

ИССЛЕДОВАНИЕ ЩЕЛИ В СПЕКТРЕ АФМР В КВАЗИОДНОМЕРНОМ ГЕКСАГОНАЛЬНОМ АНТИФЕРРОМАГНЕТИКЕ CsMnBr_3

И.А.Зализняк, Н.Н.Зорин, С.В.Петров

Институт физических проблем им.П.Л.Капицы РАН

117334 Москва, Россия

Поступила в редакцию 16 августа 1996 г.

Экспериментально исследована низкочастотная часть спектра магнитного резонанса в гексагональном шестиподрешеточном квазиодномерном антиферромагнетике CsMnBr_3 в области низких (по сравнению с $T_N = 8.3\text{K}$) температур. Обнаружена зависящая от температуры щель $\Delta(T)$ в спектре $\omega_e(H)$ нижней ветви АФМР, вызванная сверхтонким взаимодействием электронных спинов ионов $(^{55}\text{Mn})^{2+}$ со спинами ядер. Выполнен расчет спектра низколежащих резонансных частот такой системы с учетом этого взаимодействия в приближении бесфлуктуационной спиновой гидродинамики для электронной ветви колебаний. Результаты расчета демонстрируют хорошее качественное и удовлетворительное количественное согласие с экспериментом.

PACS: 75.50.Ee, 76.50.+g, 76.70.-r

Квазиодномерные антиферромагнетики из семейства двойных галогенидов типа ABX_3 являются уже длительное время объектом повышенного интереса исследователей. Их магнитные системы состоят из спинов ионов $3d$ металлов (в случае CsMnBr_3 это ионы Mn^{2+} , ($S = 5/2$), локализованных в узлах гексагональной решетки, и могут рассматриваться как совокупность спиновых цепочек, расположенных на плоской треугольной решетке. Обменное взаимодействие приводит к образованию в них неколлинеарной 120° ("треугольной") структуры, свойственной основному состоянию классического гейзенберговского антиферромагнетика на гексагональной решетке. Она может быть описана либо плоской спиралью с вектором распространения $Q = (1/3, 1/3, 1)$ (в единицах обратной решетки кристалла), либо в рамках шестиподрешеточной модели. Константы микроскопического гамильтониана, наилучшим образом описывающие рассеяние нейтронов и АФМР в CsMnBr_3 , таковы: внутрицепочечный обмен $J = 214\text{ГГц}$, междцепочечный – $J' = 0.5\text{ГГц}$ и анизотропия $D = 1.95\text{ГГц}$ [1, 2]. Легкоплоскостная анизотропия хоть и превосходит слабый междцепочечный обмен, никак не искажает обменную структуру, лишь "укладывая" спины в плоскость, перпендикулярную гексагональной оси C_6 кристалла. Нетривиальная структура параметра порядка в таких веществах позволяет исследовать фазовые переходы и спиновую динамику, соответствующие довольно обширному классу систем. В то же время, они демонстрируют интересные особенности, связанные с квантовыми флуктуациями в основном состоянии, присущие квазинизкоразмерным системам. Сюда относятся необычно низкое значение упорядоченного спина (согласно данным дифракции нейтронов [1] в CsMnBr_3 $\langle S \rangle = 1.65 \pm 0.15$), примерно пропорциональное ему уменьшение магнитной восприимчивости [3] и большие флуктуационные поправки к энергиям магнонов.

Тем не менее, как было показано в [2], спектр магнитного резонанса в CsMnBr_3 при низких температурах хорошо согласуется с полевыми зависимо-

стями частот однородных колебаний, рассчитанными Чубуковым [4] для гейзенберговского гамильтониана с легкоплоскостной анизотропией в приближении классических спинов. Это связано с тем, что длинноволновая низкочастотная динамика магнитной системы полностью определяется общими свойствами симметрии магнитного упорядочения в ней. В CsMnBr_3 квантовые поправки не меняют эту симметрию и поэтому оставляют неизменными функциональные зависимости резонансных частот, перенормируя лишь входящие в них константы гамильтониана.

Вышеупомянутое согласие измеренного в CsMnBr_3 спектра АФМР с расчетом [4] относится к частотно-полевому интервалу, исследованному в [2]. Экстраполяция же экспериментальной зависимости в область малых полей заметно отклоняется от теоретической кривой $\sim H^3$, указывая на наличие щели при $H = 0$. Возникновение щели в спектре голдстоуновской моды столь симметричной магнитной структуры весьма необычно, так как статические эффекты типа анизотропии в легкой плоскости в ней сильно подавлены. Главными в таком случае становятся динамические механизмы – взаимодействие АФМР с колебаниями какой-либо другой, связанной с электронными спинами подсистемы. Примерами являются магнон-фононное взаимодействие, влекущее магнитоупругую щель, или взаимодействие электронных спинов с ядерными, дающее сверхтонкую щель. Для соединений с марганцем (спин ядра ^{55}Mn $I = 5/2$, и сверхтонкая постоянная достаточно велика) последний эффект может быть весьма существен. Для обычных двухподрешеточных антиферромагнетиков он хорошо исследован как экспериментально [5], так и теоретически [6].

В данной работе был исследован спектр резонансного поглощения в CsMnBr_3 на частотах от 3.3 ГГц до 12 ГГц и в магнитных полях до 40 кЭ, приложенных в базисной плоскости кристалла. Измерения проводились на проходном спектрометре прямого усиления с разверткой по магнитному полю. Резонатор с образцом помещался в центре сверхпроводящего соленоида, в гелиевой ванне. Температура варьировалась в интервале 1.2 ÷ 4.2 К и определялась по давлению равновесного насыщенного пара с точностью 0.05 К. На частотах выше 7.8 ГГц поглощающей ячейкой служил прямоугольный резонатор, а ниже – квазистатические резонаторы тороидального типа (два одинаковых поперечных цилиндрических отверстия в медном цилиндре, соединенные между собой тонкой щелью; образец помещался в нижнем отверстии, а петли связи с коаксиальными волноводами – в верхнем).

В наших экспериментах было обнаружено два типа резонансного поглощения СВЧ мощности в CsMnBr_3 . На частотах выше 5 ГГц наблюдалась линия АФМР, смещавшаяся с понижением температуры в область меньших полей, как показано на рис.1а. Такое поведение резонансного поля согласуется с предполагаемым наличием сверхтонкой щели $\Delta(T) \sim 1/T$. При повышении температуры линия быстро уширялась и теряла интенсивность, практически пропадая при $T > 3\text{К}$. Для низких (ниже 5 ГГц) частот характерна широкая линия активационного типа, рис.1б. Ее интенсивность резко убывает с понижением температуры (практически до нуля при $T < 3\text{К}$), а центр смещается в область больших полей. На самом деле поглощение такого типа возникает с увеличением температуры во всем интервале исследованных (в том числе в работе [2]) частот. Вероятно, оно соответствует прецессии спинов в цепочках, содержащих термически активированные нелинейные возбуждения типа солитонов. В частности, лишь при $T \sim 2.5 \div 3T_N$ оно превращается в узкую

линию парамагнитного резонанса. Более подробный анализ этого поглощения не входит в задачу данной работы.

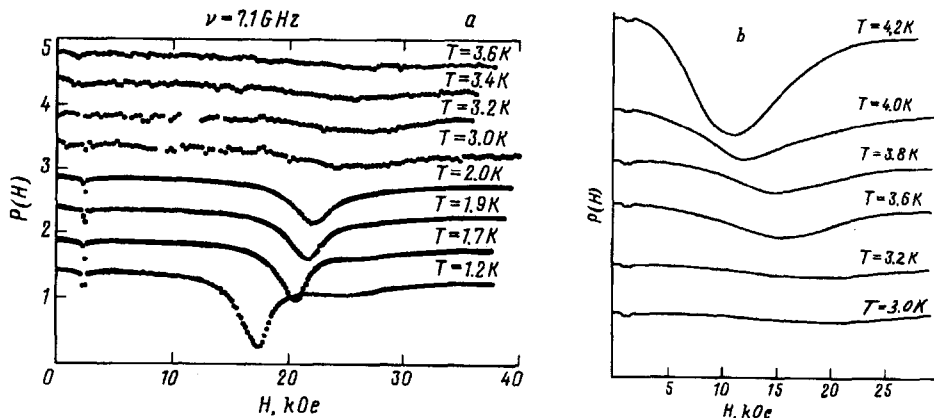


Рис.1. Линия поглощения СВЧ мощности в CsMnBr_3 в поле $H \perp C_6$ и ее эволюция с изменением температуры: а) на частоте $\nu = 7.1 \text{ ГГц}$, слабая добавочная линия на правом крыле АФМР – сигнал от гидратированной поверхности ($\text{CsMnBr}_3 \times 2\text{H}_2\text{O}$); б) $\nu = 3.3 \text{ ГГц}$. В малых полях виден сигнал от парамагнитной метки ДФПГ

Расчет спектра АФМР в сложной системе типа CsMnBr_3 с учетом сверхтонкого взаимодействия в рамках стандартного подрешеточного подхода практически невыполним в аналитическом виде. Нам удалось построить описание смешанных колебаний нижней ветви электронных и парамагнитных ядерных спинов на базе феноменологической макроскопической спиновой динамики магнетиков [7], позволяющей весьма просто и без модельных предположений получать спектр их низкочастотных длинноволновых колебаний. Симметрия магнитной структуры в CsMnBr_3 задается двумя взаимно перпендикулярными антиферромагнитными векторами $l_1 \perp l_2$, так что $\langle S_i \rangle = \langle S \rangle (l_1 \cos Qr_i + l_2 \sin Qr_i)$. Тензор восприимчивости состоит из двух компонент: χ_{\parallel} – вдоль гексагональной оси, и χ_{\perp} – в плоскости спинов, то есть в базисной плоскости кристалла. При этом имеются три моды однородных спиновых вращений, приобретающие активационный характер при наличии анизотропии и магнитного поля. Ввиду большой константы анизотропии, лишь колебания спинов без их выхода из легкой плоскости существенны в области малых частот. Они могут быть параметризованы одним углом поворота вокруг гексагональной оси φ : $l_{1,2} = l_{1,2}^0 e^{i\varphi}$. При приложении магнитного поля в легкой плоскости эта мода также приобретает щель, $\sim H^3$. В небольших полях, не слишком сильно искажающих магнитную структуру (вдали от поля фазового перехода с частичным схлопыванием подрешеток $H_c = 64 \text{ кЭ}$), частота этой нижней ветви колебаний электронных спинов может быть получена из лагранжиана

$$\mathcal{L}_e = \int d^3r \left(\frac{\chi_{\parallel}}{2\gamma^2} \dot{\varphi}^2 - \frac{3}{4} \chi_{\perp} \frac{H^6}{H_c^4} \varphi^2 \right), \quad (1)$$

где γ – электронное гиромагнитное отношение. Как показано в [8], получаемая из (1) зависимость $\nu(H)$ находится в хорошем согласии с расчетом в рамках шести подрешеток [4] вплоть до $0.7H_c$.

Функция Лагранжа, описывающая динамику парамагнитной ядерной системы вдали от насыщения, имеет вид

$$\mathcal{L}_n = \int d^3r \frac{1}{2} \chi_n \left(\mathbf{H}_n(\mathbf{r}) + \frac{\Omega_n(\mathbf{r})}{\gamma_n} \right)^2, \quad (2)$$

где $\chi_n = C_n/T$ – восприимчивость парамагнитного ядерного спина, $\mathbf{H}_n(\mathbf{r})$ – действующее на него локальное поле в точке \mathbf{r} , $\Omega_n(\mathbf{r})$ – угловая скорость его вращения, и γ_n – ядерное гиромагнитное отношение. В нашем случае $\mathbf{H}_n(\mathbf{r})$ является суммой внешнего и сверхтонкого полей:

$$\mathbf{H}_n(\mathbf{r}) = \mathbf{H} + A\mathbf{S}(\mathbf{r}) = \mathbf{H} + \alpha \frac{1}{2} \left(1e^{-i\mathbf{Q}\mathbf{r}} + 1^*e^{i\mathbf{Q}\mathbf{r}} \right), \quad (3)$$

где α – сверхтонкая постоянная, а $1 = 1_1 + i1_2$. Для малых углов поворота ядерных спинов $\theta_n(\mathbf{r})$ угловую скорость их вращения можно параметризовать: $\Omega_n(\mathbf{r}) = \dot{\theta}_n + 1/2[\dot{\theta}_n \times \theta_n]$. Линеаризованные около положения равновесия $\varphi = 0$, $\theta = 0$ уравнения Лагранжа для совокупной системы электронных и ядерных спинов $\mathcal{L} = \mathcal{L}_e + \mathcal{L}_n$ приводят к следующему секулярному уравнению для частот связанных колебаний:

$$\nu^2 - \nu_{e0}^2 = \gamma^2 \alpha^2 \frac{\chi_n}{\chi_{\parallel}} \frac{1}{N} \sum_i \frac{\nu^2 - \gamma_n^2 H^2 \cos^2 \mathbf{Q}\mathbf{r}_i}{\nu^2 - \nu_{i0}^2}, \quad \nu_{e0}^2 = \gamma^2 \frac{H^6}{H_c^4} \frac{3\chi_{\perp}}{2\chi_{\parallel}}, \quad (4)$$

где мы перешли от интегрирования к суммированию по N неэквивалентным позициям ядерных спинов (в CsMnBr_3 $N = 6$ по количеству подрешеток), $\nu_{i0}^2 = \gamma_n^2 (\alpha^2 \cos^2 \mathbf{Q}\mathbf{r}_i + (H + \alpha \sin \mathbf{Q}\mathbf{r}_i)^2)$, и ν_{e0} – частота собственных колебаний электронных спинов [4, 8], соответствующая лагранжиану (1). Для частот $\nu \gg \gamma_n H$ можно опустить все ν_{i0} и $\gamma_n H$ в правой части уравнения (4) и получить совсем простое выражение для частоты "электронной" моды колебаний:

$$\nu_e^2 = \nu_{e0}^2 + \gamma^2 \alpha^2 \frac{\chi_n}{\chi_{\parallel}} = \nu_{e0}^2 + \Delta^2(T), \quad (5)$$

по форме совпадающее с известным результатом для двухподрешеточных антиферромагнетиков [6]. Подстановка (5) в (4) дает кубическое уравнение для частот ЯМР, которые при низких температурах хорошо согласуются с экспериментальными данными работы [10].

Для сравнения теоретических выражений (4),(5) с экспериментом необходимо знание восприимчивостей и сверхтонкой константы α . Мы пренебрежем температурной зависимостью восприимчивостей в CsMnBr_3 , которая несущественна при $T < 3\text{K}$, и будем пользоваться значениями $\chi_{\parallel} = 0.012 \text{ CGS/моль}$ и $\chi_{\perp} = 0.006 \text{ CGS/моль}$, измеренными в [3] при $T = 1.7\text{K}$. Значение сверхтонкой константы в (3) пропорционально среднему значению упорядоченного электронного спина: $\alpha = A\langle S \rangle$. Для разных соединений значения α могут слегка различаться, в пределах $\pm 10\%$, однако, в отсутствие данных для CsMnBr_3 мы будем пользоваться значением $A = 259 \text{ кЭ}$, измеренным в [9] по сверхтонкому расщеплению линии ЭПР для слабого раствора ионов (^{55}Mn) $^{2+}$ в ZnF_2 .

На рис.2 приведены результаты описанного выше расчета и экспериментальные точки при различных температурах. "Ошибки" по оси абсцисс (магнитное поле) у экспериментальных точек равны полной ширине соответствующей лоренцевой резонансной линии поглощения и не отражают неопределенность ее положения, которая примерно в 10 раз меньше. Сплошными кривыми изображены результаты расчета (5) с приведенными выше значениями восприимчивостей и сверхтонкой постоянной, и средним значением упорядоченного спина $\langle S \rangle = 1.65$ согласно данным дифракции нейтронов [1]. Как видно из рисунка, наши резонансные измерения находятся в хорошем качественном, но весьма удовлетворительном количественном согласии с расчетом. Причем расхожде-

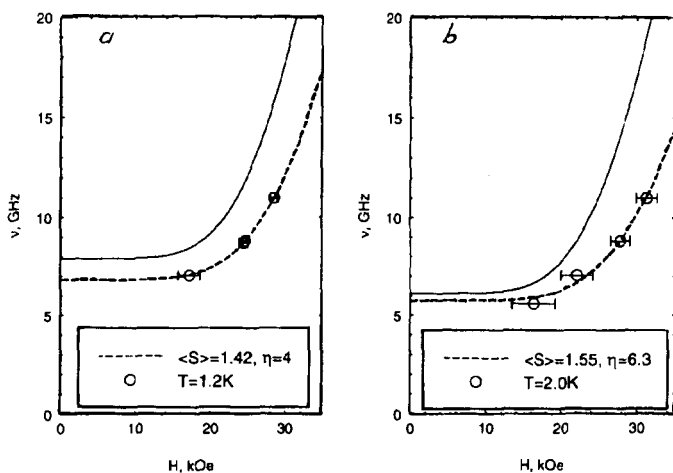


Рис.2. Спектры АФМР в CsMnBr_3 при $H \perp C_6$, а) $T = 1.2\text{K}$ штриховые кривые — $\langle S \rangle = 1.42$, $\eta = 4$; б) $T = 2.0\text{K}$ штриховые кривые — $\langle S \rangle = 1.55$, $\eta = 6.3$. Сплошные и штриховые линии получены с помощью (4), как указано в тексте. "Ошибки" у экспериментальных точек отражают не точность их определения, а ширину линии поглощения

ние увеличивается в области больших полей и частот и растет с повышением температуры. Это свидетельствует о недостаточности нашего теоретического описания и подразумевает необходимость учета флуктуационных поправок к частотам колебаний на основе точных нелинейных гидродинамических уравнений движения. Мы также попробовали подогнать наши экспериментальные результаты выражением (5) используя $\langle S \rangle$ и $\eta = (\chi_{\parallel} - \chi_{\perp})/\chi_{\perp}$ в качестве параметров. Полученные таким образом штриховые кривые хорошо совпадают с экспериментом, но предполагают очень далекое от действительности значение $\eta \sim 4 \div 7$. Надо отметить, что получаемые такой подгонкой значения $\langle S \rangle \sim 1.4 \div 1.6$ находятся в хорошем согласии с нейтронными данными, что свидетельствует о "нечувствительности" величины сверхтонкой щели к флуктуационным поправкам.

В заключение авторам приятно поблагодарить А.С.Боровика-Романова, А.Тихонова и Б.Думеша за интересные обсуждения и замечания, стимулировавшие данное исследование, а также за сообщение результатов ЯМР экспериментов до публикации; С.Сосина, Л.Прозорову, А.Смирнова и Л.Свистова — за интерес и повседневную помощь в работе. Выполнение данной работы было поддержано грантом 95-02-04555а Российского фонда фундаментальных исследований и грантом INTAS 94-968.

1. M.Eibschütz, R.C.Sherwood, F.S.L.Hsu, and D.E.Cox, AIP Conf. Proc. **17**, 684 (1972).
2. И.А.Зализняк, Л.А.Прозорова, С.В.Петров, ЖЭТФ **97**, 359 (1990).
3. S.I.Abarzhi, A.N.Bazhan, L.A.Prozorova, and I.A.Zaliznyak, J. Phys.: Cond. Matter **4**, 3307 (1992).
4. A.V.Chubukov, J. Phys. C: Sol. St. Phys. **21**, L441-L446 (1988).
5. А.С.Боровик-Романов, В.А.Тулин, Письма в ЖЭТФ **1**, 18 (1965).
6. Е.А.Туров, М.П.Петров, Ядерный магнитный резонанс в ферро- и антиферромагнетиках, М.: Наука, 1969, стр.58.
7. А.Ф.Андреев, В.И.Марченко, УФН **130**, 39 (1980).
8. М.Е.Zhitomirsky, О.А.Petrenko, and L.A.Prozorova, Phys. Rev. B **52**, 3511 (1995).
9. А.М.Clogston, J.P.Gordon, V.Jaccarino et al., Phys. Rev. **117**, 1222 (1960).
10. А.С.Боровик-Романов, С.В.Петров, А.Тихонов, Б.Думеш, Письма в ЖЭТФ **64**, 208 (1996).