

## Магнитный резонанс и спин-переориентационные переходы в мультиферроике $\text{Nd}_{0,75}\text{Ho}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$

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

*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 № 38б, г. Красноярск, 660036, Россия*

Статья поступила в редакцию 6 ноября 2014 г., опубликована онлайн 24 ноября 2014 г.

Представлены результаты экспериментальных исследований методом антиферромагнитного резонанса (АФМР) высокочастотных свойств мультиферроика  $\text{Nd}_{0,75}\text{Ho}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$  в широком диапазоне частот и температур. Изучено влияние замещения ионов  $\text{Nd}^{3+}$  ионами  $\text{Ho}^{3+}$  на резонансные свойства твердого раствора  $\text{Nd}_{0,75}\text{Ho}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ . Рассмотрены особенности индуцированных магнитным полем спин-переориентационных фазовых переходов для направлений  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$  и  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}$ , при которых происходит изменение магнитной анизотропии системы — от анизотропии типа «легкая ось» к анизотропии «легкая плоскость». Обнаружены моды АФМР подсистемы  $\text{Fe}^{3+}$ . Получена новая информация о важнейших характеристиках АФМ, включающая: частотно-полевые зависимости спектра АФМР, щели в спектре спиновых волн и величины эффективной магнитной анизотропии, поля спин-переориентационных переходов. Показано, что в этом магнетике преобладает «легкоплоскостная» анизотропия со слабой анизотропией внутри базисной плоскости. Впервые обнаружены особенности в спектрах АФМР, которые могут быть связаны с наличием пространственно модулированной спиновой структуры (несоизмеримая фаза) в АФМ  $\text{Nd}_{0,75}\text{Ho}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ .

Представлено результати експериментальних вимірів методом антиферомагнітного резонансу (АФМР) високочастотних властивостей мультиферроїка  $\text{Nd}_{0,75}\text{Ho}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$  в широкому діапазоні частот та температур. Досліджено вплив заміщення іонів  $\text{Nd}^{3+}$  іонами  $\text{Ho}^{3+}$  на резонансні властивості твердого розчину  $\text{Nd}_{0,75}\text{Ho}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ . Розглянуто властивості індукованих магнітним полем спин-переорієнтаційних фазових переходів для напрямків  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$  та  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}$ , при яких відбувається зміна магнітної анізотропії системи — від анізотропії типу «легка вісь» до анізотропії «легка площина». Виявлено моди АФМР підсистеми  $\text{Fe}^{3+}$ . Одержано нову інформацію про головні характеристики АФМ, яка включає: частотно-польові залежності спектру АФМР, щілини в спектрі спинових коливань та величини ефективної магнітної анізотропії, поля спин-переорієнтаційних переходів. Показано, що в цьому магнетіку переважає «легкоплощинна» анізотропія зі слабкою анізотропією всередині площини. Вперше виявлено властивості в спектрах АФМР, які можуть бути пов'язані з наявністю просторово модульованої спигової структури (неспівмірна фаза) в АФМ  $\text{Nd}_{0,75}\text{Ho}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ .

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: антиферромагнитный резонанс, мультиферроик, магнитная анизотропия, спин-переориентационные переходы.

В последнее время интенсивно исследуется класс мультиферроиков — редкоземельные ферробораты  $\text{RFe}_3(\text{BO}_3)_4$  ( $\text{R}$  — редкоземельный ион). Они относятся к ромбоэдрической структуре и описываются тригональной нецентросимметричной пространственной группой  $R32 (D_3^7)$  [1]. Было показано, что в мультиферроиках сосуществуют упругие, магнитные и электрические параметры порядка [2]. Изучение таких систем представляет фундаментальный интерес, так как они потенциально перспективны для использования в качестве памяти и датчиков устройств.

Кроме этого, редкоземельные ферробораты обладают разнообразными магнитными структурами и фазовыми переходами. При температурах порядка 30–40 К происходит антиферромагнитное упорядочение спинов ионов  $\text{Fe}^{3+}$ , а на их взаимную ориентацию влияет парамагнитная подсистема редкоземельных ионов  $\text{R}$ . В зависимости от анизотропии редкоземельных ионов обменное взаимодействие между ионами  $\text{R}-\text{Fe}$  стабилизирует либо магнитную структуру с анизотропией типа «легкая плоскость» (ЛП), либо магнитную структуру с анизотропией типа «легкая ось» (ЛО) [3,4].

Замещением редкоземельных ионов другими изovalентными ионами в мультиферроиках можно значительно менять их магнитные и электрические свойства. В таких системах при изменении температуры и внешнего магнитного поля возникают спонтанные и индуцированные спин-переориентационные магнитные фазовые переходы, которые обусловлены конкуренцией магнитной анизотропии замещенных редкоземельных ионов [5–7].

Поэтому целью настоящей работы является экспериментальное изучение методом антиферромагнитного резонанса (АФМР) высокочастотных свойств монокристалла  $\text{Nd}_{0,75}\text{Ho}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$  в широком диапазоне частот, температур и исследование влияния замещения ионов  $\text{Nd}^{3+}$  ионами  $\text{Ho}^{3+}$  на резонансные свойства твердого раствора  $\text{Nd}_{0,75}\text{Ho}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ .

Резонансные свойства соединения  $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$  изучены в работе [8]. Было показано, что частотно-полевые зависимости спектра АФМР соответствуют колебаниям антиферромагнитной структуры с анизотропией типа «легкая плоскость» со слабой анизотропией в базисной плоскости кристалла. Отмечено влияние несоизмеримой спиральной структуры на спектр АФМР.

Описание резонансных исследований  $\text{HoFe}_3(\text{BO}_3)_4$  в литературе отсутствует, но в работах [9,10] экспериментально изучены его магнитные свойства. Теоретическое обоснование этих результатов дано в работе [11]. Ниже  $T_N = 38$  К в  $\text{HoFe}_3(\text{BO}_3)_4$  формируется магнитная структура ЛП, которая сохраняется до температуры 4,8 К, при которой происходит спонтанный спин-переориентационный переход. В работе [11] описаны данный спонтанный и индуцированный магнитным полем спин-переориентационный переходы из «легко-

плоскостного» в «легкоосное» состояние. Среди семейства  $\text{RFe}_3(\text{BO}_3)_4$  соединение  $\text{HoFe}_3(\text{BO}_3)_4$  уникально, поскольку проявляет большую спонтанную поляризацию ниже  $T_N = 38$  К, тогда как  $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$  проявляет большую поляризацию во внешнем магнитном поле. Кроме этого, в литературе появилось сообщение о рентгеновских измерениях гольмиевого ферробората [12]. Авторы обнаружили возникновение несоизмеримой магнитной структуры ниже  $T = 22,5$  К, что ниже температуры магнитного упорядочения 38 К. Эта структура исчезает при температуре 4,8 К, когда происходит спин-переориентационный переход в «легкоосную» фазу.

Представляет интерес изучить резонансные особенности монокристалла твердого раствора  $\text{Nd}_{0,75}\text{Ho}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$  с пространственной группой  $R32$  в антиферромагнитно упорядоченной фазе. Экспериментальный интерес к такой системе подогревается существованием магнитных фазовых переходов из магнитной структуры типа «легкая плоскость» в магнитную структуру типа «легкая ось» для двух направлений поля  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}$  и  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$ . Для сравнения в твердом растворе  $\text{Nd}_{0,75}\text{Dy}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$  фазовые переходы происходят только для направления поля  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$  [7].

Эксперименты по АФМР  $\text{Nd}_{0,75}\text{Ho}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$  выполнены при температуре жидкого гелия (4,2 К) на стандартном радиоспектрометре прямого усиления в стационарных магнитных полях до 75 кЭ. Поиск мод антиферромагнитного резонанса проводился в диапазоне частот 35–140 ГГц вдоль двух направлений магнитного поля:  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{z}$  и  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{x}$  (магнитные оси  $z$  и  $x$  совпадают с кристаллографическими осями  $c$  и  $a$ ). Регистрировалось изменение величины резонансного поля сигнала АФМР при изменении частоты вдоль главных магнитных направлений. Резонансное поглощение СВЧ энергии образцом возбуждалось перпендикулярно поляризованным СВЧ полем. По типу частотных зависимостей резонансного поля для направлений  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{z}$  и  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{x}$  определялся тип магнитной структуры твердого раствора  $\text{Nd}_{0,75}\text{Ho}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ . Его резонансные высокочастотные свойства будут формироваться совместным вкладом как антиферромагнитной  $\text{Fe}$ -подсистемой, так и парамагнитными редкоземельными ионами обоих типов, которые находятся в обменном поле спинов ионов  $\text{Fe}^{3+}$  и во внешнем магнитном поле  $\mathbf{H}$ .

Магнитные и магнитоэлектрические свойства  $\text{Nd}_{0,75}\text{Ho}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$  исследованы в работе [13], в которой приведена магнитная фазовая диаграмма для двух кристаллографических направлений  $a$  и  $c$ . Показано, что данное соединение при температуре 32 К переходит в антиферромагнитное состояние с образованием магнитной структуры ЛП. При температуре 4,8 К реализуется спонтанный спин-переориентационный переход из «легкоплоскостной» в «легкоосную» магнитную струк-

туру, аналогично переходу в  $\text{HoFe}_3(\text{BO}_3)_4$  [9,10]. Поскольку магнитная структура этого соединения чувствительна к влиянию магнитного поля, то в зависимости от соотношения констант анизотропии эти переходы можно индуцировать и внешним магнитным полем, магнитная структура ЛО скачком превращается в магнитную структуру ЛП при  $T = 4,2$  К [13].

Экспериментальные исследования твердого раствора  $\text{Nd}_{0,75}\text{Ho}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$  были начаты с записи спектров антиферромагнитного резонанса для ориентации внешнего магнитного поля вдоль оси  $z$  при температуре 4,2 К. Вид спектра АФМР и его трансформация при изменении частоты представлены на рис. 1. Ниже частоты 107 ГГц линия поглощения АФМР не наблюдается. Видно, что, кроме спектра АФМР, в магнитном поле  $H_1 = 2,5$  кЭ наблюдается особенность в виде скачка для всего указанного диапазона частот. Следует отметить, что на всех спектрах, где есть очень узкая линия — это сигнал эталонного образца ДФПГ.

Используя угловую зависимость спектра АФМР в базисной  $ab$ -плоскости, мы определили направление кристаллографической оси  $a$  (магнитная ось  $x$ ). На рис. 2 приведены записи спектров АФМР, соответствующие различным частотам для ориентации  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{x}$  при  $T = 4,2$  К. Видно, что в магнитном поле  $H_2$  равном 7,1 кЭ наблюдается особенность в виде скачка для всего указанного диапазона частот. В полях  $H > H_2$  вдоль этой ориентации наблюдается резонансное поглощение, присущее линейной моде АФМР, которая характерна для магнитной структуры «легкая плоскость».

Для этих условий, но в меньшем магнитном поле  $H_p \approx 5,4$  кЭ на частоте 73,69 ГГц, нам удалось обнаружить резонансное поглощение в кристалле  $\text{Nd}_{0,75}\text{Ho}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ . Вид спектра показан на рис. 3. Видно, что в спектре АФМР ниже частоты 73,69 ГГц отсутствует резонансное поглощение в малых полях на частоте 71,29 ГГц.

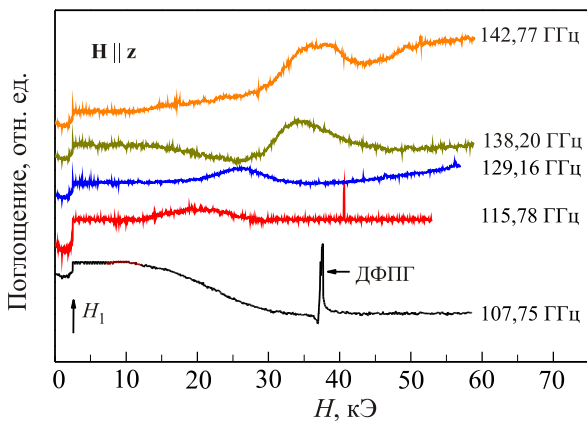


Рис. 1. Вид спектров поглощения АФМР в  $\text{Nd}_{0,75}\text{Ho}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$  для разных частот.  $T = 4,2$  К,  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{z}$ . Стрелкой обозначено поле фазового перехода ЛО–ЛП.

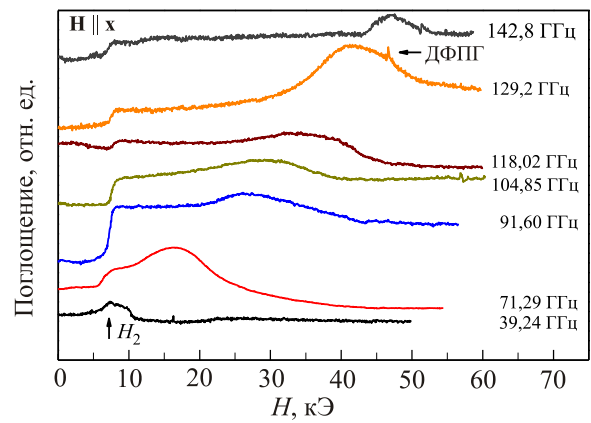


Рис. 2. Вид спектров поглощения АФМР в  $\text{Nd}_{0,75}\text{Ho}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$  для разных частот.  $T = 4,2$  К,  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{x}$ . Стрелкой обозначено поле фазового перехода ЛО–ЛП.

На рис. 4 приведена фазовая ( $\mathbf{H}-T$ ) диаграмма вдоль двух направлений  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}$  и  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$ , работа [13]. Авторы показали, что в твердом растворе  $\text{Ho}_{0,25}\text{Nd}_{0,75}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$  существует спонтанный спин-переориентационный переход из магнитной структуры ЛП в магнитную структуру ЛО при  $T = 4,8$  К. Вдоль осей  $c$  и  $a$  авторы обнаружили спин-переориентационные переходы, индуцированные внешним магнитным полем  $\mathbf{H}$ , из магнитной структуры ЛО в магнитную структуру ЛП. Мы считаем, что обнаруженные особенности в виде скачка на рис. 1–3 могут соответствовать границам двух фаз на рис. 4. Поэтому фазовая ( $\mathbf{H}-T$ )-диаграмма дополнена результатами нашего эксперимента, которые изображены на рисунке «звездочками». Видно, что индуцирование фазового перехода типа «спин-флоп» при  $T = 4,2$  К вдоль направления  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$  происходит в поле  $H = 2,5$  кЭ, а спин-переориентационный переход для  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}$  в поле

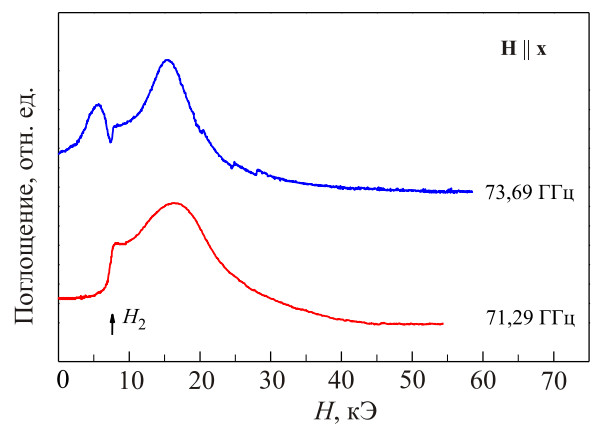


Рис. 3. Запись спектров поглощения АФМР в  $\text{Nd}_{0,75}\text{Ho}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$  для «легкоосной» и «легкоплоскостной» магнитных структур, частота  $\nu = 73,69$  ГГц. Для частоты  $\nu = 71,29$  ГГц спектр АФМР для «легкоосной» магнитной структуры отсутствует.  $T = 4,2$  К,  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{x}$ . Стрелкой обозначено поле фазового перехода  $H_2$ .

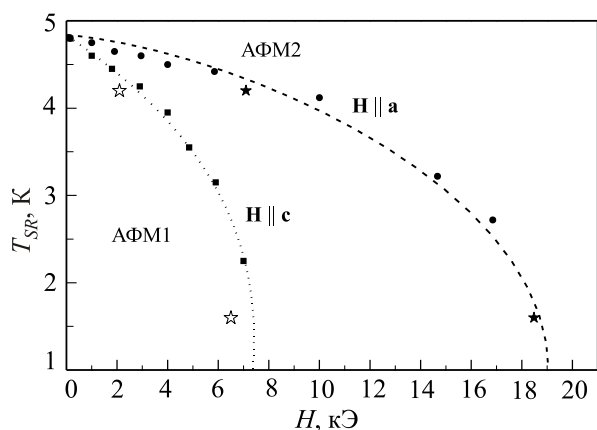


Рис. 4. Магнитная фазовая диаграмма  $\text{Nd}_{0,75}\text{Ho}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$  при низкой температуре [13]. Белые звездочки — данные нашего эксперимента при  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$ , черные звездочки — при  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}$ .

$H = 7,1$  кЭ. Полученные результаты близки к результатам работы [13]. Охлаждение образца до температуры 1,6 К приводит к увеличению магнитных полей фазовых переходов  $H = 6,5$  кЭ и  $H = 18,5$  кЭ для  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$  и  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}$  соответственно. Для промежуточной ориентации ( $\theta = 45^\circ$ ) магнитного поля между осями  $\mathbf{c}$  и  $\mathbf{a}$  величина поля перехода равна  $H = 12,75$  кЭ. Наличие спин-переориентационного магнитного фазового перехода первого рода вдоль оси  $\mathbf{a}$  в  $\text{Nd}_{0,75}\text{Ho}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$  является необычным результатом, поскольку на первый взгляд нет причин, которые бы его вызывали — внешнее магнитное поле  $\mathbf{H}$  ориентировано перпендикулярно вектору  $\mathbf{L}$ . Однако в работе [14] объясняется природа такого перехода. Авторы работы делают вывод, что переход обусловлен подавлением магнитным полем  $\mathbf{H}$  вклада редкоземельных ионов в энергию анизотропии, стабилизирующего одноосное состояние при низких температурах.

Используя частотные зависимости спектров АФМР, которые представлены на рис. 1–3, была построена общая частотно-полевая диаграмма АФМР в  $\text{Nd}_{0,75}\text{Ho}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$  вдоль главных направлений  $\mathbf{x}$  и  $\mathbf{z}$  для разных магнитных фаз при  $T = 4,2$  К (см. рис. 5). Вертикальными линиями показаны поля фазовых переходов. Диаграмма демонстрирует следующие особенности.

Для  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{z}$  в магнитном поле 2,5 кЭ ( $T = 4,2$  К) индуцируется магнитный спин-переориентационный фазовый переход из магнитной структуры ЛО в ЛП. Для магнитной структуры ЛП экспериментальные зависимости частот АФМР от поля в  $\text{Nd}_{0,75}\text{Ho}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ , в пределах погрешности эксперимента, мы описали выражением для квадратичной моды двухподрешеточно-го антиферромагнетика [15]:

$$\vartheta_1 = \gamma \sqrt{2H_e H_a + H^2}, \quad (1)$$

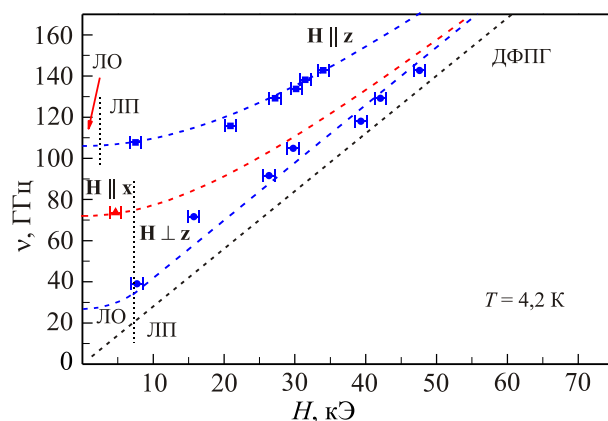


Рис. 5. Частотно-полевая зависимость линий поглощения АФМР в  $\text{Nd}_{0,75}\text{Ho}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ .  $T = 4,2$  К. Вертикальными линиями показаны границы разделения магнитных фаз ЛО и ЛП. Точки — эксперимент, пунктирные линии — теория.

где  $\vartheta_1$  — частота возбуждения АФМР,  $\gamma$  — гиромагнитное отношение,  $H_e$  — обменное поле,  $H_a$  — эффективное поле магнитной анизотропии,  $H$  — внешнее магнитное поле.

Экстраполяция квадратичной моды в нулевое поле определяет высокочастотную щель возбуждения магнов в спектре спиновых волн, равную  $\vartheta_1 = (107 \pm 1)$  ГГц ( $3,56 \text{ cm}^{-1}$ ). Значение величины щели мы использовали для определения эффективного поля магнитной анизотропии, которая формирует эту щель,  $H_{a1} = 1,35$  кЭ (величина  $H_e = 540$  кЭ взята из работы [16]).

Если внешнее магнитное поле направлено перпендикулярно оси  $\mathbf{z}$  ( $\mathbf{H} \parallel \mathbf{x}$ ), то наблюдается низкочастотная линейная «квазиферромагнитная» мода АФМР в полях  $H > 7,1$  кЭ, характерная для магнитной структуры «легкая плоскость». Частота возбуждения линейной моды АФМР описывается простым выражением:

$$\vartheta_2 = \gamma H. \quad (2)$$

Использование выражения (2) соответствует ненулевой щели возбуждения магнов в  $\text{Nd}_{0,75}\text{Ho}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ , поэтому мы предположили двусосный характер магнитной анизотропии. В полях до фазового перехода будем описывать эту магнитную ветвь квадратичной зависимостью (1). Это описание в нулевом магнитном поле дает величину щели энергии активации магнов  $\vartheta_2 = (27 \pm 1)$  ГГц. Эффективная магнитная анизотропия, обуславливающая эту щель, равна  $H_{a2} = 0,086$  кЭ. Отметим, что наличие щели для этой моды АФМР показывает, что соединение  $\text{Nd}_{0,75}\text{Ho}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$  по типу магнитной анизотропии не принадлежит к чистой магнитной структуре ЛП. В этом антиферромагнетике преобладает «легкоплоскостная» анизотропия со слабой анизотропией внутри плоскости.

Так как магнитные моменты ионов  $\text{Fe}^{3+}$  ориентированы вдоль оси  $z$ , то наблюдаемая линия поглощения АФМР ( $T = 4,2$  К,  $H_p = 5,5$  кЭ,  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{x}$ , см. рис. 3) может соответствовать квадратичной моде АФМР вдоль «средней» оси намагничивания ЛО фазы. Таким образом, можно сделать оценку величины щели в спектре спиновых волн для ЛО структуры антиферромагнетика, которая равна  $\vartheta_3 = 72 \pm 1$  ГГц. Оценка величины эффективной магнитной анизотропии, формирующая эту щель, равна  $H_{a3} = 0,61$  кЭ. Изменение рабочей частоты  $\Delta\vartheta = \pm 1$  ГГц приводит к потере наблюдения этого возбуждения, что свидетельствует о близости магнитной щели к величине рабочей частоты эксперимента.

Кроме этого, нами была предпринята попытка обнаружить особенности в температурной зависимости спектра АФМР, связанные с упорядочением дипольных электрических моментов [13] и возможным образованием несоизмеримой фазы в исследуемом кристалле, как в исходных 100% неодимовом и гольмиевом ферроборатах. Такое предположение следует из того, что 25% гольмия в  $\text{Nd}_{0,75}\text{Ho}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$  приводит к спонтанному магнитному фазовому переходу из магнитной структуры ЛП в ЛО при  $T_1 = 4,8$  К, аналогично фазовому переходу при температуре 4,8 К в  $\text{HoFe}_3(\text{BO}_3)_4$ .

Эксперимент проводили следующим образом. Исследовали температурные зависимости спектров ЭПР и АФМР в интервале температур 4,2–100 К на частоте 73,82 ГГц вдоль оси  $x$ . Были проанализированы поведение резонансного поля  $H_p$  и ширины  $\Delta H$  линии резонансного поглощения как функции температуры.

На рис. 6 представлены записи вида спектров ЭПР и АФМР на частоте 73,82 ГГц в температурном диапазоне 4,2–100 К. Точность измерения температуры  $\pm 0,3$  К. При температурах выше  $T_N = 32$  К наблюдается одиночная линия ЭПР ионов  $\text{Fe}^{3+}$  с  $g$ -фактором близким к 2. Температурное поведение линии ЭПР является классическим — ее ширина практически не изменяется и только вблизи температуры магнитного упорядочения наступает критическое уширение, а в  $T_N$  линия исчезает. Спектр ЭПР ионов  $\text{Nd}^{3+}$  и  $\text{Ho}^{3+}$  в этой области температур сильно уширен спин-орбитальной связью и не наблюдается. Дальнейшее изменение температуры ( $23 \text{ К} \leq T < T_N$ ) приводит к возникновению однородного антиферромагнитного резонанса, характерного для магнитной структуры ЛП. Резонансное поле и ширина линии АФМР равны  $H_p = 25,2$  кЭ,  $\Delta H = 12,2$  кЭ ( $T = 25,8$  К). Линейная мода АФМР очень чувствительна к другим типам взаимодействий, присутствующих в кристалле. Поэтому даже очень слабые взаимодействия будут изменять ширину линии АФМР и ее резонансное поле. Как видно на рис. 6, при  $T \approx 23$  К происходит заметное увеличение ширины линии до  $\Delta H = 16$  кЭ и резонансного поля до  $H_p = 27,3$  кЭ. После этого ширина линии

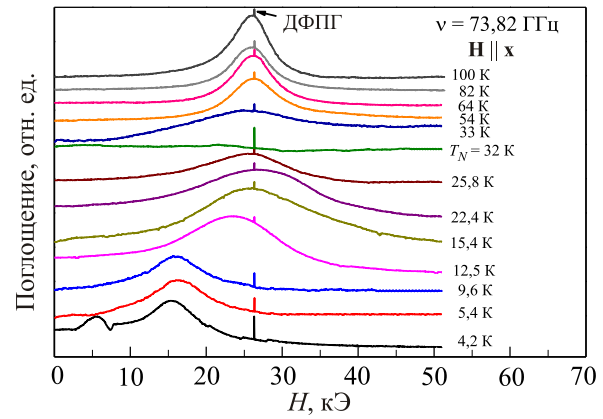


Рис. 6. Записи спектров поглощения ЭПР и АФМР в  $\text{Nd}_{0,75}\text{Ho}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$  при различных температурах.

АФМР сохраняется до температур  $\sim 10$  К. Ниже 10 К резонансное поле и ширина линии АФМР равны  $H_p = 15,5$  кЭ и  $\Delta H = 8,4$  кЭ.

При  $T = 4,2$  К в резонансном спектре наблюдаются две линии поглощения АФМР от двух фаз. Низкополевая линия ( $H_p = 5,5$  кЭ) соответствует АФМР магнитной структуры ЛО, в то время как высокополевая линия ( $H_p = 15,4$  кЭ) соответствует магнитной структуре ЛП. Скачок сигнала в поле 7,1 кЭ — спин-переориентационный фазовый переход, индуцированный внешним магнитным полем вдоль оси  $x$ . Спектр ЭПР ионов  $\text{Nd}^{3+}$  и  $\text{Ho}^{3+}$  при низких температурах не наблюдается из-за сильной поляризации их ионами  $\text{Fe}^{3+}$ .

На рис. 7 показаны температурные зависимости резонансного поля линии поглощения в кристалле  $\text{Nd}_{0,75}\text{Ho}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$  в температурном диапазоне 4,2–100 К. Анализ этих зависимостей приводит к следующим результатам: в интервале температур 100–32 К исследуемый образец находится в парамагнитной фазе, в диапазоне 32–23 К пребывает в высокотемпературной магнитной фазе ЛП. Далее, мы предполагаем, что от 23 К до 10 К соединение  $\text{Nd}_{0,75}\text{Ho}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$  находится в несоизмеримой фазе ЛП. Поле резонансных пиков в интервале температур 10–4,8 К соответствует низкотемпературной магнитной структуре ЛП. Граница раздела ЛО и ЛП фаз ниже  $T_1 = 4,8$  К (сплошная линия) перенесена из рис. 4 для  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}$ .

На рис. 8 представлена температурная зависимость ширины линии  $\Delta H$  монокристалла твердого раствора  $\text{Nd}_{0,75}\text{Ho}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ . Видно, что в парамагнитной фазе ширина резонансной линии сравнима с величиной  $\Delta H$  в температурном интервале 4,2 К  $< T < 10$  К. Тогда как в области температур 10–23 К линия поглощения уширяется более чем в два раза, что сравнимо с обменным уширением линии ЭПР вблизи  $T_N$ .

На основании проведенных исследований температурной зависимости спектров АФМР и результатов работ [12,13,17] сделано следующее предположение.



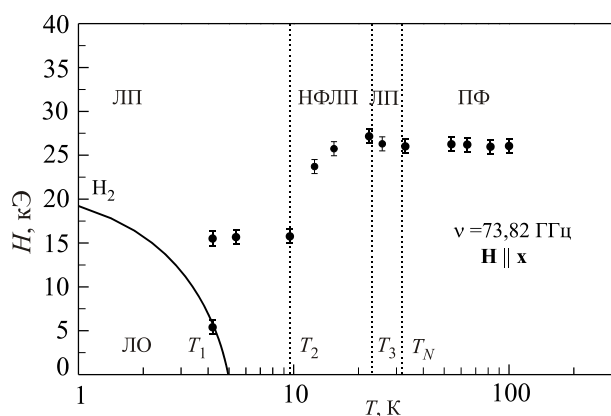


Рис. 7. Зависимость резонансного поля линии поглощения при различных температурах. ПФ — парамагнитная фаза, ЛП — «легкоплоскостная фаза», НФЛП — несоизмеримая фаза ЛП, ЛО — «легкоосная» фаза.  $T_N$  — температура Нееля (32 К),  $T_3$  — температура перехода в несоизмеримую фазу ЛП (22,4 К),  $T_2$  — температура исчезновения несоизмеримой фазы (10 К),  $T_1$  — температура спонтанного спин-переориентационного перехода (4,8 К), сплошная линия — граница перехода ЛО–ЛП (из рис. 4 для  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}$ ).

Твердый раствор  $\text{Nd}_{0,75}\text{Ho}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$  является нецентросимметричной системой, и ниже  $T_N$  возникает спонтанная электрическая поляризация [13], которая при  $T_3 = 22,5$  К может привести к возникновению несоизмеримой спиральной структуры вдоль оси  $z$ , аналогично мультиферроику  $\text{HoFe}_3(\text{BO}_3)_4$  [12]. Поэтому возникшее уширение линий спектра АФМР можно объяснить разной проекцией магнитных моментов ионов  $\text{Fe}^{3+}$  на направление  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{x}$ . Известно, что в работе [17] авторы, исследуя  $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$ , показали, что магнитное поле  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{x}$  величиной 20 кЭ перестраивает магнитную структуру в базисной плоскости, что приводит к подавлению пространственно модулированной структуры вдоль оси  $z$ . Мы предполагаем, что при  $T_2 = 10$  К в системе  $\text{Nd}_{0,75}\text{Ho}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$  может реализоваться подобный сценарий, который приведет в резонансных исследованиях к уменьшению ширины линии АФМР и резкому ее смещению по магнитному полю. Высказанное в работе предположение требует дальнейших исследований твердого раствора  $\text{Nd}_{0,75}\text{Ho}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$  разными методиками.

Таким образом, в результате проведенной экспериментальной работы получены следующие результаты.

При  $T = 4,2$  К методом АФМР обнаружен спин-переориентационный переход первого рода типа спин-флор, индуцированный внешним магнитным полем для направления  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{z}$  и спин-переориентационный переход первого рода вдоль  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{x}$ . Для фазовых переходов эволюция величины магнитного поля перехода от температуры показывает его рост с понижением температуры для обоих кристаллографических направлений, по-видимому, вследствие увеличения суммар-

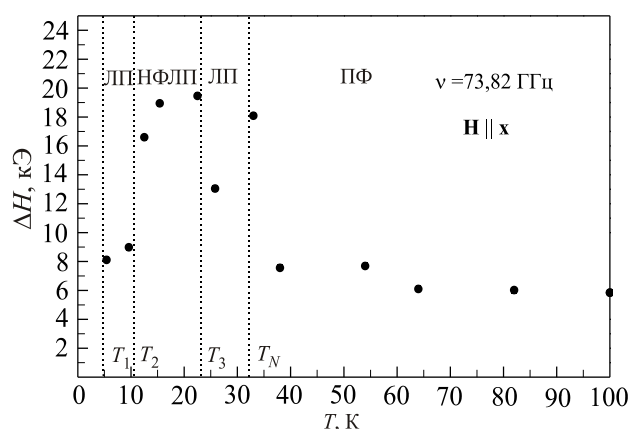


Рис. 8. Температурная зависимость ширины резонансной линии ( $\Delta H$ ) спектров ЭПР и АФМР. Обозначение фаз как на рис. 7.

ной эффективной константы анизотропии исследуемого соединения. Для температуры выше 4,8 К фазовые переходы по магнитному полю не наблюдаются и система обладает магнитной структурой типа «легкая плоскость». Наличие фазовых переходов является следствием замены ионов  $\text{Nd}^{3+}$  изовалентными ионами  $\text{Ho}^{3+}$ .

Исследование ветвей спектра АФМР позволило без привлечения сложных методов восстановить магнитную структуру и показать, что в этом магнетике преобладает «легкоплоскостная» анизотропия со слабой анизотропией внутри плоскости. Оценить энергии возбуждения магнонов для магнитной структуры ЛП ( $\mathcal{G}_1 = (107 \pm 1)$  ГГц,  $\mathcal{G}_2 = (27 \pm 1)$  ГГц) и ЛО ( $\mathcal{G}_3 = (72 \pm 1)$  ГГц), величины эффективной магнитной анизотропии ( $H_{a1} = 1,35$  кЭ,  $H_{a2} = 0,086$  кЭ,  $H_{a3} = 0,61$  кЭ) в твердом растворе  $\text{Nd}_{0,75}\text{Ho}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ .

При изучении температурных зависимостей спектров АФМР обнаружены особенности, которые могут быть связаны с наличием пространственно модулированной спиновой структуры (несоизмеримая фаза) в антиферромагнитном кристалле  $\text{Nd}_{0,75}\text{Ho}_{0,25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ .

1. S. Klimin, D. Fausti, A. Meetsma, L.N. Bezmaternikh, P.H.M. van Loosdrecht, and T.T.M. Palsta, *Acta Crystallogr. B* **61**, 481 (2005).
2. А.К. Звездин, С.С. Кротов, А.М. Кадомцева, Г.П. Воробьев, Ю.Ф. Попов, А.П. Рятаков, Л.Н. Безматерных, *Письма в ЖЭТФ* **81**, 335 (2005).
3. А.Н. Васильев, Е.А. Попова, *ФНТ* **32**, 968 (2006) [*Low Temp. Phys.* **32**, 735 (2006)].
4. 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).
5. E.A. Popova, D.V. Volkov, A.N. Vasiliev, A.A. Demidov, N.P. Kolmakova, I.A. Gudim, and L.N. Bezmaternykh, *Phys. Rev. B* **75**, 224413 (2007).
6. Ю.Ф. Попов, А.М. Кадомцева, Г.П. Воробьев, Ф.Ф. Мухин, А.А. Мухин, В.Ю. Иванов, А.М. Кузьменко,

- А.С. Прохоров, Л.Н. Безматерных, В.Л. Темеров, *Письма в ЖЭТФ* **89**, 405 (2009).
7. 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)].
  8. М.И. Kobets, K.G. Dergachev, E.N. Khatsko, S.L. Gnatchenko, L.N. Bezmaternykh, and V.L. Temerov, *Physika B* **406**, 3430 (2011).
  9. R.P. Chaudhury, F. Yen, B. Lorenz, Y.Y. Sun, L.N. Bezmaternykh, V.L. Temerov, and C.W. Chu, *Phys. Rev. B* **80**, 104424 (2009).
  10. A. Pankrats, G. Petrakivskii, A. Kartashev, E. Eremin, and V. Temerov, *J. Phys.: Condens. Matter* **21**, 436001 (2009).
  11. А.А. Демидов, Д.В. Волков, *ФТТ* **53**, 926 (2011).
  12. D.K. Shukla, S. Francoual, A. Skaugen, M. Zimmermann, H.C. Walker, L.N. Bezmaternykh, I.A. Gudim, V.L. Temerov, and J. Stempffer, *Phys. Rev. B* **86**, 224421 (2012).
  13. R.P. Chaudhury, F. Yen, B. Lorenz, Y.Y. Sun, L.N. Bezmaternykh, V.L. Temerov, and C.W. Chu, *J. Appl. Phys.* **107**, 09D913 (2010).
  14. А.П. Пятаков, *Магнитоэлектрические и флексомагнитоэлектрические эффекты в мультиферроиках и магнитных диэлектриках*, дис. д-ра физ.-мат. наук, Москва (2013).
  15. А.С. Боровик–Романов, *Лекции по низкотемпературному магнетизму*, Наука, Москва (2010).
  16. А.А. Демидов, И.А. Гудим, Е.В. Еремин, *ЖЭТФ* **141**, 294 (2012).
  17. J.E. Heman–Borrero, S. Partzsch, S. Valencia, C. Mazzoli, J. Herrero–Martin, R. Feyherherm, E. Dudzik, C. Hess, A. Vasiliev, L. Bezmaternykh, B. Buechner, and J. Geck, *Phys. Rev. Lett* **109**, 267202 (2012).

## Magnetic resonance and spin-reorientation transitions in Nd<sub>0.75</sub>Ho<sub>0.25</sub>Fe<sub>3</sub>(BO<sub>3</sub>)<sub>4</sub> multiferroic

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

The experimental data on high frequency resonant properties of multiferroic Nd<sub>0.75</sub>Ho<sub>0.25</sub>Fe<sub>3</sub>(BO<sub>3</sub>)<sub>4</sub> investigated by the antiferromagnetic resonance method (AFMR) in wide frequency and temperature ranges are presented. The influence of substitution of Ho<sup>3+</sup> ions for Nd<sup>3+</sup> ones on resonant properties of Nd<sub>0.75</sub>Ho<sub>0.25</sub>Fe<sub>3</sub>(BO<sub>3</sub>)<sub>4</sub> solid solution was studied. The peculiarities of field-induced spin-reorientation phase transitions for directions  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$  and  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}$  are considered. For these directions the magnetic anisotropy changes from “easy axes” anisotropy to “easy plane” one. The AFMR modes of the Fe<sup>3+</sup> subsystem were revealed. New information about the main AFMR characteristics was obtained. It is shown that dominant in this compound is the “easy plane” anisotropy with a weak anisotropy in the basal plane. It is for the first time that some specific features were observed in the AFMR spectra that were supposed to be due to a space-modulated spin structure (incommensurate phase) in the Nd<sub>0.75</sub>Ho<sub>0.25</sub>Fe<sub>3</sub>(BO<sub>3</sub>)<sub>4</sub>.

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, multiferroic, magnetic anisotropy, spin-reorientation transitions.