

# Исследование магнитной структуры $\text{Nd}_{0,75}\text{Dy}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ методом антиферромагнитного резонанса

М.И. Кобец, К.Г. Дергачев, Е.Н. Хацько, С.Л. Гнатченко

*Физико-технический институт низких температур им. Б.И. Веркина НАН Украины  
пр. Ленина, 47, г. Харьков, 61103, Украина  
E-mail: khatsko@ilt.kharkov.ua*

Л.Н. Безматерных, И.А. Гудим

*Институт физики им. Л.В. Киренского Сибирского отделения РАН  
Академгородок, 50, строение № 38 б, г. Красноярск, 660036, Россия*

Статья поступила в редакцию 25 июля 2013 г., после переработки 8 августа 2013 г., опубликована онлайн 21 мая 2014 г.

Исследовано влияние замещения ионов  $\text{Nd}^{3+}$  ионами  $\text{Dy}^{3+}$  на резонансные свойства  $\text{Nd}_{0,75}\text{Dy}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ . При помощи метода АФМР обнаружен магнитный спин-переориентационный фазовый переход легкая ось–легкая плоскость, обусловленный конкурирующими обменными взаимодействиями Nd–Fe и Dy–Fe, и изучены частотно-полевые зависимости спектра АФМР до и после фазового перехода. Показано, что при температуре 4,2 К вдоль направления  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$  обнаруженные резонансные спектры являются модами АФМР железа, а их частотно-полевые зависимости соответствуют легкоосной ( $H < 15$  кЭ) и легкоплоскостной ( $H > 16$  кЭ) магнитным структурам с энергетической щелью возбуждения магновов соответственно 77,2 и 100,3 ГГц. Величины эффективной магнитной анизотропии, формирующие эти щели, равны соответственно 0,7 и 1,2 кЭ. Замещение ионами  $\text{Dy}^{3+}$  кристалла  $\text{Nd}_{0,75}\text{Dy}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$  в парамагнитной области приводит к образованию дополнительного статического внутреннего поля за счет поляризации, что приводит к сдвигу резонансного поля линии поглощения ЭПР и изменению величины  $g$ -фактора ионов  $\text{Fe}^{3+}$ .

Вивчено вплив заміщення іонів  $\text{Nd}^{3+}$  іонами  $\text{Dy}^{3+}$  на резонансні властивості  $\text{Nd}_{0,75}\text{Dy}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ . За допомогою методу АФМР виявлено магнітний спин-переорієнтаційний фазовий перехід легка вісь–легка площина, зумовлений конкуруючими обмінними взаємодіями Nd–Fe та Dy–Fe, і вивчено частотно-польові залежності спектра АФМР до та після фазового переходу. Показано, що при температурі 4,2 К вздовж напрямку  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$  виявлені резонансні спектри є модами АФМР заліза, а їх частотно-польові залежності відповідають легковісній ( $H < 15$  кЕ) та легкоплощинній ( $H > 16$  кЕ) магнітним структурам з енергетичною щільною збудження магновів відповідно 77,2 і 100,3 ГГц. Величина ефективною магнітної анізотропії, яка формує ці щілини, дорівнює 0,7 і 1,2 кЕ. Заміщення іонами  $\text{Dy}^{3+}$  кристала  $\text{Nd}_{0,75}\text{Dy}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$  в парамагнітній області призводить до створення допоміжного статичного внутрішнього поля за рахунок поляризації, що призводить до зміщення резонансного поля лінії поглинання ЕПР і зміни величини  $g$ -фактора іонів  $\text{Fe}^{3+}$ .

PACS: 75.50.Ee Антиферромагнетики;

**76.50.+g** Ферромагнитный, антиферромагнитный и ферримагнитный резонансы; спин-волновой резонанс;

**76.30.-v** Электронный парамагнитный резонанс и релаксация.

Ключевые слова: антиферромагнетик, резонанс, мультиферроик, электронный парамагнитный резонанс.

В настоящее время проводятся интенсивные исследования магнитных, электрических и магнитоэлектрических свойств редкоземельных ферроборатов  $\text{RFe}_3(\text{BO}_3)_4$ , которые относятся к тригональной пространственной группе  $R32$ . В этих системах существуют одновременно две взаимодействующие упорядоченные подсистемы: магнитная и электрическая [1–4]. Спины ионов  $\text{Fe}^{3+}$  упорядочиваются антиферромагнитно при температурах 30–40 К, а на их взаимную ориентацию влияет парамагнитная подсистема редкоземельных ионов R. Обменное взаимодействие между R–Fe, в зависимости от анизотропии редкоземельных ионов, стабилизирует либо легкоплоскостные магнитные состояния в плоскости  $ab$  кристалла, либо одноосные состояния вдоль оси  $c$  [5–8]. В нецентросимметричных редкоземельных ферроборатах  $\text{RFe}_3(\text{BO}_3)_4$  путем замещения редкоземельных ионов другими изовалентными ионами можно значительно изменять как их магнитные и электрические свойства, так и связь между ними. Конкуренция магнитной анизотропии замещенных редкоземельных ионов может приводить к появлению как спонтанных, происходящих при изменении температуры, так и индуцированных магнитным полем спин-переориентационных магнитных фазовых переходов [9–14].

К настоящему времени накоплен значительный экспериментальный материал по исследованию замещенных ферроборатов, в частности  $\text{Nd}_{0,75}\text{Dy}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ .

Авторы работ [9–11] изучали температурные и полевые зависимости магнитной восприимчивости, намагниченности и теплоемкости смешанного соединения  $\text{Nd}_{0,75}\text{Dy}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ . Они наблюдали спин-переориентационные переходы по магнитному полю и температуре. Экспериментальные результаты незначительно отличаются друг от друга, но все они подтверждают сложность поведения магнитных подсистем данного кристалла во внешнем магнитном поле при низких температурах. В работе [12] наиболее детально изучены низкотемпературные магнитные фазовые переходы при использовании ультразвуковой методики, построена фазовая  $H$ – $T$ -диаграмма. В процессе резонансных измерений выяснилось, что полученные нами результаты хорошо коррелируют с данными работы [12].

Для исследования спиновых колебаний в мультиферроиках весьма эффективно применяются методики комбинационного, бриллюэновского рассеяния света, метод антиферромагнитного резонанса (АФМР) и др.

В работах [13,14] методом антиферромагнитного резонанса исследованы системы  $\text{YFe}_3(\text{BO}_3)_4$ – $\text{GdFe}_3(\text{BO}_3)_4$ – $\text{Y}_{0,5}\text{Gd}_{0,5}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$  и  $\text{ErFe}_3(\text{BO}_3)_4$ – $\text{Er}_{0,75}\text{Tb}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ , в которых обнаружены моды АФМР подсистемы ионов  $\text{Fe}^{3+}$ . Выявлены сильные зависимости частот от характера магнитной анизотропии редкоземельных ионов и их обменных взаимодействий с Fe-подсистемой. Определены основные параметры магнитных взаимодействий.

Цель настоящей работы — исследование влияния замещения ионов  $\text{Nd}^{3+}$  ионами  $\text{Dy}^{3+}$  на резонансные свойства  $\text{Nd}_{0,75}\text{Dy}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$  с помощью метода антиферромагнитного резонанса в широком диапазоне частот, температур и внешних магнитных полей. Магнитные и резонансные свойства такого ферробората, по-видимому, определяются как антиферромагнитной Fe-подсистемой, так и парамагнитными редкоземельными ионами двух типов ( $\text{Nd}^{3+}$ ,  $\text{Dy}^{3+}$ ), которые находятся и во внешнем магнитном поле, и в обменном поле спинов  $\text{Fe}^{3+}$ . Литературные данные о резонансных исследованиях такого соединения отсутствуют.

Ранее в работе [15] нами были изучены резонансные свойства кристалла  $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$  в упорядоченном состоянии. Подробное исследование частотно-полевых зависимостей АФМР позволило заключить, что магнитные моменты Nd и Fe лежат в базисной плоскости  $ab$ , а обнаруженные резонансные моды соответствуют колебаниям антиферромагнитной структуры с анизотропией типа «легкая плоскость» со слабой анизотропией в базисной плоскости кристалла, и определить эффективные магнитные параметры (величины энергетических щелей и магнитной анизотропии), описывающие магнитную структуру  $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$ .

В кристалле  $\text{DyFe}_3(\text{BO}_3)_4$  магнитные моменты  $\text{Fe}^{3+}$  и  $\text{Dy}^{3+}$  ориентированы вдоль тригональной оси  $c$  — легкоосный антиферромагнетик тригональной симметрии. Выясним, как изменяется магнитная структура и эффективные магнитные параметры при замещении  $\text{Nd}^{3+}$  на  $\text{Dy}^{3+}$  в  $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$ .

Исследования резонансных свойств соединения  $\text{Nd}_{0,75}\text{Dy}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$  проведены на стандартном радиоспектрометре прямого усиления в стационарных магнитных полях до 75 кЭ. Резонансное поглощение возбуждалось перпендикулярно поляризованным СВЧ излучением. Для измерений использовали образцы размерами примерно  $2 \times 3 \times 2$  мм, выращенные по технологии, описанной в [16]. Ориентировались образцы рентгеновским методом.

На рис. 1 приведена фазовая  $H$ – $T$ -диаграмма для ориентации поля  $\mathbf{H} \parallel c$  (ось  $z$ ), которая взята из работы [12]. На этой диаграмме линии 2 и 3 трактуются как линии ориентационных магнитных фазовых переходов. Авторы работ [9–14] утверждают, что соединение  $\text{Nd}_{0,75}\text{Dy}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$  ниже  $T_N = 32$  К (линия 1) до линии фазового перехода 2 имеет легкоплоскостную магнитную структуру. В интервале температур 26–16 К существует промежуточная фаза с неизвестной магнитной структурой. При температурах ниже линии перехода 3 исследуемая система находится в низкотемпературной легкоосной магнитной фазе.

Первые резонансные измерения проведены на низких частотах при температуре 4,2 К. На рис. 2 представлены полевые записи вида спектра для нескольких частот. Видно, что на частоте 40,07 ГГц резонансный

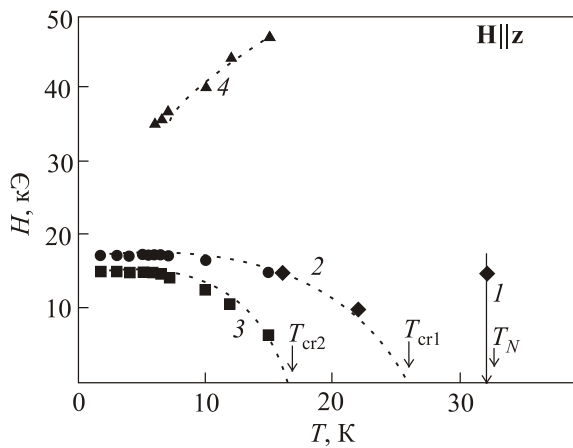


Рис. 1. Фазовая  $H$ - $T$ -диаграмма  $\text{Nd}_{0,75}\text{Dy}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$  [12] (см. текст).

спектр отсутствует, а наблюдается двухступенчатая аномалия в виде скачков, которые близки по магнитному полю и имеют гистерезисный характер. Величины магнитных полей, при которых происходят скачки ( $H_1 = 14,920$  кЭ,  $H_2 = 15,850$  кЭ), соответствуют спин-переориентационному магнитному фазовому переходу через промежуточную фазу. Ориентационный переход является переходом первого рода. Величина промежуточной фазы по магнитному полю в нашем эксперименте равна 930 Э.

Считается, что наблюдаются спин-переориентационные переходы, при которых легкоосная магнитная структура становится легкоплоскостной. На высоких частотах скачки несколько видоизменяются, но возникают в тех же магнитных полях, что подтверждает версию о фазовых переходах. При понижении температуры до 1,7 К величина полей переходов, в пределах погрешности, не изменяется.

Во всем диапазоне измерительных частот в магнитном поле до 50 кЭ при его ориентации  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$  спин-переориентационный фазовый переход отсутствует (см. рис. 2).

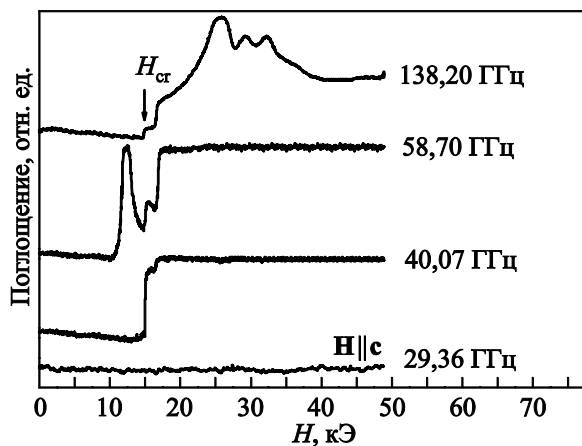


Рис. 2. Полевые записи спектра кристалла  $\text{Nd}_{0,75}\text{Dy}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$  для различных частот ( $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$ ,  $T = 4,2$  К).

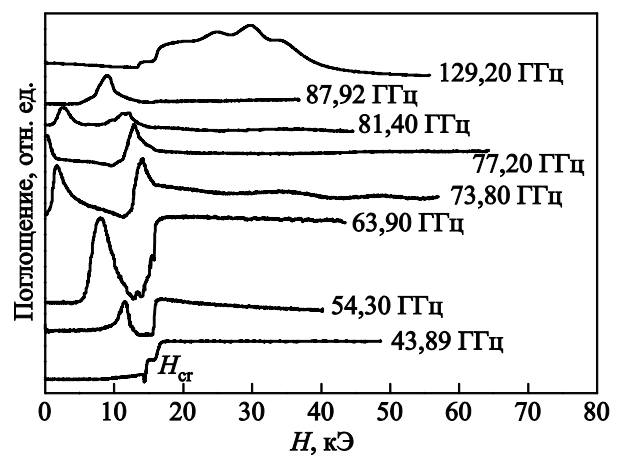


Рис. 3. Спектр АФМР соединения  $\text{Nd}_{0,75}\text{Dy}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$  и его трансформация с изменением частоты и магнитного поля для легкоосной магнитной структуры ( $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$ ,  $T = 4,2$  К).

На основании этих измерений можно утверждать, что в кристалле  $\text{Nd}_{0,75}\text{Dy}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$  происходит перестройка магнитной структуры под действием магнитного поля, т.е. для направления  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$  существует спин-переориентационный фазовый переход через промежуточную фазу при низких (4,2 К) и сверхнизких (1,7 К) температурах. В работах [9–14] предполагается, что в самой низкотемпературной области фазовой диаграммы существует легкоосная магнитная структура.

Для подтверждения этих выводов сделана попытка экспериментально обнаружить спектр АФМР и получить его частотно-полевые зависимости вдоль оси  $\mathbf{c}$ . На рис. 3 приведен вид спектра АФМР и его трансформация с изменением частоты в магнитном поле. Видно, что в поле до 15 кЭ наблюдаются две ветви колебаний, которые сходятся в нулевом магнитном поле при частоте возбуждения магновов 77,2 ГГц.

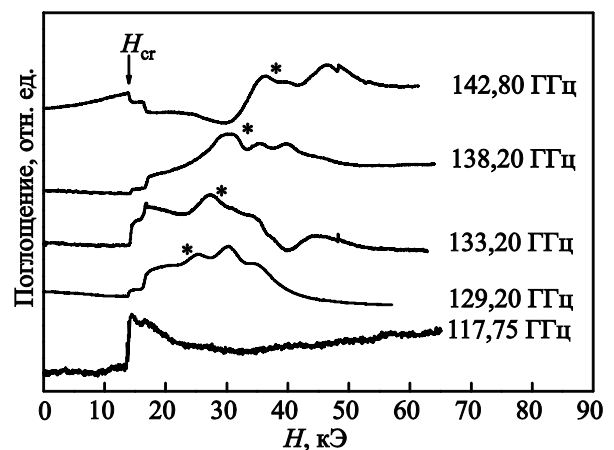


Рис. 4. Спектр АФМР кристалла  $\text{Nd}_{0,75}\text{Dy}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$  для магнитной структуры типа «легкая плоскость» ( $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$ ,  $T = 4,2$  К). Звездочками обозначены пики, использованные для построения частотно-полевой диаграммы на рис. 5, при  $H > 16$  кЭ.

В магнитных полях, отличных от нуля, ветви изменяют свои частоты прямо пропорционально напряженности внешнего магнитного поля.

Вид спектра АФМР в интервале полей, превышающих 16 кЭ, для  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$  показан на рис. 4. Наблюдаются очень широкие линии, структуру которых сложно интерпретировать. Отметим, что наши рассуждения справедливы для двухподрешеточного антиферромагнетика, тогда как реально система  $\text{Nd}_{0,75}\text{Dy}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$  многоподрешеточная, элементарная ячейка содержит магнитные ионы разных сортов. Такие факторы, как высокая частота возбуждения, большое количество подрешеток и возможное образование кластеров, может привести к наблюдению резонансных линий со сложной структурой.

Частотно-полевые зависимости для  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$  линейны и удовлетворительно описываются уравнением для одноосных антиферромагнетиков  $\omega_{1,2}/\gamma = \sqrt{2H_e H_a \pm H}$  (рис. 5). Это означает, что вектор антиферромагнетизма  $\mathbf{l} \parallel \mathbf{c}$ . Исходя из величины обменного взаимодействия (540 кЭ) и экспериментально найденной нами величины энергетической щели (77,2 ГГц), определена величина эффективной анизотропии  $H_A = 0,7$  кЭ.

Для ориентации магнитного поля вдоль оси  $\mathbf{a}$  ( $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a} \perp \mathbf{l}$ ) при температуре эксперимента 4,2 К обнаружена ветвь АФМР, которая квадратично зависит от величины внешнего магнитного поля. В нулевом поле энергия возбуждения АФМР равна 77,2 ГГц. Частотно-полевые зависимости этой моды показаны на рис. 5. Других резонансных полос не наблюдается, а поведение спектра АФМР в магнитном поле до 15 кЭ соответствует одноосной магнитной структуре с легкой осью анизотропии, параллельной главной оси кристалла (ось  $\mathbf{c}$ ).

Наблюдение спектра АФМР для одноосной магнитной структуры ограничено линией фазового перехода 3 на фазовой диаграмме (см. рис. 1).

В магнитных полях, больших 16 кЭ, при температуре 4,2 К обе ветви, характерные для коллинеарной одноосной структуры, исчезают, а вместо них появляется

ветвь с начальным расщеплением в нулевом магнитном поле 100,3 ГГц (рис. 5). Величина анизотропии, формирующая эту щель, равна 1,2 кЭ. Частота возбуждения ветви АФМР квадратично увеличивается с ростом магнитного поля.

Для магнитного поля ( $\mathbf{H} \perp \mathbf{c}$ ), лежащего в базисной плоскости, фазовый спин-переориентационный переход в доступных внешних полях при температуре 4,2 К отсутствует (рис. 2), поэтому и спектр АФМР не наблюдается.

Таким образом, как видно на рис. 5, в замещенном  $\text{Dy}^{3+}$  ферроборате  $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$  в диапазоне магнитных полей 15 кЭ  $> H >$  16 кЭ при  $T = 4,2$  К и ориентации  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$  наблюдаются сильно отличающиеся частотно-полевые зависимости АФМР, которые свидетельствуют об индуцированном магнитным полем спин-переориентационном фазовом переходе из легкоосного в легкоплоскостное магнитное состояние.

Согласно фазовой диаграмме, легкоосная магнитная структура сохраняется от 1,7 до 16 К. При повышении температуры до 16 К экспериментально наблюдается уменьшение поля спин-флоп перехода, что не характерно для одноосных антиферромагнетиков. При этом наблюдение АФМР осложняется, так как поле фазового перехода уменьшается с возрастанием температуры, а диапазон возбуждения мод АФМР сокращается.

Заметим, что критическое поле спин-флоп перехода может уменьшаться с возрастанием температуры вследствие уменьшения суммарной эффективной константы анизотропии соединения, что может свидетельствовать о неустойчивости коллинеарной фазы с ростом температуры, тогда как параллельная восприимчивость растет.

Известно [10–14], что в температурном диапазоне 16–26 К магнитная структура  $\text{Nd}_{0,75}\text{Dy}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$  не определена. Можно предположить, что это промежуточная фаза между двумя магнитными фазовыми переходами, хотя температурный интервал для промежуточной фазы немного больше обычного. В резонансных измерениях (температура 4,2 К) интервал по магнитному полю между двумя скачками всего 930 Э и вполне соответствует промежуточной фазе при фазовом переходе первого рода. К сожалению, антиферромагнитный резонанс не дает однозначного ответа на этот вопрос при температуре 16–26 К. В этом температурном интервале наблюдаются очень широкие линии, которые нельзя определить и построить частотно-полевые зависимости.

Мы считаем, что результаты работы [17] и наши резонансные измерения показывают, что при температуре 4,2 К и  $H = 0$  подсистема ионов  $\text{Fe}^{3+}$  находится в коллинеарной фазе. В резонансных измерениях при увеличении внешнего магнитного поля наблюдается двухступенчатая аномалия в виде резких скачков, которые совпадают по величине магнитного поля со скачками намагниченности. Согласно анализу, скачки обусловлены переходом из коллинеарной фазы во

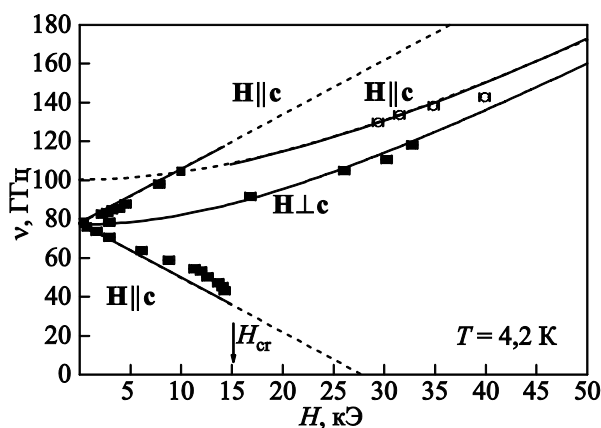


Рис. 5. Частотно-полевая диаграмма спектров АФМР кристалла  $\text{Nd}_{0,75}\text{Dy}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$  для легкоосной и легкоплоскостной магнитной структуры ( $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$  и  $\mathbf{H} \perp \mathbf{c}$ ,  $T = 4,2$  К).

флоп-фазу железной подсистемы и сопровождаются переориентацией магнитных моментов подрешеток ионов  $\text{Nd}^{3+}$  и  $\text{Dy}^{3+}$  вдоль направления поля  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$ .

Расчет магнитных фаз, выполненный в работе [17], и экспериментальные результаты подтверждают появление промежуточного состояния между коллинарной и флоп-фазой, которое реализуется в две стадии. Первый скачок связан с отклонением магнитных моментов железа от оси  $\mathbf{c}$  на угол порядка  $25^\circ$ – $30^\circ$ , при этом реализуется неколлинарная антиферромагнитная фаза. Второй скачок связан с переориентацией железной подсистемы из промежуточной фазы во флоп-фазу с переориентацией магнитных моментов подрешеток ионов  $\text{Nd}^{3+}$  и  $\text{Dy}^{3+}$ .

Причина появления такого промежуточного состояния — конкуренция вкладов в полную магнитную анизотропию железной и редкоземельной подсистем  $\text{Nd}_{0,75}\text{Dy}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ , поскольку анизотропия железной и неодимовой подсистем стабилизирует легкоплоскостную магнитную структуру, а диспрозиевая подсистема стабилизирует легкоосную структуру. При определенных величинах магнитного поля и значениях температуры системе энергетически выгодно ориентировать магнитные моменты железа под некоторым углом к оси  $\mathbf{c}$ . Высокая температура (20 К), образование доменов при фазовом переходе первого рода и отклонение магнитных моментов железа от главной магнитной оси  $25^\circ$ – $35^\circ$  — причина уширения резонансных линий АФМР.

При температуре 26 К (температура изменяется от 4,2 К до точки Нееля) происходит смена магнитного состояния в отсутствие магнитного поля и образование легкоплоскостной магнитной структуры кристалла  $\text{Nd}_{0,75}\text{Dy}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$  [9–14]. Спектры АФМР при ориентациях внешнего поля  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$  и  $\mathbf{H} \perp \mathbf{c}$  представлены на рис. 6. Для магнетика с анизотропией типа «легкая плоскость» при ориентации внешнего магнитного поля вдоль оси  $\mathbf{c}$  ( $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$ ) и температуре 28 К экспериментально наблюдается только одна антиферромагнитная мода с щелью  $\sim 73,15$  ГГц, которая с повышением частоты квадратично зависит от магнитного поля. Величина анизотропии, формирующая эту щель, равна 0,63 кЭ. Для магнитного поля ( $\mathbf{H} \perp \mathbf{c}$ ), лежащего в базисной плоскости, наблюдается квазиферромагнитная мода, линейно зависящая от магнитного поля  $H_0$  (рис. 7).

Качественно поведение частотно-полевых зависимостей спектра АФМР для температуры 28 К совпадает с поведением спектра АФМР при температуре 4,2 К, но с разными величинами энергии возбуждения магнонов, и характерно для магнитной структуры типа «легкая плоскость». Следовательно, наши резонансные измерения не противоречат результатам работы [12].

Рассмотрим резонансные свойства кристалла  $\text{Nd}_{0,75}\text{Dy}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$  в парамагнитной области. В области температур 38–40 К ( $T_N = 32$  К) для ориентации

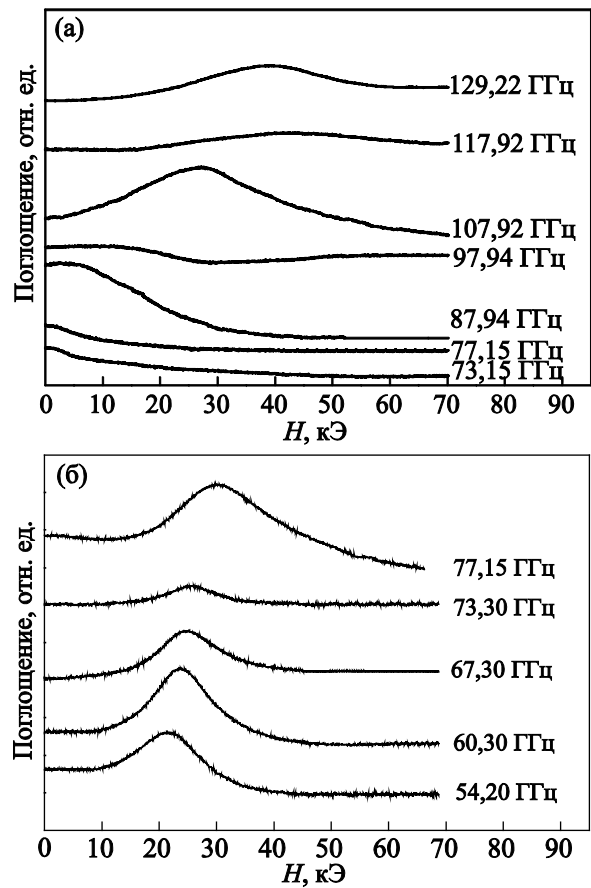


Рис. 6. Спектр АФМР кристалла  $\text{Nd}_{0,75}\text{Dy}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$  при  $T = 28$  К:  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$  (а) и  $\mathbf{H} \perp \mathbf{c}$  (б).

внешнего магнитного поля вдоль оси  $\mathbf{c}$  наблюдается широкая ( $\Delta H = 8,5$  кЭ) одиночная линия поглощения в спектре ЭПР ионов  $\text{Fe}^{3+}$  с  $g$ -фактором равным 2,40. Дальнейшее повышение температуры приводило к сужению линии поглощения и уменьшению величины  $g$ -фактора:  $g_c = 2,31$  при  $T = 50$  К. Только при температурах 77–90 К  $g_c$ -фактор становится равным 2,00. Вид спектра ЭПР для разных температур показан на рис. 8.

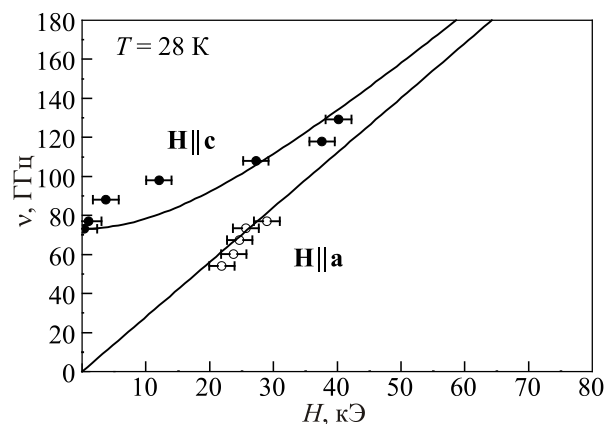


Рис. 7. Частотно-полевые зависимости спектра АФМР для магнитной структуры типа «легкая плоскость» соединения  $\text{Nd}_{0,75}\text{Dy}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$  при  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$  и  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}$ ,  $T = 28$  К.



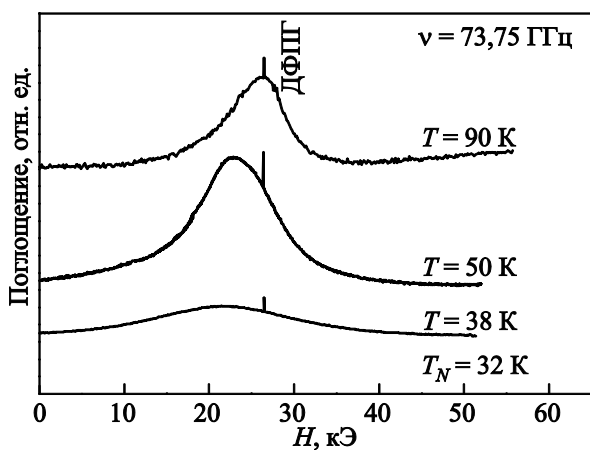


Рис. 8. Спектры ЭПР кристалла  $\text{Nd}_{0,75}\text{Dy}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$  при температурах 38, 50 и 90 К при  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$ .

В этом диапазоне температур измерение спектра ЭПР проводилось на частотах 73,75 и 129,2 ГГц и величины  $g$ -факторов совпадали.

Однако для ориентации внешнего магнитного поля вдоль оси  $\mathbf{a}$  и температуре 50 К ширина линии поглощения спектра ЭПР и величина  $g$ -фактора значительно меньше, чем для  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$ . Наблюдалась резонансная линия поглощения шириной  $\Delta H \sim 4$  кЭ и  $g = 2,21$  (рис. 9), тогда как в чистом  $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$  при температурах 50–60 К линия поглощения ионов  $\text{Fe}^{3+}$  соответствовала  $g = 2,00$  [15] (см. рис. 10). Таким образом, в одном диапазоне температур, но для разных магнитных осей, наблюдаются линии поглощения ЭПР ионов  $\text{Fe}^{3+}$  с различными величинами  $g$ -факторов:  $g_c = 2,31$ ,  $g_a = 2,21$ , отличными от чисто спинового состояния  $\text{Fe}^{3+}$ .

Причиной такого несоответствия, по-видимому, является примесь ионов  $\text{Dy}^{3+}$  в  $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$ , так как вклад диспрозиевой подсистемы в намагниченность в базисной плоскости и вдоль главной оси кристалла будет разным. Поскольку в элементарную ячейку

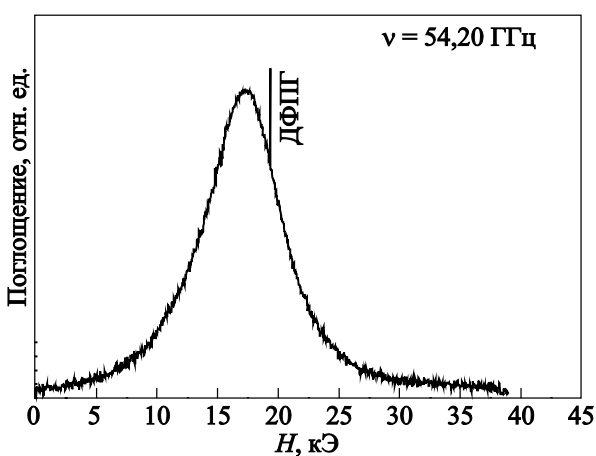


Рис. 9. Спектр ЭПР кристалла  $\text{Nd}_{0,75}\text{Dy}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$  при  $T = 50$  К и  $\mathbf{H} \perp \mathbf{c}$ .

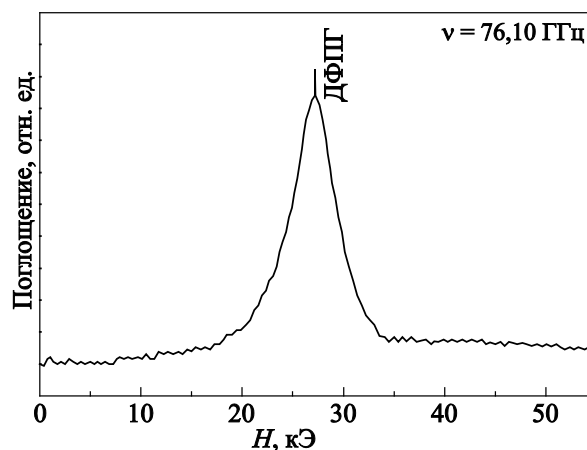


Рис. 10. Линия поглощения ЭПР кристалла  $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$  при  $T = 60$  К и  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$  [15].

$\text{Nd}_{0,75}\text{Dy}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$  входят магнитные ионы  $\text{Fe}^{3+}$ ,  $\text{Nd}^{3+}$  и  $\text{Dy}^{3+}$ , естественно предположить, что магнитные и динамические свойства будут определяться взаимодействиями  $\text{Fe}-\text{Fe}$ ,  $\text{Fe}-\text{R}$ . В парамагнитной области взаимодействиями  $\text{Nd}-\text{Nd}$  и  $\text{Dy}-\text{Dy}$  можно пренебречь. Влияние  $\text{Dy}^{3+}$ , который имеет малый ионный радиус, но очень большой магнитный момент, на колебания подсистемы ионов  $\text{Fe}^{3+}$  за счет поляризации будет сводиться к созданию дополнительного статического внутреннего поля, которое совместно с полем анизотропии определяет динамику железной подсистемы. Кроме того, ион  $\text{Fe}^{3+}$  обладает чисто спиновым состоянием с  $g = 2,00$ , поэтому по сдвигам резонансных линий железа в эксперименте можно судить об эффективных внутренних полях магнитных взаимодействий, создаваемых ионами  $\text{Dy}^{3+}$ , вдоль направлений  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$  и  $\mathbf{H} \perp \mathbf{c}$ .

Таким образом, исследовано влияние замещения ионов  $\text{Nd}^{3+}$  ионами  $\text{Dy}^{3+}$  на резонансные свойства  $\text{Nd}_{0,75}\text{Dy}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$  в упорядоченном и парамагнитном состояниях. При помощи метода АФМР обнаружены и изучены магнитные спин-переориентационные фазовые переходы и частотно-полевые зависимости спектра АФМР, обусловленные замещением. Показано, что в резонансных измерениях внешним магнитным полем индуцируется спин-переориентационный фазовый переход «легкая ось»–«легкая плоскость» в виде двухступенчатой аномалии. Эта аномалия связана с наличием промежуточного состояния (неколлинеарная антиферромагнитная фаза) между коллинеарной и спин-флоп фазой в полях  $H_1 = 14,920$  кЭ и  $H_2 = 15,850$  кЭ при температуре 4,2 К. Магнитный фазовый переход — следствие конкуренции обменных взаимодействий  $\text{Nd}-\text{Fe}$ ,  $\text{Dy}-\text{Fe}$ . Уменьшение величины полей перехода с ростом температуры свидетельствует о неустойчивости коллинеарной фазы, тогда как параллельная восприимчивость растёт.

Для ориентации внешнего магнитного поля вдоль оси  $c$  при температуре 4,2 К частотно-полевые зависимости спектра АФМР в интервале полей до 15 кЭ соответствуют одноосной магнитной структуре с щелью в спектре спиновых возбуждений 77,2 ГГц, в полях больших 16 кЭ — легкоплоскостной с энергетической щелью 100,3 ГГц. При высоких температурах (28 К), когда фазовый переход по магнитному полю отсутствует, спектр АФМР ( $\mathbf{H}\perp\mathbf{c}$ ,  $\mathbf{H}\parallel\mathbf{c}$ ) и его частотные зависимости характерны для магнитной структуры с анизотропией типа «легкая плоскость». Величины щелей возбуждения магнов соединения  $\text{Nd}_{0,75}\text{Dy}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$  обусловлены совместным действием анизотропии железной и редкоземельной подсистем как для легкоосной, так и легкоплоскостной магнитной структуры.

В парамагнитной области влияние замещения ионами  $\text{Dy}^{3+}$  на Fe-подсистему кристалла  $\text{Nd}_{0,75}\text{Dy}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$  за счет поляризации приводит к возникновению дополнительного статического внутреннего поля, которое сдвигает резонансное поле линии поглощения ЭПР ионов  $\text{Fe}^{3+}$  и проявляется в изменении величины  $g$ -фактора в большом интервале температур. Только при температурах порядка 90 К наблюдается чистая резонансная линия ионов  $\text{Fe}^{3+}$  с  $g = 2,00$ .

Авторы выражают благодарность Г.А. Звягиной за полезные обсуждения работы.

1. А.К. Звездин, С.С. Кротов, А.М. Кадомцева, Г.П. Воробьев, Ю.Ф. Попов, А.П. Пятаков, Л.Н. Безматерных, Е.Н. Попова, *Письма в ЖЭТФ* **81**, 335 (2005).
2. А.К. Звездин, Г.П. Воробьев, А.М. Кадомцева, Ю.Ф. Попов, А.П. Пятаков, Л.Н. Безматерных, А.В. Кувардин, Е.А. Попова, *Письма в ЖЭТФ* **83**, 600 (2006).
3. А.Н. Васильев, Е.А. Попова, *ФНТ* **32**, 968 (2006) [*Low Temp. Phys.* **32**, 735 (2006)].
4. H. Schmid, *Ferroelectrics* **162**, 317, (1994).
5. Е.А. Попова, Н.А. Тристан, Х. Хесс, Р. Клингелер, Б. Бюхнер, Л.Н. Безматерных, В.Л. Темеров, А.Н. Васильев, *ЖЭТФ* **132**, 121 (2006).
6. Е.А. Popova, Е.Р. Chukalina, Т.Н. Stanislavchuk, and L.N. Bezmaternykh, *J. Magn. Magn. Mater.* **300**, 440 (2006).
7. Е.А. Popova, D.V. Volkov, A.N. Vasiliev, A.A. Demidov, N.P. Kolmakova, I.A. Gudim, L.N. Bezmaternykh, N. Tristan, Yu. Skourski, B. Büchner, C. Hess, and R. Klingeler, *Phys. Rev. B* **75**, 224413 (2007).
8. C. Ritter, A. Balaev, A. Vorotynov, G. Petrakovskii, D. Velikanov, V. Temerov, and I. Gudim, *J. Phys.: Condens. Matter* **19**, 196227 (2007).
9. Ю.Ф. Попов, А.М. Кадомцева, Г.П. Воробьев, Ф.Ф. Мухин, В.Ю. Иванов, А.М. Кузьменко, А.С. Прохоров, Л.Н. Безматерных, В.Л. Темеров, *Письма в ЖЭТФ* **89**, 405 (2009).
10. I.A. Gudim, E.V. Eremin, and V.L. Temerov, *arXiv: 0906.2250* (2009).
11. Ф.М. Кузьменко, А.А. Мухин, В.Ю. Иванов, А.М. Кадомцева, Л.Н. Безматерных, В.Л. Темеров, *Труды НМММ-21*, Москва, 28.06–4.07 (2009), с. 958.
12. Г.А. Звягина, К.Р. Жеков, И.В. Билыч, А.А. Звягин, Л.Н. Безматерных, И.А. Гудим, *ФНТ* **36**, 352 (2010) [*Low Temp. Phys.* **36**, 279 (2010)].
13. А.И. Панкрац, Г.А. Петраковский, Л.Н. Безматерных, В.Л. Темеров, *ФТТ* **50**, 77 (2008).
14. А.М. Кузьменко, А.А. Мухин, В.Ю. Иванов, А.М. Кадомцева, С.П. Лебедев, Л.Н. Безматерных, *ЖЭТФ* **140**, 131 (2011).
15. M.I. Kobets, K.G. Dergachev, E.N. Khatsko, S.L. Gnatchenko, L.N. Bezmaternykh, and V.L. Temerov, *Physica B* **406**, 3430 (2011).
16. I.N. Bezmaternykh, V.I. Temerov, I.A. Gudim, and N.A. Stolbovaya, *Cryst. Rep.* **50**, 97 (2005).
17. А.А. Демидов, И.А. Гудим, Е.В. Еремин, *ЖЭТФ* **141**, 294 (2012).

### AFM resonance study into magnetic structure of $\text{Nd}_{0,75}\text{Dy}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$

M.I. Kobets, K.G. Dergachev, E.N. Khatsko, S.L. Gnatchenko, L.N. Bezmaternykh, and I.A. Gudim

The influence of substitution of  $\text{Dy}^{3+}$  ions for  $\text{Nd}^{3+}$  ones on the magnetic properties of the  $\text{Nd}_{0,75}\text{Dy}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$  single crystal was investigated. The resonance studies were carried out in a wide range of frequencies 40–145 GHz and external magnetic fields 0–75 kOe. We have detected a magnetic spin-reorientation easy axis–easy plane phase transition magnetic field  $H_{\text{cr}} = 15.85$  kOe and studied the frequency-field dependence of the AFMR spectrum before and after the phase transition, at  $T = 4.2$  K. The resonance spectra observed along the direction of  $\mathbf{H}\parallel\mathbf{c}$  are antiferromagnetic resonance modes of iron at a  $T = 4.2$  K. Their frequency-field dependences correspond to the easy-axis ( $H < 15$  kOe) and easy-plane ( $H > 16$  kOe) magnetic structures with energy gaps of magnon excitation of 77.2 and 100.3 GHz, respectively. The effective magnetic anisotropy, that forms these energy gaps is equal to 0.7 and 1.2 kOe. The doping  $\text{Dy}^{3+}$  ions of the  $\text{Nd}_{0,75}\text{Dy}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$  single crystal produce to a static internal field, which shifts the resonance field of the ESR absorption line and changes the value of  $g$  factor of the  $\text{Fe}^{3+}$  ions due to polarization in the paramagnetic region.

PACS: 75.50.Ee Antiferromagnetics;  
**76.50.+g** Ferromagnetic, antiferromagnetic, and ferrimagnetic resonances; spin-wave resonance;  
**76.30.-v** Electron paramagnetic resonance and relaxation.

Keywords: antiferromagnetic, resonance, multiferroics, electron paramagnetic resonance.