

"ESTUDIO DEL ESPECTRO DE RESONANCIA PARAMAGNETICA ELECTRONICA DE KNiF_3 "

M.T. CAUSA^(*), S. CURATELLA^(**), A. MISETICH^(***) (**)

(*) Centro Atómico Bariloche; (C.N.E.A.); Instituto de Física
"José A. Balseiro"; Universidad Nacional de Cuyo.

(**) Facultad de Ciencias Exactas y Naturales, Universidad de Buenos Aires.

(***) Comisión Nacional de Energía Atómica

RESUMEN: Hemos logrado observar RPE de KNiF_3 . Como el ancho de línea es muy grande, fue necesario desarrollar una técnica específica para el análisis de los espectros. La observación de esta resonancia por encima de la temperatura de Néel ($T_N = 250^\circ\text{K}$) permitió constatar un angostamiento de la línea al disminuir la temperatura.

Estamos interesados en estudiar sistemas que se ordenan antiferromagnéticamente, especialmente aquéllos con alta temperatura de Néel, es decir fuerte interacción de intercambio. En particular elegimos KNiF_3 que, por tener estructuras cristalina y magnética simples, ha sido tomado como modelo de sistema antiferromagnético. A pesar de ello no se había podido observar hasta ahora ni su resonancia paramagnética, ni su resonancia antiferromagnética. El KNiF_3 es un cristal cúbico con estructura de perovskita cuya temperatura de Néel ha sido determinada por medición de susceptibilidades ($T_N = 275^\circ\text{K}$) y calor específico ($T_N = 253^\circ\text{K}$) (Ref. (1)), por medición de anisotropía magnética ($T_N = 253^\circ\text{K}$) (Ref. (2)), y por medición de dicroísmo lineal ($T_N = 246^\circ\text{K}$) (Ref. (3)). Nosotros hemos observado una transición en la forma de línea de resonancia a 250°K .

Sintetizamos KNiF_3 en polvo por el método utilizado por Hirakawa (Ref. (1)) para este tipo de compuestos. Las mediciones fueron realizadas con un espectrómetro convencional, en Banda X y con modulación de 100 kHz. La variación y control de la temperatura se realizaron con un equipo comercial; la temperatura fue estabilizada en $\pm 1^\circ\text{K}$.

A temperatura ambiente se observa una línea ancha (~ 5000 Oe), asimétrica, que se extiende entre 0 y 15000 Oe (límite de los campos disponibles). Esta línea cambia de forma con la temperatura de observación. La Fig. 1 muestra dos líneas correspondientes a los puntos extremos de temperatura estudiados, 390°K y 250°K .

El factor giromagnético del Ni^{2+} diluido en perovskitas no magnéticas (Ref. (4)) es 2.28. Como en nuestro caso esperamos que el factor giromagnético sea muy próximo a este valor, el campo de

resonancia resulta comparable con el ancho de línea y ya no es posible obtener los parámetros físicos de la línea por los métodos habitualmente empleados para líneas angostas. Para analizar correctamente el caso de las líneas anchas, es necesario reevaluar las aproximaciones que se utilizan.

La producción de una absorción resonante de energía requiere un campo magnético estático H y un campo de radiofrecuencia H_1 girando en un plano perpendicular a H . En el Laboratorio se usa un H_1 que, si $\vec{H} = H \vec{k}$, podemos escribir:

$$\vec{H}_1 = 2H_1 \cos(\omega t) \vec{i} \quad (1)$$

Este campo es la suma de dos campos que giran en sentido contrario:

$$\vec{H}_+ = H_1 \cos(\omega t) \vec{i} + H_1 \sin(\omega t) \vec{j} \quad (2)$$

$$\vec{H}_- = H_1 \cos(\omega t) \vec{i} - H_1 \sin(\omega t) \vec{j} \quad (3)$$

que producirán resonancias cuando:

$$H = + \frac{\hbar \omega}{g \beta} = + H_L \quad (4)$$

$$H = - \frac{\hbar \omega}{g \beta} = - H_L \quad (5)$$

En situaciones ordinarias la resonancia dada por (5) no es observada cuando se barren valores de campo $H \geq 0$. En nuestro caso, para la derivada de la absorción, se tendrá lo que se muestra en la Fig. 2, suponiendo una forma de línea lorentziana. Para los valores de $H \geq 0$ se observará la línea resultante de la composición de ambas resonancias, que resulta en una línea no simétrica (Ref. (5)). Esta forma de línea se ajusta a nuestra línea experimental.

El campo de resonancia H_L y el ancho ΔH_{pp} fueron calculados a partir de los siguientes parámetros de los espectros, (definidos en la Fig. 2):

H_0 : campo para el cual la absorción es máxima (derivada nula). Para medir H_0 fue necesario fijar la línea de base, que se determinó teniendo en cuenta que en el modelo de forma de línea adoptado, la derivada de la absorción es nula para $H = 0$ (fig.2).

ΔH : ancho entre máximo y mínimo de la derivada de la absorción.

En la Fig. 3 mostramos la dependencia del factor g con la temperatura. Observamos una ligera variación, difícil de estimar debido a la dispersión de valores. Esta dispersión se origina fundamentalmente en la incerteza con que se determina la línea de base.

Como ya mencionáramos anteriormente, el ancho de línea es del orden de 5000 Oe en KNiF_3 , mucho mayor que el observado en Ni^{2+} di-

luído en perovskitas no magnéticas (~ 200 Oe) (Ref. (6)). En la Figura 4 mostraremos la dependencia del ancho de línea con la temperatura. Observamos un angostamiento de la línea a medida que la temperatura se aproxima a la temperatura de Néel. Cambios en el ancho de línea de resonancia cuando la temperatura se aproxima a T_N han sido observados en prácticamente todos los compuestos antiferromagnéticos estudiados. Existen diversos mecanismos de relajación que tratan de explicar estos cambios. (Ref. (7)).

REFERENCIAS

- (1) K. Hirakawa, T. Hashimoto; J. Phys. Soc. Japan, 15 (1960) 2063
- (2) K. Hirakawa, T. Hashimoto, K. Hirakawa; J. Phys. Soc. Japan 16 (1961) 1934.
- (3) R.V. Pisarev, J. Ferre, J. Duran, J. Badoz; Solid State Comm. 11 (1972) 913.
- (4) R.G. Shulman, S. Sugano; Phys. Rev. 130 (1963) 506.
- (5) A. Abragam y B. Bleaney; "EPR of transition ions", Oxford 1970 pag. 124.
J.H. Van Vleck y V.F. Weisskopf; Rev. Mod. Phys. 17 (1945) 227.
- (6) A. Misetich; resultados no publicados
- (7) K. Kawasaki Prog. Theor. Phys. 39 (1968) 285
D.L. Huber; Phys. Rev. B 6 (1972) 3180.

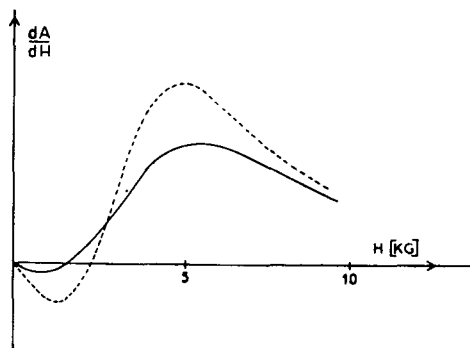


Figura 1

Espectros de EPR de KNiF_3 obtenidos

a: — $T = 390^\circ\text{K}$

--- $T = 250^\circ\text{K}$

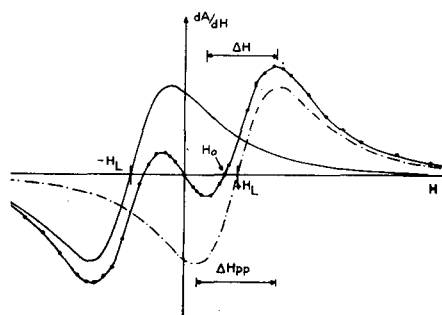


Figura 2

Composición de las resonancias centradas en $+H_L$ (---) y $-H_L$ (—) cuando $\Delta H_{pp}/H_L = 1.5$. Se ha supuesto forma de línea lorentziana.

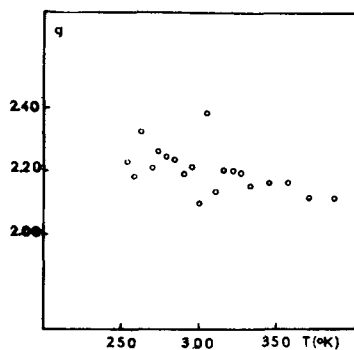


Figura 3

Variación de g con la temperatura.

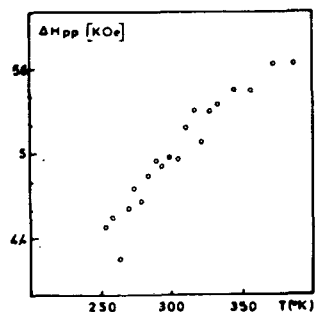


Figura 4

Variación del ancho de línea con la temperatura.