## Антиферромагнитный резонанс в кристалле $GdCr_3(BO_3)_4$

## А.Н. Блудов, Ю.А. Савина, М.И. Кобец, В.А. Пащенко, С.Л. Гнатченко

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

## Н.Н. Кузьмин, В.В. Мальцев, Н.И. Леонюк

Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова, г. Москва, 119991, Россия

Статья поступила в редакцию 19 февраля 2018 г., опубликована онлайн 27 марта 2018 г.

Проведены экспериментальные исследования АФМР в монокристалле  $GdCr_3(BO_3)_4$  в диапазоне частот 17–38 ГГц при температуре 4,2 К. Определена величина энергетической щели в спектре спиновых волн (25,5 $\pm$ 0,5) ГГц. Показано, что высокочастотные свойства гадолиниевого хромобората хорошо описываются в рамках модели двухподрешеточного антиферромагнетика с анизотропией типа «легкая плоскость».

Проведено експериментальні дослідження АФМР в монокристалі  $GdCr_3(BO_3)_4$  в діапазоні частот 17–38 ГГц при температурі 4,2 К. Визначено величину енергетичної щілини у спектрі спінових хвиль (25,5 $\pm$ 0,5) ГГц. Показано, що високочастотні властивості гадолінієвого хромоборату добре описуються в рамках моделі двохпідграткового антиферомагнетику з анізотропією типу «легка площина».

PACS: 75.50.Ее Антиферромагнетики;

76.50.+g Антиферромагнитный резонанс.

Ключевые слова: гадолиниевый хромоборат, антиферромагнетик, антиферромагнитный резонанс.

Гадолиний-хромовый борат GdCr<sub>3</sub>(BO<sub>3</sub>)<sub>4</sub> принадлежит к семейству боратов с общей химической формулой RM<sub>3</sub>(BO<sub>3</sub>)<sub>4</sub> (где R — лантаноид или Y, а М — Al, Ga, Sc, Fe или Cr), представители которого привлекают внимание исследователей на протяжении нескольких десятилетий [1-5]. Такой интерес обусловлен их необычными оптическими, магнитными и магнитоэлектрическими свойствами. Редкоземельно-хромовые представители довольно хорошо исследованы при помощи рамановской и ИК спектроскопии [6,7]. Также опубликованы некоторые сведения о магнитных и оптических свойствах самариевого [8], неодимового [8,9] и европиевого [10] боратов этой группы. Магнитная восприимчивость монокристалла GdCr<sub>3</sub>(BO<sub>3</sub>)<sub>4</sub> проанализирована в работе [11]. Магниторезонансные же свойства редкоземельно-хромовых боратов остаются практически неизученными, несмотря на то, что резонансная методика с успехом применялась при исследовании редкоземельных ферроборатов [12–14].

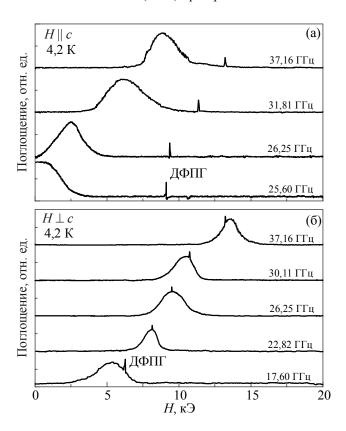
Соединение  $GdCr_3(BO_3)_4$  имеет кристаллическую структуру минерала хантита  $CaMg_3(CO_3)_4$  с пространственной группой R32 и параметрами: a=9,482(7) Å и c=7,482(5) Å, Z=3 [6,7]. В работе [11] было показано, что гадолиниевый хромоборат упорядочивается антиферромагнитно при  $T_N=7$  K, а при T>10 K его магнитные свойства изотропны, что характерно для ионов  $\operatorname{Cr}^{3+}$  и  $\operatorname{Gd}^{3+}$ , g-факторы которых близки к g=2,00. Также было обнаружено проявление низкой размерности в магнитной восприимчивости кристалла. Сделано предположение, что для  $\operatorname{GdCr_3(BO_3)_4}$  характерна магнитная анизотропия типа «легкая плоскость».

Цель данной работы — исследование магнитного резонанса в монокристалле GdCr<sub>3</sub>(BO<sub>3</sub>)<sub>4</sub> в магнитоупорядоченном состоянии, определение величины щели в спектре спиновых волн и эффективного *g*-фактора, а также по данным о частотно-полевой зависимости (ЧПЗ) мод антиферромагнитного резонанса (АФМР) сделать вывод о типе магнитной анизотропии в этом соединении.

Инконгруэнтно плавящиеся кристаллы  $GdCr_3(BO_3)_4$  получены из раствора в расплаве в результате спонтанного зародышеобразования по методике, описанной в работе [6]. Исследуемый образец представляет собой монокристалл черного цвета с естественной огранкой и размерами порядка  $1\times1\times1$  мм. Никакой дополнительной обработки (термической или механической) образца не проводилось. Ориентация кристаллографических осей образца определялась методом Лауэ.

Исследования полевых зависимостей спектров АФМР в монокристалле  $GdCr_3(BO_3)_4$  проводились в частотном диапазоне  $17{\text -}38$  ГГц на стандартном спектрометре при температуре  $4{,}2$  К. В качестве активного элемента в спектрометре использовался прямоугольный резонатор с волной  $H_{01n}$ . В экспериментах использовалась как параллельная ( $\mathbf{H}|\mathbf{h}$ ), так и перпендикулярная ( $\mathbf{H}\perp\mathbf{h}$ ) поляризация магнитного поля ( $\mathbf{h}$ ) СВЧ излучения. Получены спектры АФМР для двух ориентаций внешнего магнитного поля: вдоль кристаллографической оси c (H|c) и перпендикулярно ей ( $H\perp c$ ). Погрешность ориентации образца составляла не более  $0{,}5^{\circ}$ .

На рис. 1 представлена серия спектров поглощения СВЧ излучения в монокристалле  $GdCr_3(BO_3)_4$  на частотах от 17 до  $38\ \Gamma\Gamma u$  ( $\mathbf{H} \perp \mathbf{h}$ ) при ориентациях внешне-



*Puc. 1.* Спектры поглощения АФМР в монокристалле  $GdCr_3(BO_3)_4$  в диапазоне частот 17–38 ГГц при 4,2 К и ориентациях магнитного поля H|c (а) и  $H\bot c$  (б). Узкая линия соответствует сигналу от эталонного образца дифенилпикрилгидразила (ДФПГ).

го магнитного поля H|c (a) и  $H\perp c$  (б). Для ориентации магнитного поля вдоль оси с кристалла была обнаружена одна линия  $A\Phi MP$ , выходящая из щели  $\Delta$  величиной (25,5±0,5) ГГц. Резонансное поле этой линии нелинейно растет при увеличении частоты излучения, приближаясь к резонансному полю поглощения эталонного образца дифенилпикрилгидразила (ДФПГ) с изотропным g-фактором g = 2,0032. В частотном интервале ниже щели никаких резонансных линий поглощения при H||c| и  $\mathbf{H} \perp \mathbf{h}$ ,  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{h}$  не обнаружено. При ориентации магнитного поля  $H \perp c$  (рис. 1(б)) во всем частотном интервале также наблюдалась только одна линия АФМР. Резонансное поле этой линии увеличивается с увеличением частоты СВЧ излучения и практически совпадает с резонансным полем эталонного образца. Только для самых низких частот наблюдается заметная разница между резонансными полями образца и эталона. Все резонансные линии удовлетворительно описываются функцией Лоренца и имеют ширину от 1 до 2,5 кЭ.

На основании экспериментальных результатов построена частотно-полевая зависимость мод АФМР монокристалла  $GdCr_3(BO_3)_4$ , представленная на рис. 2. Для анализа ЧПЗ воспользуемся простой моделью для коллинеарного двухподрешеточного антиферромагнетика с анизотропией типа «легкая плоскость» [15]. При H||c мода АФМР  $\nu_{\parallel}$  будет описываться следующим выражением:

$$\left(\frac{\mathsf{v}_{||}}{\gamma}\right)^2 = \left(\frac{\Delta}{\gamma}\right)^2 + H^2,\tag{1}$$

где  $\gamma = g\mu_B/h$  — гиромагнитное отношение (g — эффективный g-фактор иона  $\operatorname{Cr}^{3+}$ ,  $\mu_B$  — магнетон Бора,

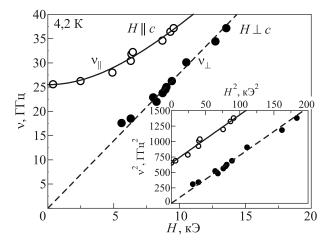


Рис. 2. Частотно-полевая зависимость спектра АФМР в монокристалле  $GdCr_3(BO_3)_4$  при H|c (⋄) и  $H\bot c$  (⋄), T=4,2 К. Сплошные и пунктирные линии — расчетные кривые, полученные в рамках модели для двухподрешеточного антиферромагнетика с анизотропией типа «легкая плоскость». На вставке показана ЧПЗ спектра АФМР в координатах  $v^2(H^2)$ .

h — постоянная Планка). Наилучшее совпадение с экспериментальными данными достигается при следующих значениях двух независимых параметров:  $\Delta = (25,5 \pm 0,5)$  ГГц и  $\gamma = (2,795 \pm 0,025)$  ГГц/к $\Theta$ . Расчетная кривая для этих параметров показана сплошной линией на рис. 2. Полученная из этого анализа оценка параметра  $\Delta$  полностью совпадает с экспериментально определенной величиной щели АМФР в нулевом магнитном поле. Используя величину параметра  $\gamma$ , можно получить оценку эффективного g-фактора, равную  $g = 2,00 \pm 0,01$ , что согласуется с литературными данными для иона  $Cr^{3+}$  [11,16].

При перпендикулярной ориентации внешнего магнитного поля  $(H \perp c)$  модель для двухподрешеточного антиферромагнетика с анизотропией типа «легкая плоскость» предсказывает наблюдение бесщелевой, линейной по полю, моды АФМР  $\nu_{\perp}$ , полевая зависимость которой описывается следующим выражением [15]:

$$\frac{\mathbf{v}_{\perp}}{\gamma} = H \ . \tag{2}$$

Расчет показывает, что в этом случае значение параметра  $\gamma = (2,785\pm0,025)$  ГГц/кЭ практически совпадает с результатом, полученным при описании моды и ... Расчетная кривая для моды  $v_{\parallel}$  показана пунктирной линией на рис. 2. Наблюдается хорошее согласие расчета с экспериментальными данными. На вставке приведена частотно-полевая зависимость мод АФМР в координатах  $v^2(H^2)$ . Видно, что в этих координатах экспериментальные данные для мод A $\Phi$ MP  $\nu_{\parallel}$  и  $\nu_{\perp}$ хорошо описываются линейными зависимостями с совпадающим наклоном. Зависимость для моды и пересекает ось ординат в точке  $(\Delta)^2 = (25,5)^2 \Gamma \Gamma \mu^2$ , в то время как прямая для  $\nu_{\perp}$  проходит через начало координат. Использованная для описания экспериментальных данных модель хорошо описывает частотно-полевые зависимости мод АФМР  $\nu_{\parallel}$  и  $\nu_{\perp}$  с разумными значениями параметров. Таким образом, можно сделать вывод, что монокристалл GdCr<sub>3</sub>(BO<sub>3</sub>)<sub>4</sub> при температурах ниже  $T_N = 7$  К является антиферромагнетиком с анизотропией типа «легкая плоскость». Отсутствие других дополнительных линий в спектре АФМР указывает на то, что редкоземельная подсистема достаточно сильно связана с подсистемой ионов  $Cr^{3+}$  при помощи f-dвзаимодействия и прецессирует с той же частотой.

На основании анализа экспериментальных данных по АФМР в монокристалле  $GdCr_3(BO_3)_4$ , полученных в диапазоне частот 17–38 ГГц при ориентациях внешнего магнитного поля H||c и  $H\bot c$  и температуре 4,2 К, можно сделать следующие выводы: гадолиниевый хромоборат в магнитоупорядоченном состоянии является антиферромагнетиком с анизотропией типа «легкая плос-

кость»; величина энергетической щели в спектре спиновых волн антиферромагнетика  $\Delta = (25,5\pm0,5)$  ГГц; эффективный g-фактор изотропен и близок к значению  $g = 2,00\pm0,01$ .

- N.I. Leonyuk and L.I. Leonyuk, Progress in Crystal Growth and Characterization of Materials 31, 179 (1995).
- 2. А.Н. Васильев, Е.А. Попова, *ФНТ* **32**, 968 (2006) [*Low Temp. Phys.* **32**, 735 (2006)].
- А.М. Кадомцева, Ю.Ф. Попов, Г.П. Воробьев, А.П. Пятаков, С.С. Кротов, К.И. Камилов, В.Ю. Иванов, А.А. Мухин, А.К. Звездин, А.М. Кузьменко, Л.Н. Безматерных, И.А. Гудим, В.Л. Темеров, ФНТ 36, 640 (2010) [Low Temp. Phys. 36, 511 (2010)].
- K.-C. Liang, R.P. Chaudhury, B. Lorenz, Y.Y. Sun, L.N. Bezmaternykh, I.A. Gudim, V.L. Temerov, and C.W. Chu, J. Phys.: Conf. Ser. 400, 032046 (2012).
- E.Yu. Borovikova, K.N. Boldyrev, S.M. Aksenov, E.A. Dobretsova, V.S. Kurazhkovskaya, N.I. Leonyuk, A.E. Savon, D.V. Deyneko, and D.A. Ksenofontov, *Opt. Mater.* 49, 304 (2015).
- В.С. Куражковская, Е.А. Добрецова, Е.Ю. Боровикова,
   В.В. Мальцев, Н.И. Леонюк, Журнал структурной химии
   52, 721 (2011) [J. Struct. Chem. 52, 699 (2011)].
- E.Yu. Borovikova, E.A. Dobretsova, K.N. Boldyrev, V.S. Kurazhkovskaya, V.V. Maltsev, and N.I. Leonyuk, *Vibrational Spectroscopy* 68, 82 (2013).
- 8. К.Н. Болдырев, Е.П. Чукалина, Н.И. Леонюк, *ФТТ* **50**, 1617 (2008) [*Phys. Solid State* **50**, 1681 (2008)].
- E.A. Popova, N.I. Leonyuk, M.N. Popova, E.P. Chukalina, K.N. Boldyrev, N. Tristan, R. Klingeler, and B. Buchner, *Phys. Rev. B* 76, 054446 (2007).
- L. Gondek, A. Szytu, J. Przewonik, J. Zukrowski, A. Prokhorov, L. Chernush, E. Zubov, V. Dyakonov, R. Duraj, and Yu. Tyvanchuk, *J. Solid State Chem.* 210, 30 (2014).
- А.Н. Блудов, Ю.А. Савина, В.А. Пащенко, С.Л. Гнатченко, Н.Н. Кузьмин, В.В. Мальцев, Н.И. Леонюк, ФНТ 44, 554 (2018) [Low Temp. Phys. 44, No. 5 (2018)].
- 12. А.И. Панкрац, Г.А. Петраковский, Л.Н. Безматерных, О.А. Баюков, ЖЭТФ **126**, 887 (2004) [*JETP* **99**, 766 (2004)].
- А.М. Кузьменко, А.А. Мухин, В.Ю. Иванов, А.М. Кадомцева, С.П. Лебедев, Л.Н. Безматерных, ЖЭТФ 140, 131 (2011) [JETP 113, 113 (2011)].
- 14. А.Н. Блудов, В.А. Пащенко, М.И. Кобец, В.А. Бедарев, Д.Н. Меренков, С.Л. Гнатченко, И.А. Гудим, *ФНТ* **44**, 185 (2018) [*Low Temp. Phys.* **44**, No. 2 (2018)].
- 15. А.Г. Гуревич, *Магнитный резонанс в ферритах и анти-* ферромагнетиках, Наука, Москва (1973).
- 16. А. Абрагам, Б. Блини, Электронный парамагнитный резонанс переходных ионов, т. 1, Наука, Москва (1973).

## Antiferromagnetic resonance in a GdCr<sub>3</sub>(BO<sub>3</sub>)<sub>4</sub> crystal

A.N. Bludov, Yu.O. Savina, M.I. Kobets, V.A. Pashchenko, S.L. Gnatchenko, N.N. Kuzmin, V.V. Mal'tsev, and N.I. Leonyuk

Experimental AFMR studies of  $GdCr_3(BO_3)_4$  single crystal in a frequency range 17–38 GHz at 4.2 K have been carried out. The energy gap in the spin wave spectrum has been determined as  $(25.5\pm0.5)$  GHz. It is

shown that the high-frequency properties of gadolinium chromium borate are well described in the frame of the model for a two-sublattice antiferromagnet with an easy-plane anisotropy.

PACS: 75.50.Ee Antiferromagnetics;
76.50.+g Ferromagnetic, antiferromagnetic, and ferrimagnetic resonances; spin-wave resonance.

Keywords: gadolinium chromoborate, antiferromagnetic, antiferromagnetic resonance.