

DOI: <https://doi.org/10.30898/1684-1719.2024.11.5>

УДК: 53.097; 53.098

**ТЕРМОДИНАМИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ ДЛЯ ОПИСАНИЯ
ОСОБЕННОСТЕЙ ФАЗОВОЙ ДИАГРАММЫ ПРЕВРАЩЕНИЙ
В ФЕРРИТАХ-ГРАНАТАХ $(\text{BiYLu})_3(\text{FeGa})_5\text{O}_{12}$ И $(\text{BiGd})_3(\text{FeGa})_5\text{O}_{12}$
ВО ВНЕШНЕМ МАГНИТНОМ ПОЛЕ**

Д.А. Суслов ¹, В.Г. Шавров ¹, П.М. Ветошко ¹, В.И. Щеглов ¹, В.Д. Пойманов ^{2,3},
Е.В. Морозов ¹, Д.Д. Кузнецов ¹, В.В. Коледов ¹

¹ ИРЭ им. В.А.Котельникова РАН
125009, Москва, ул. Моховая, 11, корп. 7

² ИСПМ им. Н.С. Ениколопова РАН
117393, Москва, Профсоюзная улица, 70

³ МГТУ им. Н.Э. Баумана,
105005, Россия, Москва, ул. 2-я Бауманская, д. 5, стр. 1

Статья поступила в редакцию 17 ноября 2024 г.

Аннотация. В данной работе, на основе результатов экспериментальных исследований поведения магнитных фаз частично замещенных редкоземельных ферритов гранатов $(\text{BiYLu})_3(\text{FeGa})_5\text{O}_{12}$ и $(\text{BiGd})_3(\text{FeGa})_5\text{O}_{12}$ вблизи точки магнитной компенсации в сильных магнитных полях, предложена феноменологическая модель, объясняющая особенности поведения неколлинеарной фазы на основе учета парапроцесса, то есть, взаимовлияния спин-пере ориентационного фазового перехода и точки Кюри.

Ключевые слова: смешанные ферриты-гранаты, температура компенсации, намагниченности подрешеток.

Финансирование: Работа выполнена в рамках госзадания ИРЭ им. В.А. Котельникова РАН, тема FFWZ-2024-007.

Автор для переписки: Кузнецов Дмитрий Дмитриевич,
Kuznetsov.dmitry89@gmail.com

Введение

Исследовательский интерес к редкоземельным ферритам гранатам с точкой по магнитным свойствам относящихся к ферримагнетикам, уже имеет значительную историю [1-6]. Благодаря своим уникальным качествам, таким как высокая прозрачность и магнитооптическая активность в видимом и ближнем инфракрасном диапазонах, предельно малый фактор диссипации магнитных колебаний, чувствительность, ограниченная лишь магнитными флуктуациями, субпикосекундными величинами реакции отклика магнитного момента на управляющий импульс, эти материалы широко используются в различных магнитооптических приборах [7, 8], перспективны для сверхскоростных устройств записи и обработки информации [9]. Многорешеточная магнитная структура ферритов гранатов, наряду с возможностью получения кристаллов разного состава, позволяет создавать образцы с широким спектром магнитных и оптических свойств, имеющих различное применение [10-12].

Уже в первых работах делаются попытки построение теоретических моделей поведения фаз магнитной упорядоченности и фазовых переходов, индуцированных внешним магнитным полем для объяснения полученных экспериментальных результатов. Neel была предложена концепция спин-флоп переходов, которые были впоследствии обнаружены [13]. При этих переходах коллинеарная фаза превращается в наклонную (неколлинеарную) фазу при увеличении поля. Существование неколлинеарной магнитной структуры впервые теоретически было продемонстрировано Тябликовым С.В. [14], который также определил условия ее существования в случае изотропных ферримагнетиков и рассчитал аномалии намагниченности, возникающие вблизи таких переходов. Дальнейший теоретический анализ неколлинеарных структур в ферримагнетиках с двумя или тремя подрешетками был проведен Shlomann E. [15], Гусевым А.А. и Пахомовым С.В. [16]. Важный вклад в решение этой проблемы внесли А. Clark и Е. Callen [3]. Эти авторы кратко изложили полученные ранее результаты и применили их к изучению соединений редкоземельного феррита граната. Было показано, что из-за незначительного

обменного взаимодействия между редкоземельными железистыми подрешетками индуцированные неколлинеарные структуры в ферритах гранатах возникают при экспериментально достижимых значениях поля.

Существующие теоретические модели поведения неколлинеарной фазы в сильных магнитных полях показывают, что раз возникнув, с ростом внешнего магнитного поля, неколлинеарная фаза постоянно расширяется, все больше вытесняя остальные магнитные состояния. Отдельные авторы рассматривают повторное возникновение коллинеарной фазы в больших полях [17].

В последнее время получены новые результаты о характере поведения фаз магнитной упорядоченности редкоземельных ферримагнетиков вблизи точки магнитной компенсации в сильных магнитных полях [18-20]. При исследовании поведения магнитных фаз вблизи точки магнитной компенсации в сильных магнитных полях частично замещенных редкоземельных ферритов гранатов $(\text{BiYLu})_3(\text{FeGa})_5\text{O}_{12}$ и $(\text{BiGd})_3(\text{FeGa})_5\text{O}_{12}$ эпитаксиально выращенных на подложке галлий-гадолиниевого граната (GGG) обнаружено аномальное поведение неколлинеарной фазы, ранее не встречавшееся в публикациях и не описанное теоретически.

Неколлинеарная фаза, возникнув при относительно небольших полях увеличивается при росте поля (см. рис. 1). Но при дальнейшем росте поля начинает уменьшаться и исчезает совсем. Причем диапазон существования неколлинеарной фазы относительно невелик – от половины до нескольких Тесла по полю и 1-2 градуса по температуре. При повышении поля до значительных значений (до 10 Тл) неколлинеарная фаза вновь не возникает. Фазовые диаграммы такого процесса представлены в [19] (см. рис. 2).

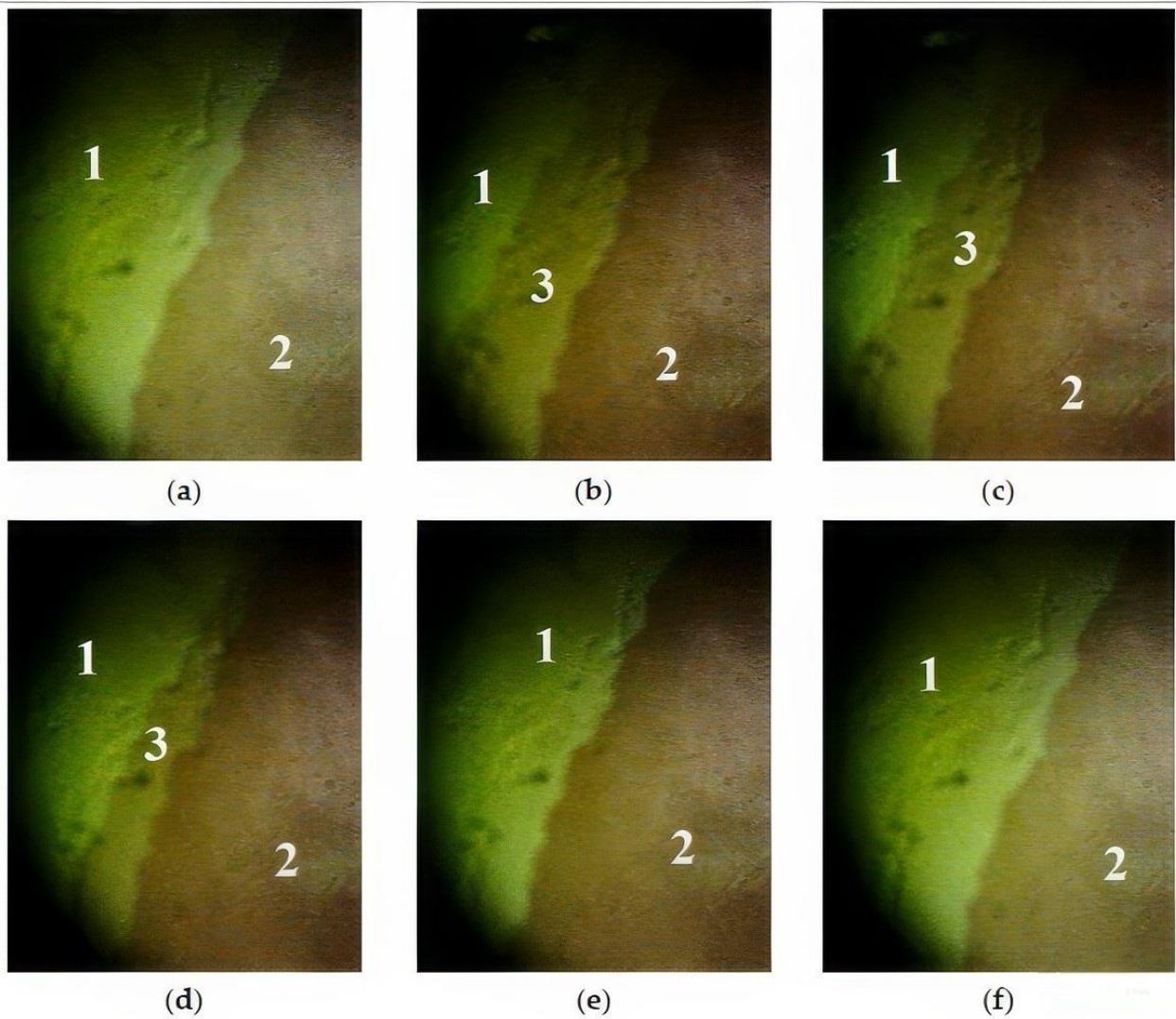


Рис. 1. Магнитно-оптическая визуализация фазовых состояний в образце $(\text{BiYLu})_3(\text{FeGa})_5\text{O}_{12}$ при температуре $T = 327,5$ К (область магнитной компенсации) во внешнем магнитном поле $B = 0,5$ Тл (a), $B = 1,0$ Тл (b), $B = 1,03$ Тл (c), $B = 1,05$ Тл (d), $B = 1,1$ Тл (e) и $B = 1,2$ Тл (f). (1), (2) – Коллинеарные фазы с противоположным направлением намагничивания; (3) – неколлинеарная (наклонная) магнитная фаза [19].

Такое поведение фазовой диаграммы не только ранее не наблюдалось, но и не было предсказано теоретически. В данной статье делается попытка построения феноменологической модели объясняющей подобный характер фазовой диаграммы, дается анализ возможных причин, приводящих к данному эффекту.

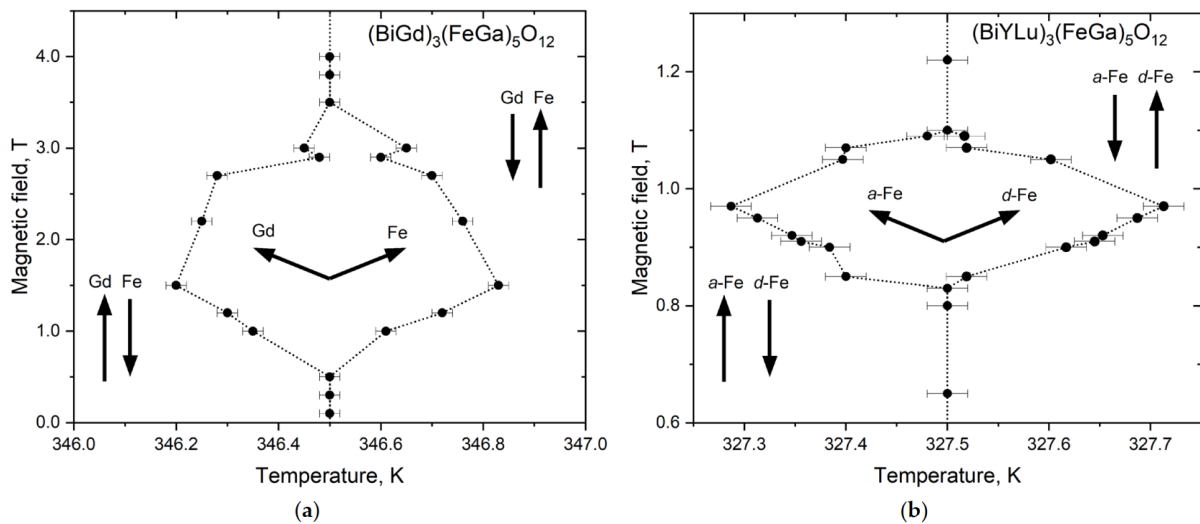


Рис. 2. Фазовые диаграммы в окрестности точки компенсации в образцах: (а) $(\text{BiGd})_3(\text{FeGa})_5\text{O}_{12}$; (б) $(\text{BiYLu})_3(\text{FeGa})_5\text{O}_{12}$. Стрелки схематически обозначают намагниченность подрешеток Gd, полного (Fe), октаэдрического (a-Fe) и тетраэдрического (d-Fe) железа [19].

Теоретическая модель возникновения угловой фазы

Для оценки величины полей фазового перехода из коллинеарной в угловую фазу и обратно будем сравнивать их удельные (на единицу объема) свободные энергии.

Коллинеарная фаза, соответствующая антипараллельной ориентации намагниченностей двух подрешеток, характеризуется нормальной к плоскости пленки ориентацией результирующей намагниченности $\mathbf{M} = \mathbf{M}_1 + \mathbf{M}_2$, являющейся, таким образом, параметром порядка.

Угловая фаза вблизи точки магнитной компенсации, где $|\mathbf{M}_1| = |\mathbf{M}_2| = M_0$ характеризуется симметричной ориентацией намагниченностей подрешеток по отношению к внешнему полю, прикладываемому вдоль нормали к пленке, совпадающей по направлению с легкой осью. Параметром порядка в этом случае можно считать угол выхода намагниченностей из плоскости пленки α . В силу большой величины константы межподрешеточного обмена $\alpha \ll 1$.

Объемная плотность (ОП) свободной энергии в состоянии термодинамического равновесия является минимальной при фиксированных

значениях температуры и внешнего поля и связана с ОП внутренней энергии с помощью преобразования Лежандра:

$$F = U + MH. \quad (1)$$

Их дифференциалы равны соответственно:

$$dF = -sdT + MdH, \quad dU = -sdT - HdM. \quad (2)$$

U , таким образом, минимизируется при фиксированной температуре и намагниченности, поэтому условием равновесия фазы является $\left(\frac{\partial U}{\partial M}\right)_T = 0$.

Она включает в себя ОП энергии междоузельного обмена $U_{ex} = \Lambda(1 - \cos(\alpha_1 + \alpha_2))$, являющуюся изотропной и минимальна для коллинеарной антипараллельной фазы, ОП энергии одноосной анизотропии $U_K = \frac{K}{2} \cos^2 \alpha_{1,2}$ и ОП энергии Зеемана $U_{M1,2} = -M_{1,2}H \sin \alpha_{1,2}$. Здесь $\alpha_{1,2}$ – углы, отсчитываемые от плоскости пленки в направлении поля.

Кроме того, как следует из разложения Ландау, в U присутствует ОП энергии, обусловленная наличием параметра порядка.

1) Коллинеарная фаза

С учетом того, что $\alpha_{1c} = \frac{\pi}{2}$, $\alpha_{2c} = -\frac{\pi}{2}$, $U_{ex} = U_K = 0$, поэтому:

$$U_{колл}(M, T) = -\frac{a_0(T_c - T)}{2}M^2 + \frac{\beta}{4}M^4 - MH. \quad (3)$$

Дифференцируя по M , получаем кубическое уравнение для равновесной намагниченности:

$$\beta M^3 - a_0(T_c - T)M - H = 0. \quad (4)$$

Решая его относительно M , находим его положительный корень, соответствующий антиферромагнитной фазе и устойчивый ниже точки Кюри:

$$M(H, T) = \sqrt[3]{\frac{H}{2\beta} + \sqrt{\left(\frac{H}{2\beta}\right)^2 - \left(\frac{a_0(T_c - T)}{3\beta}\right)^3}} + \frac{a_0(T_c - T)}{\beta \sqrt[3]{\frac{H}{2\beta} + \sqrt{\left(\frac{H}{2\beta}\right)^2 - \left(\frac{a_0(T_c - T)}{3\beta}\right)^3}}}. \quad (5)$$

ОП свободной энергии коллинеарной фазы

$$F_{\text{колл}}(H, T) = \int_0^H M(H, T) dH \quad (6)$$

при заданных параметрах находится численным интегрированием (5).

С учетом соотношений (1) и (3) выражение для свободной энергии можно также переписать в виде:

$$F_{\text{колл}}(H, T) = -\frac{a_0(T_c - T)}{2} M(H, T)^2 + \frac{\beta}{4} M(H, T)^4. \quad (7)$$

2) Угловая (скошенная) фаза

В результате спин-флоп перехода при некотором значении поля образуется слабоферромагнитное состояние с $\alpha_1 = \alpha_2 \ll 1$ в точке магнитной компенсации. Неколлинеарность намагниченностей подрешеток в угловой фазе приводит к увеличению ОП обменной энергии на величину:

$$\Delta U_{\text{ex}} = \Lambda(1 - \cos 2\alpha) \approx 2\Lambda\alpha^2. \quad (8)$$

При малых α_1 и α_2 ОП энергии одноосной анизотропии в первом приближении равна K , а ОП энергии Зеемана взаимодействия с внешним полем $U_M = -2M_0 H \alpha$.

Таким образом, равновесное значение параметра порядка определяется путем минимизации ОП внутренней энергии:

$$U_{\text{ск}} = 2(\Lambda\alpha^2 - HM_0\alpha) \quad (9)$$

и дает значение параметра порядка и намагниченности:

$$\alpha = \frac{HM_0}{2\Lambda}, \quad M = 2M_0\alpha = \frac{M_0^2}{\Lambda} H. \quad (10)$$

ОП свободной энергии угловой фазы равна:

$$F_{\text{ск}}(H) = K + \int_0^H M dH = K + \frac{M_0^2 H^2}{2\Lambda}. \quad (11)$$

Угловая фаза реализуется, если соответствующая ей ОП свободной энергии меньше, чем для коллинеарной фазы $F_{\text{колл}} > F_{\text{ск}}$. Граничные значения этой области находятся путем численного решения относительно H уравнения:

$$F_{\text{колл}}(H, T) = F_{\text{ск}}(H) \quad (12)$$

при заданной температуре. Качественно график зависимости ОП свободной энергии от поля имеет вид, изображенный на рис. 3.

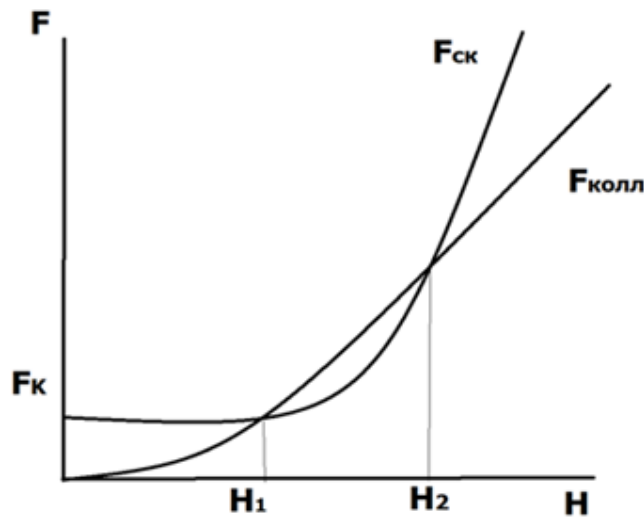


Рис. 3. Схематический график, демонстрирующий качественно зависимость свободной энергии скошенной и коллинеарной фаз феррита-граната от внешнего магнитного поля H в точке компенсации намагниченности подрешеток.

Значения констант выберем следующие:

$$a_0 = 0.5 \text{ К}^{-1}, T_c - T = 50 \text{ К}, b = 1,08 \cdot 10^{-9} \frac{\text{М}^2}{\text{А}^2}$$

$$K = 4 \cdot 10^8 \frac{\text{Дж}}{\text{М}^3}, \Lambda = 2 \cdot 10^8 \frac{\text{Дж}}{\text{М}^3}, M_0 = 10^5 \cdot \frac{\text{А}}{\text{М}}$$

При этих значениях параметров границы устойчивости угловой фазы по полю, как следует из графика (см. рис. 4), равны

$$H_1 = 6.8 \cdot 10^5 \frac{\text{А}}{\text{м}}, H_2 = 8.8 \cdot 10^5 \frac{\text{А}}{\text{м}},$$

что соответствует значениям в теслах

$$H_1 = 0.85 \text{ Тл}, H_2 = 1.1 \text{ Тл},$$

что соответствует наблюдаемому на эксперименте интервалу полей. Результаты расчета зависимости разности свободных энергий скошенной и коллинеарной фаз по примеру показаны на рис. 4.

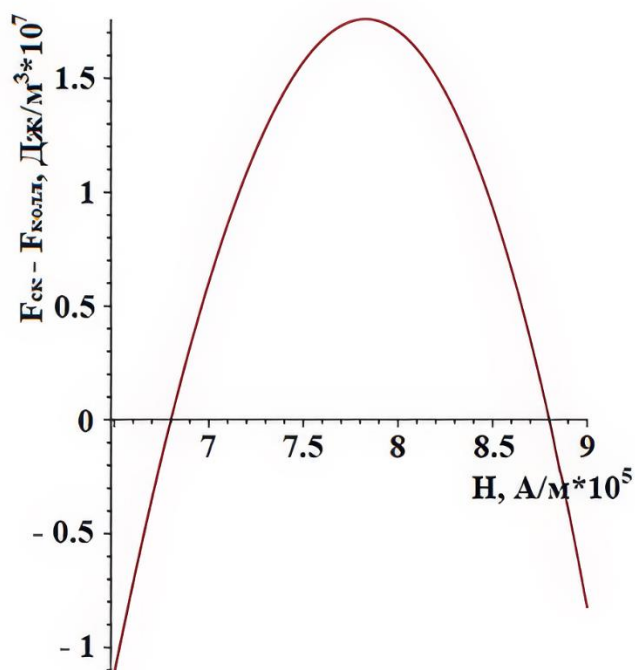


Рис. 4. Рассчитанная согласно предложенной модели зависимость от магнитного поля разности свободных энергий скошенной и коллинерной фаз в точке компенсации намагниченности подрешеток феррита граната.

Заключение

В заключение можно сказать, что феноменологическая модель, основанная на сравнении выражений для свободной энергии коллинераной и скошенной фаз ферритов грантов с учетом влияния парапроцесса, то есть зависимости намагниченности подрешеток от внешнего поля в условиях близости температур спиновой переориентации и точки Кюри, указывает на возможность существования ограниченной по полю сверху, области существования скошенной фазы. Эффект, таким образом, можно отнести за счет взаимного влияния фазовых переходов.

Финансирование: Работа выполнена в рамках госзадания ИРЭ им. В.А.Котельникова РАН, тема FFWZ-2024-007.

Литература

1. Neel L. Magnetic properties of ferrites: ferrimagnetism and antiferromagnetism. *Ann. de Phys.* 3 137 (1948); перевод в сб. Антиферромагнетизм (под ред. С.В. Вонсовского) (М.: Мир, 1956)
2. Белов К.П., Зайцева М.А. Новые магнитные материалы–ферриты-гранаты // *Успехи физических наук.* – 1958. – Т. 66. – №. 9. – С. 141-144.
3. Clark A., Callen E. Neel Ferrimagnets in Large Magnetic Fields // *Journal of Applied Physics*, Vol. 39, № 13, 1968, p. 5972-5982
4. Logunov M.V., et al. Domain Wall Motion Across Magnetic and Spin Compensation Points in Magnetic Garnets // *Physical Review Applied* 15, 064024_1-9 (2021)
5. Kudasov Yu.B., et al. Giant widening of interface magnetic layer in almost compensated iron garnet // *Appl. Phys. Lett.* 120, 122403_1-6 (2022); <https://doi.org/10.1063/5.0086067>
6. Dolgikh I.A., et al. Spin dynamics driven by ultrafast laser-induced heating of iron garnet in high magnetic fields // *Appl. Phys. Lett.* 120, 012401_1-5 (2022); <https://doi.org/10.1063/5.0076442>
7. Zvezdin A.K., V.A. Kotov. *Modern Magneto-optics and Magneto-optical Materials.* Inst. Phys. Press, Bristol, Philadelphia, 1997.
8. Bi L., Hu J., Jiang P., H.S. Kim, D.H. Kim, M.C. Onbasli, G.F. Dionne, C.A. Ross. Magneto-Optical Thin Films for On-Chip Monolithic Integration of Non-Reciprocal Photonic Devices // *Materials.* – 2013. –V.6. p. 5094.
9. Deb M. et al. Ultrafast optical control of magnetization dynamics in polycrystalline bismuth doped iron garnet thin films // *Applied Physics Letters.* – 2015. – Т. 107. – №. 25.
10. Лисовский Ф.В. Физика цилиндрических магнитных доменов. М.: Сов.Радио. 1979.
11. О’Делл Т. Ферромагнитодинамика. Динамика ЦМД, доменов и доменных стенок. М.: Мир. 1983.

12. Романова И. Магниторезистивная память MRAM компании Everspin Technologies. // Электроника НТБ. 2014. №8.
13. Poulis N.J. et al. On antiferromagnetism in a single crystal // Physical Review. – 1951. – Т. 82. – №. 4. – С. 552.
14. Тябликов С.В. Методы квантовой теории магнетизма, М., изд. Наука, 1965
15. Schlomann E. in: Solid State Physics, Electronics and Telecommunications, Vol. 3, Part I (Academic Press, New York) p. 322.
16. Гусев, А.А. Кристаллография. 1963. Том 8, вып. 1. О температурной зависимости намагниченности и парамагнитной восприимчивости ферритов с тремя магнитными подрешетками / Гусев А.А., Пахомов А.С. – с. 63-68.
17. Вонсовский С.В., Шур Я.С. Ферромагнетизм. М.: ОГИЗ Гостехиздат. 1948.
18. Ветошко П.М., Бержанский В.Н., Полулях С.Н., Суслов Д.А., Маширов А.В., Шавров В.Г., Павлюк Е.И. Магнитооптическая визуализация магнитных фаз в эпитаксиальной пленке феррита граната вблизи точки компенсации. Радиотехника и Электроника, т.68, № 4, 2023
19. Suslov D.A., et al. Non-Collinear Phase in Rare-Earth Iron Garnet Films near the Compensation Temperature. Crystals 2023, 13, 1297.
20. Suslov D.A., Vetoshko P.M., Mashirov A.V. et al. Magneto-Optical Method for Observing the Phases of Magnetic Ordering in Rare Earth Ferrite Films Using a Compensating Point. Instrum Exp Tech 67, 170–174 (2024). <https://doi.org/10.1134/S002044122470026X>

Для цитирования:

Сулов Д.А., Шавров В.Г., Ветошко П.М., Щеглов В.И., Пойманов В.Д., Морозов Е.В., Кузнецов Д.Д., Коледов В.В. Термодинамическая модель для описания особенностей фазовой диаграммы превращений в ферритах-гранатах $(\text{BiYLu})_3(\text{FeGa})_5\text{O}_{12}$ и $(\text{BiGd})_3(\text{FeGa})_5\text{O}_{12}$ во внешнем магнитном поле // Журнал радиоэлектроники. – 2024. – №. 11. <https://doi.org/10.30898/1684-1719.2024.11.5>