

ANALISIS DE LA RESONANCIA ANTIFERROMAGNETICA EN KNiF₃

S. Curatella*, M.T. Causa**, A. Miserich***

C. N. E. A. Biblioteca	
ARCHIVO PUBLICACIONES	
Nº 1	AÑO 1976

RESUMEN

Analizamos la aplicabilidad para sistemas cúbicos de las ecuaciones de movimiento de Kittel para un sistema antiferromagnético uniaxial. Calculamos el campo de resonancia antiferromagnética en función de la temperatura para un cristal de KNiF₃. Para las susceptibilidades magnéticas y la anisotropía que aparecen en la expresión del campo de resonancia antiferromagnética, usamos valores experimentales encontrados en la literatura; en el caso de la anisotropía, obtenidos por espectroscopía Raman. Comparamos nuestros cálculos con las observaciones de resonancia antiferromagnética en KNiF₃ a 34, 5 GHz de otros autores, observándose buen acuerdo.

Introducción

Estamos interesados en sistemas que se ordenan antiferromagnéticamente por debajo de la temperatura de Néel, T_N. En particular, nos interesan los sistemas de estructura magnética simple, que sirven como modelo para estudios teóricos. Esto nos llevó a realizar trabajos de resonancia paramagnética electrónica ⁽¹⁾ y de resonancia antiferromagnética ⁽²⁾ en sistemas cúbicos, como el KNiF₃. En este trabajo interpretamos datos experimentales preliminares de resonancia antiferromagnética en KNiF₃ que encontramos en la literatura ⁽³⁾.

En la fase paramagnética, la resonancia de cada uno de los momentos magnéticos se produce en forma independiente. Para una frecuencia de trabajo ν el campo de resonancia resulta $H_0 = (h\nu/g\beta)$, donde h es la constante de Planck, g es la constante giromagnética y β el magnetón de Bohr. Al ordenarse el sistema, la mitad de los momentos magnéticos se orientan en un sentido y la otra mitad en el sentido opuesto. La magnetización resultante es nula, pero cada una de las "subredes" así formadas tiene una magnetización neta M_i , $i = 1, 2$. En estas condiciones, la resonancia se convierte en un fenómeno colectivo. Las ecuaciones de movimiento de Kittel ⁽⁴⁾ para cada subred son:

$$\frac{1}{\gamma} \frac{dM_i}{dt} = M_i \times H_{ef} \quad (1)$$

donde

$$H_{ef} = H + H_E + H_A + H_{rf}$$

* Area Combustibles Nucleares, Comisión Nacional de Energía Atómica.

** Centro Atómico Bariloche, Comisión Nacional de Energía Atómica.

*** Area Investigación, Desarrollo y Servicios, Comisión Nacional de Energía Atómica.

y H: campo estático aplicado
 H_E: campo de intercambio
 H_A: campo de anisotropía
 H_{rf}: campo de radiofrecuencia

Las soluciones dependerán de la simetría del cristal y de las orientaciones de la magnetización respecto del cristal y del campo externo.

El compuesto estudiado, KNiF₃, es un cristal cúbico que retiene la estructura de perovskita por debajo de la temperatura de Néel⁽⁵⁾. Se determinó para T_N el valor 246°K⁽⁶⁾. Debido a su estructura magnética muy simple⁽⁷⁾, el KNiF₃ sirve como modelo para estudios teóricos. La magnetización de cada subred se orienta según los ejes cúbicos (001)⁽⁸⁾ y en un monocristal, pueden coexistir tres tipos de dominios⁽⁹⁾ según el eje cúbico sobre el que se oriente la magnetización.

Tanto la resonancia antiferromagnética como la resonancia paramagnética en KNiF₃ han sido difíciles de observar debido a su gran ancho. Recientemente observamos la resonancia magnética electrónica en un monocristal y en polvo de este compuesto, a la frecuencia $\nu = 34,5$ GHz, solamente en el rango de 233 a 295°K.

El comportamiento de la resonancia antiferromagnética con la temperatura es semejante al que observamos en mediciones de la resonancia antiferromagnética a 9.5 GHz⁽²⁾. En esta comunicación, presentamos una interpretación de los datos obtenidos por Petrov y Kizhaev a 34.5 GHz.

Análisis teórico

Consideramos el caso en que se aplica el campo externo a lo largo de uno de los ejes cúbicos.

El sistema de ecuaciones (1) para cristal cúbico es soluble, pero complejo. Se puede ver que las soluciones de las ecuaciones para el caso uniaxial, con la magnetización a lo largo del eje principal, son válidas para la orientación que consideramos, ya que la resonancia antiferromagnética involucra pequeñas desviaciones de los momentos magnéticos. Entonces usamos las soluciones de las ecuaciones de Kittel⁽⁴⁾ para un sistema antiferromagnético uniaxial para calcular el campo de resonancia antiferromagnética en KNiF₃ en función de la temperatura.

Debido a distorsiones y condiciones de contorno pueden coexistir diferentes dominios, aún en presencia de un campo magnético.

Consideramos dos tipos de dominios:

a) Dominios con la magnetización a lo largo de uno de los ejes (001) perpendiculares al campo externo (figura 1-a).

El campo de resonancia antiferromagnético, H_{afmr}, para un sistema uniaxial con campo externo perpendicular al eje de anisotropía, resulta^(*):

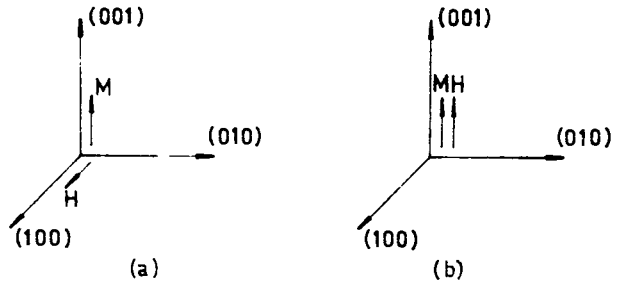
$$H_{\text{afmr}} = (H_0^2 - 2 H_E H_A)^{1/2} \quad (2)$$

Donde H_0 es el campo de resonancia paramagnética y $H_E H_A$ como en (1). Por lo discutido antes, la solución axial es aplicable a nuestro sistema cúbico; en nuestro caso H_A es el campo de anisotropía cúbica.

b) Dominios con la magnetización a lo largo del eje (001) paralelo al campo externo (figura 1-b).

Figura 1.

Orientación de la magnetización en los dominios considerados en los casos (a) y (b)



Al aplicar pequeños campos a un cristal cúbico perfecto, se espera por balance energético que los dominios con la magnetización paralela al campo externo se reorienten a lo largo de alguno de los ejes (001) perpendiculares al campo (Spin Flop).

Sin embargo, en un cristal real puede necesitarse un campo apreciable para que se efectúe esta reorientación, debido a posibles distorsiones producidas por tensiones o impurezas del cristal.

De este modo, el campo necesario para la reorientación dependerá de la muestra. Estas distorsiones pueden reflejarse en la aparición de anisotropías axiales. Moch y Dugautier⁽¹⁰⁾ encontraron que para que su muestra se reoriente a 4°K bastan 5 KOe, valor pequeño comparado con el campo de anisotropía cúbica a esa temperatura, $H_A \approx 50$ KOe; por lo que las presuntas anisotropías axiales son mucho menores que las anisotropías cúbicas.

Una vez ocurrida la reorientación, la ecuación (2) resulta aplicable a nuestro sistema cúbico. Las anisotropías axiales mencionadas anteriormente hacen que el valor de H_A difiera ligeramente del valor de H_A en el caso (a). Mientras los dominios no se reorienten y permanezcan paralelos al campo externo, es válida la ecuación para el caso axial con la magnetización y el eje de anisotropía paralelos al campo aplicado⁽⁴⁾:

$$H_0^2 = \left\{ \frac{1}{2} H_{\text{afmr}} (1+\alpha) \pm \left[2 H_E H_A + (1-\alpha)^2 \left(\frac{1}{2} H_{\text{afmr}} \right)^2 \right]^{1/2} \right\}^2 \quad (3)$$

donde $\alpha = 1 - \frac{\chi_2}{\chi_1}$

$\chi_{//}$ y χ_{\perp} : componentes paralela y perpendicular de la susceptibilidad magnética. De esta ecuación se puede despejar H_{afmr} y es válida para $H_{afmr} < H_{sf}$, donde

$H_{sf} = \left(\frac{2 H_E H_A}{\alpha} \right)^{1/2}$ es el campo de spin flop para un sistema axial, es decir, el campo que produce la reorientación de los momentos magnéticos para ellos al campo hacia una dirección perpendicular a él.

En un sistema ordenado α y $(2 H_E H_A)^{1/2}$ dependen de la temperatura y tienden a cero en las proximidades de T_N . Para el cálculo de H_{afmr} , necesitamos valores de α y $(2 H_E H_A)$. En la literatura, encontramos mediciones de susceptibilidades de KNiF_3 únicamente en polvo⁽¹¹⁾ y por encima de $T = 78^\circ\text{K}$. Para el cálculo de α a partir de estas mediciones, se supusieron iguales poblaciones de dominios según los tres ejes cúbicos.

$$\chi_{\text{polvo}}(T) = \frac{2}{3} \quad \chi_{\perp}(T) + \frac{1}{3} \quad \chi_{//}(T) \quad (4)$$

Por otra parte, la susceptibilidad perpendicular en un antiferromagneto, es una constante independiente de la temperatura:

$$\chi_{\perp}(T) = \text{constante} = \chi_{\text{polvo}}(T_N) \quad (5)$$

No encontramos en la literatura mediciones directas de H_A . Moch y Dugautier⁽¹⁰⁾, midieron recientemente $(2 H_E H_A)$ a partir de observaciones en espectroscopía Raman de un magnón en función de la temperatura. Sus valores fueron tomados a temperaturas inferiores a $T = 0.9 T_N$. Como Petrov y Kizhaev midieron la resonancia antiferromagnética en el rango $(0.9 T_N - T_N)$, para nuestros cálculos debimos interpolar linealmente en este rango, considerando que para $T = T_N$, $(2 H_E H_A) = 0$. El valor de H_0 usado corresponde al valor experimental a 34.5 GHz, $H_0 = 10775$ Oe. Con estos valores de α y $(2 H_E H_A)$ y usando las ecuaciones (2) y (3), calculamos $H(T)$ para el caso (a).

En la figura 2, lo representamos junto con los puntos experimentales de Petrov y Kizhaev, encontrándose un muy buen acuerdo. Para comparar, graficamos también el caso (b).

Vemos que hay coincidencia entre los valores experimentales y la rama de la curva que se espera que sea más intensa y que corresponde a la magnetización perpendicular al campo externo. Esta resonancia proviene tanto de los dominios perpendiculares al campo como de los dominios inicialmente paralelos que se reorientaron.

La falta de mención en el trabajo experimental⁽³⁾ de una segunda resonancia implicaría una apreciable reorientación de los dominios inicialmente paralelos al campo, a valores de campo externo inferiores a los que debería observarse esta resonancia para las temperaturas correspondientes a las mediciones de Petrov y Kizhaev (ver figura 2)

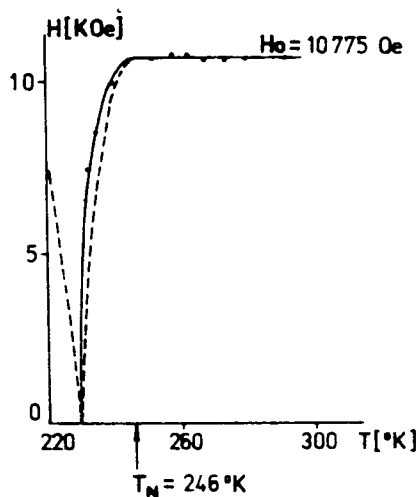
Figura 2.

Campo de resonancia magnética en función de la temperatura.

a) Campo externo perpendicular al eje de magnetización (ecuación 2, línea llena)

b) Campo externo paralelo al eje de magnetización (dominios aún sin reorientar, ecuación 3, línea punteada)

Los puntos corresponden a las mediciones de Petrov y Kizhaev (3)



Conclusiones

Podemos explicar los resultados experimentales para la resonancia antiferromagnética en KNiF_3 , con el simple modelo descrito en este trabajo, confirmándose la hipótesis de que el KNiF_3 es un sistema apropiado para el estudio básico de propiedades magnéticas.

REFERENCIAS

1. M.T.Causa, S.Curatella, A.Misetich, Comunicaciones Asociación Física Argentina, 1, 93 (1974)
2. S.Curatella, M.T.Causa, A.Misetich, no publicado.
3. M.P.Petrov, S.A.Kizhaev, Sov.Phys.Solid State, 11, 1968 (1970)
4. D.M.S.Bagguley, J.Owen, Repts.Prog. in Phys, 20, 364 (1957)
5. A.Okasaki, Y.Suemune, J.Phys. Soc. Japan, 16, 671 (1961)
6. J.Nouet, A.Zarembowitch, R.V.Pisarev, J.Ferre, M.Lecomte, Appl.Phys. Lett, 21, No.4, 15 (1972)
7. V.Scatturin, L.Corliss, N.Elliott, J.Hastings, Acta Crys. 14, 19 (1961)
8. K.Hirakawa, T.Hashimoto, K.Hirakawa, J.Phys. Soc. Japan, 16, 1934 (1961)

9. M.Safa, D.Midgley, B.K.Tanner, *Phys.Stat.Sol.(a)*,28, K89 (1975)
10. P.Moch, C.Dugautier, *Proceedings of the International Conference of Magnetism, ICM 1973, Vol.I (1) p.185*, editado por "Nauka" Moscú (1974)
11. K.Hirakawa, K.Hirakawa, T.Hashimoto, *J.Phys. Soc. Japan* 15, 2063 (1970)