

YIG 中生长感生磁各向异性的来源

曾训一 陆晓佳 王亚旗

中国科学院上海冶金研究所

1989年2月20日收到

为了研究 YIG 中生长感生磁各向异性的来源,穆斯堡尔测量扩展到低温. 发现在 170 K 以下, K_u 为负,即有一自旋再取向. 计算表明, 0.01% Fe^{2+} 的单离子各向异性可以说明观察到的 $K_u(T)$, 假定 Fe^{2+} 离子优先占据除 $\left(\frac{1}{4} \frac{1}{4} \frac{1}{4}\right)$ 和 $\left(\frac{3}{4} \frac{3}{4} \frac{3}{4}\right)$ 外的八面体晶位.

一、引 言

Stacy 和 Tolksdorf^[1] 发现,磁畴结构类型和生长带密切相关,因而他们推论在熔剂法生长的没有掺杂的 YIG 中也有生长感生磁各向异性. 文献[2]报道了从 ^{57}Fe 穆斯堡尔谱获得的位向为 [111] 的 LPE 生长的 YIG 中生长感生磁各向异性的定量信息. 本文研究这一各向异性的来源.

二、穆斯堡尔谱学方法

首先回顾我们提出的研究 YIG 中生长感生磁各向异性的穆斯堡尔谱学方法.

从生长感生磁各向异性的两参数唯象描述^[3], 易于证明,若生长方向为 [111], 则非立方对称性磁各向异性将蜕化为单轴性的

$$E_G = K_u \sin^2 \theta. \quad (1)$$

因为 K_2 很小^[3], 可略而不计, 在 [111] 坐标系统中, 磁晶各向异性能量为

$$E_K = |K_1| \left(\frac{1}{3} - \frac{1}{4} \sin^4 \theta - \frac{1}{3} \cos^4 \theta - \frac{\sqrt{2}}{3} \sin^3 \theta \cos \theta \cos 3\phi \right), \quad (2)$$

式中 ϕ 是 $X (= [11\bar{2}])$ 与 M 在 xy 平面上投影之间夹角, 而 $Y = [\bar{1}10]$.

单位体积的静磁能与畴壁能可以写为^[4]

$$E_{m,w} = \frac{2 \times 2}{1 + \mu^*} \times 1.704 M_s^2 \cos^2 \theta \times \frac{d}{h} = m \cos^2 \theta, \quad (3)$$

式中 d 是畴宽, h 是样品厚度.

因为 $|K_1|$ 有限, 必须作有效磁导率修正

$$\mu^* = 1 + 4\pi \frac{3M_s^2 \sin^2 \phi}{4|K_1|}, \quad (4)$$

式中 ϕ 是 $\langle 111 \rangle$ 之间夹角, $\phi = \cos^{-1}(1/3)$. 而

$$\frac{d}{h} = 0.542 \left[(1 + \mu^*) \frac{\sigma}{h} \right]^{1/2} \frac{1}{M_s \cos \theta_0}, \quad (5)$$

式中 σ 是畴壁能量, θ_0 是 M_s 在其平衡位置时的 θ 角. 据文献[5]

$$\sigma = 0.461(A|K_1|)^{1/2}, \quad (6)$$

式中 A 是交换常数. 系统的总能量为

$$E = E_G + E_K + E_{m,w}. \quad (7)$$

当 E 为最小时, θ 等 θ_0 . 因为 M_s , K_1 与 A 都是已知材料参数, 因此如果有某种手段测得 θ_0 则 K_1 可以推求. 文献[2]和本文采用穆斯堡尔谱求 θ_0 .

三、实 验

本文所用试样仍为文献[2]所用过的那一试样.

用 LPE 生长得(111)单晶膜, 小心磨去衬底 GGG. 磨去衬底是透射穆斯堡尔谱的需要, 此外, 可以消除由于膜与衬底点阵失配引起的应力感生磁各向异性. 样品的最终厚度为 $40\mu\text{m}$, 约相当于每平方厘米 8mg Fe .

γ 线垂直入射于试面即沿[111]. 为了研究生长感生磁各向异性的来源, 穆斯堡尔谱测量扩展到低温, 195, 77 和 4.2K. 源在室温. 所得谱用电子计算机拟合.

四、实验结果, K_1 与 T

所得穆斯堡尔谱示于图1. 它是由 Fe 的 a 和 d 晶位的两套谱组成. 随着温度降低, 谱线向高的多普勒速度扩展, 另外, 值得特别注意的是二、五峰增强. 表1列出穆斯堡尔参数. 300K 的谱与参数已发表过^[2]. 为完整起见, 转载于此. 4.2K 测量是在美国 Argonne National Laboratory 进行的. ANL 还提供了 77 和 300K 的谱.

表1 ^{57}Fe YIG 的 ^{57}Fe 穆斯堡尔参数

$T(\text{K})$	晶位	g_0 (mm s^{-1})	g_1 (mm s^{-1})	g (mm s^{-1})	δ (mm s^{-1})	H_h (KOe)	g_0/g_1
300	a	5.81	3.97	0.07	-0.03	493.7	1.72
	d	4.66	2.63	0.02	0.22	398.7	1.77
195	a	6.07	3.58	0.07	-0.24	516.4	1.69
	d	5.09	2.82	0.006	-0.011	431.5	1.80
77	a	6.30	3.73	0.075	-0.36	540.0	1.66
	d	5.43	3.02	-0.005	-0.15	460.5	1.80
4.2	a	6.55	3.80	0.035	-0.32	552.2	1.72
	d	5.64	3.18	-0.008	-0.12	475.5	1.80

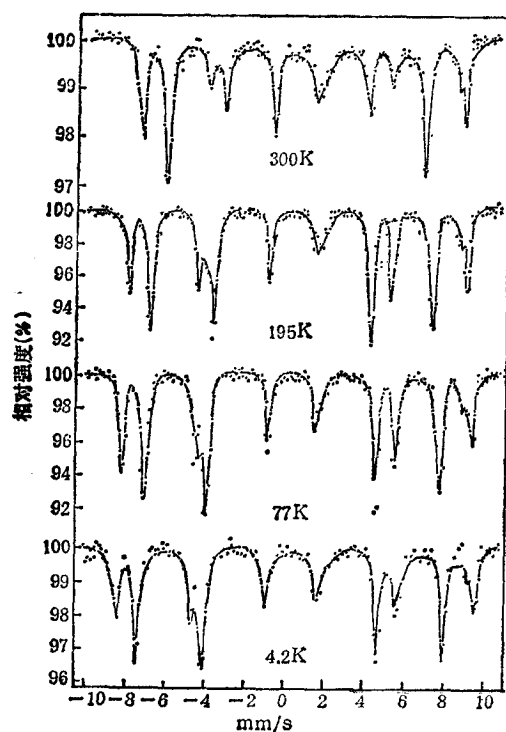
第二峰和第一峰强度之比的熟知关系为

$$R = \frac{4}{3} \frac{\sin^2 \theta_0}{1 + \cos^2 \theta_0}. \quad (8)$$

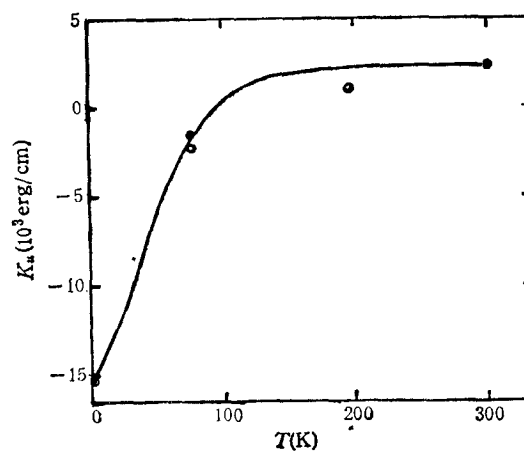
从图1可以求得 a 和 d 晶位的 R 和 θ_0 . 两晶位 θ_0 的加权平均值列于表2. 显然, M

表 2 (111)位向 YIG 中的 θ_0 与 K_u

$T(K)$	θ_0 (°)	$M_s^{[111]}$ (Gs)	$K_1^{[111]}$ (10^3 erg cm^{-3})	$A^{[111]}$ ($10^{-7} \text{ erg cm}^{-1}$)	K_u $10^3 (\text{erg cm}^{-3})$	备注
300	48.10	140	-5.00	3.75	2.4	文献[2]
	47.10				2.4	据 ANL 谱
195	71.02	169.5	-12.8	4.08	1.0	
77	75.84	192.3	-22.4	4.28	-3.3	
	75.36				-2.7	据 ANL 谱
4.2	81.74	195.5	-24.8	4.30	-15.5	据 ANL 谱

图 1 (111)位向的 ^{57}Fe 穆斯堡尔谱

并不沿[111]而是在 $(\bar{1}10)$ 面内近乎 $[1\bar{1}\bar{1}]$, 且以同样极角 θ_0 位于空间三次对称处。(7)式可以表为 α 的函数而不用 θ 。这里 $\alpha = \cos^{-1}(1/3) - \theta$, 此处所有角度均为弧度。因为 α 很小, 有 $\sin \alpha \approx \alpha$ 和 $\cos \alpha \approx$

图 2 (111)位向 YIG 中的 K_u 与温度 T 的关系及其与理论曲线的比较 ○为 SIM 谱; ●为 ANL 谱

$1 - \frac{1}{2}\alpha^2$, 并且高于二次方的 α 均可略而不计。这样, K_u 很容易从下面的代数方程求出:

$$\left. \frac{dE(\alpha)}{d\alpha} \right|_{\alpha=\alpha_0} = K_u \left(\frac{4\sqrt{2}}{9} - \frac{14}{9}\alpha_0 \right) + \frac{4}{3} |K_1| \alpha_0 - m \left(\frac{4\sqrt{2}}{9} - \frac{14}{9}\alpha_0 \right) = 0. \quad (9)$$

进一步计算表明, 若 $\alpha_0 < 2\sqrt{2}/7$, 则 $d^2E(\alpha)/d\alpha^2 > 0$ 。我们现在属于这种情况。计算得的 K_u 列于表 2。据此得图 2。注意, 我们 (SIM) 测得的 ^{57}Fe 穆斯堡尔谱求

得的数据与 ANL 的是符合的。

从图 2 可以看出,在 170K 左右, K_u 改变符号,即有自旋再取向现象。

五、理 论

Stacy 与 Rcoymans^[7] 假定 YIG 中有有序的氧空位。生长感生的磁各向异性正是来源于 Fe 离子受到的这种空位感生的电场。然而, Fe^{3+} 离子的零场劈裂常数是很小的,此外,可能的氧空位数量有限。因此,如果我们假定所有 Fe 离子为 Fe^{3+} , 似乎很难解释观察到的高达 10^3ergcm^{-3} 以上的各向异性能量。

D'Amico 等人^[8]证明,掺杂 4+ 或 2+ 价离子,在纯 YIG 中,部份 Fe^{3+} 将变为 Fe^{2+} 或 Fe^{4+} 。

这暗示人们,生长感生磁各向异性可能来源于 Fe 离子的价态变化及其在 d 和/或 a 晶位上的从尤占据。计算证明,所观察到的生长感生磁各向异性可以得到解释,如果我们合理假定^[9]样品中有一些 Fe^{2+} 且它们从尤占据八面体 a 晶位但除 $\left(\frac{1}{4} \frac{1}{4} \frac{1}{4}\right)$ 和 $\left(\frac{3}{4} \frac{3}{4} \frac{3}{4}\right)$ 。

计算步骤如下。首先计算八面体晶位 Fe^{2+} 单离子的各向异性。哈密顿量

$$\hat{H} = \sum_i \left(\sum_{kq} A_k^q \langle r^k \rangle \hat{C}_q^k(\theta_i, \phi_i) + \zeta \mathbf{l}_i \cdot \mathbf{s}_i + g\mu_B \mathbf{H}_{\text{eff}} \cdot \mathbf{s}_i \right), \quad (10)$$

式中 A_k^q 是晶体电场系数。根据点电荷模型,有 $A_0^0 \langle r^2 \rangle = -0.07957$, $A_0^0 \langle r^4 \rangle = 0.1088$ 和 $A_{\pm 2}^0 \langle r^4 \rangle = \pm 0.11013 \text{eV}$ 。此外,取 $\zeta = 0.01277$ 和 $g\mu_B H_{\text{eff}} = 7.32 \times 10^{-5} \text{eV}$ 。

Fe^{2+} 基态 (5D) 的分裂可通过解久期方程求得

$$|\langle 3d^6, ^5D, M_L, M_S | \hat{H} | 3d^6, ^5D, M'_L M'_S \rangle - \xi_i \delta_{M_L M'_L} \delta_{M_S M'_S}| = 0. \quad (11)$$

计算得的 ε_i 代入自由能中

$$F(T, \mathbf{H}_{\text{eff}}) = -kT \ln \sum_i (-\varepsilon_i / kT). \quad (12)$$

磁各向异性是 $\mathbf{H}_{\text{eff}}$ 平行和垂直 [111] 时 $F(T, \mathbf{H}_{\text{eff}})$ 之差同时对所有可能晶位的贡献求和。计算得的曲线示于图 2。为了拟合实验数据,计算时假定 Fe^{2+} 的浓度为 $2.34 \times 10^{18} \text{cm}^{-3}$ 。相当于每晶胞有 4.44×10^{-3} 个 Fe^{2+} 离子,实际上在总铁量中仅有 0.01% Fe^{2+} 。这是一合理的浓度。从图 2 可见,拟合结果良好。

氧空位或高价杂质离子例如 Pt, Si, Pb 和 $\text{Mn}^{[2]}$ 的存在可促使形成 Fe^{2+} : $\{\text{Y}_i^{3+}\} [\text{Fe}_2^{3+}, \text{Fe}_2^{2+}] (\text{Fe}_3^{3+}) \text{O}_{12}^{2-}, \square$, 或 $\{\text{Y}_{3-x}^{3+} \text{M}_x^{4+}\} [\text{Fe}_{2-x}^{3+} \text{Fe}_x^{2+}] (\text{Fe}_3^{3+}) \text{O}_{12}^{2-}$ 。这里采用了表示晶位的 Geller 符号。

六、结 论

在未掺杂的 YIG 中存在生长感生磁各向异性。对 (111) 位向的 YIG, 约在 170K,

K_u 改变符号, 即出现自旋为取向. 计算表明, 0.01 % Fe^{2+} 的单离子各向异性可以说明观察到的 $K_u(T)$. 计算时假定 Fe^{2+} 离子从尤占据除 $\left(\frac{1}{4} \frac{1}{4} \frac{1}{4}\right)$ 和 $\left(\frac{3}{4} \frac{3}{4} \frac{3}{4}\right)$ 外的八面体晶位.

感谢华东师范大学顾元吉、杨燮龙老师和美国 ANL 的 Dr. B. D. Dunlap 和 Dr. A. M. Umarji 在低温穆斯堡尔测量方面所给予的帮助.

- [1] W. T. Stacy and W. Tolksdorf, AIP. Conf. Proc. No.5, Magnetism and Magnetic Materials, Chicago, 1971, ed. C. D. Grahm, Jr. and J. J. Rhyne, AIP, New York, (1972), p. 185.
- [2] Wang Ya-qi and Zeng Xun-yi, *Hyperfine Interactions*, 28(1986), 447.
- [3] M. A. Gilleo, in "Ferromagnetic Materials", ed. E. P. Wohlfarth, Vol. 2, North-Holland, Amsterdam, (1980), p. 1.
- [4] S. Chikazumi, *Physics of Magnetism*, John Wiley & Sons, Inc., New York, (1964), Ch. 10 and 11.
- [5] B. A. Lilley, *Phil. Mag.*, 41(1950), 792.
- [6] A. Gerhardstein, P. E. Wigen and S. L. Blank, *Phys. Rev.*, B18(1978), 2218.
- [7] W. T. Stacy and C. J. Rooymans, *Solid State Commun.*, 9(1971), 2005.
- [8] A. D'Amico, A. Grilli, A. Paoletti, P. Paroli and A. Tucciarone, *Mat. Res. Bull.*, 19(1984), 347.
- [9] R. M. Housely, S. Geller and G. P. Espinosa, AIP Conf. Proc. No. 24, Magnetism and Magnetic Materials, 1974, ed. G. D. Graham, Jr. and J. J. Ryne AIP, New York, (1975), p. 374.

THE ORIGIN OF GROWTH-INDUCED MAGNETIC ANISOTROPY IN YIG

ZENG XUN-YI LU XIAO-JIA WANG YA-QI

Shanghai Institute of Metallurgy, Academia Sinica

(Received 20 February 1989)

ABSTRACT

Quantitative information about the growth-induced magnetic anisotropy in YIG was obtained from Mössbauer spectrum in a previous note^[2]. In order to study the origin of this anisotropy, Mössbauer measurements were extended to low temperatures. We discover that below 170 K, K_u is negative, i.e., there is a spin reorientation. Calculations show that single-ion anisotropy of 0.01 % Fe^{2+} may account for the observed $K_u(T)$, if Fe^{2+} ions are assumed to occupy preferentially octahedral sites except $\left(\frac{1}{4} \frac{1}{4} \frac{1}{4}\right)$ and $\left(\frac{3}{4} \frac{3}{4} \frac{3}{4}\right)$.