{M}_2;$ **M**₁, **M**₂ — намагниченности подрешеток железа. Редкоземельная подсистема при этом находится в парамагнитном состоянии и только в некоторых из РЗ-ортоферритов с понижением температуры до T < 10 К происходит ее магнитное упорядочение за счет *f*-*f*-обменного взаимодействия. С другой стороны, благодаря f-d-взаимодействию РЗ-ионы испытывают упорядочение, наведенное подсистемой железа, и им в соответствие также могут быть поставлены собственные векторы ферро- и антиферромагнетизма. Строго говоря, в статике магнитная структура РЗ-ортоферритов описывается четырьмя d- и четырьмя f-подрешетками. Но для описания динамики акустических мод колебаний, которые исследуются в данной работе, указанные восемь подрешеток можно свести к четырем — двум d- и двум f-подрешеткам. Наличие в РЗ-ортоферритах двух взаимодействующих магнитных подсистем обусловливает реализацию в них различных ориентационных фазовых переходов (ОФП). Общая причина их появления — анизотропное и температурно-зависимое f-d-взаимодействие. При понижении температуры возрастает вклад РЗ-ионов в термодинамический потенциал магнитной подсистемы. А поскольку магнитные свойства РЗ-ионов отличаются исключительно высокой анизотропией, это приводит к спонтанному изменению ориентации намагниченности подрешеток железа относительно кристаллографических осей, т.е. к ОФП. Эти переходы в большинстве РЗ-ортоферритов заключаются в плавном повороте векторов F, G в ac-плоскости кристалла. В результате с понижением температуры магнетик спонтанно переходит из одной симметричной фазы, $\Gamma_4(F_z,G_x),$ в другую, $\Gamma_2(F_x,G_z),$ через угловую фазу $\Gamma_{24}(F_{x,z}, G_{x,z})$, т. е. через «каскад» переходов $\Gamma_4 \to \Gamma_{24} \to \Gamma_2$. При этом температуры *T*₁, *T*₂ — начала и окончания вращения векторов соответствуют точкам $O\Phi\Pi$ второго рода и являются индивидуальными для каждого конкретного РЗ-ортоферрита. При повышении температуры все происходит в обратном порядке. Отдельно переходы $\Gamma_4 \leftrightarrow \Gamma_{24}$ и $\Gamma_{24} \leftrightarrow \Gamma_2$ можно индуцировать внешним магнитным полем соответственно $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$ и $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}$.

В развитой авторами [1] теоретической модели показано, что наличие перехода типа «порядок-порядок» во внешнем магнитном поле **H** является необходимым условием обнаружения вклада продольной восприимчивости в динамику магнетиков. Этот вклад, согласно [1], приводит к появлению щели в спектре спиновых волн именно в точках индуцированных ОФП. В [1] был предложен наглядный и удобный для экспериментаторов тест, позволяющий судить как о наличии, так и о величине соответствующего эффекта — в первом приближении щель в спектре наблюдаемой на опыте размягчающейся магниторезонансной моды составляет

$$\nu_0 = \frac{\gamma}{2\pi} \left(\frac{\chi_{\parallel}}{\chi_{\perp}}\right)^{1/2} H_{tr}$$

где γ — гиромагнитное отношение, χ_{\parallel} , χ_{\perp} — продольная и поперечная восприимчивости, а H_{tr} — поле перехода. Отсюда следует, что активация мягкой моды возрастает как при повышении температуры T (так как $\chi_{\parallel}/\chi_{\perp} \propto T$), так и с увеличением внешнего магнитного поля. Одновременному возрастанию температуры и поля перехода T_{tr} и H_{tr} соответствует ОФП $\Gamma_2 \leftrightarrow \Gamma_{24}$, который и был выбран для апробации теории [1]. В данном случае внешние параметры оказывают однонаправленное воздействие на величину щели. В результате в экспериментах [1] она была обнаружена при достаточно высоких значениях как температуры, T > 100 K, так и поля, H > 60 кЭ.

Теория [1] не учитывала механизмов неизбежного возникновения энергетической щели в результате динамического взаимодействия различных колебательных подсистем магнетика: упорядоченной спиновой, парамагнитной, магнитоупругой, дипольной, а также взаимодействия колебаний данных подсистем с продольными колебаниями намагниченностей подрешеток РЗ-ортоферритов [3, 4]. Без учета взаимодействия различных подсистем магнетика в модели [1] щель ν_0 должна обращаться в нуль при $H, T \rightarrow 0$. Однако в эксперименте щель ν_0 никогда не обращается в нуль. Можно задаться вопросом какова роль продольной восприимчивости в формировании резонансной частоты при предельно малых значениях внешних параметров или, по крайней мере, одного из них. Практический интерес представляет случай $H \to 0$, так как в упорядоченных магнетиках наряду с ОФП, индуцированными полем, не менее часто встречаются и спонтанные $O\Phi\Pi$. Например, в РЗ-ортоферритах одинаковые по структуре ОФП можно инициировать как полем, так и температурой при *H* = 0. К настоящему времени различные ОФП без поля обнаружены в восьми из пятнадцати известных РЗ-ортоферритов. Фактически наша задача состояла в выяснении роли продольной восприимчивости в формировании динамики упорядоченного магнетика в окрестности спонтанных ОФП

и тем отличалась от работы [1], ориентированной на изучение ОФП, индуцированных полем. Как будет видно из дальнейшего, в разрешении этого вопроса ключевую роль среди РЗ-ортоферритов играет именно ортоферрит самария, SmFeO₃.

2. ПОСТАНОВКА ЗАДАЧИ. МЕТОДИКА И ТЕХНИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

При том что температуры начала и завершения переориентации T₁ и T₂ индивидуальны и существенно различны для разных ортоферритов, температуры упорядочения ионов железа T_N во всех РЗ-ортоферритах практически одинаковы (в $SmFeO_3 T_N \approx 600$ K). Это дает уникальную возможность, присущую только РЗ-ортоферритам, подобрать последовательный ряд соединений одного и того же класса, с одинаковыми по структуре ОФП, но с различающимися более чем на порядок температурами спонтанной переориентации. По понятным причинам апробацию обсуждаемых эффектов корректнее проводить на последовательном ряде именно однотипных магнетиков, чем, например, на замещенных или изоморфных соединениях. Такой ряд удобно характеризовать безразмерной относительной температурой спонтанной переориентации $au_{SR} = T_{SR}/T_N$, где $T_{SR} = (T_1 + T_2)/2$ [4,5]. Тогда все РЗ-ортоферриты можно последовательно расположить между двумя крайними значениями этого параметра: $\tau_{SR} = 0$ и $\tau_{SR} = 1$. Эти значения τ_{SR} отвечают таким же предельным значениям отношения $\chi_{\parallel}/\chi_{\perp} \approx 0$ и $\chi_{\parallel}/\chi_{\perp} = 1$ соответственно при T = 0 К и $T = T_N$.

Если иметь в виду весь набор РЗ-ортоферритов, то возникают, по крайней мере, два вопроса. Во-первых, во всех ли, а если нет, то в каких, РЗ-ортоферритах продольная восприимчивость в пределе $H \rightarrow 0$ играет ощутимую роль в формировании частоты мягкой моды? Во-вторых, какова роль продольной восприимчивости в окрестности спонтанного ОФП $\Gamma_4(F_z, G_x) \leftrightarrow \Gamma_{24}(F_{x,z}, G_{x,z})$, где поле и температура перехода меняются при движении по линии данного ОФП второго рода в противоположных направлениях и, следовательно, дают противоположные вклады в эффекты, обусловленные продольной восприимчивостью?

О величине вклада продольной восприимчивости в динамику будем судить по значению производной $\partial \nu_0 / \partial H$ при $H \to 0$ и по связанной с ней (через фазовую диаграмму) производной $\partial \nu_0 / \partial T$ при $T \to T_{SR}$. Проведенные ранее измерения на ряде PЗ-ортоферритов RFeO₃ (R = Yb, Tm, Er) [6, 7]перекрыли диапазон $\tau_{SR} = 0.01 - 0.15$ и не обнаружили отличия от нуля указанных производных вплоть до полей 10 кЭ. Очевидно, это исключает возможность обнаружить обсуждаемые эффекты и в NdFeO₃, у которого $\tau_{SR} = 0.17$ [8]. Все остальные P3-ортоферриты (R = Tb, Dy, Ho u dp.), в которых реализуется спонтанная переориентация, за исключением SmFeO₃, имеют еще более низкие значения этого параметра. Самариевый ортоферрит — это единственный из РЗ-ортоферритов, в котором фаза Γ_2 существует при температуре выше комнатной, а τ_{SR} достигает значения приблизительно 0.8. Оценка по температурной зависимости $\chi_{\parallel}/\chi_{\perp}$, полученной в [1], показывает, что в SmFeO₃ это отношение равно примерно 0.7, т.е. наиболее близко к своему максимальному предельному значению $\chi_{\parallel}/\chi_{\perp} = 1$. Однако первоначально предпринимавшиеся попытки восстановления спектра мягкой магниторезонансной моды в SmFeO₃ традиционными методами не увенчались успехом из-за ряда как технических, так и физических причин, потребовавших дополнительных экспериментальных усилий.

Традиционные измерительные ячейки, приспособленные для низкотемпературных измерений, оказались непригодными для экспериментов с SmFeO₃, у которого температуры спонтанных ОФП T_1 , T_2 больше 400 К. Это потребовало разработки широкополосных волноводных ячеек с контролируемым подогревом, стабилизацией и протяжкой температуры в достаточно узком диапазоне.

Известно, что парамагнитная подсистема редкоземельных ионов РЗ-ортоферритов (*f*-подсистема) может вносить существенное затухание в колебания упорядоченных спинов *d*-подсистемы. При этом затухание возрастает по мере повышения температуры, и, следовательно, в SmFeO₃ оно может привести к существенному уширению магниторезонансных линий, а в конечном счете — к снижению проявления искомых эффектов. Это на самом деле оказалось основной трудностью в экспериментах с данным магнетиком. Для ее преодоления особое внимание было уделено качеству образца. В результате был выбран образец подходящего качества объемом около 1 мм³, трудно отождествляемый с какой-либо определенной геометрической формой.

Образец наклеивался *ас*-плоскостью в центре поршня, закорачивающего прямоугольный волновод с типом колебаний H_{10} . Для измерений был выбран «менее благоприятный» переход — $\Gamma_4(F_z, G_x) \leftrightarrow \Gamma_{24}(F_{x,z}, G_{x,z})$. Однако выбор этого ОФП позволял ответить на оба поставленных выше вопроса в эксперименте с одной установкой образца. Поскольку для максимального проявления линий поглощения оптимальной взаимной ориентацией векторов F и магнитной составляющей СВЧ-поля \mathbf{h} является $\mathbf{F} \perp \mathbf{h}$, вектор \mathbf{F} и ось \mathbf{c} направлялись вдоль узкого сечения волновода. Кроме того, в подобного рода измерениях принципиальное значение имеет точность ориентации поля по соответствующим осям кристалла. Указанный ОФП вызывается полем Н || с. В данном эксперименте достаточная точность ориентации Н по оси с составляла приблизительно 20 угловых минут и достигалась традиционным способом, основанным на сильной чувствительности спектра мягкой магниторезонансной моды к отклонению поля от осей кристалла в ас-плоскости [1].

Измерения проводились на использовавшемся во всех наших предыдущих экспериментах спектрометре прямого усиления, работающем в режиме отраженной мощности. Однако были предприняты специальные меры по повышению его чувствительности и разрешающей способности более чем на порядок. Основным звеном модернизации спектрометра был переход на модуляционную методику, в которой модулируется магнитное поле, но протяжка осуществляется по температуре. Внешнее магнитное поле в экспериментах оставалось постоянным, а его величина задавалась в каждом конкретном случае в качестве параметра. В результате в экспериментах записывалась производная от линии поглощения по температуре. В среднем полуширина резонансных линий по температуре за пределами непосредственной окрестности ОФП, составляющей примерно ±3% от T_{tr} , была не более 10 К.

Использование усовершенствованной методики позволило достигнуть практически той же точности измерений, которая имела место в подобных опытах с другими РЗ-ортоферритами [1, 6, 7]. Прежде всего это касается точности определения численных значений энергетической щели в точках перехода — в данных опытах их погрешность не превышала ±2.5 ГГц (при значениях щели 27–50 ГГц). Поскольку нашей конечной целью было не просто измерение величины щели, но установление ее зависимости от внешних параметров (поля и температуры), пределы изменения этих параметров должны были, во всяком случае, обеспечить приращение щели, существенно превышающее погрешность определения ее абсолютного значения. Из дальнейшего видно, что это требование было выполнено при изменении температуры в пределах 400-490 К и в полях до 12 кЭ.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТА

Анализируя всю совокупность резонансных экспериментов в окрестности индуцированных полем ОФП в РЗ-ортоферритах и изоморфном им слабом ферромагнетике Fe₃BO₆ [9, 10], мы обратили внимание на одну примечательную и важную в аспекте данной работы особенность спектра мягкой моды. Она заключается в том, что экспериментальные точки на температурных и полевых зависимостях резонансных частот мягкой моды очень хорошо ложатся на прямые линии по обе стороны от линии ОФП. Это при необходимости позволяет уверенно проводить линейную экстраполяцию полученных зависимостей. Такая же особенность наблюдается и в характере фазовых диаграмм Н-Т РЗ-ортоферритов: они также имеют вид прямых линий, во всяком случае при $H \to 0$.

На рис. 1 показаны примеры записей производных от линий поглощения по температуре, полученные в поле 6 кЭ на разных частотах. Левая линия на каждой записи относится к поглощению в фазе Γ_{24} , правая — в фазе Γ_4 . Кружками на записях показаны центры (максимумы) линий поглощения. По совокупности таких записей, полученных на большом числе частот излучения, восстанавливались температурно-полевые зависимости частот мягких магни-



Рис.1. Записи производных от сигнала поглощения по температуре в магнитном поле 6 кЭ на частотах $\nu = 68.22$ ГГц (1), 56.07 ГГц (2) и 47.4 ГГц (3); A — амплитуда производной от сигнала поглощения в условных единицах; о — положения максимума резонансного поглощения по температуре. Штриховыми линиями на записи 3 условно показаны участки резонансных линий, ненаблюдаемые в эксперименте (вследствие их интерференции вблизи точки ОФП)



Рис. 2. Температурные зависимости частот мягкой моды в точках завершения спиновой переориентации $\Gamma_{24}-\Gamma_4$ в SmFeO₃ в поле **H** || с величиной 4 кЭ (•) и 6 кЭ (**■**) и энергетической щели (**V**) при тех же условиях во внешнем поле H = 0.1 кЭ (1), 2.0 кЭ (2), 4.0 кЭ (3), 6.0 кЭ (4), 8.0 кЭ (5), 10.0 кЭ (6), 12.0 кЭ (7)

торезонансных мод. Как видно на рис. 1, температуры максимумов правой и левой линий поглощения сближаются по мере понижения частоты. Теоретически их совпадение происходит на частоте, которая и является энергетической щелью в спектре однородных спиновых волн. При этом температура максимума линии поглощения для этой частоты — это температура ОФП. Однако практически величину щели в SmFeO3 можно определить только путем указанной выше экстраполяции, так как сравнительно широкие резонансные линии при подходе к точке ОФП наползают одна на другую (см. запись 1 на рис. 1) и определение положения центров резонансных линий в таком случае становится проблематичным. Это не дает возможности прямого восстановления магниторезонансного спектра в непосредственной окрестности ОФП, хотя на самом деле ширина данной «недоступной» области относительно мала и составляет не более $\pm 2\%$ от T_{tr} .

На рис. 2 в качестве примера представлены температурно-полевые зависимости частот мягкой моды в окрестности индуцированного ОФП $\Gamma_4(F_z, G_x) \leftrightarrow \Gamma_{24}(F_{x,z}, G_{x,z})$ при двух заданных значениях внешнего поля — 4 и 6 кЭ. Такие же зависимости получены и при других значениях внешнего поля H: 0.1, 2, 8, 10, 12 кЭ. Видно, что и в данном опыте экспериментальные точки хорошо ложатся на прямые линии. Это позволяет достаточно уверенно проводить линейную экстраполяцию температурных зависимостей резонансных частот



Рис. 3. Фазовая H-T-диаграмма SmFeO₃ в поле Н || с

со стороны фаз $\Gamma_4(F_z,G_x)$ и $\Gamma_{24}(F_{x,z},G_{x,z})$ до их пересечения в точке перехода. Тогда в целом спектр мягкой моды приобретает вид «частотного клина», острие которого показывает на положение температуры индуцированного перехода T_{tr} (такой «клин» наблюдался во всех предыдущих измерениях подобного рода). Кроме T_{tr} положение точки пересечения однозначно определяет и абсолютное значение энергетической щели в спектре спиновых волн ν_0 в заданном внешнем поле. Обработка полученных таким образом значений энергетической щели с помощью метода наименьших квадратов показывает, что соответствующие точки лучше всего описываются линейной температурной зависимостью с наклоном $\partial \nu_0 / \partial T = -0.47 \ \Gamma \Gamma \mu / K$. На рис. 2 видно, что при понижении температуры в интервале 410–460 К щель ν_0 возрастает почти в два раза (приблизительно на 25 ГГц), что на порядок превышает абсолютную погрешность ее определения. Обратим внимание на то, что полученная здесь производная $\partial \nu_0 / \partial T$ отрицательна.

Фазовая H-T-диаграмма SmFeO₃ в поле **H** || **с**, полученная по данным рис. 2, приведена на рис. 3. Экстраполяция линии индуцированного полем ОФП $\Gamma_4(F_z, G_x) \leftrightarrow \Gamma_{24}(F_{x,z}, G_{x,z})$, которой соответствует эта диаграмма, к точке H = 0 дает значение температуры такого же по структуре спонтанного ОФП: $T_1 = (458 \pm 3)$ К. Следует заметить, что значения T_1, T_2 и в меньшей степени T_N в РЗ-ортоферритах зависят от технологии получения монокристаллов, чистоты исходного сырья, а в конечном счете от качества используемых в конкретных измерениях образцов. Поэтому, если все эти параметры не измеряются на одном и том же образце, а берутся из разных источников, любые расчеты заведомо бу-



Рис.4. Полевая зависимость щели мягкой моды в точках завершения спиновой переориентации Γ_{24} – Γ_4 в SmFeO₃ в поле $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$

дут иметь соответствующую погрешность и скорее носить характер оценок. Данная работа также не претендует на большее. Поэтому, учитывая, что разность $\Delta T = T_1 - T_2$ всегда намного меньше, чем T_N , для оценки приведенного выше значения $\tau_{SR} \approx 0.8$ в SmFeO₃ было принято $T_1 = T_2$.

На рис. 4 приведена полевая зависимость энергетической щели, также построенная по данным рис. 2. При $H \to 0$ она характеризуется производной $\partial \nu_0 / \partial H \approx 1.52$ ГГц/кЭ. Из данных рис. 2 при $T \rightarrow T_1$ или рис. 4 при $H \rightarrow 0$ можно определить «стартовую» энергетическую щель, соответствующую спонтанному ОФП $\Gamma_4(F_z,G_x) \leftrightarrow \Gamma_{24}(F_{x,z},G_{x,z})$. Она оказалась равной (27.7 ± 2.5) ГГц. Это значение величины щели существенно ниже измеренного нами ранее [3] (около 40 ГГц) в экспериментах по традиционной методике (протяжка температуры в нулевом поле), обладающей меньшими чувствительностью и разрешением. Впрочем, на величину щели, как указывалось выше, может оказать существенное влияние и качество исходного монокристалла, из которого готовится образец. В работе [11] даже предложен метод косвенной оценки кристаллической однородности РЗ-ортоферритов по степени чувствительности щели к ориентации внешнего поля — более совершенным в магнитном отношении кристаллам соответствует меньшая щель.

Следует обратить внимание, по крайней мере, на три особенности полученных здесь результатов. Во-первых, как и предполагалось, энергетическая щель в спектре спиновых волн в SmFeO₃ существенно зависит от температуры и магнитного поля даже в пределе $H \rightarrow 0$, т.е. в окрестности спонтанного ОФП. Ортоферрит самария — единственный из РЗ-ортоферритов, в котором обнаружен подобный эффект. При этом данные результаты в совокупности с полученными ранее на других ортоферритах и изоморфном им соединении Fe₃BO₆ фактически ставят точку на перспективе обнаружения вклада продольной восприимчивости в щель в окрестности спонтанных ОФП во всех остальных РЗ-ортоферритах. В самом деле, на шкале температур спонтанной переориентации между NdFeO₃ и SmFeO₃ нет больше ортоферритов с подходящими для этого величинами τ_{SR} . При намерении дальнейшего изучения данной проблемы на РЗ-ортоферритах указанный пробел может быть заполнен только путем взаимного замещения редкоземельных ионов с конкурирующей анизотропией, например Tm^{3+} на Sm^{3+} .

Другая особенность полученных здесь результатов состоит в том, что энергетическая щель растет при понижении температуры (выше мы уже обращали внимание на знак производной $\partial \nu_0 / \partial T$). Это, на первый взгляд, противоречит основному утверждению теории [1], в которой заложено однонаправленное действие температуры (продольной восприимчивости) и поля на эффект возрастания энергетической щели. На самом же деле обнаруженное нами возрастание щели в условиях разнонаправленного воздействия внешних параметров на этот эффект является результатом конкурирующих вкладов в ее величину со стороны Н и Т. В данном случае положительный и больший по абсолютной величине вклад в ν_0 дает поле. Оно и обусловливает результирующее возрастание щели, наблюдаемое на опыте. Отметим, что несоизмеримость температурного и полевого вкладов в такую динамическую характеристику, как щель, фактически задается статическими параметрами магнетика, отражаемыми его фазовой Н-Т-диаграммой. Если Н-Т-диаграмма подобна (в качественном и количественном отношениях) изображенной на рис. 3, то эта несоизмеримость будет иметь место всегда и даже при $H \rightarrow 0$ эффект фактически будет выглядеть «полевым». Подчеркнем, что в данном случае речь идет лишь о приращении щели за счет продольной восприимчивости, а не о самой щели. Но для обнаружения приращения должны быть выполнены условия, при которых данный эффект в принципе может наблюдаться. По нашим представлениям на современном уровне эксперимента это возможно только при $\tau_{SR} \ge 0.4 - 0.5$.

И наконец, третья особенность состоит в том, что возрастание щели ν_0 в поле начинается с доволь-

но большого ее «стартового» значения при H = 0. Это означает, что полученные результаты не могут быть адекватно описаны ни теорией [1], ни теорией [3]. Нужна более общая теоретическая модель, которая бы одновременно и максимально полно учитывала взаимодействие различных колебательных подсистем магнетика и вклады в динамику за счет как прецессии, так и продольных колебаний намагниченности. Основы такой общей теории были развиты и собраны воедино в работе [4]. К ней и обратимся для описания полученных здесь конкретных экспериментальных результатов.

4. ТЕОРИЯ

Ортоферрит самария относится к ортоферритам с некрамерсовским РЗ-ионом (с нечетным числом 4f-электронов у иона самария). Для таких ортоферритов феноменологическая плотность свободной энергии выражается формулами (3.1)-(3.7) обзора [3]. Так как из эксперимента следует, что в рассматриваемом ортоферрите велико влияние продольной восприимчивости на спектр связанных колебаний, то при описании динамики ортоферрита самария необходимо отказаться от условия равенства и постоянства намагниченностей подрешеток d- и f-подсистем (условие (3.5) в [3]). Для этого необходимо в выражение для плотности свободной энергии F добавить слагаемые (см. выражение для плотности свободной энергии двухподрешеточного антиферромагнетика в [4])

$$\frac{1}{2}A_1\mathbf{G}^2 + \frac{1}{4}A_2\mathbf{G}^4 + \frac{1}{2}D'\mathbf{G}^2\mathbf{F}^2.$$
 (1)

Рассмотрим равновесное состояние, отвечающее фазе Г₄. Равновесные значения параметров ортоферрита самария в данной фазе находятся из минимизации свободной энергии. Результаты минимизации выглядят следующим образом:

$$F_{x} = F_{y} = f_{x} = f_{y} = G_{y} = G_{z} =$$

$$= c_{x} = c_{y} = c_{z} = u_{ik}^{0} = 0 \quad (i \neq k),$$

$$F_{z} = F_{0}, \quad G_{x} = G_{0}, \quad f_{z} = f_{0},$$

$$F_{0} = \chi_{\perp} (2M_{0}H - dG_{0}), \quad f_{0} = \frac{\mu_{z}H + B_{x}G_{0}}{\lambda'_{3}}.$$
(2)

Модуль вектора антиферромагнетизма *f*-подсистемы определяется из уравнения

$$\left[A_1 + A_2 G_0^2 + D' F_0^2 + 2 \left(B_{11} u_{xx}^0 + B_{12} u_{yy}^0 + B_{13} u_{zz}^0 \right) \right] G_0 =$$

= $N B_x f_0 - dF_0,$

а равновесные компоненты тензора деформаций u_{ii}^0 — формулами (3.8a) обзора [3]. В (2) $\chi_{\perp} = (A + D'G_0^2)^{-1}$ — поперечная восприимчивость ортоферрита. Остальные обозначения совпадают с обозначениями в [3]. При записи основного состояния (2), в отличие от работы [3], здесь сразу же использовалось условие малости постоянной изотропного обменного взаимодействия (*a*) между *d*- и *f*-подсистемами.

Исследование матрицы вторых производных плотности свободной энергии на неотрицательность приводит в результате к следующему условию устойчивости фазы Г₄:

$$K_{ac}G_{0}^{2} + \frac{NB_{x}G_{0}\mu_{z}H}{\lambda_{3}'} + 2M_{0}H\chi_{\perp}(2M_{0}H\eta - dG_{0}) \ge 0, \quad (3)$$

где $\eta = 1 - \chi_{\parallel}/\chi_{\perp}, \chi_{\parallel} = [A + (D + D')G_0^2]^{-1}$ — продольная магнитная восприимчивость ортоферрита. Остальные обозначения совпадают с обозначениями в [3]. Знак равенства в (3) определяет точку ОФП из коллинеарной фазы Γ_4 в угловую фазу Γ_{24} .

При описании динамических свойств ортоферрита самария в фазе Γ_4 воспользуемся уравнениями Ландау–Лифшица, упругости и Максвелла (3.13)–(3.18) в [3]. В уравнениях Ландау–Лифшица вместо релаксационных слагаемых в форме (3.14) в [3] будем использовать релаксационные слагаемые более общего вида, которые описывают как поперечную, так и продольную релаксацию в f- и d-подсистемах [12]:

$$\begin{aligned} \mathbf{R}(\mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{F}_x, \mathbf{F}_y) &= -\Lambda_0 \mathbf{F}_x - \\ &- \Lambda_{\perp} \left\{ (x^2 + y^2) \mathbf{F}_x + 2(\mathbf{x} \cdot \mathbf{y}) \mathbf{F}_y \right\} - (\Lambda_{\perp} - \Lambda_{\parallel}) \times \\ &\times \left\{ \mathbf{x}(\mathbf{x} \cdot \mathbf{F}_x) + \mathbf{x}(\mathbf{y} \cdot \mathbf{F}_y) + \mathbf{y}(\mathbf{x} \cdot \mathbf{F}_y) + \mathbf{y}(\mathbf{y} \cdot \mathbf{F}_x) \right\}, \end{aligned}$$
(4)

где $\Lambda_{0,\perp,\parallel}$ — параметры релаксации ($\Lambda_{0,\perp,\parallel} = \Lambda_{f0,\perp,\parallel}$ для *f*-подсистемы и $\Lambda_{0,\perp,\parallel} = \Lambda_{d0,\perp,\parallel}$ для *d*-подсистемы). В (4) в случае *f*-подсистемы **x**, **y** = **f**, **c** в уравнении Ландау–Лифшица для вектора ферромагнетизма **f** и **x**, **y** = **c**, **f** в уравнении Ландау–Лифшица для вектора антиферромагнетизма **c**, $\mathbf{F}_x = \partial F/\partial \mathbf{x}$. В случае *d*-подсистемы в выражении (4) следует заменить **f** на **F**, **c** на **G**.

При учете продольной релаксации, а также при отказе от условий равенства и постоянства модулей намагниченностей подрешеток *d*- и *f*-подсистем в статике и динамике магнетиков правомочность применимости классических уравнений Ландау–Лифшица для описания динамических свойств магнетиков обоснована в [4] (см. также [13, 14]). После линеаризации системы связанных уравнений вблизи положения равновесия (2) получим следующее дисперсионное уравнение для связанных гармонических волн в фазе Γ_4 , распространяющихся вдоль оси z:

$$(1-\eta)\omega^{5}+i\left[\Lambda_{f}(1-\eta)(\omega_{1f}+\omega_{2f})+\Lambda_{d}\omega_{E}(2-\eta)\right]\omega^{4}-$$

$$-\left[(\omega_{d}^{2}+\omega_{f}^{2})(1-\eta)+\Lambda_{d}^{2}\omega_{E}^{2}+\Lambda_{f}^{2}\omega_{1f}\omega_{2f}(1-\eta)+\right.$$

$$+\Lambda_{f}\Lambda_{d}(1-\eta)(\omega_{1f}+\omega_{2f})\omega_{E}(2-\eta)\right]\omega^{3}-$$

$$-i\left\{\Lambda_{f}(1-\eta)(\omega_{1f}+\omega_{2f})(\omega_{d}^{2}-\omega_{E}\omega_{fd}')+\Lambda_{d}\omega_{E}(2-\eta)\times\right.$$

$$\times\left[\omega_{d}^{2}+\omega_{f}^{2}-\omega_{dip}r-\omega_{H}(\omega_{H}+\omega_{D})+\frac{\omega_{E}\omega_{me5}\omega_{5k}^{2}}{\omega^{2}-\omega_{5k}^{2}}\right]\right\}\omega^{2}+$$

$$+\left\{\omega_{f}^{2}(1-\eta)\left[\omega_{d}^{2}+\frac{\omega_{E}\omega_{me5}\omega_{5k}^{2}}{\omega^{2}-\omega_{5k}^{2}}-\omega_{E}\omega_{fd}\right]+\right.$$

$$\left.+\Lambda_{d}^{2}\omega_{E}^{2}\omega_{f}^{2}+\Lambda_{f}^{2}\omega_{1f}\omega_{2f}(1-\eta)\times\right.$$

$$\times\left[\omega_{d}^{2}+\frac{\omega_{E}\omega_{me5}\omega_{5k}^{2}}{\omega^{2}-\omega_{5k}^{2}}-\omega_{E}\omega_{fd}\right]+$$

$$\left.+\Lambda_{f}\Lambda_{d}(\omega_{1f}+\omega_{2f})\omega_{E}\left[\omega_{d}^{2}-\omega_{dip}r-\omega_{H}(\omega_{H}+\omega_{D})+\right.$$

$$\left.+\frac{\omega_{E}\omega_{me5}\omega_{5k}^{2}}{\omega^{2}-\omega_{5k}^{2}}-\omega_{E}\omega_{fd}\right]\right\}\omega-i\Lambda_{d}\omega_{E}\omega_{f}^{2}\left[\omega_{d}^{2}-\omega_{E}\omega_{dip}r-\right.$$

$$\left.-\omega_{H}^{2}(1-\eta)+r\omega_{L}(\omega_{H}+\omega_{D})(\eta\omega_{H}+\omega_{D})/\omega_{E}+\right.$$

$$\left.+\frac{\omega_{E}\omega_{me5}\omega_{5k}^{2}}{\omega^{2}-\omega_{5k}^{2}}-\omega_{E}\omega_{fd}\right]=0, \quad (5)$$

где

$$\Lambda_f = \Lambda_{f0} + \Lambda_{f\perp} f_0^2, \quad \Lambda_d = \Lambda_{d0} + \Lambda_{d\perp} G_0^2,$$
$$\omega_{1,2f} = \frac{gN\lambda'_{1,2}}{M_B}, \quad \omega_E = \frac{g\chi_{\perp}^{-1}}{M_0}, \quad \omega_f = \frac{gNf_0\sqrt{\lambda'_1\lambda'_2}}{M_B},$$
$$\omega_d = \left[\omega_E(\omega_{S0} + \omega_{me5} + \omega_{fd} + \omega_{dip}r) + \omega_H^2(1-\eta)\right]^{1/2}$$

$$\omega_{S0} = g \left[K_{ac} G_0^2 + \frac{N B_x \mu_z G_0 H}{\lambda'_3} + 2M_0 H \chi_\perp (2\eta M_0 H - dG_0) \right],$$

$$\begin{split} \omega_{me5} &= \frac{g B_{55}^2 G_0^4}{M_0 c_{55}}, \quad \omega_{fd} = \frac{g N B_z''^2 G_0^2}{\lambda_1' M_B}, \\ \omega_H &= 2g H, \quad \omega_{dip} = \frac{\omega_L (\omega_H + \omega_D)^2}{\omega_E^2}, \quad \omega_D = -\frac{g d G_0}{M_0}, \\ \omega_L &= 16 \pi g M_0, \quad \omega_{fd}' = \frac{g N B_z''^2 G_0^2}{M_0 (\lambda_1' + \lambda_2')}, \\ \omega_{5k} &= s_5 k, \quad r = \left(1 - \frac{v^2 k^2}{\varepsilon \omega^2}\right)^{-1}. \end{split}$$

Остальные обозначения совпадают с обозначениями, используемыми в [3]. Для простоты при выводе дисперсионного уравнения, кроме предположений $\lambda_7 = \lambda_8 = B'_z = 0$, принятых в [3], полагалось $\mu_{xy} = \mu_{yx} = \mu_y = \mu_x = 0.$

С целью сравнения с экспериментом ограничимся здесь записью решений дисперсионного уравнения (5), отвечающих элементарным возбуждениям магнитных подсистем при $k \to 0$. Эти решения выглядят следующим образом:

$$\omega_{1,2}^{2} = \frac{1}{2} \times \\ \times \left\{ \omega_{d}^{2} + \omega_{f}^{2} \pm \left[(\omega_{d}^{2} - \omega_{f}^{2})^{2} + 4\omega_{f}^{2} \omega_{E} \omega_{fd} \right]^{1/2} \right\}, \quad (6)$$

$$\omega_3^2 = -i\Lambda_d \omega_E \left[\omega_d^2 - \omega_E \omega_{dip} - \omega_H^2 (1-\eta) - \omega_E \omega_{fd} + \omega_L (\omega_H + \omega_D) (\eta \omega_H + \omega_D) / \omega_E \right] \times \left\{ (1-\eta) \left[\omega_d^2 - \omega_E \omega_{fd} \right] \right\}^{-1}.$$
 (7)

Первые две ветви отвечают прецессионным, а третья — релаксационным колебаниям магнитных подсистем. Для простоты при записи решений (6) не учитывалось затухание прецессионных колебаний.

5. СРАВНЕНИЕ ТЕОРИИ И ЭКСПЕРИМЕНТА. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Как следует из результатов эксперимента, в ортоферрите самария спонтанные ОФП происходят при высоких температурах: T > 400 К. Известно [3], что параметры f-подсистемы, а также взаимодействия f- и d-подсистем в температурных единицах не превышают нескольких кельвинов. Таким образом, для ортоферрита самария в области ОФП с хорошей степенью точности справедливы приближения

$$f_0 \ll 1, \quad \lambda_i' \approx T.$$
 (8)

В этом случае из неравенства (3) можно получить следующее выражение для значения поля H_{tr} , при котором имеет место индуцированный ОФП (знак равенства в (3)):

$$H_{tr} = \frac{\omega_E}{8gM_0\eta} \left\{ \left[\left(\frac{2M_0\omega_D}{\omega_E} + \frac{\mu_z NG_0 B_x}{T} \right)^2 - \frac{16gM_0\eta K_{ac}G_0^2}{\omega_E} \right]^{1/2} - \left(\frac{2M_0\omega_D}{\omega_E} + \frac{\mu_z NG_0 B_x}{T} \right) \right\}.$$
 (9)

Поскольку в области спонтанного ОФП константа анизотропии K_{ac} стремится к нулю [2], при малых значениях внешнего магнитного поля формулу (9) можно значительно упростить:

$$H_{tr} = -\frac{M_0 K_{ac} G_0^2}{2M_0 \omega_D / \omega_E + \mu_z N G_0 B_x / T} \,. \tag{10}$$

В предположении, что второе слагаемое в знаменателе (10) при высоких температурах (T > 400 K) мало по сравнению с первым, выражение для поля перехода еще более упрощается:

$$H_{tr} = -\frac{M_0 K_{ac} G_0^2}{2M_0 \omega_D / \omega_E} \,. \tag{11}$$

Известно [3], что постоянная анизотропии K_{ac} в области спонтанных ОФП в ортоферритах линейно зависит от температуры. В таком случае и поле индуцированного ОФП (11) будет линейно зависеть от температуры. Это действительно наблюдается в эксперименте (рис. 3). К сожалению, из-за отсутствия точных экспериментальных значений для величин, входящих в формулы (9)–(11), более строгого сравнения теории и эксперимента провести невозможно.

С целью дальнейшего упрощения формул для частот прецессионных спиновых колебаний (6) рассмотрим два предельных случая.

При $\omega_d \ll \omega_f$ решения (6) имеют вид

$$\omega_1^2 = \omega_f^2 + \omega_E \omega_{fd},$$

$$\omega_2^2 = \omega_d^2 - \omega_E \omega_{fd},$$
(12)

а при $\omega_d \gg \omega_f$ они выглядят следующим образом:

$$\omega_1^2 = \omega_d^2 + \frac{\omega_f^2 \omega_E \omega_{fd}}{\omega_d^2},$$

$$\omega_2^2 = \omega_f^2 \left(1 - \frac{\omega_E \omega_{fd}}{\omega_d^2} \right).$$
(13)

Из (12), (13) следует, что в зависимости от соотношения частот колебаний f- и d-подсистем мягкой модой в ортоферрите самария может быть либо мода d-подсистемы (12), либо мода f-подсистемы (13). Известно [3], что в ортоферритах при высоких температурах редкоземельные моды в эксперименте не разрешаются, так как они являются сильно затухающими (затухание f-моды порядка частоты этой моды). В связи с этим естественно предположить, что в ортоферрите самария в эксперименте измеряется частота моды d-подсистемы, т. е. для него выполняется условие $\omega_d \ll \omega_f$ и мягкой модой вблизи ОФП $\Gamma_4 \leftrightarrow \Gamma_{42}$ является мода d-подсистемы. В таком случае в точке индуцированного ОФП $\Gamma_4 \leftrightarrow \Gamma_{42}$ (знак равенства в неравенстве (3)) частота мягкой моды (12) выражается формулой

$$\nu_d = \left[\omega_E(\omega_{me5} + \omega_{dip}) + \omega_{H_{tr}}^2 (1 - \eta)\right]^{1/2} / 2\pi.$$
 (14)

Так как не все параметры ортоферрита самария измерены экспериментально, оценим приближенно значения частот ω_E и ω_{dip} из работ [3,15]: $\omega_E \approx 2 \cdot 10^{14} \text{ c}^{-1}$, $\omega_{dip} \approx 8 \cdot 10^7 \text{ c}^{-1}$. Магнитоупругая частота в ортоферритах обычно меньше дипольной частоты в несколько раз или даже на порядок [3]. Таким образом, в точке спонтанного ОФП при H = 0 частота мягкой моды *d*-подсистемы (14) приблизительно равна $\nu_d = \sqrt{\omega_E \omega_{dip}}/2\pi \approx 20$ ГГц. Это значение хорошо согласуется с экспериментальным значением $\nu_d \approx 27.7$ ГГц (рис. 4).

Характерная температурная зависимость частоты мягкой моды при индуцированных ОФП (рис. 2), согласно формуле (14), может быть объяснена температурной зависимостью поля индуцированного ОФП H_{tr} и продольной восприимчивости. Если предположить, что в интервале температур 400–450 К продольная восприимчивость слабо зависит от T, то линейная зависимость частоты (14) от температуры будет объясняться аналогичной зависимостью от T поля перехода (11). Из (14) также следует, что частота мягкой моды возрастает с увеличением поля перехода. Этот вывод также хорошо согласуется с экспериментальной зависимостью (рис. 4).

Следует отметить поведение релаксационной ветви квазиспиновых колебаний в области ОФП. В точке ОФП ($\omega_{S0} = 0$) выражение для частоты релаксационной ветви (7) имеет вид

$$\omega_3^2 = -i\Lambda_d \omega_E \times \\ \times \left[\omega_E \omega_{me5} + \omega_L (\omega_H + \omega_D) (\eta \omega_H + \omega_D) / \omega_E \right] \times \\ \times \left\{ (1 - \eta) \left[\omega_E (\omega_{me5} + \omega_{dip}) + \omega_H^2 (1 - \eta) \right] \right\}^{-1}.$$
(15)

Из (15) следует, что в точке ОФП релаксационная ветвь имеет активацию, которая определяется магнитоупругим и дипольным вкладами. В отличие от соответствующей частоты в работе [1] частота (15) в точке ОФП не обращается в нуль даже в отсутствие магнитоупругой связи. В последнем случае активация релаксационной ветви обусловлена взаимодействием колебаний магнитных подсистем с электромагнитными волнами. В точке спонтанного ОФП при H = 0 активация релаксационной ветви при отсутствии магнитоупругого взаимодействия определяется взаимодействием Дзялошинского.

Поскольку ветви $\omega_1, \omega_2, \omega_3$ (6), (7) в точке ОФП являются активационными, мягкими модами в этом случае будут квазиупругие моды при $k \to 0$. Данная ситуация для двухподрешеточного антиферромагнетика подробно описана в [4].

6. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, в работе экспериментально и теоретически показано, что все наблюдаемые особенности поведения спектра спиновых колебаний в ортоферрите самария в области индуцированного внешним магнитным полем ОФП $\Gamma_4(F_z,G_x)$ \leftrightarrow $\Gamma_{24}(F_{x,z},G_{x,z})$ могут быть объяснены соотношением вкладов от взаимодействия подсистем ортоферрита и от учета продольной восприимчивости. Впервые показано, что вклад продольной восприимчивости в щель мягкой магниторезонансной моды в ортоферрите может быть существенным и в малых полях, т.е. в окрестности спонтанных ОФП. Это обусловлено тем, что спонтанные ОФП в ортоферрите самария происходят при высоких температурах, при которых продольная восприимчивость сравнима по величине с поперечной восприимчивостью.

Авторы выражают искреннюю признательность рецензенту за полезные замечания.

Работа поддержана Фондом фундаментальных исследований Украины и Министерством образования России (проект № 97-0-7.0-11).

ЛИТЕРАТУРА

 А. М. Балбашев, Ю. М. Гуфан, Н. Ю. Марчуков, Е. Г. Рудашевский, ЖЭТФ 94(4), 305 (1988).

- 2. К. П. Белов, А. К. Звездин, А. М. Кадомцева, Р. З. Левитин, Ориентационные переходы в редкоземельных магнетиках, Наука, Москва (1977).
- В. Д. Бучельников, Н. К. Даньшин, Л. Т. Цымбал, В. Г. Шавров, УФН 166, 585 (1996).
- 4. В. Д. Бучельников, Н. К. Даньшин, Л. Т. Цымбал, В. Г. Шавров, УФН 169, 1049 (1999).
- 5. Н. К. Даньшин, Ю. И. Непочатых, ФНТ 24, 353 (1998).
- 6. Н. К. Даньшин, Г. Г. Крамарчук, ФНТ 19, 888 (1993).
- 7. Н. К. Даньшин, ФНТ **20**, 353 (1994).
- С. Н. Барило, А. П. Гесь, А. М. Гурецкий, Н. К. Даньшин, Г. Г. Крамарчук, А. М. Лугинец, М. А. Сдвижков, ФТТ 33, 621 (1991).
- Э. Арутюнян, К. Н. Кочарян, Р. М. Мартиросян, А. Г. Березин, П. Ю. Марчуков, Е. Г. Рудашевский, ЖЭТФ 98, 712 (1990).
- Н. К. Даньшин, Ю. И. Непочатых, В. Ф. Шкарь, ЖЭТФ 109, 639 (1996).
- F. B. Hagedorn and E. M. Gyorgy, Phys. Rev. 174, 540 (1968).
- **12**. А. А. Мухин, А. С. Прохоров, Труды ИОФ АН СССР **25**, 162 (1990).
- 13. В. Д. Бучельников, В. Г. Шавров, Письма в ЖЭТФ
 60, 534 (1994).
- 14. В. Д. Бучельников, В. Г. Шавров, ЖЭТФ 106, 1756 (1994).
- 15. А. К. Звездин, В. М. Матвеев, А. А. Мухин, А. И. Попов, Редкоземельные ионы в магнитоупорядоченных кристаллах, Наука, Москва (1985).