

УДК 537.61

НАМАГНІЧЕНІСТЬ ТА ГІРОМАГНІТНЕ ВІДНОШЕННЯ В Ga- ТА Al-ЗАМІЩЕНОМУ ФЕРОГРАНАТІ $Tm_3Fe_5O_{12}$

І. Сиворотка

Науково-виробниче підприємство "Карат"
вул. Стрийська, 202, 79031 Львів, Україна
igor@carat.lviv.ua

Розраховано концентраційні та температурні залежності намагніченості й ефективного гіромагнітного відношення в Ga- та Al-заміщеному ферогранаті $Tm_3Fe_5O_{12}$. Використано модель Нееля теорії молекулярного поля Вейса та враховано функції розподілу йонів Ga і Al по підгратках гранату. З'ясовано, що компенсація магнітного моменту та компенсація моменту імпульсу у ферогранаті $Tm_3Fe_{5-x}Al_xO_{12}$ відбуватись не буде. Визначено концентрацію Ga, для якої за кімнатної температури в тулієвому ферогранаті відбувається компенсація моменту імпульсу,

Ключові слова: гіромагнітне відношення, намагніченість, ферогранат.

Уперше можливість технічного застосування синтетичних кристалів ферогранатів привернула увагу дослідників завдяки унікальним надвисокочастотним (НВЧ) властивостям залізо-ітрієвого гранату (ЗІГ). Дослідження спінових збуджень у ЗІГ засвідчили, що пристрої електронної техніки можна побудувати на принципі поширення магнітостатичних хвиль (МСХ) [1–4], тобто хвилеподібного поширення коливань магнітного моменту в середовищі. Власні частоти магнітних коливань перекривають широкий діапазон спектра від $3 \cdot 10^8$ до 10^{11} Гц і, отже, охоплюють весь діапазон НВЧ. Для цього необхідні порівняно великі розміри кристала і малий рівень втрат НВЧ енергії. Тому значні зусилля були прикладені для розвитку технології епітаксійних плівок ферогранатів [1, 5].

Поширення МСХ описують рівнянням руху намагніченості (рівняння Ландау–Ліфшица у формі Гільберта) [1, 8]:

$$\frac{\partial M}{\partial t} = -\gamma[M, H] + \frac{\alpha}{M} \left[M, \frac{\partial M}{\partial t} \right], \quad (1)$$

де M – намагніченість, H – магнітне поле, α – параметр загасання Гільберта, γ – гіромагнітне відношення.

Намагніченість насичення визначає область існування спінових типів коливань. Наприклад, монокристалічні плівки ферогранатів з намагніченістю насичення $4\pi M_s$ в діапазоні 300–2 100 Гс дають змогу створювати пристрої в діапазоні частот 0,2–15,0 ГГц

[4]. Швидкодія пристроїв буде визначена ефективним значенням гіромагнітного відношення [6]. Отже, дослідження залежності намагніченості та гіромагнітного відношення від складу ферогранату та температури є актуальним завданням.

Магнітна структура ферогранатів є три-підгратковою феромагнітною (де катіони містяться в додекаедричних, октаедричних та тетраедричних кисневих поліедрах). Якщо в ферогранаті містяться магнітні швидкорелаксувальні рідкісноземельні йони, то ефективне значення гіромагнітного відношення в ферогранаті визначається формулою Кіттеля [6–8]:

$$\gamma = \gamma_0 \frac{M_R + M_{Fe}}{M_{Fe}}, \quad (2)$$

де γ_0 – гіромагнітне відношення йонів заліза; M_R – сумарний магнітний момент рідкісноземельних йонів; M_{Fe} – сумарний магнітний момент йонів заліза. З формули (2) випливає, що в точці компенсації моменту імпульсу, де $M_{Fe}=0$ і $M_R \neq 0$, гіромагнітне відношення змінюється від $-\infty$ до $+\infty$.

Магнітні моменти підграток і намагніченість насичення розраховували в рамках моделі Нееля теорії молекулярного поля Вейса, яку згодом розвинув Дж. Діоне [9–12]. Сумарна намагніченість підграток

$$M_s = |M_a + M_c - M_d|, \quad (3)$$

де намагніченість кожної підгратки за температури T може бути виражена через функцію Брілюена:

$$M_i(T) = M_i(0)B_i(Z_i); \quad (4)$$

$$B_i(Z_i) = \frac{(2J_i + 1)}{2J_i} \operatorname{cth}\left(\frac{2J_i + 1}{2J_i} Z_i\right) - \frac{1}{2J_i} \operatorname{cth}\left(\frac{Z_i}{2J_i}\right); \quad (5)$$

$$Z_i = \frac{g_i \mu_B J_i}{k_B T} \sum N_{ij} M_j(T), \quad (6)$$

де $i, j = a$ – октаедрична; d – тетраедрична; c – додекаедрична під гратки; $M_i(T)$ та $M_i(0)$ – намагніченості i -ї підгратки за абсолютної температури T і $T = 0$, відповідно; N_{ij} – коефіцієнти молекулярного поля; g та J_i – фактор Ланде та спінові числа для i -ї під гратки; k_B – стала Больцмана.

Намагніченості за $T = 0$ К визначені співвідношеннями

$$M_a(0) = g_a \mu_B J_a N_A (2 - x) C_a(y); \quad (7)$$

$$M_d(0) = g_d \mu_B J_d N_A (3 - y) C_d(x); \quad (8)$$

$$M_c(0) = 3g_c \mu_B J_c N_A, \quad (9)$$

де N_A – число Авагадро; x і y – діаманітні заміщення в октаедричній та тетраедричній підгратках заліза в одиницях на формулу; $C_a(y)$ та $C_d(x)$ – емпіричні функції, які враховують ефекти заміщення в підгратках гранату на намагніченість за 0 К [10,11,13]:

$$C_a(y) = 1 - \alpha \left(\frac{y}{3} \right)^6; \quad (10)$$

$$C_d(x) = 1 - 70.02x - 2 \left(\frac{x}{2} \right)^4 \quad (11)$$

де $\alpha = 2,2$ для Ga и Sc, $\alpha = 1,6$ для Al.

Розв'язок системи рівнянь типу (4) дає значення намагніченостей підграток ферогранату за температури T , а з використанням (3), можна визначити сумарну намагніченість підграток. Для розрахунку необхідно враховувати залежність коефіцієнтів молекулярного поля від ступеня заміщення магнітних іонів у підгратках гранату. Залежність коефіцієнтів молекулярного поля від заміщень у підгратках описує вираз [11, 14]

$$N_{ij}(x, y) = N_{ji}(x, y) = N_{ij}(0)F_{ij}(x, y), \quad (12)$$

де $i, j = a, d$, а функції $F_{ij}(x, y)$ мають вигляд

$$F_{ad} = 1 - a(y + x) - b(y + 3x)^2; \quad (13)$$

$$F_{aa} = \left(1 - \frac{y}{3} \right) (1 - cy + dy^2); \quad (14)$$

$$F_{dd} = \left(1 - \frac{x}{2} \right) (1 + ex)^2, \quad (15)$$

де x і y – вміст діаманітних іонів в окта- і тетраедричній підгратці, відповідно, а коефіцієнти $a-e$ – з [11].

Для зведення намагніченостей до розмірності [Гс] необхідно помножити їх на $4\pi \frac{\rho}{M_{\text{garnet}}}$, де ρ – густина ферогранату; M_{garnet} – його молекулярна маса. Густина можна розрахувати, використовуючи вираз

$$\rho = 1,66054 \frac{8M_{\text{garnet}}}{a^3}, \quad (16)$$

де a – параметр гратки ферогранату.

Параметра кристалічної гратки матеріалу ферогранату розраховують головню за методом, описаним у [15]. Цей метод дає змогу виконувати розрахунки для складних хімічних композицій гранатів і є достатньо точним, оскільки розбіжність між розрахунком і експериментальним значеннями не перевищує 0,01 Å [15].

Параметр кристалічної ґратки гранату із загальною формулою $\{C_{3-x}C1_x\}[A_{2-y}Al_y](D_{3-z}D1_z)O_{12}$ обчислюють за виразом

$$a = b_1 + b_2 r^{VIII} + b_3 r^{VI} + b_4 r^{IV} + b_5 r^{VIII} r^{VI} + b_6 r^{VIII} r^{IV}, \quad (17)$$

де

$$b_1 = +7.02954$$

$$b_2 = +3.31277$$

$$b_3 = +2.49398$$

$$b_4 = +3.34124$$

$$b_5 = -0.87758$$

$$b_6 = -1.38777$$

r^{VIII} , r^{VI} та r^{IV} – усереднені іонні радіуси для додекаедричних, октаедричних та тетраедричних позицій, і розраховують так:

$$r^{VIII} = r_C^{VIII} + \frac{x}{3} (r_{C1}^{VIII} - r_C^{VIII}); \quad (18)$$

$$r^{VI} = r_A^{VI} + \frac{y}{2} (r_{A1}^{VI} - r_A^{VI}); \quad (19)$$

$$r^{IV} = r_D^{IV} + \frac{z}{3} (r_{D1}^{IV} - r_D^{IV}), \quad (20)$$

де r_C^{VIII} , r_{C1}^{VIII} , r_A^{VI} , r_{A1}^{VI} , r_D^{IV} , r_{D1}^{IV} – іонні радіуси відповідних елементів у додекаедричних, октаедричних та тетраедричних позиціях.

Залежність вмісту Ga та Al у тетраедричних позиціях ферогранату z_d від їхнього загального вмісту z одиниць на формулу граната [16]

$$z_d = (0.97 - 0.07 \cdot z) \cdot z, \text{ для Ga}; \quad (21)$$

$$z_d = \frac{1}{0.215 \cdot z + 1} \cdot z, \text{ для Al}. \quad (22)$$

Тоді вміст цих іонів в октаедричних позиціях $z_a = z - z_d$.

Значення іонних радіусів елементів, які можуть бути у ферогранаті, взята з [17].

Серед швидкорелаксувальних магнітних рідкісноземельних іонів найменше загасання мають іони Tm^{3+} , отже, пристрої на основі епітаксійних плівок тулівих ферогранатів мають найбільшу швидкодію [18]. Тому для дослідження впливу заміщення йонів заліза йонами Ga та Al на намагніченість насичення та гіромагнітне відношення вибрано ферогранат $Tm_3Fe_5O_{12}$. У праці [19] досліджено вплив Ga на гіромагнітне відношення в тулівому гранаті, проте автори у розрахунках не враховували функції розподілу Ga по підґратках (21).

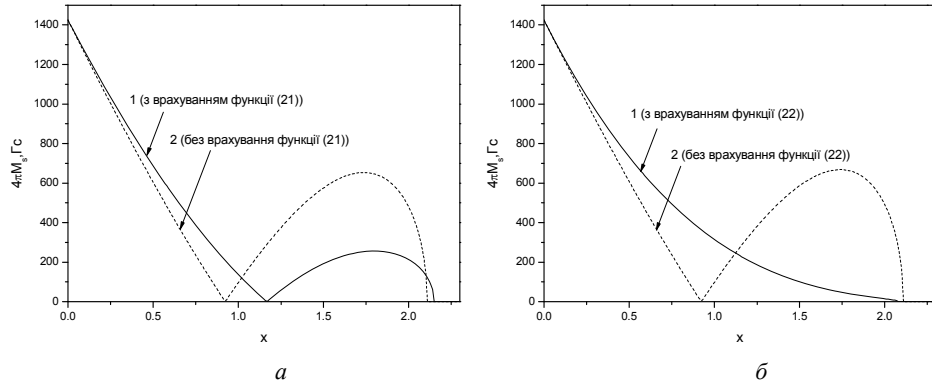


Рис. 1. Концентраційні залежності намагніченості ферогранату $Tm_3Fe_{5-x}Me_xO_{12}$ за кімнатної температури для $Me = Ga$ (а) та $Me = Al$ (б)

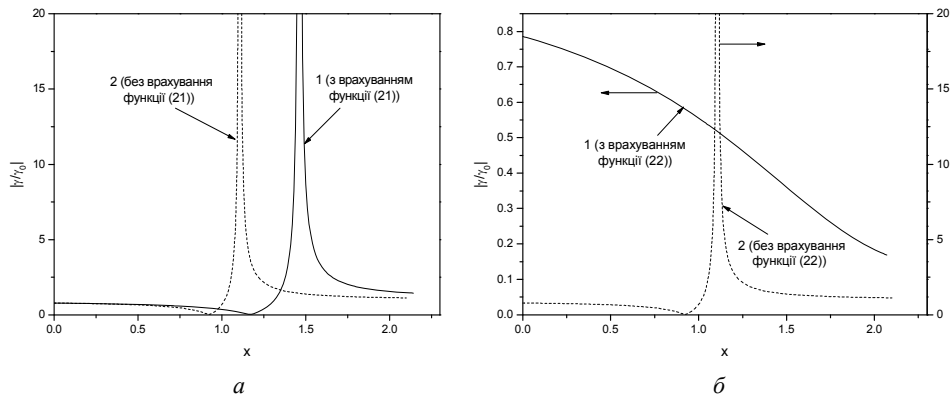


Рис. 2. Концентраційні залежності ефективного гіромагнітного відношення в ферогранаті $Tm_3Fe_{5-x}Me_xO_{12}$ за кімнатної температури для $Me = Ga$ (а) та $Me = Al$ (б)

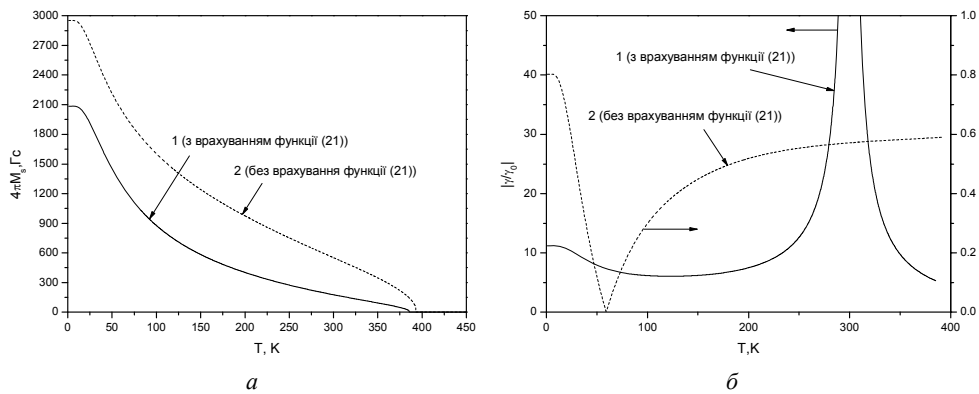


Рис. 3. Температурні залежності намагніченості (а) та ефективного гіромагнітного відношення (б) в ферогранаті $Tm_3Fe_{3,54}Ga_{1,46}O_{12}$ за кімнатної температури

На рис. 1, *а* показані залежності намагніченості ферогранату $Tm_3Fe_{5-x}Ga_xO_{12}$ від концентрації Ga з урахуванням функції розподілу (21) (крива 1) та без урахування функції розподілу (крива 2), а на рис. 1, *б* – залежності намагніченості ферогранату $Tm_3Fe_{5-x}Al_xO_{12}$ від концентрації Al з урахуванням функції розподілу (22) (крива 1) та без урахування функції розподілу (крива 2).

Як бачимо з рис. 1, без урахування функцій розподілу (криві 2) іони Ga та Al мають однаковий вплив на намагніченість ферогранату і компенсація магнітного моменту відбувається за однакових концентрацій Ga та Al ($x=0,92$). У випадку врахування функцій розподілу в ферогранату $Tm_3Fe_{5-x}Ga_xO_{12}$ компенсація магнітного моменту відбувається при $x=1,17$ (див. рис. 1, *а*, крива 2), а в ферогранаті $Tm_3Fe_{5-x}Al_xO_{12}$ компенсації магнітного моменту нема у всьому діапазоні концентрацій Al (див. рис. 1, *б*, крива 2). Крім того, не враховуючи функції розподілу, магнітне впорядкування у тулієвому ферогранаті зникає за однакових концентрацій Ga та Al ($x=2,11$), а з урахуванням функцій розподілу магнітне впорядкування зникає за вищих концентрацій Ga ($x=2,15$) та нижчих концентрацій Al ($x=2,08$).

Під час дослідження одержаних концентраційних залежностей ефективного гіромагнітного відношення (рис. 2) з'ясовано, що в разі врахування функцій розподілу компенсація моменту імпульсу відбувається за концентрацій Ga $x=1,46$, а для Al-заміщеного тулієвого ферогранату не відбувається взагалі. Без урахування функцій розподілу характер концентраційних залежностей ефективного гіромагнітного відношення не залежить від типу йона (криві 2 на рис. 2).

Для значення $x=1,46$ концентрації Ga, для якого за кімнатної температури в тулієвому ферогранаті виникає компенсація моменту імпульсу, розраховані температурні залежності намагніченості (див. рис. 3, *а*, крива 2) та ефективного гіромагнітного відношення (див. рис. 3, *б*, крива 2). Для порівняння на рис. 3 (криві 1) показано температурні залежності намагніченості та γ , які розраховували для $Tm_3Fe_{3,54}Ga_{1,46}O_{12}$ без урахування функції розподілу. Як бачимо, характери цих залежностей суттєво відрізняються.

Отже, з виконаних розрахунків випливає, що врахування функцій розподілу іонів у ферогранаті по підгратках є обов'язковим. З'ясовано, що компенсація магнітного моменту та компенсація моменту імпульсу у ферогранаті $Tm_3Fe_{5-x}Al_xO_{12}$ відбуватись не буде. З урахуванням функцій розподілу йонів Ga по підгратках розраховано склад ферогранату – $Tm_3Fe_{3,54}Ga_{1,46}O_{12}$, у якому за кімнатної температури виникає компенсація моменту імпульсу.

1. Wigen P.E. Microwave properties of magnetic garnet films // Thin Solid Films. 1984. Vol. 114. N 1/2. P. 135–186.
2. Гуревич А.Г., Мелков Г.А. Магнитные колебания и волны. М.: Наука, 1994. 463 с.
3. Ющук С.И. Монокристаллические феррогранатовые пленки для микроволновой электроники // Технология и конструирование в электронной аппаратуре. 1998. № 1. С. 35–38.
4. Яковлев Ю.М., Генделев С.Ш. Монокристаллы ферритов в радиоэлектронике. М.: Сов. Радио, 1975. 360 с.
5. Ющук С.И. Структура і властивості феритових плівок і феритів для приладів функціональної електроніки. Дис. докт. техн. наук. Львів, 1999. 373 с.

6. Эшенфельдер А. Физика и техника цилиндрических магнитных доменов. М.: Мир, 1983. 496 с.
7. Куммель Ч. Введение в физику твердого тела. М.: Наука, 1978. 792 с.
8. Гуревич А.Г. Магнитный резонанс в ферритах и антиферромагнетиках. М.: Наука, 1973. 592 с.
9. Brandle C.D., Blank S.L. Magnetic moments for mixed substituted rare earth iron garnets // IEEE Transactions on Magnetism. 1976. Vol. MAG-12. N 1. P. 14–18.
10. Dionne G.F. Molecular-field coefficients of rare-earth iron garnets // J. Appl. Phys. 1976. Vol. 47. N 9. P. 4220–4221.
11. Roschmann P., Hansen P. Molecular field coefficients and cation distribution of substituted yttrium iron garnets // J. Appl. Phys. 1981. Vol. 52. N 10. P. 6257–6269.
12. Hansen P., Klages C.-P., Witter K. Magnetic and magneto-optical properties of praseodymium- and bismuth-substituted yttrium iron garnet films // J. Appl. Phys. 1986. Vol. 60. N 2. P. 721–727.
13. Dionne G.F. Molecular field coefficients of substituted yttrium iron garnets // J. Appl. Phys. 1970. Vol. 41. N 12. P. 4874–4881.
14. Hansen P., Witter K., Tolksdorf W. Magnetic and magneto-optical properties of bismuth-substituted gadolinium iron garnet films // Phys. Rev. B. 1983. Vol. 27. N 7. P. 4375–4383.
15. Stroocka B., Holst P., Tolksdorf W. An empirical formula for the calculation of lattice constants of oxide garnets based on substituted yttrium – and – gadolinium – iron garnets // Philips J. res. 1978. Vol. 33. P. 988–203.
16. Фалилеев Г.Н. Температура компенсации и температурный ход спонтанной намагниченности многокомпонентных редкоземельных феррит-гранатов с замещением в двух подрешётках // Электронная техника. Сер. Материалы. 1983. № 2(175). С. 26–32.
17. Shannon R.D. Revised effective ionic radii and systematic studies of interatomic distances in halides and chalcogenides // Acta Cryst. 1976. Vol. 32. P. 751–767.
18. Рандошкин В.В., Червоненкис А.Я. Прикладная магнитооптика. М.: Энергоатомиздат, 1990. 320 с.
19. Рандошкин В.В., Спажакин А.В., Сысоев Н.Н., Базиленко В.А. Гиромангнитное отношение в феррит-гранате $Tm_3(Fe,Ga)5O_{12}$ // Вестн. Моск. ун-та. Сер. 3. Физика. Астрономия. 2005. № 2. С. 52–55.

MAGNETIZATION AND GYROMAGNETIC RATIO IN Ga AND Al- DOPED FERROGARNET $Tm_3Fe_5O_{12}$ **I. Syvorotka**

*Scientific Research Company "Carat"
Department of Crystal Physics and Technology
Stryjska Str., 202, UA-79031 Lviv, Ukraine
igor@carat.lviv.ua*

Concentration and temperature dependence of magnetization and effective gyromagnetic ratio in Ga and Al- doped ferrogarnet $Tm_3Fe_5O_{12}$ was calculation. Neel model of Weiss molecular field theory with allowance for distribution functions of Ga and Al by sublattice in garnet has been used. Established the compensation of moment of momentum and compensation of magnetic moment in ferrogarnet $Tm_3Fe_{5-x}Al_xO_{12}$ don't observe. Ga concentration in Tm-garnet with room temperature compensation of moment of momentum has been determinate.

Key words: gyromagnetic ratio, magnetization, ferrogarnet.

НАМАГНІЧЕННІСТЬ І ГИРОМАГНІТНОЕ ОТНОШЕНИЕ В Ga- И Al-ЗАМЕЩЁННОМ ФЕРРОГРАНАТЕ $Tm_3Fe_5O_{12}$ **И. Сыворотка**

*Научно-производственное предприятие "Карат"
ул. Стрыйская, 202, 79031 Львов, Украина
igor@carat.lviv.ua*

Рассчитаны концентрационные и температурные зависимости намагниченности и эффективного гиромагнитного отношения в Ga- и Al-замещённом феррогранате $Tm_3Fe_5O_{12}$. Использовано модель Нееля теории молекулярного поля Вейса и учтано функции распределения ионов Ga и Al по подрешеткам граната. Установлено, что компенсация магнитного момента и компенсация момента импульса в феррогранате $Tm_3Fe_{5-x}Al_xO_{12}$ происходить не будет. Определено концентрацию Ga, для которой при комнатной температуре в тулиевом феррогранате имеет место компенсация момента импульса.

Ключевые слова: гиромагнитное отношение, намагниченность, феррогранат.

Стаття надійшла до редколегії 15.05.2009

Прийнята до друку 30.06.2009