

НАБЛЮДЕНИЕ АНТИФЕРРОМАГНИТНОГО РЕЗОНАНСА В СВОБОДНОМ РАДИКАЛЕ ДФПГ

*Г.Б. Тейтельбаум, Э.Г. Харахашьян, С.Я. Хлебников,
А.Г. Зенин*

При температурах ниже 0,76 К обнаружен сигнал антиферромагнитного резонанса в свободном радикале ДФПГ. Установлено существование "спин-флоп" фазы в исследованной системе. Построена магнитная диаграмма состояния.

Свободный радикал *αα*-дифенил- β -пикрилгидразил (ДФПГ) является парамагнитным веществом, которое исследовалось во многих работах методом ЭПР. В работе [1] было обнаружено, что при очень низких температурах резонансный сигнал исчезает, что связывалось с фазовым переходом радикала в антиферромагнитное состояние. Дальнейшие исследования [2] показали, что температура перехода существенно зависит от типа растворителя из которого кристаллизован радикал. Так, для радикала ДФПГ, кристаллизованного из бензола, температура перехода оказалась равной 0,25 К, а для концентрированного образца ~ 1 К. Хотя изучению ДФПГ в парамагнитном состоянии посвящено большое количество работ, прямые исследования упорядоченной фазы до сих пор не удавалось провести. В настоящей работе сообщается об обнаружении антиферромагнитного резонанса и приводятся результаты первых исследований магнитной фазовой диаграммы этой системы.

Исследования проведены на поликристаллических образцах радикала ДФПГ, кристаллизованного из смеси гексан-пиридин. По данным химического анализа концентрация радикала была близка к 100%. Температура перехода по измерениям ЭПР составляла $\sim 0,9$ К. Поиск резонанса в упорядоченной фазе проводился на радиоспектрометре с рабочей частотой 300 МГц с использованием криостата ^3He . Постоянное магнитное поле до 8 кЭ создавалось стандартным электромагнитом с однородностью поля $\sim 10^{-4}$.

Слабый резонансный сигнал от упорядоченной фазы был обнаружен при низких температурах в магнитном поле $H_0 = 1125 \pm 15$ Э, значение которого в пределах точности измерений не зависело от температуры (см. рис. 1). С повышением температуры резонансный сигнал слабо менялся по интенсивности, а при $T = 0,76 \pm 0,01$ К исчезал.

Поскольку исследуемая система отличается очень низкой температурой перехода в упорядоченное состояние, а следовательно малым значением обменного поля, и поскольку известно, что она хорошо описывается изотропной моделью Гейзенберга, можно было предполагать, что поле опрокидывания подрешеток окажется меньше H_0 .

Для построения фазовой диаграммы были выполнены измерения магнитной восприимчивости. Они проводились по изменению частоты автодинного генератора, собранного на тунNELЬНОМ диоде, с рабочей частотой 354 кГц, в зависимости от восприимчивости образца. Резонансная катушка с образцом помещалась в ванне ^3He , а туннельный диод

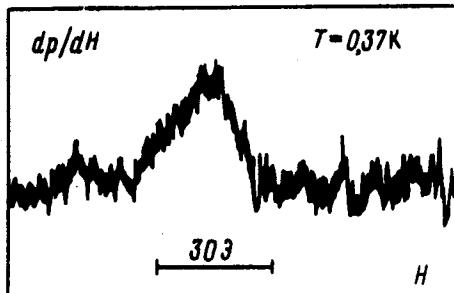


Рис. 1. Сигнал антиферромагнитного резонанса при $T = 0,38\text{ K}$

поддерживался при постоянной температуре $T = 1,4\text{ K}$ в ванне ^4He . Постоянные магнитные поля до $\sim 20\text{ кЭ}$ в этих измерениях создавались небольшим сверхпроводящим соленоидом, окружающим ванну ^3He . Температура антиферромагнитного перехода при различных значениях внешнего магнитного поля $T_c(H)$ определялась, как обычно, по характерному излому на экспериментальной зависимости восприимчивости образца от температуры [3]. Эти измерения количественно согласуются с данными, полученными по исчезновению сигнала ЭПР. Характерная зависимость X от приложенного магнитного поля при $T < T_c$ показана на рис. 2. Приведенная экспериментальная зависимость $X(H)$ искажена монотонным сдвигом частоты автодина при увеличении магнитного поля в соленоиде. Этот паразитный сдвиг незначительно влияет на точность оценки критических полей H_{c1} и H_{c2} . По значениям критических полей и измерениям $T_c(H)$ построена фазовая диаграмма, которая показана на рис. 3. Она типична для простых двухподрешеточных антиферромагнетиков с бикритической точкой [3, 4].

В соответствии с построенной диаграммой состояния при температурах $T < 0,76\text{ K}$ для магнитного поля $H_o \approx 1125\text{ Э}$ наблюдаемый антиферромагнитный резонанс следует отнести к "спин-флоп" фазе. Практически полное отсутствие температурной зависимости резонансной частоты и поля опрокидывания позволяет считать, что определяющие их параметры вышли на насыщение. Отсюда вытекает возможность пользоваться формулами справедливыми при нулевой температуре. При этом резонансная частота удовлетворительно описывается соотношением для антиферромагнетика с одноосной анизотропией при параллельной ориентации внешнего магнитного поля [5]:

$$(\omega/\gamma)^2 \approx H_o^2 - 2H_E H_A, \quad (1)$$

где ω — частота резонанса, γ — гиромагнитное отношение, H_o — напряженность приложенного поля, H_E — обменное поле, H_A — поле анизотропии¹⁾. Входящие в выражение (1) параметры H_A и H_E связаны с экспериментально определяемыми полями H_{c1} и H_{c2} при $T = 0$ известными со-

¹⁾Более того, из всех возможных вариантов анизотропии и ориентации внешнего магнитного поля к оси антиферромагнетизма нашим резонансным условиям соответствует только соотношение (1). Это является независимым подтверждением реализации "спин-флоп" фазы в данном случае.

отношениями $H_{c1} \approx \sqrt{2H_E H_A}$, $H_{c2} \approx 2H_E$. При этом выражение (1) выполняется в пределах точности измерения величин критических полей. Основная ошибка связана с неоднородностью поля сверхпроводящего соленоида в объеме образца. Формула (1) справедлива для монокристаллического антиферромагнетика, в то время как наш образец представляет собой мелкокристаллический порошок. Таким образом, следует заключить, что в резонансный сигнал дают вклад только кристаллки с осьми анизотропии, близкими к внешнему полю. Это предположение согласуется с малой интенсивностью резонансного сигнала. На рис. 3 штрих-пунктирной линией отмечено значение резонансного поля. С ростом температуры в точке $T = 0,76$ К эта линия пересекается с границей "спин-флоп" фазы. Подчеркнем, что именно при этой температуре и наблюдается исчезновение сигнала антиферромагнитного резонанса.

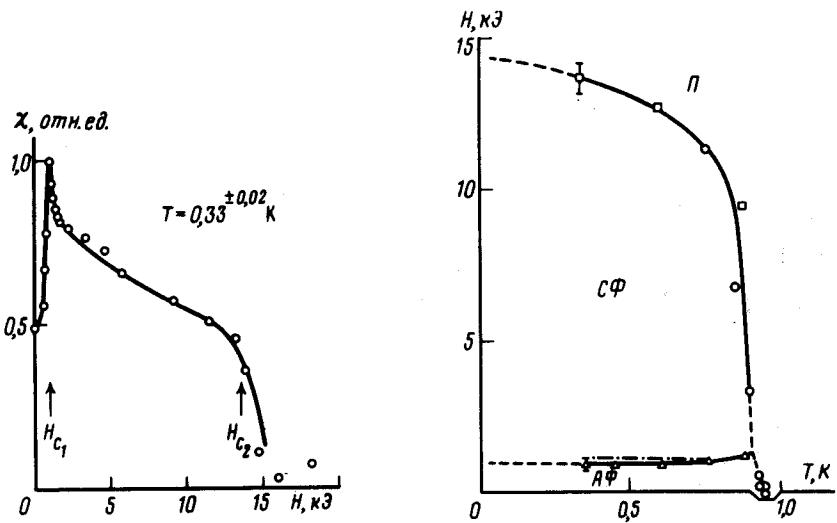


Рис. 2. Зависимость восприимчивости ДФПГ в упорядоченной фазе от магнитного поля: H_{c1} — величина поля опрокидывания подрешеток, H_{c2} — поле склонивания подрешеток

Рис. 3. Магнитная фазовая диаграмма: АФ — антиферромагнитная, СФ — "спин-флоп", П — парамагнитная фаза; Δ , \square — экспериментальные величины критических полей, полученные из измерений $X(H)$; \circ — значения температуры перехода, полученные из зависимости $X(T)$ при различных H ; штрих-пунктирная прямая — значение резонансного поля .

Проведенные измерения позволяют оценить координаты бикритической точки на фазовой диаграмме: $T_{bc} = 0,91 \pm 0,02$ К; $H_{bc} = 1270 \pm 150$ О. Отметим, в заключение, что экстраполяция границ раздела фаз в область бикритической точки (показанная на рис. 3 штриховыми линиями) согласуется с квадратичной зависимостью температуры перехода от магнитного поля, предсказываемой теорией [3, 6].

Казанский
физико-технический институт
Академии наук СССР

Поступила в редакцию
1 октября 1981 г.

Литература

- [1] Прохоров А.М., Федоров В.Б. ЖЭТФ, 1962, 43, 2105.
 - [2] Кессель А.Р., Козырев Б.М., Харахашьян Э.Г., Хлебников С.Я., Шакиров Ш.З. Письма в ЖЭТФ, 1973, 17, 649.
 - [3] Боровик-Романов А.С. Антиферромагнетизм. Сб. "Итоги науки", Физ.-мат. науки, вып. 4, Изд. АН СССР, 1962.
 - [4] Fisher M.E., Nelson D.R. Phys. Rev. Lett., 1974, 32, 1350.
 - [5] Гуревич А.Г. Магнитный резонанс в ферритах и антиферромагнетиках, М.: Наука, 1973.
 - [6] Паташинский А.З., Покровский В.Л., Хохлачев С.Б. ЖЭТФ, 1972. 63, 1521.
-