

Elastische und thermoelastische Konstanten von Gadolinium-Gallium-Granat $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$

S. HAUSSÜHL

Institut für Kristallographie der Universität Köln
und D. MATEIKA

Philips Forschungslaboratorium Hamburg GmbH
(Z. Naturforsch. 27 a, 1522—1523 [1972])

The Elastic and Thermoelastic Constants of $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$

The elastic and thermoelastic constants of cubic $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ are measured by ultrasonic methods. The differences in the elastic behaviour between this garnet and other synthetic garnets are very small; they may be partially explained by the r^{-4} -rule which is valid in other ionic crystals of cubic symmetry.

Einkristalle aus $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ (GGG) haben sich als Substratmaterial zur epitaktischen Herstellung dünner Schichten von $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ (YIG)¹ für magnetooptische Speichermaterialien² und für Speichermedien auf der Grundlage beweglicher magnetischer Zylinderdomänen wegen des geringen Unterschieds in den Gitterkonstanten gut bewährt³. Zur Beurteilung der in den Granatschichten auftretenden mechanischen Spannungen ist auch die Kenntnis der elastischen und thermoelastischen Konstanten beider Materialien erforderlich. Für YIG sind elastische Daten von CLARK und STRAKHNA⁴ sowie von BATEMAN⁵ vorgelegt worden. Über eine Untersuchung des elastischen Verhaltens von GGG berichten wir hier.

Einkristalle aus GGG bester optischer Qualität wurden aus der Schmelze nach dem Czochralski-Verfahren hergestellt. Die Kristalle sind nahezu spannungsfrei und weisen weniger als 10 Versetzungslien pro cm^2 auf. Die Gitterkonstante beträgt $12,379 \pm 0,002 \text{ \AA}$ ⁶. Für unsere Messungen benutzten wir eine parallel-epipedisch geschnittene Einkristallprobe mit den Abmessungen von etwa $12 \times 12 \times 15 \text{ mm}$ in den Kantenrichtungen [110], [110] und [001]. Sowohl mit Hilfe des verbesserten Schaefer-Bergmann-Verfahrens (Beugung von monochromatischem Licht an stehenden Ultraschallwellen bei einer Frequenz von etwa 27 MHz) als auch aus den Eigenfrequenzen des Präparates im

Bereich von 23 bis 29 MHz (Grundfrequenz des Ultraschallgenerators etwa 5 MHz) wurden die Ausbreitungs geschwindigkeiten der reinen longitudinalen und transversalen elastischen Wellen in den Richtungen [110] und [001] bestimmt. Die mit beiden Verfahren erzielten Werte weichen weniger als 1 Promille voneinander ab. Aus ihnen ergaben sich mit der Dichte von $7,102 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ die elastischen Konstanten c_{11} , c_{44} , $c' = (c_{11} + c_{12} + 2c_{44})/2$ und $c'' = (c_{11} - c_{12})/2$. Die thermoelastischen Konstanten $T_{ij} = d \log c_{ij}/dT$ wurden aus der Abhängigkeit der Eigenfrequenzen des Präparats von der Temperatur T in einem Intervall von etwa 25°C bis -25°C ermittelt, wobei für den linearen thermischen Ausdehnungskoeffizienten der mit einem Fizeau-Interferometer gemessene Wert $3,35 \cdot 10^{-6}/^\circ\text{C}$ herangezogen wurde.

Für die in Tab. 1 aufgeführten Werte liegen die zugehörigen relativen wahrscheinlichen Fehler unter folgenden Schranken:

c_{11} , c' , c_{44} , c'' : 1 Promille; c_{12} : 3 Promille;
 T_{11} , T' , T_{44} , T'' : 3 Prozent; T_{12} : 5 Prozent.

Diskussion

In Tab. 2 sind die elastischen Konstanten, die reziproke Volumkompressibilität $K^{-1} = (c_{11} + 2c_{12})/3$ und die Gitterkonstanten a anderer bisher untersuchter synthetischer Granate zusammengestellt. Alle diese Granate besitzen eine sehr schwache elastische Anisotropie ($c_{11} \approx c'$). Wie auch in anderen isotopen Reihen mit kubischer Symmetrie wie z. B. bei den Alkalihalogeniden vom NaCl-Typ⁷ und vom CsCl-Typ⁸ sowie bei Kristal-

Tab. 1. Elastische Konstanten c_{ij} für 20°C und thermoelastische Konstanten T_{ij} für 0°C von $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$. Einheiten: c_{ij} in $10^{11} \text{ dyn} \cdot \text{cm}^{-2}$, T_j in $10^{-3}/^\circ\text{C}$.

c_{11}	c'	c_{44}	c''	c_{12}
28,703	29,192	9,040	8,551	11,601
T_{11}	T'	T_{44}	T''	T_{12}
-0,113	-0,102	-0,092	-0,127	-0,092

Tab. 2. Elastische Konstanten synthetischer Granate. c_{ij} und K^{-1} in $10^{11} \text{ dyn} \cdot \text{cm}^{-2}$. Bezüglich $Q(\text{II})'/Q(\text{I})'$ siehe Text.

	c_{11}	c'	c_{12}	c_{44}	K^{-1}	$a [\text{\AA}]$	$Q(\text{II})'/Q(\text{I})'$
$\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ *	33,35	33,72	11,1	11,5	18,52	12,003	1
$\text{Y}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ ¹⁰	29,0	29,9	11,7	9,55	17,47	12,273	1,031
$\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ **	26,85	26,55	10,95	7,65	16,25	12,376	0,992
$\text{Eu}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ ⁵	25,1	25,52	10,7	7,62	15,50	12,498	0,984
$\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$	28,703	29,192	11,601	9,04	17,30	12,379	1,057

* Mittelwert aus¹⁰ und¹¹. ** Mittelwert aus⁴ und⁵.

len vom CaF_2 -Typ⁹ nehmen auch hier die elastischen Konstanten mit wachsender Gitterkonstanten ab. Eine quantitative Deutung des Verlaufs der mittleren elastischen Festigkeit, die z. B. durch die reziproke Volumenkompaktsibilität repräsentiert wird, ist in isotopen Reihen mit Hilfe einer bei reinen Ionenkristallen gültigen Beziehung möglich:

$$K^{-1} = Q' \cdot M V^{-4/3}.$$

Q' ist ein von den Gitterdimensionen unabhängiger Faktor, der bei isotopen Kristallarten und bei Substanzgruppen mit verwandtem chemischem Bestand nur wenig variiert. Da in kubischen Kristallen das Molvolumen MV proportional a^3 ist, gilt für zwei Glieder I und II einer isotopen Reihe

$$\frac{K(\text{I})}{K(\text{II})} = \frac{Q(\text{II})'}{Q(\text{I})'} \cdot \frac{a(\text{I})^4}{a(\text{II})^4}$$

Haben die Bausteine ähnliche Bindungseigenschaften wie im vorliegenden Fall, sollte man nach den Erfahrungen an anderen isotopen Reihen für $Q(\text{II})'/Q(\text{I})'$ etwa den Wert eins erwarten. Wie Tab. 2 zeigt, weichen die Werte (mit I: $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$, II: die anderen Granate) tatsächlich nur wenig von eins ab. Auffallend ist aber, daß die eisenhaltigen Granate kleinere Faktoren Q' besitzen als die anderen Granate. Es ist noch ungeklärt, ob hier schon ein Anzeichen einer abnehmenden Stabili-

tät des Granatgitters beim Besetzen der tetraedrischen Sauerstofflücken mit Fe^{3+} -Ionen zu erblicken ist, oder ob die starke magnetische Wechselwirkung der Bausteine in diesen Granaten im Spiel ist.

Ein weiterer Gesichtspunkt ist die Abweichung von der Cauchy-Relation ($c_{12} - c_{44}$). Während diese bei $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ negativ ausfällt, beobachtet man bei den Gallium- und Eisen-Granaten ein Überwiegen von c_{12} über c_{44} . Dies mag als Hinweis auf einen etwas größeren Anteil an kovalenter Bindung im Falle des $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$, hervorgerufen durch die Al^{3+} -Ionen, aufgefaßt werden.

Im Vergleich zu anderen Kristallarten mit etwa gleicher Kompressibilität, wie z. B. Topas oder Korund, zeigt $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ eine höhere thermische Ausdehnung und auch betragsmäßig größere thermoelastische Konstanten. Als wesentlicher Grund hierfür ist die durch die größere Dichte bedingte geringere Debye-Temperatur des $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ anzusehen.

Da über die thermoelastischen Konstanten von $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ noch keine Werte vorliegen, ist eine abschließende Beurteilung, ob durch die Unterschiede im elastischen und thermischen Verhalten von $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ und $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ bei der epitaktischen Abscheidung des letzteren auf einer Substratplatte des ersten störende mechanische Spannungen auftreten, noch nicht möglich.

¹ W. TOLKSDORF, G. BARTELS, G. P. ESPINOSA, P. HOLST, D. MATEIKA u. F. WELZ, J. Crystal Growth **17** [1973].

² J.-P. KRUMME, J. VERWEEL, J. HABERKAMP, W. TOLKSDORF, G. BARTELS u. G. P. ESPINOSA, Appl. Phys. Lett. **20**, 451 [1972].

³ L. J. VARNERIN, IEEE Trans. Mag. **7**, 3, 404 [1971].

⁴ A. E. CLARK u. R. E. STRAKHNA, J. Appl. Phys. **32**, 1172 [1961].

⁵ T. B. BATEMAN, J. Appl. Phys. **37**, 2194 [1966].

⁶ D. MATEIKA, wird veröffentlicht in J. Crystal Growth.

⁷ S. HAUSSÜHL, Z. Kristallogr. **110**, 67 [1958].

⁸ S. HAUSSÜHL, Acta Cryst. **13**, 685 [1960].

⁹ S. HAUSSÜHL, Phys. Stat. Sol. **3**, 1072 [1963].

¹⁰ E. G. SPENCER, R. T. DENTON, T. B. BATEMAN, W. B. SNOW u. L. G. VAN UITERT, J. Appl. Phys. **34**, 3059 [1963].

¹¹ W. J. ALTON u. A. J. BARLOW, J. Appl. Phys. **38**, 3023 [1967].