

ИССЛЕДОВАНИЕ СВЕРХТОНКОГО ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ В АНТИФЕРРОМАГНЕТИКЕ CsMnI_3

Л. А. Прозорова, С. С. Сосин, Д. В. Ефремов, С. В. Петров

*Институт физических проблем им. П. Л. Капицы Российской академии наук
117334, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 17 июня 1997 г.

Экспериментально исследована нижняя ветвь резонансного спектра квазидвумерного треугольного антиферромагнетика CsMnI_3 , обладающая щелью за счет динамического сверхтонкого взаимодействия. Подробно изучена ее температурная зависимость на нескольких частотах. Проведен теоретический расчет соответствующего спектра связанных электронно-ядерных спиновых колебаний в «гидродинамическом приближении» с эмпирическими поправками на тепловые флуктуации антиферромагнитной системы. Хорошее согласие расчета с экспериментальными данными позволяет определить величину сокращения спинов в антиферромагнетике за счет нулевых колебаний.

1. ВВЕДЕНИЕ

Взаимодействие электронной и ядерной магнитных подсистем в антиферромагнетиках оказывает значительное влияние на их динамические свойства. В частности, спектр ЯМР магнитных ионов существенно зависит от вида обменного упорядочения электронных спинов. В работе [1] было впервые замечено, что ядерные спины, связанные с треугольной обменной структурой, находятся в неэквивалентных позициях по отношению ко внешнему магнитному полю, поэтому их резонансный спектр должен состоять из трех ветвей. В дальнейшем такой спектр связанных электронно-ядерных колебаний был экспериментально изучен на примере легкоплоскостного антиферромагнетика CsMnBr_3 в работах [2, 3]. В спектре ЯМР действительно наблюдались три ветви с различными зависимостями от магнитного поля, а у одной из акустических ветвей спектра АФМР возникла зависящая от температуры щель, обусловленная динамическим взаимодействием со спинами ядер. Таким образом, полученные результаты оказались в принципиальном согласии с упомянутым теоретическим предсказанием и расчетами [3], выполненными на основе феноменологического подхода [4].

Однако более подробный анализ экспериментальных данных выявляет существенные расхождения с теорией, для которых имеется несколько возможных причин. Прежде всего, обменная структура CsMnBr_3 подвержена сильному влиянию квантовых флуктуаций и значительно искажается в магнитном поле, приложенном в легкой плоскости кристалла. Эти обстоятельства снижают точность подхода, примененного для описания спектра колебаний. И наконец, анализ температурных зависимостей спектра магнитного резонанса, по-видимому, осложняется особенностями поведения данного антиферромагнетика выше $T \sim 3$ К, природа которых пока остается неясной [5].

Свойства исследованного в настоящей работе легкоосного антиферромагнетика CsMnI_3 позволяют исключить большинство из перечисленных выше трудностей. Кроме того, аналогичный спектр АФМР и его зависимость от температуры были подробно

изучены в никелевых соединениях (например, в RbNiCl_3 [6]), где сверхтонкое взаимодействие с ядерной подсистемой практически отсутствует. Это облегчает задачу разделения антиферромагнитного и парамагнитного вкладов в температурную эволюцию спектра связанных колебаний.

2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

В работе исследована низкочастотная часть резонансного спектра антиферромагнетика CsMnI_3 в магнитном поле, перпендикулярном оси шестого порядка кристалла, при различных температурах. Эксперименты проводились на спектрометре прямого усиления в интервале частот от 3.3 до 18 ГГц. В нижней части диапазона в качестве поглощающей ячейки использовались квазиторoidalные резонаторы с добротностью $Q = 500\text{--}800$, а на частотах от 9 ГГц и выше — высокодобротные прямоугольные резонаторы ($Q > 1500$). Внешнее магнитное поле с плавной разверткой до 10 кЭ создавалось сверхпроводящим соленоидом. Экспериментальная ячейка находилась внутри дьюара с гелием, температура которого (от 4.2 до 1.3 К) измерялась по давлению насыщенных паров с точностью не менее 0.02 К. Исследуемый кристалл приклеивался на бинарную плоскость, что позволяло ориентировать ось шестого порядка C_6 перпендикулярно полю с точностью до $\pm 0.5^\circ$.

На всех частотах наблюдалась одна линия поглощения шириной 0.5–1 кЭ. При понижении температуры она смещалась в сторону меньших полей (см. рис. 1), причем с уменьшением частоты величина относительного смещения сильно возрастала. На частотах 5.7, 4.3 и 3.3 ГГц существовала область температур (ниже 1.7 К, 2.5 К и 3.9 К соответственно), в которых резонансная линия смещалась до нулевого поля и затем пропадала. Эти данные свидетельствуют о наличии в спектре резонанса щели, которая возрастает с температурой. Перечисленные особенности иллюстрируются следующим рисунком, на котором представлены зависимости резонансного поля от температуры на различных частотах (рис. 2). Здесь хорошо видно, что на низких частотах изменение резонансного поля при уменьшении температуры становится более резким, что соответствует постепенному приближению щели к данной частоте. По результатам измерений

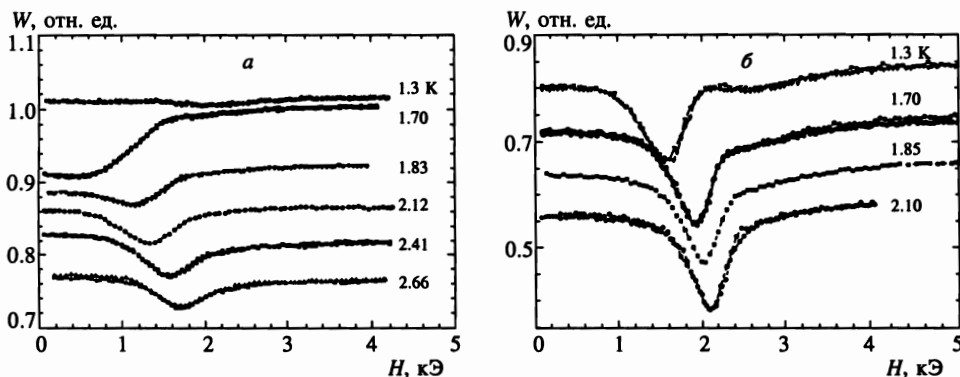


Рис. 1. Изменение линий резонансного поглощения с температурой на частотах 5.7 ГГц (а) и 7.2 ГГц (б)

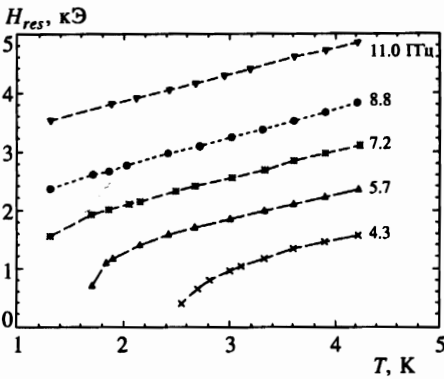


Рис. 2

Рис. 2. Зависимость резонансного поля исследуемой ветви от температуры на различных частотах

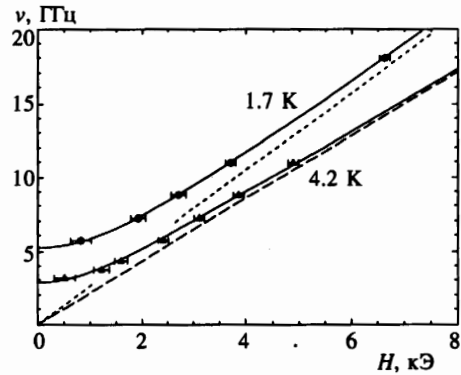


Рис. 3

Рис. 3. Полевая зависимость ветви ν_2 при двух температурах; сплошные линии — подгонка по формуле (7), штриховые — спектр АФМР без сверхтонкого взаимодействия

был построен ряд зависимостей нижней «ветви АФМР» от поля при нескольких температурах, две из этих зависимостей (в начале и в конце интервала) приведены на рис. 3. Теоретическое описание полученных данных и обсуждение его соответствия эксперименту рассмотрены в следующем разделе.

3. ОБСУЖДЕНИЕ И ОСНОВНЫЕ ВЫВОДЫ

Резонансные свойства электронной спиновой системы проще всего рассматривать в рамках феноменологического подхода [4], который является наиболее удобным способом описания длинноволновой динамики антиферромагнетиков со сложной обменной структурой и слабыми релятивистскими взаимодействиями. Обменная симметрия треугольного антиферромагнетика задается преобразованием двух единичных ортогональных векторов по одному неприводимому представлению:

$$\mathbf{S}(\mathbf{r}) = \langle S \rangle [l_1 \cos(\mathbf{k}\mathbf{r}) + l_2 \sin(\mathbf{k}\mathbf{r})], \tag{1}$$

в котором $\mathbf{k} = (1/3, 1/3, 1)$ в единицах обратной кристаллической решетки. Тензор восприимчивости такого антиферромагнетика имеет два главных значения χ_{\perp} и χ_{\parallel} по отношению к вектору $\mathbf{n} = [l_1, l_2]$, перпендикулярному плоскости спинов. Макроскопическая динамика системы определяется функцией Лагранжа, плотность которой выражается в виде

$$\mathcal{L}_e = \frac{\chi_{\perp}}{2\gamma^2} (\mathbf{\Omega} + \gamma\mathbf{H})^2 + \frac{\eta\chi_{\perp}}{2\gamma^2} (\mathbf{n}(\mathbf{\Omega} + \gamma\mathbf{H}))^2 - U_a, \tag{2}$$

где $\eta = (\chi_{\parallel} - \chi_{\perp})/\chi_{\perp}$, $\mathbf{\Omega}$ — угловая скорость вращения в спиновом пространстве, U_a — энергия анизотропии, вид которой подробно обсуждается в работе [7]. Параметризация

вращения спиновой системы для получения линеаризованных уравнений движения задается разложением любого спинового вектора σ и угловой частоты Ω до членов второго порядка по малому углу поворота θ :

$$\sigma = \sigma_0 + [\theta\sigma_0] + \frac{1}{2} [\theta[\theta\sigma_0]], \quad \Omega = \dot{\theta} + \frac{1}{2} [\theta\dot{\theta}], \quad (3)$$

где равновесные значения векторов σ_0 определяются из условия максимума функции Лагранжа при $\Omega \equiv 0$. В частности, в рассматриваемом случае, когда поле \mathbf{H} перпендикулярно C_6 , вектор \mathbf{p}_0 направлен вдоль поля.

Парамагнитная ядерная система рассматривается в виде свободных магнитных моментов при конечной температуре, находящихся в различных эффективных полях $\mathbf{H}^{eff}(\mathbf{r}_i) = A\mathbf{S}(\mathbf{r}_i) + \mathbf{H}$ (A — константа сверхтонкого взаимодействия).

Учитывая, что характерные времена релаксации спинов в ядрах Mn^{2+} много больше периода СВЧ-колебаний ($\omega\tau \gg 1$), мы можем пренебречь термодинамической связью намагниченности парамагнетика в полях \mathbf{H}_i^{eff} с остальной системой и описывать ее в виде сохраняющихся спонтанных магнитных моментов. Такое описание аналогично модели ферромагнитных подрешеток, поэтому соответствующую функцию Лагранжа можно представить в виде суммы для $N=6$ независимых ферромагнетиков (см. [4]):

$$\mathcal{L}_n = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \frac{1}{\gamma_n} \left(\mathbf{M}_i \left(\boldsymbol{\Omega}_i + \gamma_n \mathbf{H}_i^{eff}(\theta) \right) \right). \quad (4)$$

Магнитные моменты и угловые частоты движения каждой из подрешеток вблизи равновесия параметризуются через малые углы поворота φ_i ; аналогично (3), причем их полная намагниченность определяется из равновесных условий $\mathbf{M}_{0i} = \chi_n \mathbf{H}_i^{eff}$. Очевидно, что такой подход отличается от предложенного в работе [3], поскольку не предполагает выполнения условия термодинамического равновесия ядерной подсистемы в процессе ее движения.

Полный лагранжиан системы электронных и ядерных спинов представляется в виде

$$\mathcal{L} = \mathcal{L}_e + \mathcal{L}_n. \quad (5)$$

Варьируя его по компонентам θ , $\dot{\theta}$ и φ_i , $\dot{\varphi}_i$, получаем систему из 21 уравнения для связанных спиновых колебаний. Исключая из нее компоненты углов ядерных спинов, получаем следующее характеристическое уравнение для частот:

$$\left| \begin{array}{cc} \left(\frac{\nu}{\gamma} \right)^2 - \eta(H^2 + H_c^2) - \frac{\Delta^2(\nu^2 - \gamma_n^2 H^2)}{2\gamma^2(\nu^2 - \nu_n^2)} & \frac{i\nu H}{\gamma}(1 - \eta) \\ -\frac{i\nu H}{\gamma}(1 - \eta) & \left(\frac{\nu}{\gamma} \right)^2 - \eta H^2 - \frac{\Delta^2(\nu^2 - \gamma_n^2 H^2)}{2\gamma^2(\nu^2 - \nu_n^2)} \end{array} \right| = 0, \quad (6)$$

$$\nu^2 - \nu_{e3}^2 - \frac{1}{1 + \eta} \frac{\Delta^2 \nu^2}{\nu^2 - \nu_n^2} = 0,$$

где $\nu_n = \gamma_n \sqrt{A^2 \langle S \rangle^2 + H^2}$ — несмещенная ядерная частота, $\Delta = \gamma A(S) \sqrt{\chi_n / \chi_{\perp}}$ — величина динамической щели смешанного спектра, ν_{e3} — ветвь исходного спектра АФМР, не зависящая от поля. Полагая $\nu^2 \gg \nu_n^2$ и пренебрегая в малых полях недиагональными элементами характеристического уравнения (6), получим простые выражения для «антиферромагнитных» мод:

$$\nu_1^2 = \nu_{e_1}^2 + \frac{\Delta^2}{2}, \quad \nu_2^2 = \nu_{e_2}^2 + \frac{\Delta^2}{2}, \quad \nu_3^2 = \nu_{e_3}^2 + \frac{\Delta^2}{1+\eta}, \quad (7)$$

где $\nu_{e_1} = \gamma\sqrt{\eta(H^2 + H_c^2)}$, $\nu_{e_2} = \gamma\sqrt{\eta}H$ — приближенные выражения для исходных антиферромагнитных ветвей. Как видно из рис. 3, формула (7) для ν_2 хорошо описывает экспериментальные данные при низкой температуре. Две другие ветви не были исследованы, поскольку ветвь ν_3 при $H \perp C_6$ невозможно наблюдать из-за отсутствия дисперсии по полю, а ветвь ν_1 лежит в области частот выше 100 ГГц и практически нечувствительна к сверхтонкому взаимодействию.

По величине Δ можно определить среднее значение электронных спинов $\langle S \rangle$, уменьшенное по сравнению с классическим $S = 5/2$ за счет флуктуаций основного состояния квазиодномерного антиферромагнетика. Величину константы сверхтонкого взаимодействия $A = 215 \pm 5$ кЭ можно взять из работы по исследованию спектра ЭПР твердого раствора CsMnI_3 в CsMgI_3 [8], а антиферромагнитная восприимчивость χ_{\perp} при $T \ll T_N$ измерена в работе [9] и составляет $7.5 \cdot 10^{-3}$ ЭМЕ/моль. Спин ядра Mn^{2+} $I=5/2$, а его магнитный момент $\mu = \gamma_n \hbar I = 3.47 \mu_n$ (μ_n — ядерный магнетон). Подставляя все имеющиеся величины в формулу для Δ^2 , получаем

$$\Delta^2 = \frac{(\gamma_n \hbar)^2 I(I+1) N_A}{3kT \chi_{\perp}} (\gamma A \langle S \rangle)^2 \simeq \frac{30 \langle S \rangle^2}{T} \text{ ГГц}^2$$

(χ_{\perp}/N_A — антиферромагнитная восприимчивость на один спин). Значение Δ при $T \ll T_N$ можно довольно точно определить из имеющихся экспериментальных данных. Например, при $T = 1.7$ К измеренный резонансный спектр хорошо описывается второй формулой (7) с параметрами $\eta = 0.88$ и $\Delta = 7.6 \pm 0.3$ ГГц (см. рис. 3). Вычисленная отсюда величина $\langle S \rangle = 1.8 \pm 0.1$ практически совпадает с нейтронографическими данными $\langle S \rangle = 1.85 \pm 0.05$ [9]. Таким образом, несмотря на сильные квантовые флуктуации антиферромагнитной системы CsMnI_3 , расчет спектра связанных колебаний в гидродинамическом приближении демонстрирует прекрасное согласие с экспериментом. Это можно объяснить тем, что вклад нулевых колебаний в спектр резонанса на низких частотах $\nu \ll \nu_{ex}$ определяется главным образом их влиянием на основное состояние антиферромагнетика, т. е. сводится к такой же как в статическом случае перенормировке параметра порядка и статической восприимчивости. Поскольку в рамках данного подхода они являются феноменологическими константами, их можно не вычислять исходя из классических модельных представлений, а заменять на соответствующие экспериментальные величины, что и показано выше.

Точно так же удастся описать нижнюю ветвь магнитного резонанса во всей исследованной области температур $T \leq T_N/2$. Для этого следует учитывать температурные зависимости не только ядерной восприимчивости χ_n , но и входящих во вторую формулу (7) статических параметров электронной системы χ_{\parallel} , χ_{\perp} и $\langle S \rangle$. Самосогласованность данного подхода легко проверить, сравнив значения параметров, определенные по результатам подгонки спектра при различных температурах (см. рис. 3), и соответствующие данные магнитостатических и нейтронных экспериментов [9]. На рис. 4 приведены результаты такого сравнения для параметра η . На рис. 5 показана зависимость щели ветви ν_2 от температуры, причем все входящие в нее характеристики антиферромагнетика перенормированы таким образом, чтобы исключить их температурный вклад в Δ . Полученная функция, построенная как $\nu^2(1/T)$, отражает закон Кюри для парамагнитной восприимчивости ядер, подтверждая возможность описания данной ветви в

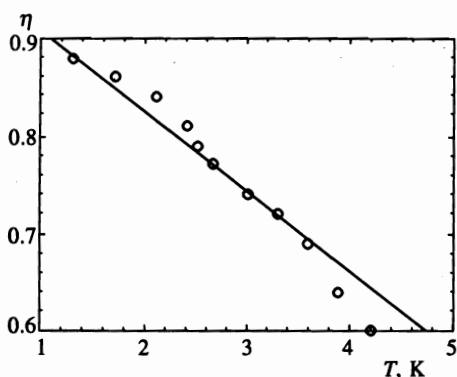


Рис. 4

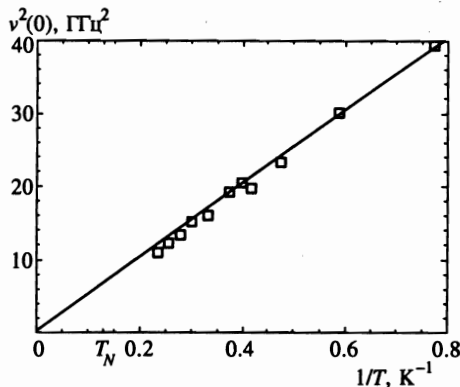


Рис. 5

Рис. 4. Зависимость параметра η от температуры; сплошная линия — вычисление $(\chi_{||} - \chi_{\perp}) / \chi_{\perp}$ по результатам магнитостатических измерений [9]

Рис. 5. Зависимость щели $\nu_2(0)$ от температуры как функция $\nu^2(1/T)$

использованном приближении среднего поля во всем интервале температур. Из рис. 5 также следует, что вклад магнитоупругого взаимодействия в динамическую щель спектра не выходит за пределы экспериментальной погрешности.

Авторы благодарят А. Ф. Андреева и В. И. Марченко за ценные советы по теоретической части работы, а также А. С. Боровика-Романова, А. И. Смирнова, И. А. Зализняка и А. М. Тихонова за полезные обсуждения. Работа была частично поддержана Российским фондом фундаментальных исследований (грант № 95-02-04555-а) и CRDF (грант RP1-207). Двое из авторов (Д. В. Е. и С. С. С.) благодарят также Forschungszentrum Julich GmbH и ISSEP (подпрограмма «Соросовские аспиранты»).

Литература

1. A. V. Chubukov, J. Phys. C: Sol. St. Phys. **21**, 441 (1988).
2. А. С. Боровик-Романов, Б. С. Думеш, А. М. Тихонов, С. В. Петров, Письма в ЖЭТФ **64**, 208 (1996).
3. И. А. Зализняк, Н. Н. Зорин, С. В. Петров, Письма в ЖЭТФ **64**, 433 (1996).
4. А. Ф. Андреев, В. И. Марченко, УФН **130**, 39 (1980).
5. X. Xu, K. Okada, M. Fujii et al., J. Phys.: Cond. Matter **8**, L371 (1996).
6. О. А. Петренко, С. В. Петров, Л. А. Прозорова, ЖЭТФ **98**, 727 (1990).
7. С. И. Абаржи, М. Е. Житомирский, О. А. Петренко и др., ЖЭТФ **104**, 3232 (1993).
8. G. L. McPherson, R. C. Koch, and G. D. Stucky, J. Chem. Phys. **60**, 1424 (1974).
9. H. W. Zandbergen, J. Sol. St. Chem. **35**, 367 (1980).