

ФЕДЕРАЛЬНОЕ ГОСУДАРСТВЕННОЕ АВТОНОМНОЕ ОБРАЗОВАТЕЛЬНОЕ
УЧРЕЖДЕНИЕ

ВЫСШЕГО ПРОФЕССИОНАЛЬНОГО ОБРАЗОВАНИЯ
«НАЦИОНАЛЬНЫЙ ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКИЙ УНИВЕРСИТЕТ

«ВЫСШАЯ ШКОЛА ЭКОНОМИКИ»

Факультет физики

БАЗОВАЯ КАФЕДРА ФИЗИКИ НИЗКИХ ТЕМПЕРАТУР
Институт физических проблем им. П.Л. Капицы РАН

Родыгина Ирина Константиновна

**МАГНИТНЫЙ РЕЗОНАНС В КВАЗИДВУМЕРНЫХ
АНТИФЕРРОМАГНЕТИКАХ**

МАГИСТЕРСКАЯ ДИССЕРТАЦИЯ
по направлению подготовки 03.03.02 ФИЗИКА
образовательная программа «Физика»

Научный руководитель
к.ф.-м.н.
В.Н. Глазков

Москва 2019

Оглавление

Введение.....	3
Экспериментальная методика и установка.....	6
Магнитный резонанс в парамагнетике.....	6
Магнитный резонанс в антиферромагнетике.....	8
Экспериментальная установка.....	10
Анализ формы линий резонансного поглощения.....	15
Антиферромагнитный резонанс в квазидвумерном антиферромагнетике	
Ba ₂ MnGe ₂ O ₇	20
Кристаллическая структура и свойства Ba ₂ MnGe ₂ O ₇	20
Экспериментальные результаты.....	27
Обсуждение.....	40
<i>Соответствие Ba₂MnGe₂O₇ модели антиферромагнетика типа «легкая плоскость».....</i>	<i>40</i>
<i>Учет слабой анизотропии в плоскости</i>	<i>41</i>
<i>Динамический сдвиг частоты АФМР.....</i>	<i>44</i>
<i>Оценка роли сверхтонкого взаимодействия вблизи поля насыщения.....</i>	<i>54</i>
<i>Проявление анизотропии в плоскости (001) при наличии эффекта динамического сдвига частоты.....</i>	<i>57</i>
<i>Ширина линии ЭПР в парамагнитной фазе: сравнение с моделью перехода Березинского-Костерлица-Таулеса.....</i>	<i>59</i>
Антиферромагнитный резонанс в квазидвумерном антиферромагнетике	
Cu(en)(H ₂ O) ₂ SO ₄	67
Кристаллическая структура Cu(en)(H ₂ O) ₂ SO ₄	67
Экспериментальные результаты.....	76
Обсуждение.....	79
Выводы.....	83
Благодарности.....	83

Введение

Задача о поиске основного состояния и спектра элементарных возбуждений для системы обменно-связанных спинов на кристаллической решетке является одной из традиционных задач в физике твердого тела. Гамильтониан такой задачи имеет вид:

$$\hat{H} = \sum_{\langle i, j \rangle} J_{ij} (\hat{S}_i \cdot \hat{S}_j) ,$$

здесь J_{ij} — обменный интеграл между i -ым и j -ым спином, угловые скобки $\langle i, j \rangle$ обозначают суммирование без повторений. В случае $J_{ij} < 0$ основным состоянием является полностью поляризованное состояние $\psi_{FM} = |\dots \uparrow \uparrow \uparrow \uparrow \dots\rangle$, которое соответствует ферромагнитному упорядочению спиновой системы. Для $J_{ij} > 0$ задача оказывается более сложной. В классическом пределе (когда спиновые операторы заменяются векторами) такой знак обменного взаимодействия соответствует антипараллельной ориентации спинов в состоянии с наименьшей энергией. В случае взаимодействия только ближайших соседей на достаточно простой (например, кубической) решетке это приводит к возникновению антиферромагнитного упорядочения неелевского типа. Однако в квантовом случае неелевская волновая функция $\psi_N = |\dots \uparrow \downarrow \uparrow \downarrow \uparrow \downarrow \dots\rangle$ не является собственной функцией обменного гамильтониана.

Во многих случаях в реальных антиферромагнетиках формируется порядок неелевского типа: направление средних спинов соседних ионов оказывается противоположным, но при этом даже при $T=0$ среднее значение проекции спина иона оказывается чуть меньше номинального значения. Это явление называют редукцией спина, в обычных трехмерных антиферромагнетиках она составляет несколько процентов от номинального значения спина.

В последнее время начали активно изучаться антиферромагнетики со специальной геометрией обменных связей: антиферромагнетики с взаимодействием соседей, следующих за ближайшими, антиферромагнетики на геометрически фрустрированных решетках. В этих случаях могут возникать необычные формы магнитного порядка с неколлинеарной ориентацией спинов, а также необычные фазовые переходы между магнитно-упорядоченными состояниями.

Также активно изучаются квазинизкоразмерные антиферромагнетики. В таких трехмерных кристаллах из-за особенностей кристаллической структуры (например, сильно различающихся расстояний между магнитными ионами вдоль разных направлений) обменное взаимодействие вдоль одного или двух кристаллографических направлений заметно ослаблено. В результате в трехмерном кристалле формируются слабо связанные двумерные или одномерные спиновые подсистемы. Квантовые и тепловые флуктуации разрушают дальний магнитный порядок в двумерных и одномерных магнетиках при любой конечной температуре [1]. Поэтому в таких системах при низких температурах формируются необычные сильно скоррелированные, но неупорядоченные состояния, называемые состояниями спиновой жидкости. Слабое взаимодействие между низкоразмерными подсистемами может привести к формированию трехмерного порядка (своеобразной «кристаллизации» спиновой жидкости). Кроме того в двумерных спиновых системах при наличии анизотропии типа «легкая плоскость» возможен фазовый переход Березинского-Костерлица-Таулеса [2].

Кроме того, интенсивно исследуются магнетики со свойствами мультиферроиков: вещества, в которых магнитный порядок оказывается связан с электрической поляризацией образца [3]. Для

антиферромагнетиков механизм возникновения электрической поляризации часто оказывается связан с неколлинеарностью магнитной структуры.

В данной работе представлены результаты изучения методом магнитного резонанса двух квазидвумерных антиферромагнетиков: мультиферроика $\text{Ba}_2\text{MnGe}_2\text{O}_7$ и упорядочивающегося при температуре ниже 1 К антиферромагнетика $\text{Cu(en)(H}_2\text{O)}_2\text{SO}_4$. Наши опыты подтвердили формирование коллинеарного магнитного порядка в этих антиферромагнетиках. В антиферромагнетике $\text{Ba}_2\text{MnGe}_2\text{O}_7$ идентифицирована анизотропия типа «легкая плоскость» и обнаружено открытие в спектре возбуждений второй щели, связанной со сверхтонким взаимодействием, определены параметры сверхтонкого взаимодействия. В антиферромагнетике $\text{Cu(en)(H}_2\text{O)}_2\text{SO}_4$ идентифицирована анизотропия типа «легкая ось» и установлена ориентация осей анизотропии, обнаружено существование неэквивалентных магнитных подсистем.

Экспериментальная методика и установка

Магнитный резонанс в парамагнетике

Электронный парамагнитный резонанс — явление, открытое советским физиком Е.К.Завойским в Казани в 1944 году, которое состоит в резонансном поглощении энергии электромагнитного поля образцом, содержащим магнитные ионы.

Это поглощение зависит от внешних условий, таких как температура, частота колебаний переменного поля, величина постоянного поля, поэтому, изучая поглощение переменного поля при различных внешних условиях, можно получить информацию о физических свойствах образца.

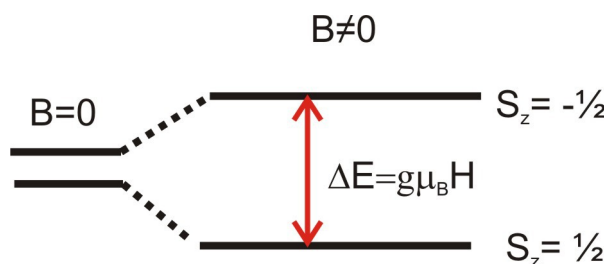


Рисунок 1: Схема расщепления подуровней спина $S=1/2$ в магнитном поле

Рассмотрим простейшую задачу о спине $S=1/2$, находящемся в магнитном поле. В магнитном поле происходит расщепление спиновых подуровней (рис. 1), расстояние между ними равно $\Delta E = g\mu_B H \Delta S_z = g\mu_B H$, где g — g -фактор, μ_B — магнетон Бора, а постоянное поле H приложено вдоль оси z . Если приложить еще и переменное поле малой амплитуды $\vec{h} = \vec{h}_0 e^{-i\omega t}$, то будет возможно резонансное поглощение электромагнитного поля при условии совпадения энергии кванта $\hbar\omega$ с расщеплением спиновых подуровней ΔE :

$$\hbar\omega = g\mu_B H.$$

В условиях резонанса вероятность перехода в единицу времени между i -ым и j -ым подуровнем определяется «золотым правилом Ферми» [4]:

$$p_{ij} \propto \left| \left\langle i \left| \left(\vec{h} \cdot \hat{S} \right) \right| j \right\rangle \right|^2 .$$

Из этой формулы видно, что вероятности перехода с нижнего подуровня на верхний и с верхнего подуровня на нижний совпадают. В первом случае поглощается квант энергии $\hbar \omega$, а во втором испускается такой же квант. Так как заселенность нижнего подуровня больше, то полная поглощаемая мощность

$$P_{\text{полн}} \propto (\hbar \omega) \times N_0 \frac{1 - e^{-\hbar \omega / T}}{1 + e^{-\hbar \omega / T}} \times \left| \left\langle + \frac{1}{2} \left| \left(\vec{h} \cdot \hat{S} \right) \right| - \frac{1}{2} \right\rangle \right|^2 .$$

Таким образом, наблюдение резонансного поглощения позволяет определить g -фактор парамагнитного центра, а измерение поглощенной мощности позволяет определить число парамагнитных центров N_0 .

В рассмотренной простейшей модели при заданном значении частоты переменного поля резонансное поглощение будет наблюдаться *только* в поле $H = \hbar \omega / (g \mu_B)$. То есть, если записывать сигнал магнитного резонанса как зависимость поглощаемой мощности от медленно изменяемого постоянного поля, то такой сигнал будет иметь форму дельта-функции. В реальных парамагнетиках взаимодействие спинов друг с другом и с кристаллической решеткой приводит к возникновению процессов релаксации, ограничивающих время жизни спина в возбужденном состоянии. Из-за этого спиновые подуровни приобретают конечную ширину, и резонансное поглощение наблюдается в некотором интервале полей: возникает конечная ширина линии магнитного резонанса ΔH . Измерение ширины линии магнитного резонанса позволяет получить информацию о процессах релаксации в парамагнетике.

Мощность, поглощаемую образцом, можно выразить через мнимую часть высокочастотной восприимчивости следующим образом:

$$P_{\text{samp}} = \frac{1}{2} \chi'' h^2 \omega V_{\text{samp}},$$

где V_{samp} - объем образца, h - амплитуда осциллирующего магнитного поля, ω - циклическая частота, χ'' - мнимая часть восприимчивости единицы объема образца.

Магнитный резонанс в антиферромагнетике

Магнитный резонанс в упорядоченном антиферромагнетике (антиферромагнитный резонанс, АФМР) принципиально отличается от парамагнитного резонанса свободных спинов. Элементарными возбуждениями упорядоченного антиферромагнетика являются коллективные колебания спинов: спиновые волны (магноны). При резонансном поглощении переменного поля в антиферромагнетике происходит не переворот отдельного спина, а возбуждение такого колебания. Так как во время эксперимента переменное поле обычно почти однородно на размерах образца, то возбуждаются однородные колебания с $k=0$. Таким образом, частота антиферромагнитного резонанса совпадает с частотой спиновых волн при $k=0$.

Вид спектра спиновых волн зависит от того, как устроен антиферромагнитный параметр порядка, является ли упорядочение коллинеарным или неколлинеарным, какие имеются предпочтительные ориентации у параметра порядка. Спектр спиновых волн меняется при магнитных фазовых переходах. Поэтому изучение антиферромагнитного резонанса позволяет получить некоторую информацию о свойствах антиферромагнетика. При этом преимуществом метода АФМР является высокая разрешающая способность: достаточно обычным для опытов по АФМР спектроскопии является разрешение ≈ 2 ГГц, что соответствует различию в энергии магнонов на 0.01 мэВ. Такое разрешение не

достижимо, например, в опытах по неупругому рассеянию нейтронов.

Для нахождения спектра спиновых волн существует несколько подходов. Традиционным подходом [5], [6] является разбиение антиферромагнетика на подрешетки (подсистемы коллинеарных спинов), взаимодействие между которыми учитывается как некоторое эффективное поле. Недостатком этого подхода является некоторая искусственность выделения подрешеток и громоздкость такого описания в сложных (многоподрешеточных) антиферромагнетиках. В то же время, уравнения модели подрешеток могут быть решены в любом поле, в том числе вплоть до поля насыщения.

В данной работе для нахождения спектра АФМР будет в основном использоваться теория Андреева — Марченко [7], в которой не используется разбиение на подрешетки. Данный подход ограничен малыми полями и описывает динамику антиферромагнетика как колебания единичного параметра порядка. Для описания этой динамики при $T=0$ в коллинеарном антиферромагнетике вводится лагранжиан с плотностью:

$$L = \frac{\chi_{\perp}}{2\gamma^2} (\dot{\vec{l}} + \gamma [\vec{l} \times \vec{H}])^2 - U_A ,$$

где единичный вектор $\vec{l}$ - антиферромагнитный параметр порядка, U_A - энергия анизотропии, зависящая от ориентации параметра порядка, $\chi_{\perp}$ - поперечная восприимчивость антиферромагнетика, а γ - гиромагнитное отношение. Форма записи энергии анизотропии зависит от симметрии кристалла антиферромагнетика в конкретной задаче.

Для нахождения собственных частот колебаний параметра порядка необходимо сначала найти положение равновесия параметра порядка, которое соответствует минимуму потенциальной энергии

$$P = -\frac{\chi_{\perp}}{2\gamma^2} [\vec{l} \times \vec{H}]^2 + U_A = -\frac{\chi_{\perp} H^2}{2} + \frac{\chi_{\perp}}{2} (\vec{l} \cdot \vec{H})^2 + U_A ,$$

а затем решить систему уравнений Эйлера — Лагранжа

$$\frac{d}{dt} \frac{\partial L}{\partial \dot{\varphi}_i} - \frac{\partial L}{\partial \varphi_i} = 0 ,$$

где $\varphi_{1,2}$ - переменные, параметризующие колебания.

Экспериментальная установка

Все представленные в работе экспериментальные результаты были получены в Группе спиновой динамики Института физических проблем им. П.Л. Капицы. Эксперименты выполнялись группой в составе И.К. Родыгина, Ю.В. Красникова, В.Н. Глазков.

В работе использовалось два криостата: криостат с откачкой гелия-4 для работы при температурах до 1.7 К и криостат с откачкой гелия-3 для работы при температурах до 0.45 К. В криостаты устанавливались вставки для ЭПР-спектроскопии с резонаторами прямоугольного, цилиндрического и квазиторoidalного типа (рис. 2, 3, 4, 5). Используемые спектроскопические вставки позволяли проводить измерения на частотах от 4.5 до 120 ГГц. В качестве источников СВЧ использовались генераторы, указанные в таблице 1. Для получения магнитного поля использовались погруженные в гелиевую ванну сверхпроводящие соленоиды с критическим полем $H_{cr} \sim 8$ Т и ~ 14 Т для криостатов с откачкой гелия-4 и гелия-3, соответственно.

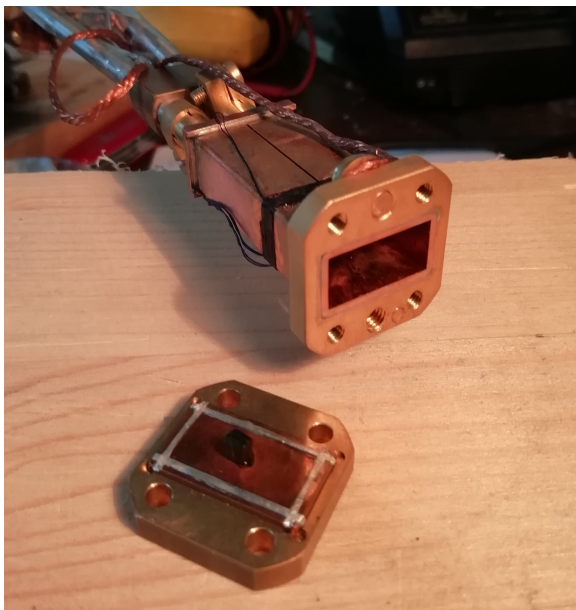


Рисунок 2: Прямоугольный резонатор на спектрометре с откачкой паров гелия-3. Основные рабочие частоты 9-17 ГГц. На доньшке приклеен образец.

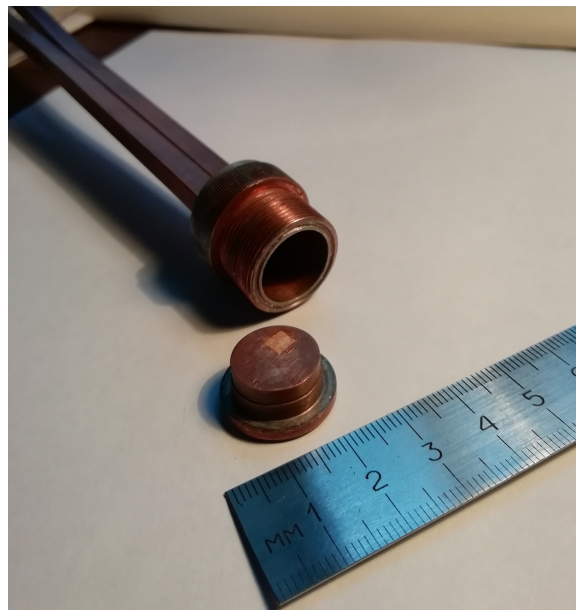


Рисунок 3: Цилиндрический резонатор на спектрометре для криостата с откачкой паров гелия-4. Основные рабочие частоты от 25 ГГц и выше. На доньшке установлена метка ДФПГ ($g=2.00$).

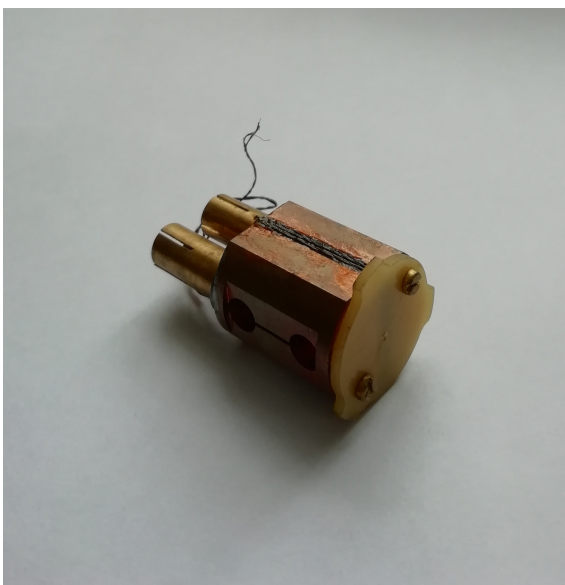


Рисунок 4: Квазиторoidalный резонатор. Основная рабочая частота 4.5 ГГц.



Рисунок 5: Фрагмент экспериментальной ячейки в спектрометре с прямоугольным резонатором с возможностью вращения образца. Рабочие частоты от 17 ГГц и выше.

Таблица 1 Используемые СВЧ-генераторы.

<i>Название генератора</i>	<i>Диапазон частот</i>
Г4-81	4-5.6 ГГц
Г4-111	5.9-17.5 ГГц
Г4-155	17-25 ГГц
Г4-156	25-38 ГГц
Г4-141	37.5-53.5 ГГц
Г4-142	53.5-78.3 ГГц
РГ4-14	78-118 ГГц

Схема измерительной части установки показана на рис. 6. СВЧ излучение генератора по волноводу попадает в резонатор с образцом. Образец помещается в резонатор для повышения чувствительности и располагается таким образом, чтобы находиться в максимуме переменного магнитного поля. Как правило, переменное магнитное поле направлено перпендикулярно к внешнему. СВЧ-излучение по второму волноводу выходит из резонатора с образцом и попадает на детектор. При возникновении поглощения в образце мощность выходящего из резонатора излучения уменьшается. Напряжение на детекторе пропорционально мощности падающего на него излучения, это напряжение измеряется синхронным фазочувствительным детектором (Lock-In). Для использования фазочувствительного детектора сигнал СВЧ-генератора амплитудно модулировался меандром, и детектирование осуществлялось на первой гармонике этого меандра. Температура образца измеряется при помощи калиброванного термометра сопротивления, приклеенного к резонатору. Для изменения температуры использовался нагреватель, намотанный на резонатор. Постоянное магнитное поле создается сверхпроводящим соленоидом, ток через который поддерживается управляемым компьютером источником тока.

Для калибровки магнитного поля (определения коэффициента пропорциональности между током и магнитным полем) использовались контрольные опыты по ЭПР с дифенилпикрилгидразилом (ДФПГ) с g -фактором = 2.0. В ходе эксперимента компьютер записывает напряжение на детекторе в зависимости от медленно изменяемого постоянного магнитного поля и фиксирует температуру образца.

Основная часть экспериментов была проведена на криостате с откачкой паров гелия-4, часть экспериментов с нашими образцами была проведена на криостате с откачкой паров гелия-3. Упрощенная схема такой установки изображена на рис. 7. Внешний криостат обеспечивал охлаждение сверхпроводящего магнита. Во вставке с криостатом откачки гелия-3 имеется отдельная градусная камера, заполняемая жидким гелием-4. Газообразный гелий-3 изначально находится в баллоне для хранения, а при подключении к вставке заполняет соединительные шланги и проходящую через градусную камеру трубку. При откачке паров гелия-4 из градусной камеры при помощи насоса температура в ней начинает понижаться до 1.4 К, и гелий-3 начинает конденсироваться на стенках трубки, проходящей через градусную камеру. После окончания конденсации практически весь гелий-3 оказывается в жидком состоянии внутри вставки. Дальнейшее понижение температуры осуществляется откачкой паров гелия-3 при помощи сорбционного насоса, погружаемого в транспортный дьюар с гелием. Таким образом, в камере с жидким гелием-3 достигается температура 0.45 К. Резонатор с образцом соединен с камерой с гелием-3 при помощи медных хладопроводов.

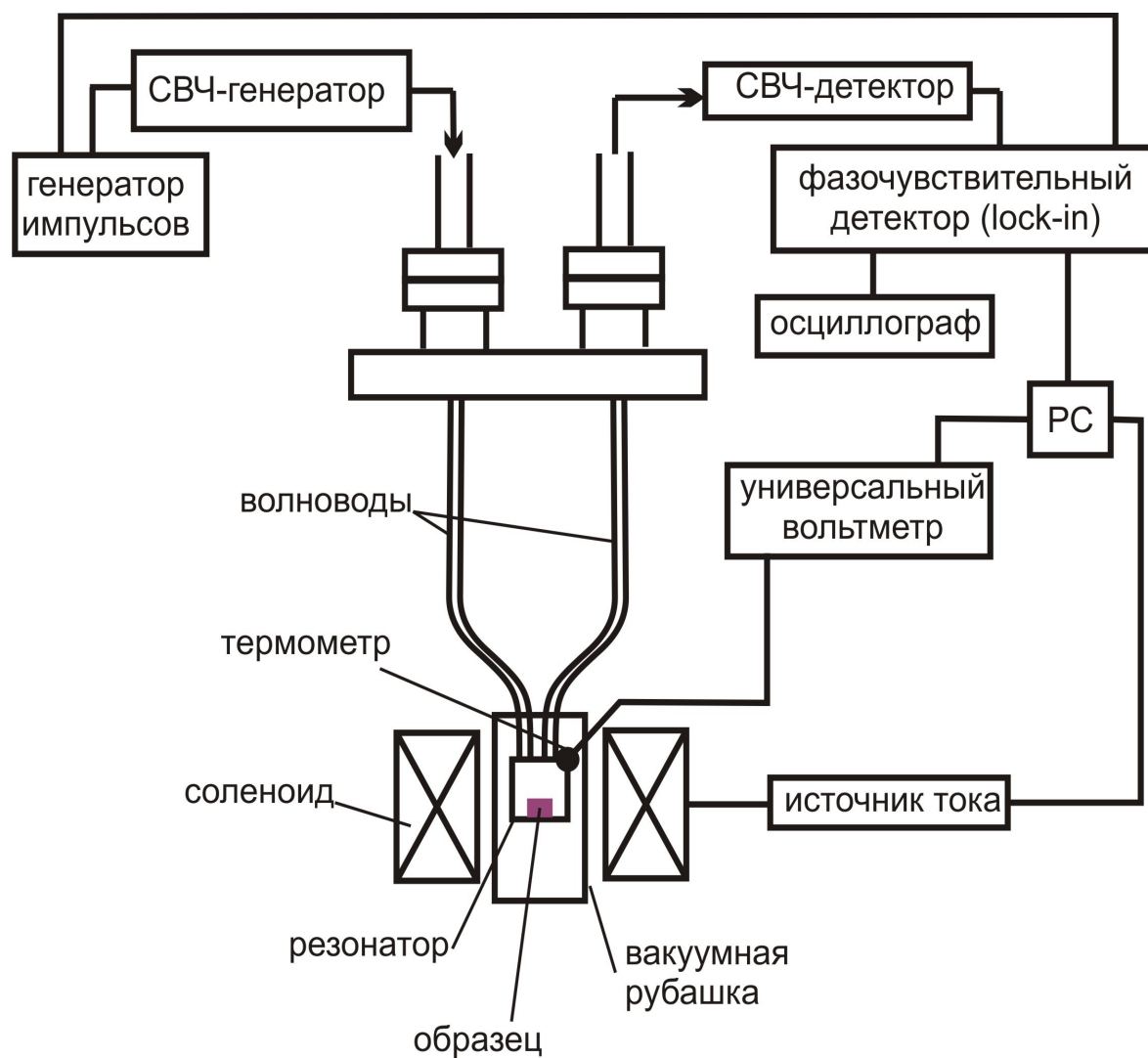


Рисунок 6 Схема измерительной части экспериментальной установки.

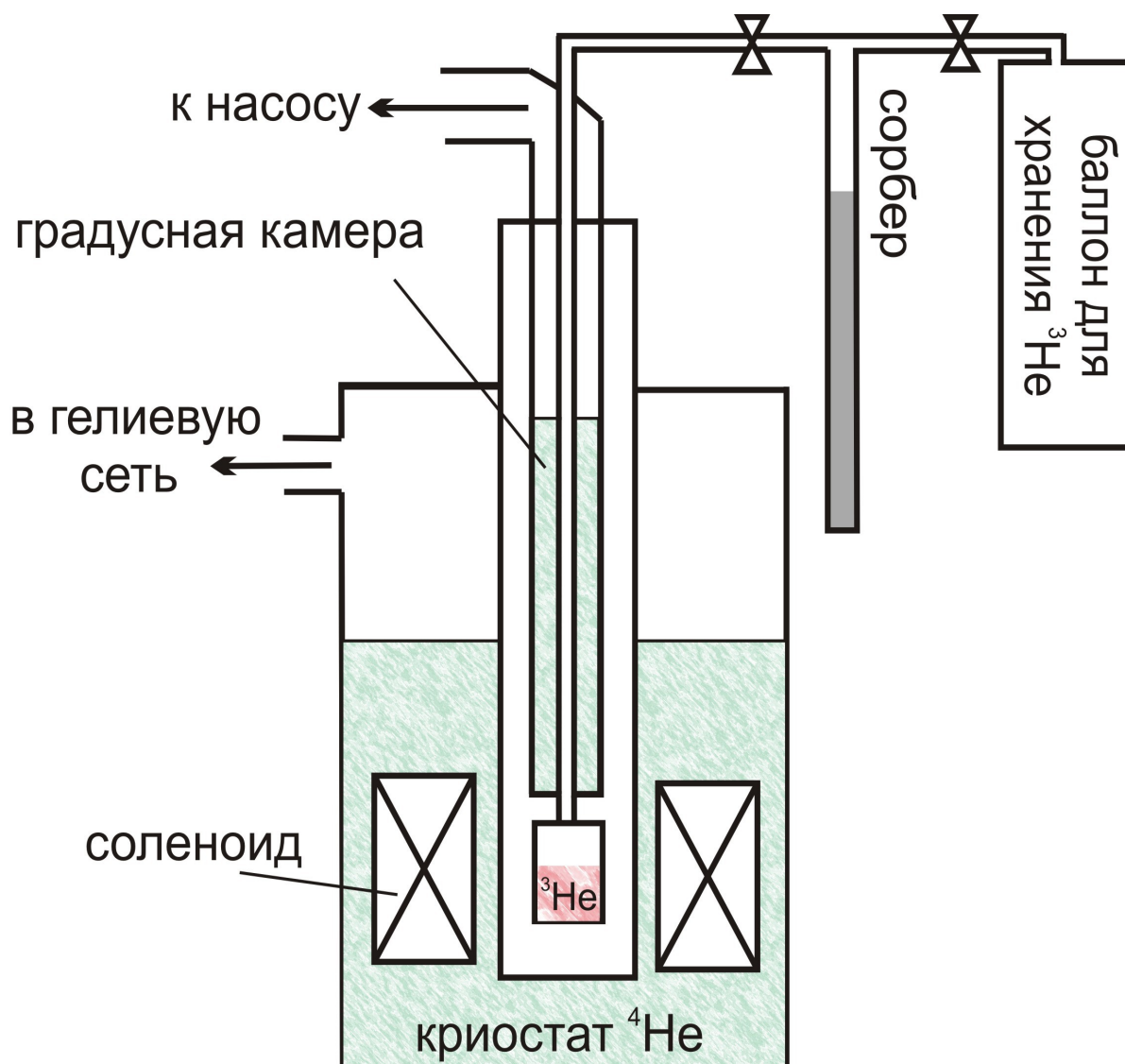


Рисунок 7 Упрощенная схема криогенной части криостата с откачкой паров гелия-3. Для упрощения рисунка не показаны вакуумная полость криостата, азотный танк, экран, детали спектрометра.

Анализ формы линий резонансного поглощения

Сигнал СВЧ-генератора после прохождения через резонатор с образцом попадает на детектор. Если в образце происходит поглощение, то мощность, попадающая на детектор, падает. Напряжение на детекторе пропорционально падающей на него мощности, в ходе эксперимента это напряжение записывается как функция магнитного поля. Пример записанной таким образом линии поглощения показан на рис. 8.

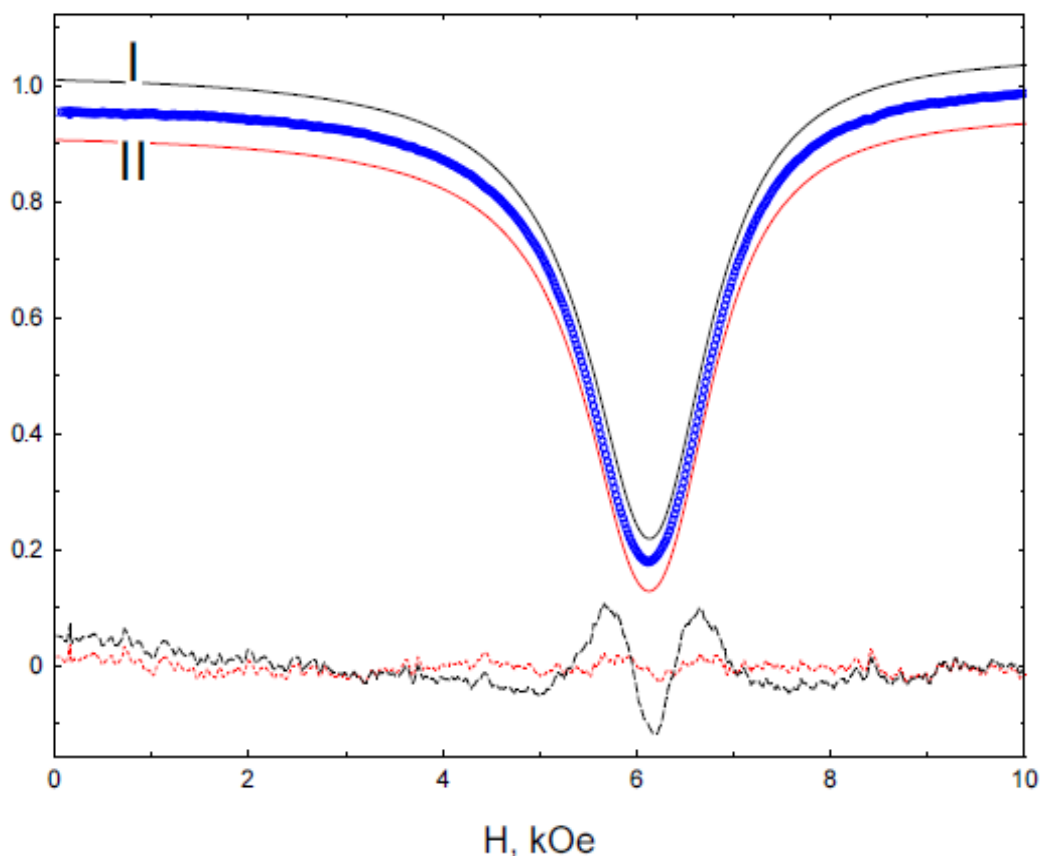


Рисунок 8: Пример записи линии резонансного поглощения и ее подгонки. Символы - экспериментальные данные, сплошные кривые - подгонка с помощью линейной (I) и нелинейной (II) формул. Подгоночные кривые смещены для наглядности. Пунктирные кривые - десятикратно увеличенная разница между экспериментальной и подгоночной кривыми (цвет пунктирной кривой соответствует цвету подгоночной кривой).

Полученные данные моделировались линией поглощения лоренцевой формы с учетом дисперсии одним из двух способов:

1. Линеаризованная подгоночная формула. Эта формула используется, если поглощение невелико (сигнал на детекторе меняется не больше, чем на 20-30%).

$$U(H) = a(1 + kH) \left[1 - \frac{A}{1 + \left(\frac{H - H_0}{\Delta} \right)^2} - \frac{B(H - H_0)}{1 + \left(\frac{H - H_0}{\Delta} \right)^2} \right].$$

Здесь множитель $a(1 + kH)$ описывает сигнал на детекторе в отсутствие поглощения с учетом возможного дрейфа по техническим причинам, второе слагаемое в скобках описывает

поглощение в образце, пропорциональное мнимой части высокочастотной восприимчивости χ'' , а третье слагаемое — искажения, возникающие из-за изменения действительной части высокочастотной восприимчивости χ' вблизи резонансного поглощения. По результатам подгонки определялись амплитуда поглощения A , резонансное поле H_0 , полуширина линии Δ , которые использовались в дальнейшем анализе.

2. Нелинейная подгоночная формула. Если поглощение в образце велико (больше 20-30%), то необходимо использовать строгую формулу, учитывающую нелинейную связь поглощения в образце и сигнала на детекторе [8]:

$$U(H) = \frac{a(1+kH)}{\left(1 + \frac{A}{1 + \frac{(H-H_0)^2}{\Delta^2}}\right)^2 + \left(f + \frac{g(H-H_0)}{1 + \frac{(H-H_0)^2}{\Delta^2}}\right)^2}.$$

Здесь числитель $a(1+kH)$ описывает сигнал на детекторе в отсутствие поглощения с учетом возможного дрейфа по техническим причинам, первое слагаемое в знаменателе описывает поглощение в образце, пропорциональное мнимой части высокочастотной восприимчивости χ'' , а второе слагаемое — искажения, возникающие из-за изменения действительной части высокочастотной восприимчивости χ' вблизи резонансного поглощения. По результатам подгонки определялись амплитуда поглощения A , резонансное поле H_0 , полуширина линии Δ , которые использовались в дальнейшем анализе.

Таблица 2: Определенные по линеаризованной и нелинейной формулам подгоночные параметры A , H_0 и Δ .

	A	H_0	Δ
Линеаризованная формула	0.82	6.18	0.76
Нелинейная формула	2.00	6.13	0.44

Пример подгонки экспериментальных данных показан на рис. 8. На представленном примере поглощение довольно велико (около 80%), однако обе подгоночные формулы неплохо воспроизводят экспериментальные данные. Параметры подгонки приведены в таблице 2. Значения резонансного поля оказываются близки, а определенная по линеаризованной формуле ширина линии оказывается почти вдвое больше, чем определенная по нелинейной формуле. Это «уширение» является следствием нелинейной связи между поглощением в образце и сигналом на детекторе. Необходимо отметить, что применение строгой нелинейной формулы для подгонки оказывается не всегда удобным: в этой формуле больше подгоночных параметров, и на реальных данных с шумом подгонка этой формулой иногда оказывалась неустойчивой.

Поэтому в тех экспериментах, где интерес представляло определение поля резонансного поглощения, можно было использовать образцы с большим поглощением и использовать для подгонки данных любую из подгоночных формул. Точность определения резонансного поля оценивалась как 1/10 от полуширины резонансной линии. В экспериментах, в которых определялась ширина линии магнитного резонанса, для исключения искусственного «уширения» специально подбирался размер образца, чтобы поглощение было не слишком велико. Для оценки погрешности определяемой ширины линии использовалось сравнение результатов, полученных с разными подгоночными

формулами, а также с учетом или исключением искажений формы линии, возникающих из-за изменения действительной части восприимчивости χ' .

Антиферромагнитный резонанс в квазидвумерном антиферромагнетике $\text{Ba}_2\text{MnGe}_2\text{O}_7$

Кристаллическая структура и свойства $\text{Ba}_2\text{MnGe}_2\text{O}_7$

Образец $\text{Ba}_2\text{MnGe}_2\text{O}_7$ входит в семейство соединений $\text{Ba}_2\text{XGe}_2\text{O}_7$, где $\text{X}=\text{Mn}$ ($S=5/2$), Co ($S=3/2$), Cu ($S=1/2$), которые изучались в работах [9][10][11][12].

Все эти соединения изоструктурные и описываются тетрагональной структурой с пространственной группой $P\bar{4}_2m$ (D_{2d}^3) [9]. Для исследуемого нами соединения $\text{Ba}_2\text{MnGe}_2\text{O}_7$ параметры решетки $a=8.505 \text{ \AA}$ и $c=5.528 \text{ \AA}$ [10]. Детальное структурное исследование методом дифракции нейтронов [11] показало отсутствие искажений в $\text{Ba}_2\text{MnGe}_2\text{O}_7$ кристаллической решётки от 300К до 10К. Расположение атомов в кристаллической структуре $\text{Ba}_2\text{MnGe}_2\text{O}_7$ показано на рисунке 9.

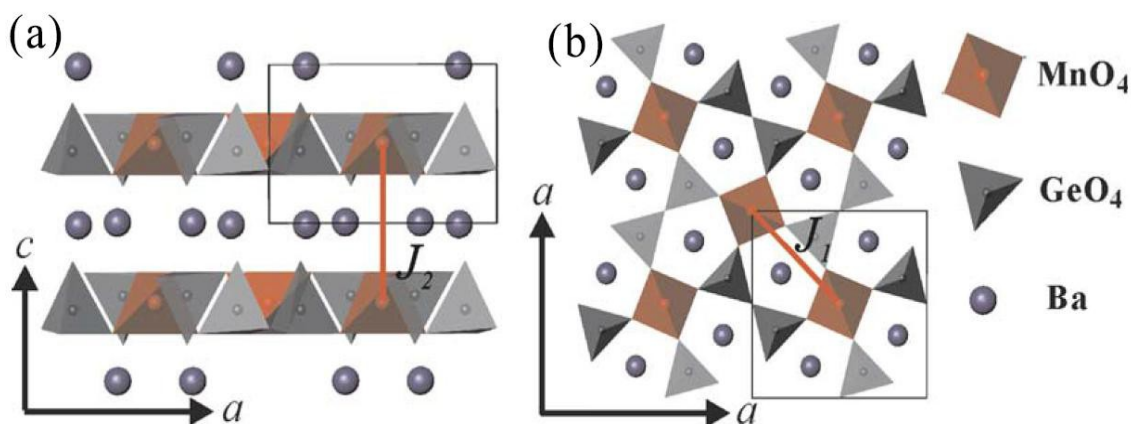


Рисунок 9: (Из статьи [10]) Кристаллическая структура $\text{Ba}_2\text{MnGe}_2\text{O}_7$. Сплошной прямоугольник обозначает одну элементарную ячейку.

Главным преобразованием симметрии является зеркально-поворотная ось четвертого порядка. Ионы марганца в тетраэдрическом кислородном окружении и чередующиеся по ориентации пирамидки GeO_4 формируют слои перпендикулярные оси четвертого порядка. Эти слои разделены немагнитными ионами бария. Такое устройство

кристаллической структуры способствует формированию двумерных магнитных подсистем.

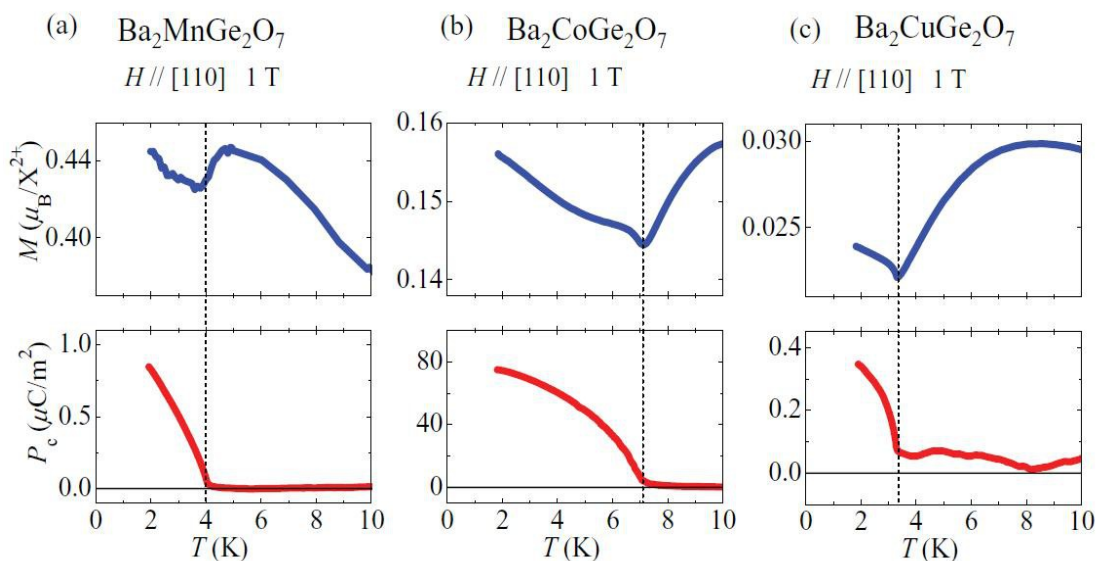


Рисунок 10: (Из статьи [9]) Зависимости намагниченности (синий) и электрической поляризации (красный) от температуры для (a) $\text{Ba}_2\text{MnGe}_2\text{O}_7$, (b) $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$, (c) $\text{Ba}_2\text{CuGe}_2\text{O}_7$, измеренные в поле 1 Тл, приложенном вдоль [110].

На рис. 10 показана зависимость намагниченности соединений семейства $\text{Ba}_2\text{XGe}_2\text{O}_7$ от температуры для поля 1Тл, направленного вдоль оси [110]. Все три эти соединения упорядочиваются антиферромагнитно, температура T_N антиферромагнитного перехода отмечена изломом на зависимостях $M(T)$ (на рис. 10 указана вертикальной пунктирной линией) и равна примерно 4, 7 и 3 К для $X=\text{Mn}$, Co и Cu , соответственно. Кроме этого наблюдается широкий максимум магнитной восприимчивости при температуре выше T_N . Такой максимум указывает на формирование сильных ближних антиферромагнитных корреляций и является типичным для низкоразмерных антиферромагнетиков [13].

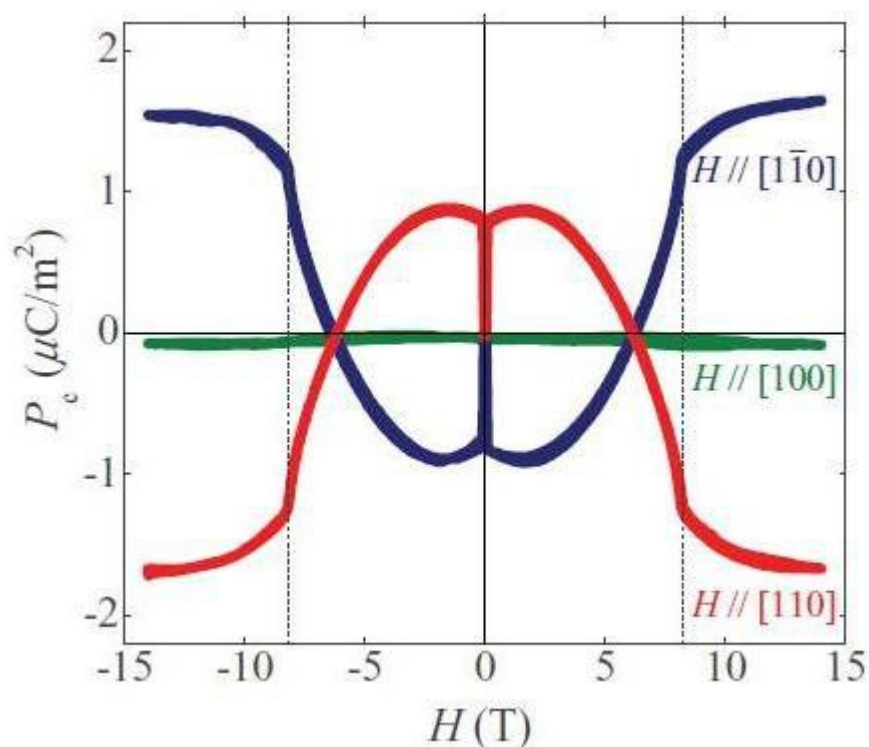


Рисунок 11: (Из статьи [9]) Изменение компоненты $[001]$ электрической поляризации в поле H , приложенном вдоль $[110]$, $[100]$ и $[1\bar{1}0]$ при $T=1.8$ К для $Ba_2MnGe_2O_7$.

Оказалось, что в соединениях семейства $Ba_2XGe_2O_7$ при температуре ниже T_N возникает электрическая поляризация [9], то есть эти соединения являются мультиферроиками. Зависимость компоненты электрической поляризации, направленной вдоль оси четвертого порядка, от температуры показана на рис. 10. Рис. 11 показывает изменение компоненты электрической поляризации P_c в магнитном поле, приложенном вдоль осей $[110]$, $[100]$ и $[1\bar{1}0]$, при температуре 1.8 К. Видно, что величиной электрической поляризации можно управлять при помощи магнитного поля, и этот эффект зависит от ориентации магнитного поля в плоскости, перпендикулярной оси четвертого порядка. В нашей работе мы не будем систематически изучать эффекты, связанные с мультиферроичностью.

В работе [10] были выполнены измерения намагниченности в $Ba_2MnGe_2O_7$, а также было исследовано антиферромагнитное

упорядочение в этом соединении методами упругого и неупругого рассеяния нейтронов.

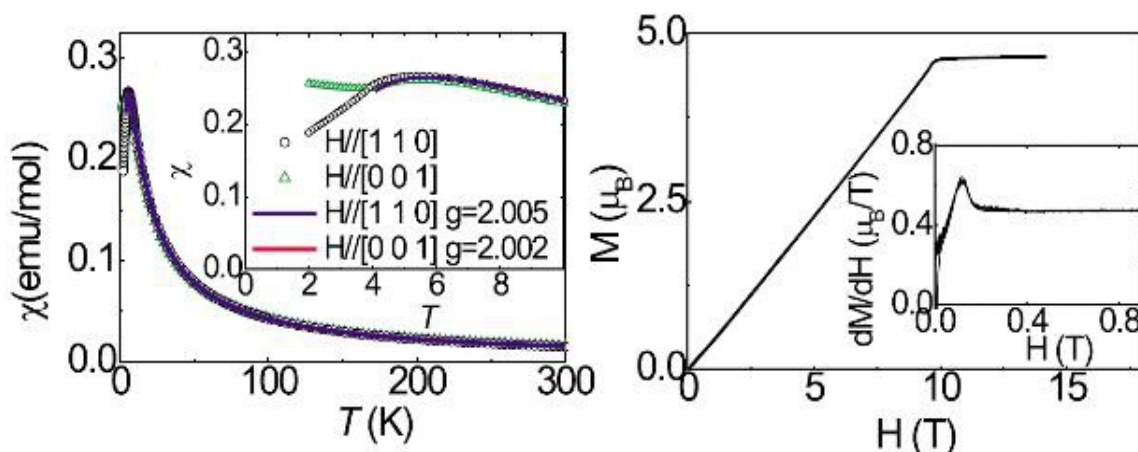


Рисунок 12: (Из статьи [10]) Слева: Зависимость магнитной восприимчивости в поле 100 Э от температуры в $\text{Ba}_2\text{MnGe}_2\text{O}_7$. Символы — экспериментальные данные, сплошные линии — численный расчет в модели гейзенберговского антиферромагнетика с $S=5/2$ на квадратной двумерной решетке. Справа: Зависимость намагниченности от магнитного поля при $T=0.5$ К при $H \parallel [110]$. На вставке производная намагниченности.

На рис. 12 показаны магнитная восприимчивость и кривая намагничивания вплоть до поля насыщения. Температура Нееля $T_N=4.0$ К отмечена изломом на кривой $\chi(T)$, магнитная восприимчивость ниже T_N анизотропна, магнитная восприимчивость выше T_N хорошо описывается в модели гейзенберговского антиферромагнетика с $S=5/2$ на квадратной решетке с обменным интегралом $J=26$ мкэВ. Поле насыщения при $T=0.5$ К $H_c=9.75$ Тл для $H \parallel [110]$. Также в работе [10] была отмечена небольшая особенность в поле $H=0.12$ Тл для $H \parallel [110]$, возможно связанная со спин-флоп переходом.

На рис. 13 приведены результаты опытов по упругому рассеянию нейтронов. В точке Нееля возникает магнитный брэгговский пик $\left(10\frac{1}{2}\right)$, соответствующий возникновению антиферромагнитного порядка с удвоением периода кристалла вдоль оси c . Магнитный момент

иона марганца при $T \rightarrow 0$, определенный из интенсивности брэгговского пика, равен $4.66 \mu_B$, что примерно на 7% меньше номинального значения. Наблюдаемая картина магнитных брэгговских пиков соответствует антиферромагнитному упорядочению типа «легкая плоскость».

Методом неупругого рассеяния нейтронов были измерены дисперсионные кривые для спиновых волн, распространяющихся в основных направлениях (рис.13). Из этих кривых видно, что возбуждения, распространяющиеся вдоль оси четвертого порядка, имеют заметно меньший размах дисперсионной кривой. Это говорит о слабости межслойного взаимодействия в $\text{Ba}_2\text{MnGe}_2\text{O}_7$, что непосредственно подтверждает формирование в этом соединении двумерных магнитных подсистем. Дисперсионные кривые были описаны в модели классических спиновых волн с помощью двух обменных интегралов:

$$E = J_1 \sum_{\langle i, j \rangle} \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j + J_2 \sum_{\langle k, l \rangle} \vec{S}_k \cdot \vec{S}_l,$$

здесь $J_1 = 27.8 \text{ мкЭВ}$ — обменный интеграл внутри слоя, $J_2 = 1.0 \text{ мкЭВ}$ — межслойный обменный интеграл, при суммировании каждая пара спинов учитывается единожды.

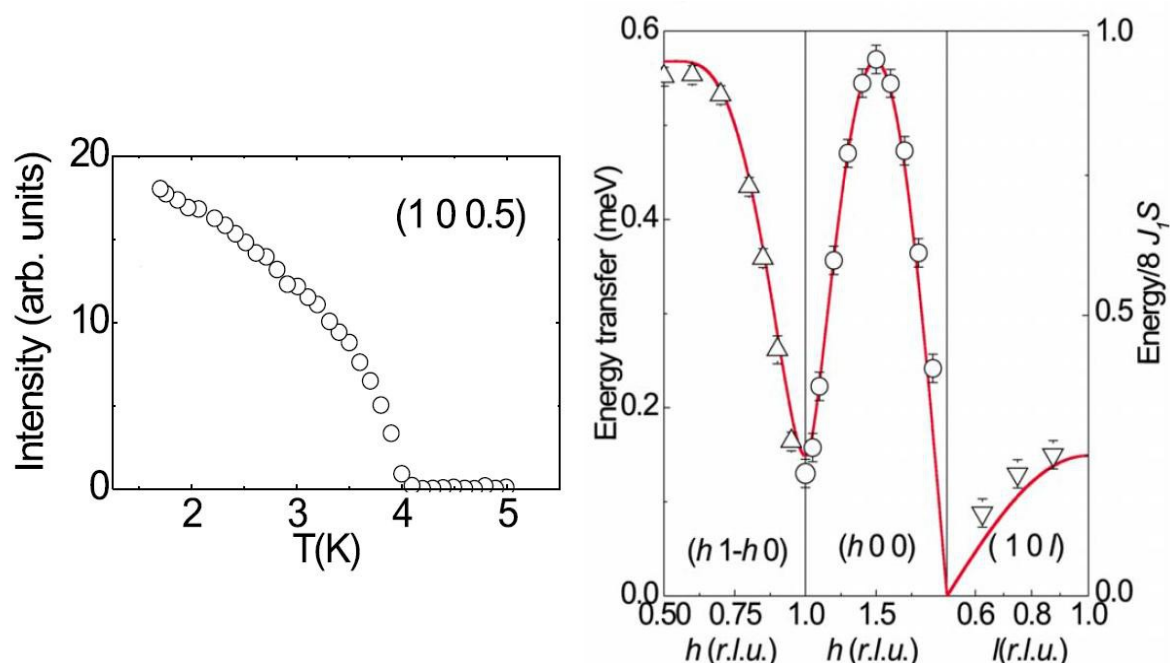


Рисунок 13: (Из статьи [10]) Слева: Температурная зависимость интенсивности магнитного брэгговского пика. Справа: Дисперсионные кривые спиновых возбуждений в $\text{Ba}_2\text{MnGe}_2\text{O}_7$ при $T=1.7$ К. Символы — экспериментальные данные, кривые — моделирование в рамках классической спин-волновой теории.

Отклик $\text{Ba}_2\text{MnGe}_2\text{O}_7$ на высокочастотное электромагнитное поле изучался в работе [12]. В этой работе образец помещался на полосковую линию (рис. 14), через которую пропускалось СВЧ-излучение. В отличие от используемой нами методики с резонатором, используемая в этой работе техника позволяла непрерывно менять частоту СВЧ-излучения. Был обнаружен сигнал антиферромагнитного резонанса, частотно-полевая зависимость для которого показана на рис. 14. Частотно-полевые зависимости АФМР соответствуют антиферромагнетику с анизотропией типа «легкая плоскость», при температуре 1.8 К связанная с анизотропией щель в спектре магнонов равна 26 ГГц. Авторы работы [12] обнаружили, что сигнал резонансного поглощения несколько различается для разных направлений распространения СВЧ-излучения (от порта 1 к порту 2 и наоборот по рис. 14). Этот эффект авторы связывают с мультиферроичностью.

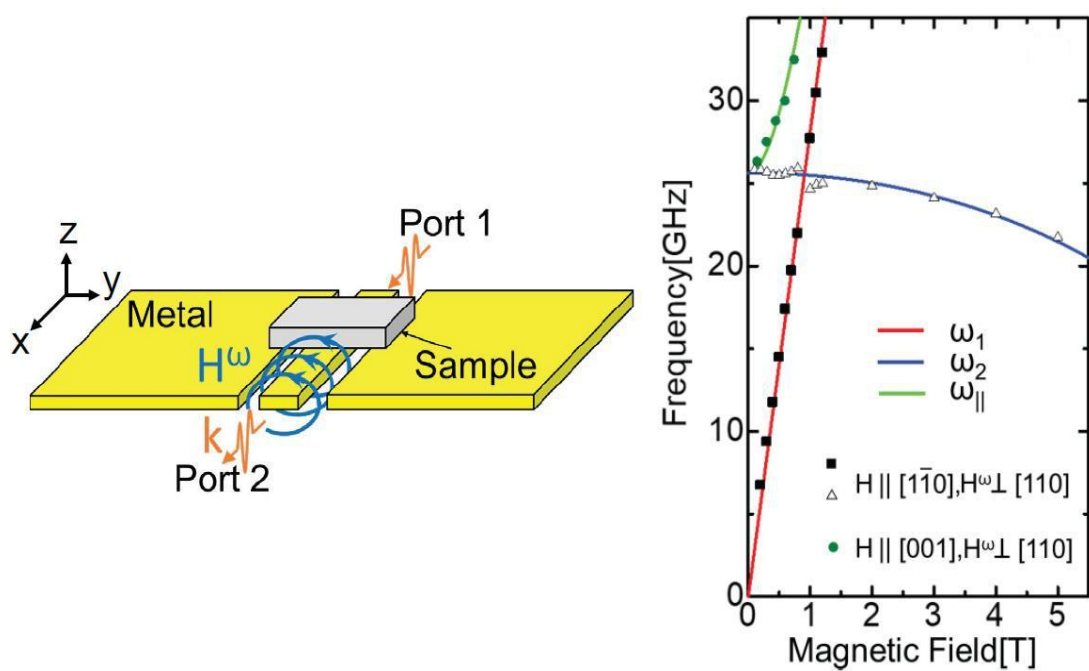


Рисунок 14: (Из статьи [12]) Слева: Схема экспериментальной ячейки. Справа: Экспериментально измеренная частотно-полевая зависимость при $T=1.8$ К. Символы — экспериментальные результаты, кривые — модельный расчет для двухподрешеточного антиферромагнетика с анизотропией типа «легкая плоскость».

Экспериментальные результаты

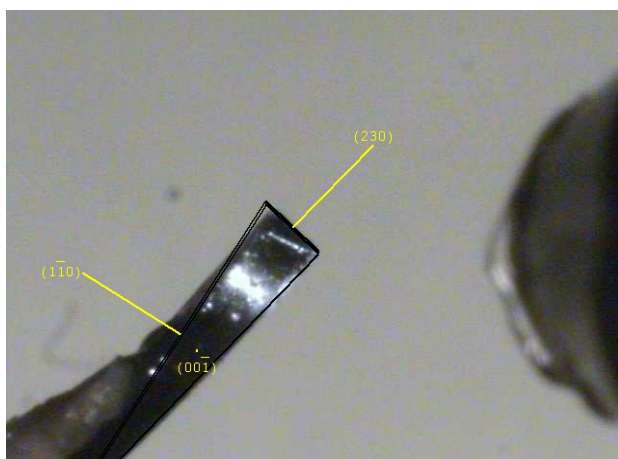


Рисунок 15: Фотография образца $\text{Ba}_2\text{MnGe}_2\text{O}_7$, сделанная на камеру дифрактометра BRUKER APEX I I, черные линии — построенные по результатам анализа дифрактограмм кристаллографические плоскости, желтые линии — нормали к кристаллографическим плоскостям.

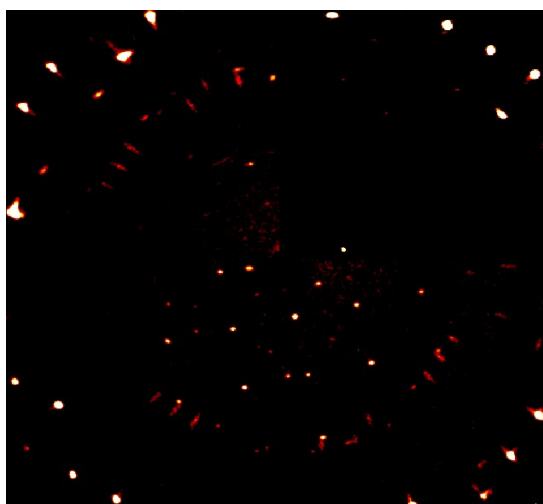


Рисунок 16: Картина брэгговских пиков в $\text{Ba}_2\text{MnGe}_2\text{O}_7$, полученная при падении рентгеновского пучка вдоль оси четвертого порядка.

Образцы $\text{Ba}_2\text{MnGe}_2\text{O}_7$ были выращены в лаборатории проф. Т. Масуды в Университете Июкогамы, эти образцы принадлежат к той же серии, что и образцы, изученные в работе [10]. Предоставленные нам образцы были частично сориентированы (было известно направление оси четвертого порядка). Для уточнения ориентации остальных осей перед экспериментами образец был проверен методом рентгеновской дифракции на дифрактометре BRUKER APEX II. Этот дифрактометр позволяет идентифицировать грани кристалла, и после нескольких попыток нам удалось вырезать фрагмент кристалла с четко определенными направлениями (001) и (100). Фотография такого образца показана на рис. 15, пример картины рентгеновской дифракции показан на рис. 16.

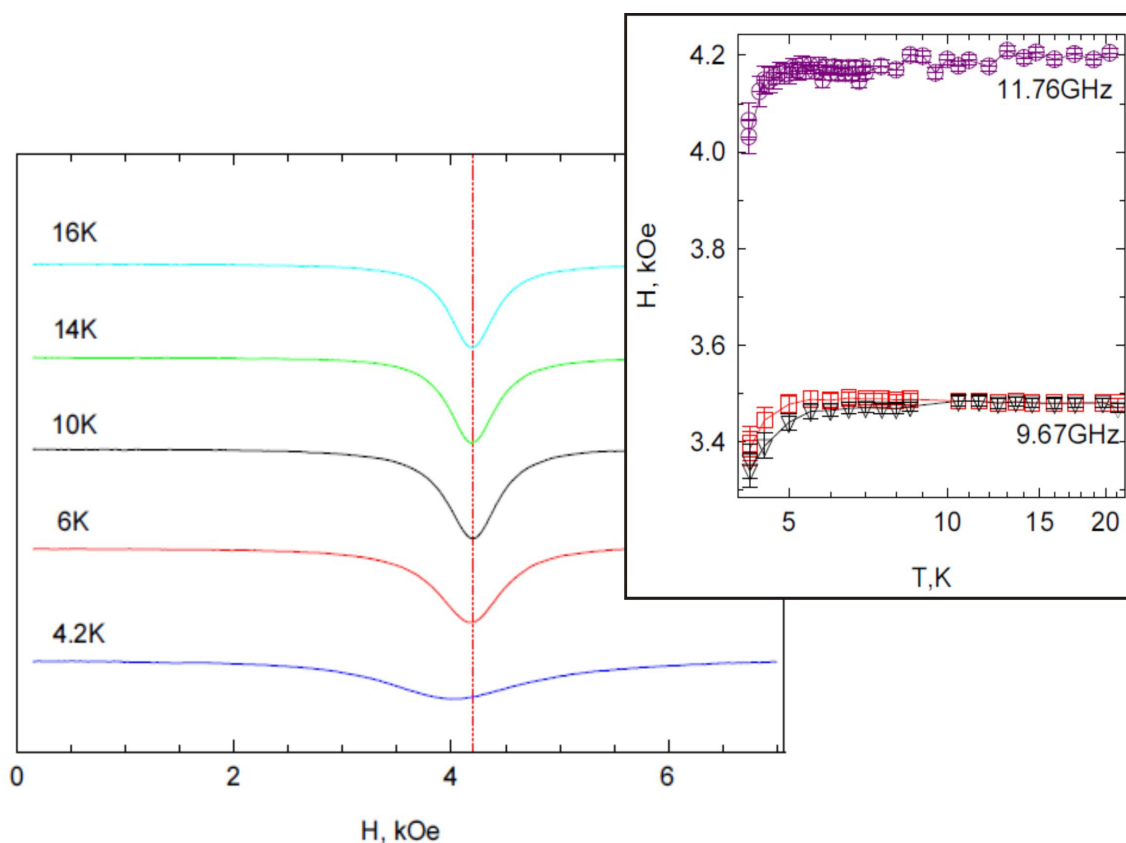


Рисунок 17: Главная панель — примеры записи линий магнитного резонанса при температурах 4.2-16K на частоте 11.76ГГц при поле, приложенном вдоль оси S_4 . Вертикальная пунктирная линия отмечает поле, соответствующее $g=2.0$. Вставка — зависимость резонансного поля от температуры на частотах 11.76 и 9.67 ГГц. Для частоты 9.67 ГГц представленные данные получены подгонкой линий магнитного резонанса с учетом искажений, связанных с изменением действительной части восприимчивости (треугольники) и без учета этих искажений (квадраты).

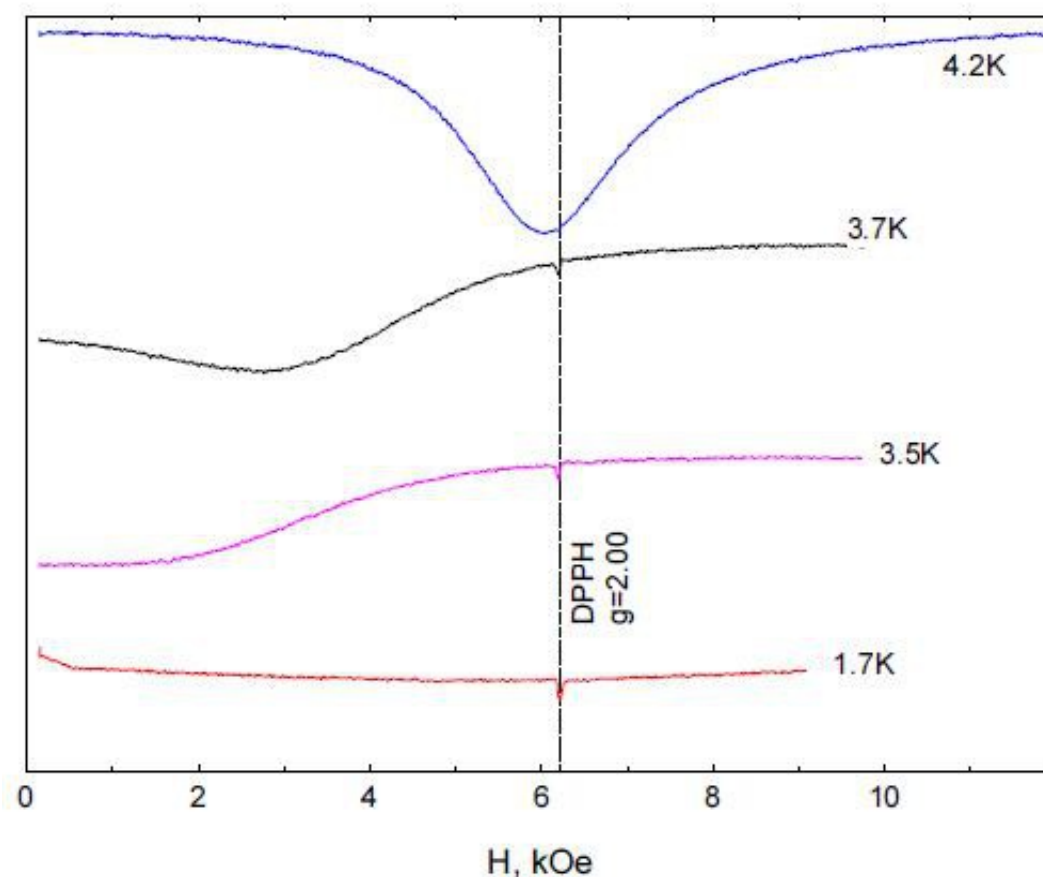


Рисунок 18 Примеры записи линий магнитного резонанса при температурах 1.7-4.2 K на частоте 17.5 ГГц при поле, приложенном вдоль оси S_4 . Вертикальная пунктирная линия отмечает поле, соответствующее $g=2.0$. Узкая линия поглощения с $g=2.0$ — метка ДФПГ.

Примеры записи линии магнитного резонанса при поле, приложенном вдоль оси четвертого порядка, показаны на рис. 17, 18. При высоких температурах наблюдается одна линия резонансного поглощения лоренцовой формы, которая расположена в поле, соответствующем $g=2.0$. Такое значение g -фактора типично для ионов Mn^{2+} . При приближении к точке Нееля (согласно данным нейтронной дифракции [10] $T_N=4.0$ K) при температурах ниже 5K происходит небольшое смещение линии магнитного резонанса в сторону малых полей и уширение линии магнитного резонанса. При переходе через точку Нееля происходит резкое уменьшение резонансного поля, и при низких температурах сигнал магнитного резонанса в этой ориентации магнитного поля пропадает.

На рис. 19 показаны примеры записи линии магнитного резонанса при поле, приложенном перпендикулярно оси четвертого порядка. При высоких температурах наблюдается линия резонансного поглощения. При температурах ниже 6 К происходит небольшое смещение резонансной линии влево. На рис. 20 слева изображена зависимость резонансного поля от температуры. Видно, что резонансное поле начинает уменьшаться при температурах ниже 6К и продолжает уменьшение ниже температуры Нееля. На рис. 20 справа показана зависимость ширины линии магнитного резонанса от температуры. Максимум ширины линии магнитного резонанса достигается при температуре Нееля.

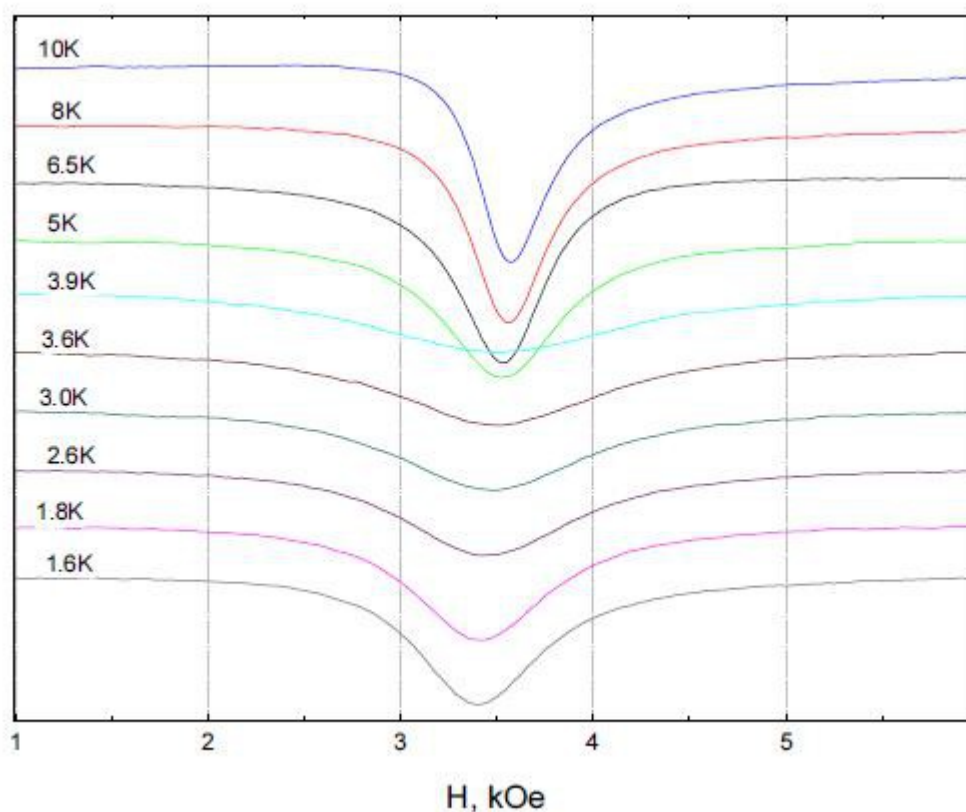


Рисунок 19: Примеры записи линий магнитного резонанса при температурах 1.6-10 K на частоте 9.68 ГГц при поле, приложенном перпендикулярно оси S_4 .

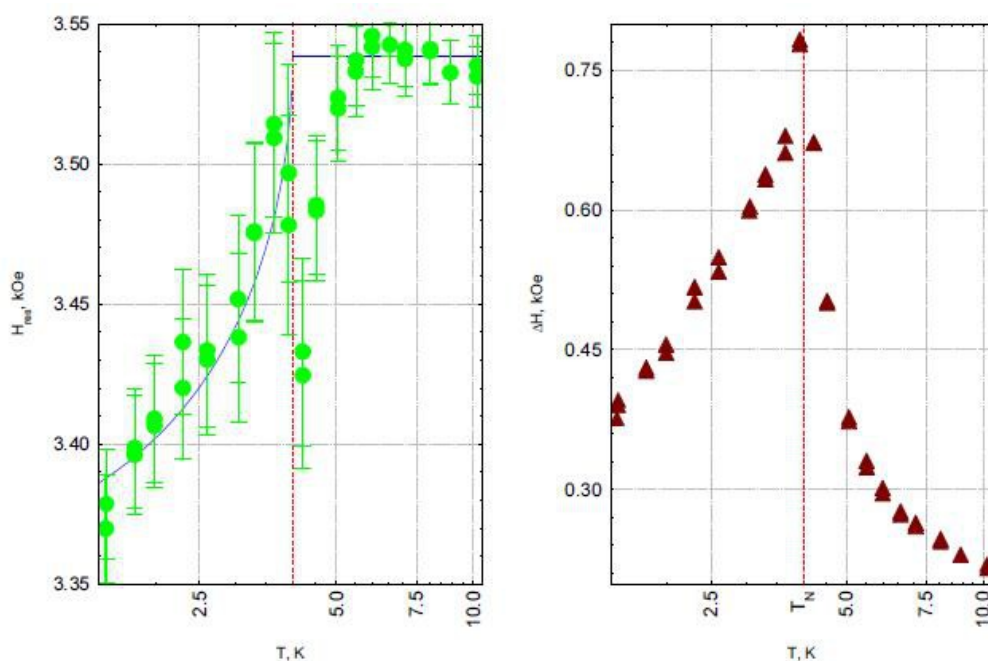


Рисунок 20: Результаты экспериментов на частоте 9.68 ГГц при поле, приложенном перпендикулярно оси S_4 . Слева - зависимость резонансного поля от температуры. Справа - зависимость ширины линии от температуры. Вертикальным пунктиром обозначена температура Нееля 4 K.

Такая эволюция линии магнитного резонанса ниже температуры Нееля: быстрое уменьшение резонансного поля при $H \parallel S_4$ и почти постоянное резонансное поле при $H \perp S_4$ приблизительно соответствует антиферромагнетику типа «легкая плоскость». Для такого антиферромагнетика частота АФМР определяется уравнениями [6]:

- $f(H) = \sqrt{\Delta^2 + (\gamma H)^2}$ для поля, параллельного главной оси анизотропии
- $f(H) = \gamma H$ и $f(H) = \Delta \sqrt{1 - (H/H_{sat})^2}$ для поля, перпендикулярного главной оси анизотропии (вторая мода АФМР смягчается в поле насыщения H_{sat}).

Чтобы проверить применимость этих выражений к нашему соединению, мы измерили поля антиферромагнитного резонанса на разных частотах при $H \parallel S_4$ и $H \perp S_4$ (рис. 21) и построили частотно-полевые зависимости, представленные на рис. 22, 23. Для $H \parallel S_4$ (рис. 22) наблюдается ожидаемая щелевая зависимость. Для $H \perp S_4$ наблюдается небольшое смещение линии магнитного резонанса ниже температуры Нееля (см. рис. 20), которое отсутствует в обычном антиферромагнетике типа «легкая плоскость». Это смещение, однако, очень мало, оно составляет на частотах выше 9 ГГц при температуре 1.7 К всего несколько процентов, и зависимость $f(H)$ в этой ориентации (рис. 23) будет практически неотличима от прямой. Также при $H \perp S_4$ наблюдался сигнал магнитного резонанса, соответствующий моде АФМР, смягчающейся в поле насыщения (рис. 21), значения резонансного поля для этой моды также отмечены на рис. 23. Экспериментальные данные хорошо описываются моделью антиферромагнетика типа «легкая плоскость» с щелью $\Delta = 24$ ГГц. Причины небольшого изменения резонансного поля при $H \perp S_4$ будут

обсуждаться далее.

Показанное на рис. 18 смещение линии магнитного резонанса ниже температуры Нееля в область малых полей объясняется ростом щели Δ по мере понижения температуры: $(\gamma H)^2 = f^2 - \Delta^2$. При $f = \Delta(T)$ поглощение будет наблюдаться в нулевом поле. Это позволяет определить зависимость щели от температуры методом «температурного резонанса»: фиксируя зависимость мощности, поглощенной образцом, от температуры. На рис. 24 построена зависимость мощности, прошедшей через резонатор с образцом в нулевом поле, от температуры на различных частотах. В тот момент, когда мощность минимальна, частота эксперимента совпадает с размером щели, что позволило нам построить зависимость размера щели от температуры в нулевом поле (рис. 25). Экспериментальные данные ложатся на эмпирическую кривую $\Delta \propto (T_N - T)^{0.27}$.

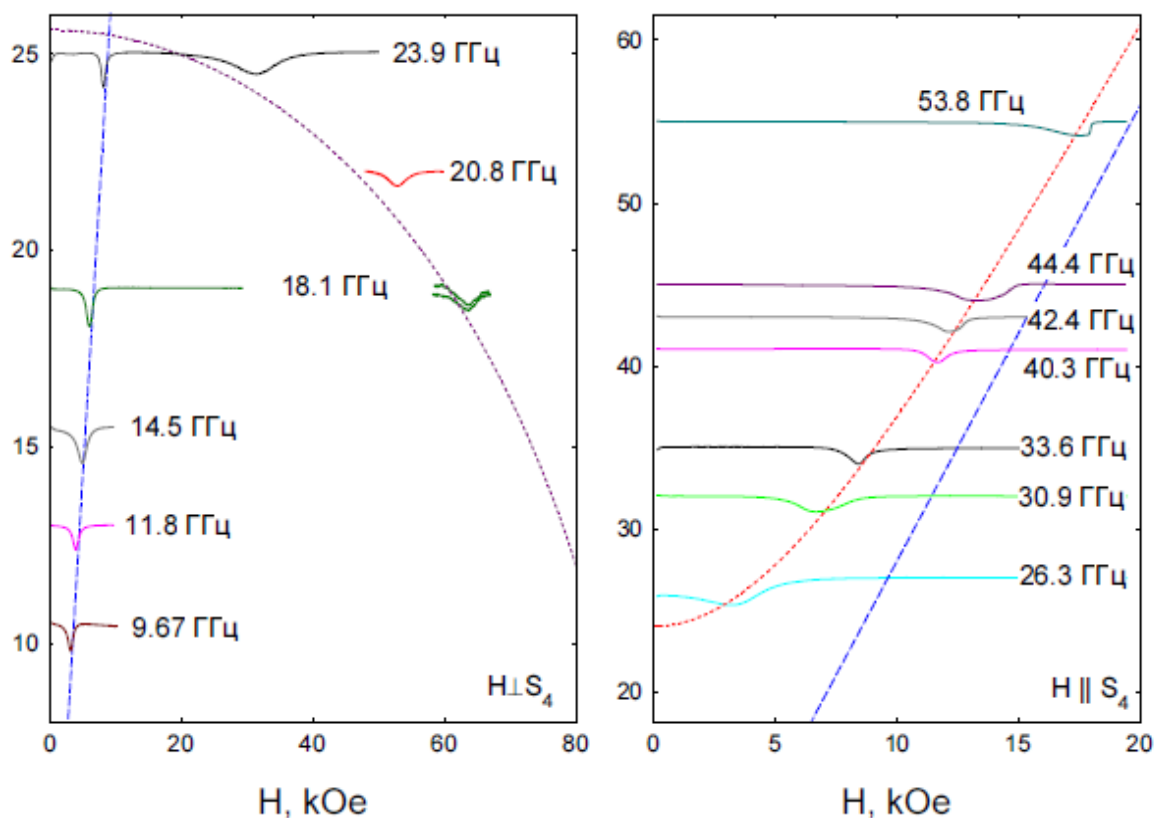


Рисунок 21: Пример записи линии АФМР на различных частотах. Смещение линий по вертикальной оси равно частоте эксперимента. Пунктирные линии примерно показывают частотно-полевые зависимости для парамагнитного (синий) и антиферромагнитного резонансов.

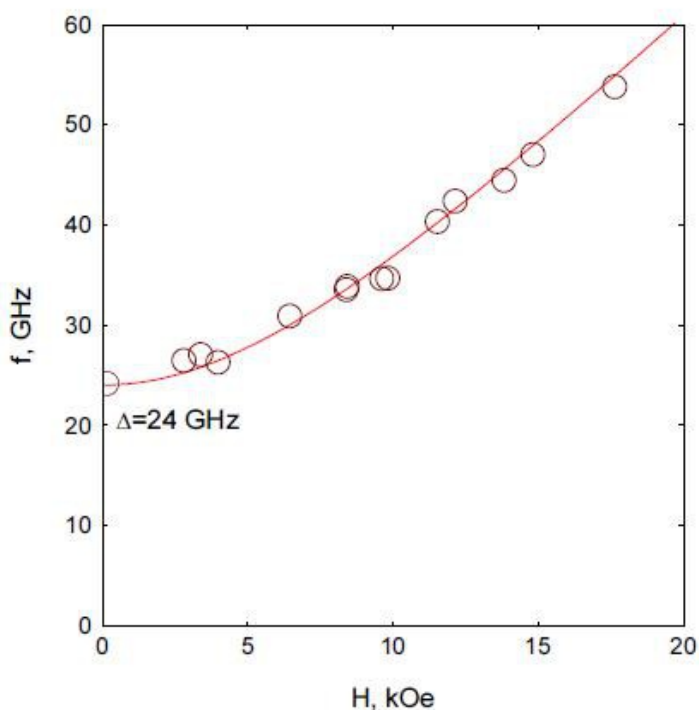


Рисунок 22: Символы - экспериментальные данные зависимости частоты АФМР от поля при температуре 1.7 К при поле, приложенном вдоль оси S_4 . Красная линия - подгоночная кривая.

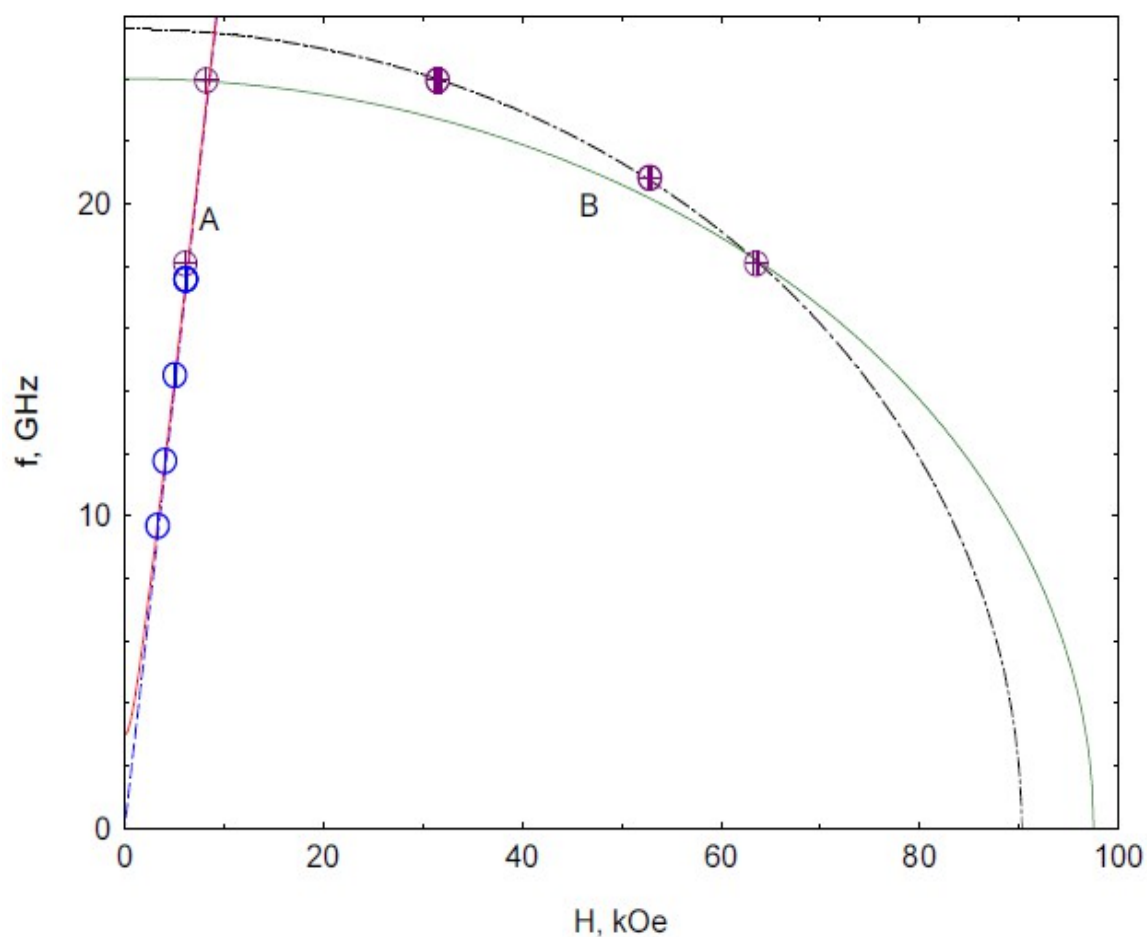


Рисунок 23: Зависимость частоты АФМР от поля, приложенного вдоль оси $[110]$, при температуре 1.7 К. Символы — экспериментальные данные. Кривые — модельный расчет. Для моды А: пунктир — без учета сверхтонкого взаимодействия, сплошная линия — для сверхтонкой щели, равной 3 ГГц. Для моды В: штрих-пунктир — подгонка со свободными параметрами ($\Delta=25.6$ ГГц, $H_{sat}=90.5$ кЭ), сплошная линия — для зафиксированных величины щели 24 ГГц и поля насыщения 97,5 кЭ.

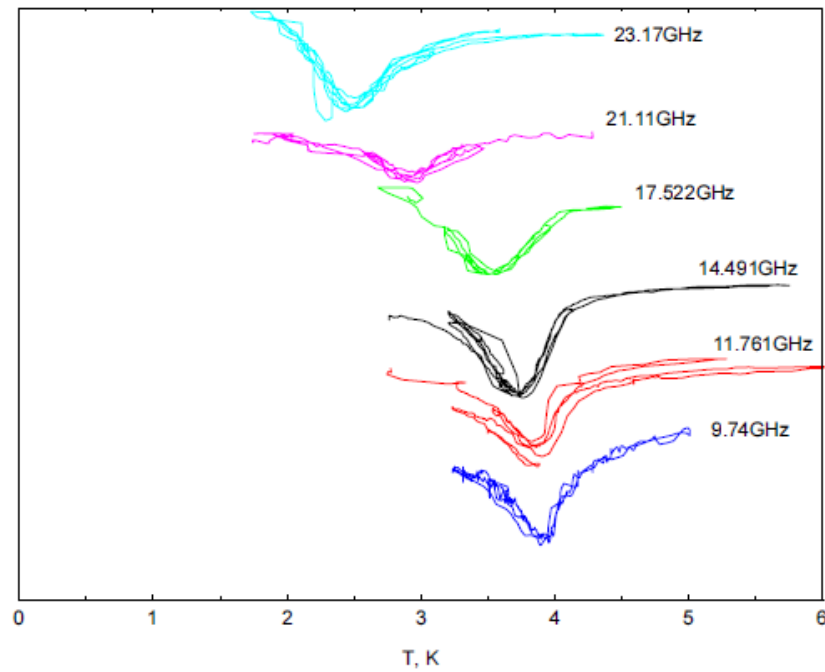


Рисунок 24: «Температурный резонанс»: зависимость мощности, прошедшей через резонатор с образцом в нулевом поле, от температуры на различных частотах. Высокочастотное магнитное поле перпендикулярно оси четвертого порядка.

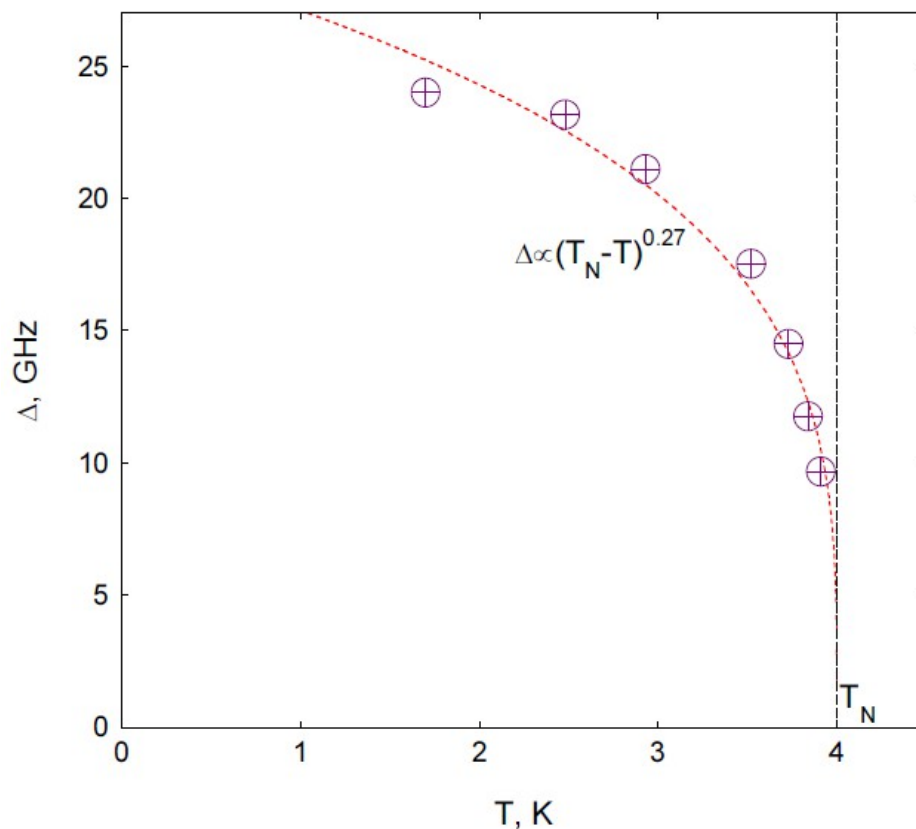


Рисунок 25: Зависимости размера щели от температуры в нулевом поле, определенная из опытов по «температурному резонансу». Символы — экспериментальные данные. Красная пунктирная линия — эмпирическая подгоночная кривая. Вертикальная пунктирная линия — температура Нееля.

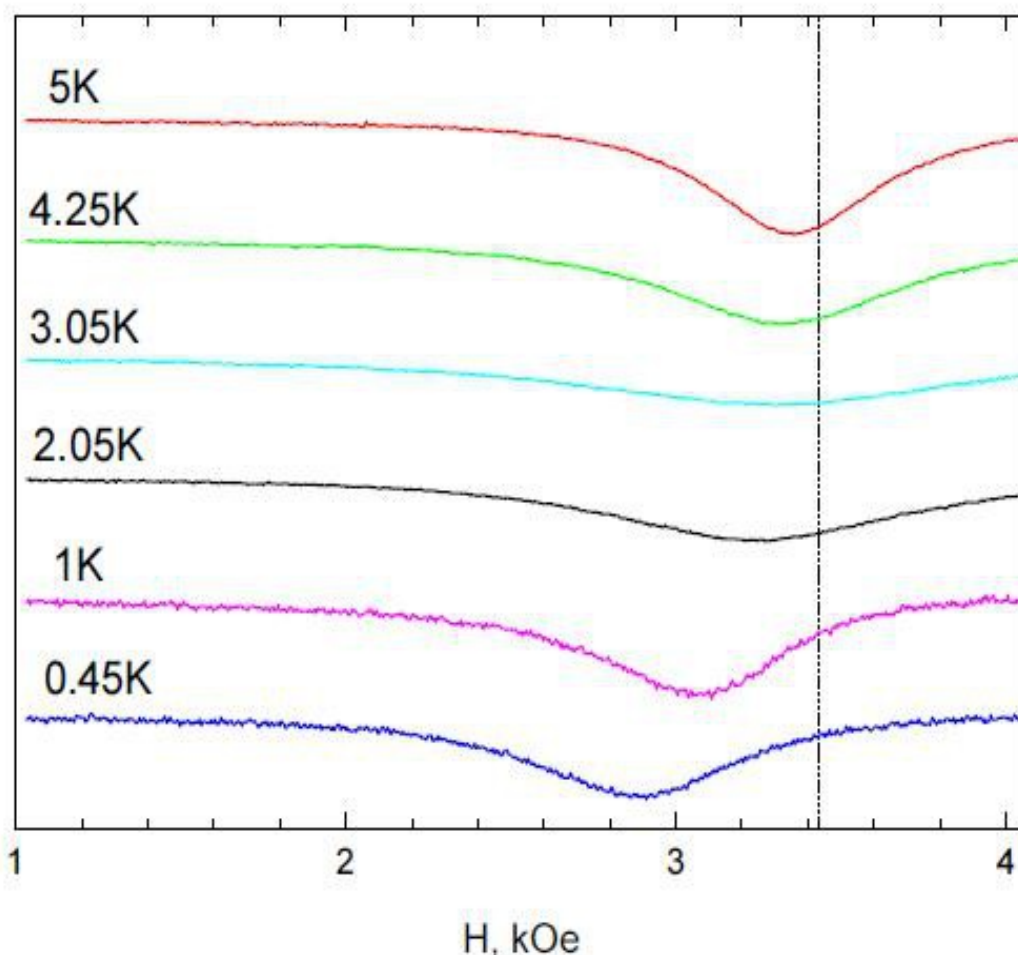


Рисунок 26: Пример записи линий магнитного резонанса на частоте 9.61 ГГц при разных температурах в спектрометре с откачкой паров гелия-3, $H \parallel [110]$. Вертикальная пунктирная линия отмечает поле, соответствующее $g=2.0$.

Для уточнения природы наблюдаемых отличий от идеального антиферромагнетика типа «легкая плоскость» были проведены дополнительные эксперименты при поле, направленном вдоль оси $[100]$, $[110]$, а также при поле, направленном вдоль оси $[110]$, при температурах ниже 1 К. Последний эксперимент проводился в криостате с откачкой паров гелия-3. Пример записи линий магнитного резонанса на частоте 9.61 ГГц при разных температурах при поле, приложенном вдоль оси

$H \parallel [110]$, показан на рис. 26. Видно, что линия магнитного резонанса при температурах близких к температуре Нееля начинает смещаться в сторону малых полей и продолжает смещаться вплоть до самой низкой температуры. Зависимость резонансного поля от температуры показана

на рис. 27. Видно, что не наблюдается заметного различия результатов для $H \parallel [100]$ и $H \parallel [110]$, а также не наблюдается приближения поля резонансного поглощения к какому-то предельному значению вплоть до температуры 0.45 К, которая почти в десять раз меньше, чем температура Нееля. Сама температура Нееля отмечена четким максимумом ширины линии. На рис. 28 представлена частотно-полевая зависимость АФМР при температуре 0.45-0.5 К при поле, приложенном вдоль оси [110]. При этой температуре наблюдаемые поля резонансного поглощения заметно отличаются от предсказания для модели антиферромагнетика типа «легкая плоскость»: $f(H) = \gamma H$. Экспериментальные данные могут быть хорошо описаны эмпирической зависимостью $f = \sqrt{\delta^2 + (\gamma H)^2}$. Из подгонки мы можем определить размер щели δ в спектре, равный 5.2 ГГц при температуре 0.45 К. При температуре 1.7 К наблюдаемое смещение поля резонансного поглощения на частоте 9.6 ГГц соответствует величине щели 3 ГГц.

При температуре 0.45 К на частоте 11.7 ГГц при поле, приложенном вдоль оси [110] был проведен эксперимент с разверткой по полю до поля большего, чем поле насыщения, равное примерно 10 Тл [12]. Дополнительных сигналов поглощения в больших полях (в том числе сигнала АФМР от смягчающейся в поле насыщения моды магнитного резонанса) в этом эксперименте не наблюдалось.

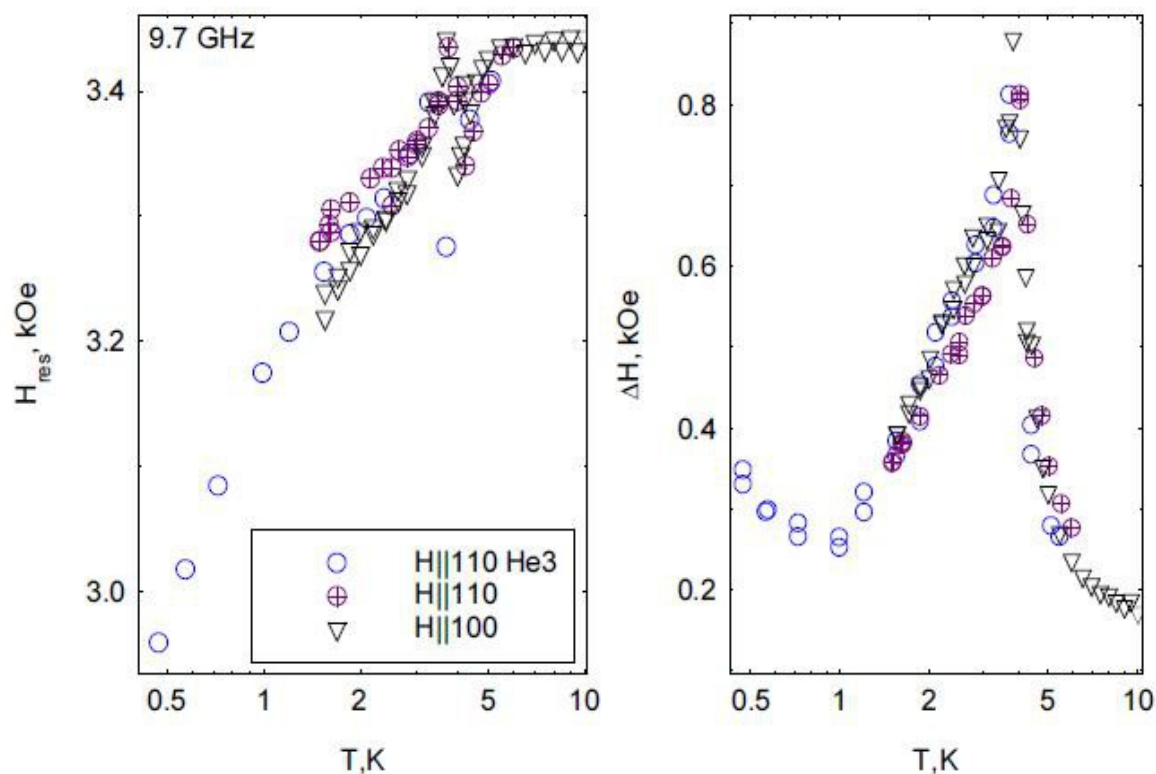


Рисунок 27: Результаты эксперимента на частоте 9.7 ГГц при поле, приложенном вдоль оси $[100]$ (треугольники), $[110]$ (перечеркнутые круги), а также вдоль оси $[110]$ (круги) в криостате с откачкой паров гелия-3. Слева - зависимость поля от температуры. Справа - зависимость ширины линии от температуры.

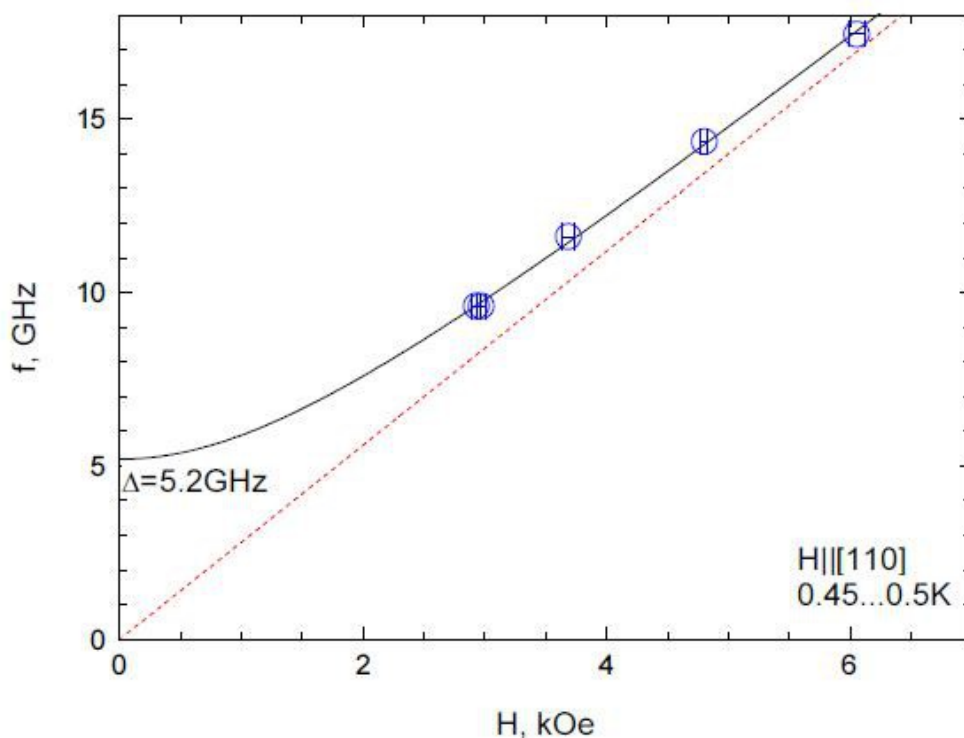


Рисунок 28: Зависимость частоты АФМР от поля при температуре 0.45-0.5 К при поле, приложенном вдоль оси $[110]$. Символы — экспериментальные данные. Сплошная линия — подгоночная кривая. Пунктирная линия — частота парамагнитного резонанса.

Обсуждение

Соответствие $Ba_2MnGe_2O_7$ модели антиферромагнетика типа «легкая плоскость»

Данные нейтронной дифракции Т.Масуды [10] указывают на то, что ниже температуры Нееля магнитные моменты атомов марганца направлены перпендикулярно главной оси анизотропии. Сигнал АФМР был обнаружен в работе [12], его частотно-полевая зависимость была описана в модели антиферромагнетика типа «легкая плоскость» с щелью $\Delta = 26$ ГГц при температуре 1.8 К.

В наших экспериментах при температуре 1.7 К частотно-полевые зависимости АФМР близки к предсказанию модели антиферромагнетика типа «легкая плоскость». При этом величина щели оказывается чуть меньше: 24 ГГц (рис. 22). Это различие, вероятно, связано с тем, что используются разные образцы.

Однако, при поле, приложенном перпендикулярно главной оси анизотропии, происходит небольшое смещение резонансного поля, которое становится более выраженным при понижении температуры. При температуре 0.45-0.5 К это смещение соответствует возникновению второй (маленькой) щели в спектре АФМР, равной примерно 5 ГГц (рис. 28). Известно, что связанная с анизотропией щель в спектре АФМР пропорциональна параметру порядка, поэтому щель растет ниже точки Нееля и обычно начинает приближаться к насыщению при $T \simeq T_N/2$. Мы наблюдали такое поведение для «большой» щели в спектре (рис. 25). При этом «маленькая» щель не выходит на насыщение даже при $T \approx T_N/8$: резонансное поле при $H \parallel [110]$ продолжает уменьшаться при охлаждении до 0.5 К (рис. 27). Возникновение такой щели не описывается в модели антиферромагнетика типа «легкая плоскость», и установление ее природы требует дополнительного анализа.

Учет слабой анизотропии в плоскости

Одним из возможных вариантов, объясняющих возникновение щели в образце $\text{Ba}_2\text{MnGe}_2\text{O}_7$ при поле, приложенном перпендикулярно оси четвертого порядка, является наличие дополнительной слабой анизотропии в плоскости. На наличие анизотропии в плоскости указывают опыты по изучению электрической поляризации в $\text{Ba}_2\text{MnGe}_2\text{O}_7$ [9]: было обнаружено, что поле, приложенное вдоль оси [110], эффективно управляет электрической поляризацией, а поле, приложенное вдоль оси [100], не оказывает никакого влияния на электрическую поляризацию образца (рис. 11). Также наблюдалась небольшая особенность в поле 1.2 кЭ на кривых намагничивания при $H \parallel [110]$ при 0.5 К [10], которую авторы работы [10] интерпретировали как возможный спин-флоп переход, связанный с анизотропией в плоскости.

Для нахождения собственных частот колебаний антиферромагнитного параметра порядка $\vec{l}$ с учетом возможной анизотропии в плоскости использовался подход, описанный А.Ф.Андреевым и В.И.Марченко в [7]. Энергия анизотропии при этом записывается следующим образом:

$$U = -\frac{b}{2}l_z^2 + \alpha l_x^2 l_y^2, b < 0, \alpha \geq 0.$$

Первое слагаемое описывает анизотропию типа «легкая плоскость». Знак константы b был выбран таким образом, что параметру порядка невыгодно быть направленным вдоль оси z . Так как в кристалле есть ось четвертого порядка, выражение для энергии анизотропии не содержит квадратичные слагаемые l_x^2 , l_y^2 . Второе слагаемое описывает наличие допускаемой осью четвертого порядка дополнительной слабой анизотропии в плоскости. Знак константы α зафиксирован для определенности, при $\alpha > 0$ параметру порядка выгодно быть

направленным вдоль осей x или y и невыгодно быть направленным по диагонали в этой плоскости. Поиск частот собственных колебаний осуществляется как описано выше в разделе «Магнитный резонанс в антиферромагнетике».

Частоты собственных колебаний вычислялись для ориентаций магнитного поля $H \parallel [100]$, $H \parallel [110]$ и $H \parallel [001]$. Если для определенности считать, что параметр порядка направлен вдоль оси y в нулевом поле, то при $H \parallel [100]$ и $H \parallel [001]$ его ориентация в поле не меняется. В случае $H \parallel [110]$ возникает конкуренция энергии анизотропии, стремящейся удерживать $\vec{l} \parallel y$, и зеемановской энергии

$$U_H = \frac{\chi_{\perp}}{2} (\vec{l} \cdot \vec{H})^2, \quad \text{стремящейся развернуть параметр порядка}$$

перпендикулярно к полю. В результате происходит плавный поворот параметра порядка¹, заканчивающийся в поле $H_c = \sqrt{\frac{2\alpha}{\chi_{\perp}}}$. Нами были получены частоты АФМР для поля, приложенного вдоль оси $[100]$, $[110]$ и $[001]$, приведенные в таблице 3. Для простоты при $H \parallel [110]$ аналитические вычисления проводились для $H > H_c$ (полученные выражения совпадают с результатами, приведенными в книге [5]). Также частоты АФМР были вычислены численно [14]. Модельные частотно-полевые зависимости показаны на рис. 29.

Учет анизотропии четвертого порядка приводит к тому, что при поле, приложенном перпендикулярно главной оси анизотропии, частота АФМР отличается от γH . Однако, при поле $H \parallel [100]$ и $H \parallel [110]$ частота АФМР отклоняется от частоты парамагнитного резонанса в разные стороны. Из эксперимента, данные которого показаны на рис. 27, видно, что при понижении температуры смещение резонансного поля

1 Угол ϕ отклонения параметра порядка от оси y при $H < H_c$ задается выражением $\sin 2\phi = \frac{\chi_{\perp} H^2}{2\alpha}$.

происходит в одну сторону для этих ориентаций поля. Таким образом, модель, учитывающая анизотропию в плоскости, не соответствует имеющимся экспериментальным данным.

Таблица 3 Частоты колебаний антиферромагнитного параметра порядка для поля, приложенного вдоль оси $[100]$, $[110]$ и $[001]$.

$H \parallel [100]$	$H \parallel [110]$, $H > H_c$	$H \parallel [001]$
$\omega_1 = \sqrt{\frac{-b\gamma^2}{\chi_\perp}}$	$\omega_1 = \sqrt{\frac{-b\gamma^2}{\chi_\perp}}$	$\omega_1 = \sqrt{\gamma^2 H^2 - \frac{b\gamma^2}{\chi_\perp}}$
$\omega_2 = \sqrt{\gamma^2 H^2 + \frac{2\alpha\gamma^2}{\chi_\perp}}$	$\omega_2 = \sqrt{\gamma^2 H^2 - \frac{2\alpha\gamma^2}{\chi_\perp}}$	$\omega_2 = \sqrt{\frac{2\alpha\gamma^2}{\chi_\perp}}$

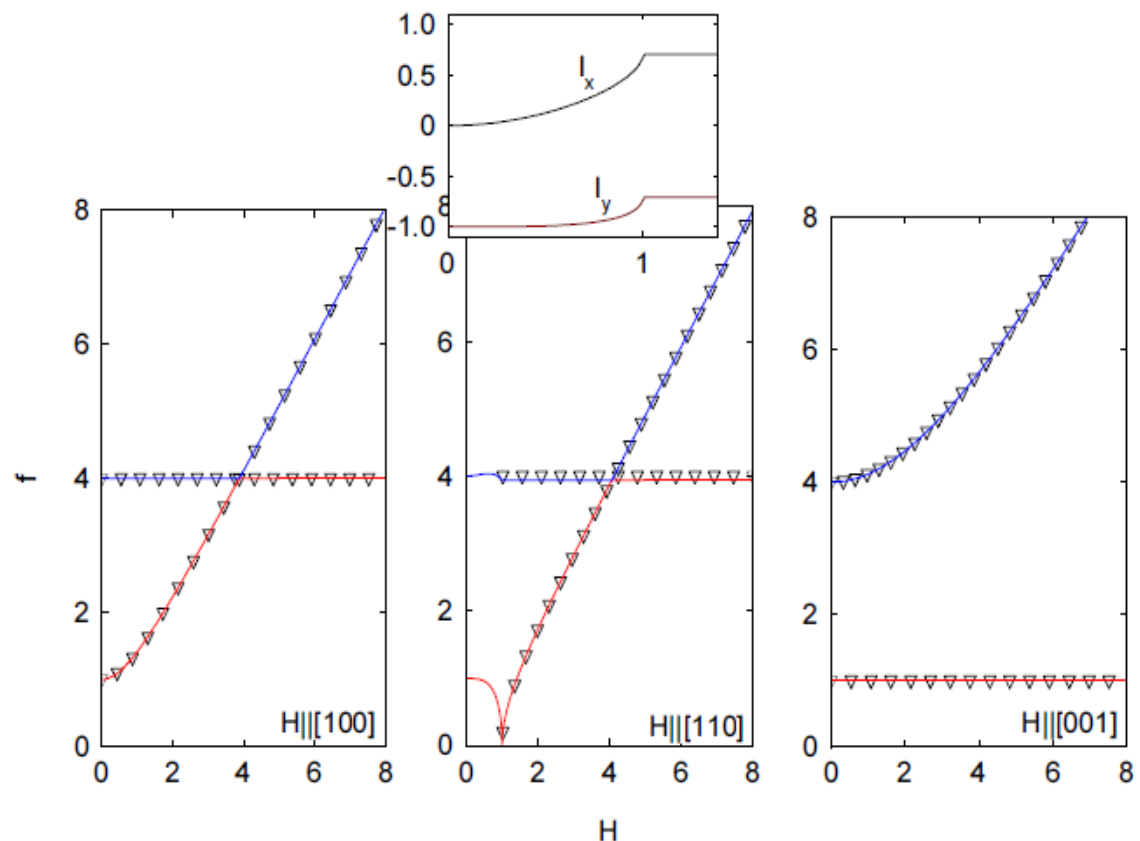


Рисунок 29: Модельные частотно-полевые зависимости АФМР в антиферромагнетике типа "легкая плоскость" с учетом анизотропии четвертого порядка. Линии - численный расчет. Символы - аналитическое решение. На вставке к средней панели показана зависимость компонент параметра порядка от магнитного поля для $H \parallel [110]$. Параметры модели: $\gamma=1$, $\chi_\perp=1$, $b=-16$, $\alpha=1/2$.

Динамический сдвиг частоты АФМР

Другим возможным вариантом, объясняющим возникновение щели в образце $\text{Ba}_2\text{MnGe}_2\text{O}_7$ при поле, приложенном перпендикулярно оси четвертого порядка, является наличие сверхтонкого взаимодействия между электронной и ядерной подсистемами [15].

Ядра марганца-55 (это единственный стабильный изотоп марганца и его природное содержание равно 100%) имеют ядерный спин $5/2$, поэтому в магнитном поле возможен ядерный магнитный резонанс (ЯМР) на ядрах марганца. В упорядоченной фазе антиферромагнетика помимо внешнего поля на ядра марганца действует сильное эффективное поле из-за сверхтонкого взаимодействия. Гамильтониан сверхтонкого взаимодействия для одного атома записывается следующим образом:

$$\hat{H}_{\text{HF}} = \tilde{A} \hat{\vec{S}} \cdot \hat{\vec{I}} \quad ,$$

где $\tilde{A}$ – это константа сверхтонкого взаимодействия, $\hat{\vec{S}}$ – оператор электронного спина, $\hat{\vec{I}}$ – оператор ядерного спина. В классическом приближении, заменяя операторы их средними значениями, энергию сверхтонкого взаимодействия для атома марганца можно записать в виде:

$$E = \frac{\tilde{A}}{\hbar^2 \gamma \gamma_n} (\vec{M}_e \cdot \vec{m}_n) \quad ,$$

здесь $\vec{M}_e$ – электронный магнитный момент атома, $\vec{m}_n$ – ядерный магнитный момент атома, γ , γ_n – гиромагнитные отношения для электронной и ядерной подсистем. В упорядоченной фазе при температурах $T < T_N/2$ электронный магнитный момент атома близок к насыщению, для $\text{Ba}_2\text{MnGe}_2\text{O}_7$ его величина равна $\mu = 4.66 \mu_B$ [10]. Сверхтонкое взаимодействие оказывается эквивалентным эффективному

полю на ядре $\vec{H} = -\frac{dE}{d\vec{m}_n} = -\frac{\tilde{A}}{\hbar^2 \gamma \gamma_n} \vec{M}_e$. Из-за большой величины константы сверхтонкого взаимодействия для марганца это эффективное поле оказывается равным 50-60 Тл, поэтому частота ЯМР в нулевом поле оказалась бы равной примерно 500-600 МГц и очень слабо зависела бы от внешнего поля (гиромагнитное отношение для ядра марганца 1.06 МГц/кЭ).

Напомним, что для антиферромагнетика типа «легкая плоскость» при поле, приложенном в «легкой плоскости», одна из частот колебаний электронной подсистемы равна $f = \gamma H$. Поэтому в некотором поле произойдет пересечение частотно-полевых зависимостей ЯМР и АФМР. Сверхтонкое взаимодействие приводит к возникновению связи между колебаниями электронной и ядерной подсистем, из-за чего возникает «расталкивание» мод колебаний, называемое также динамическим сдвигом частоты (рис. 30). Этот эффект наблюдался экспериментально для антиферромагнитного резонанса в различных антиферромагнетиках с Mn: CsMnF₃ [16], RbMnF₃ [17], MnCO₃ [18], [19], KMnF₃ [20], CsMnI₃ [21], CsMnBr₃ [22] и для ЯМР в таких антиферромагнетиках [23].

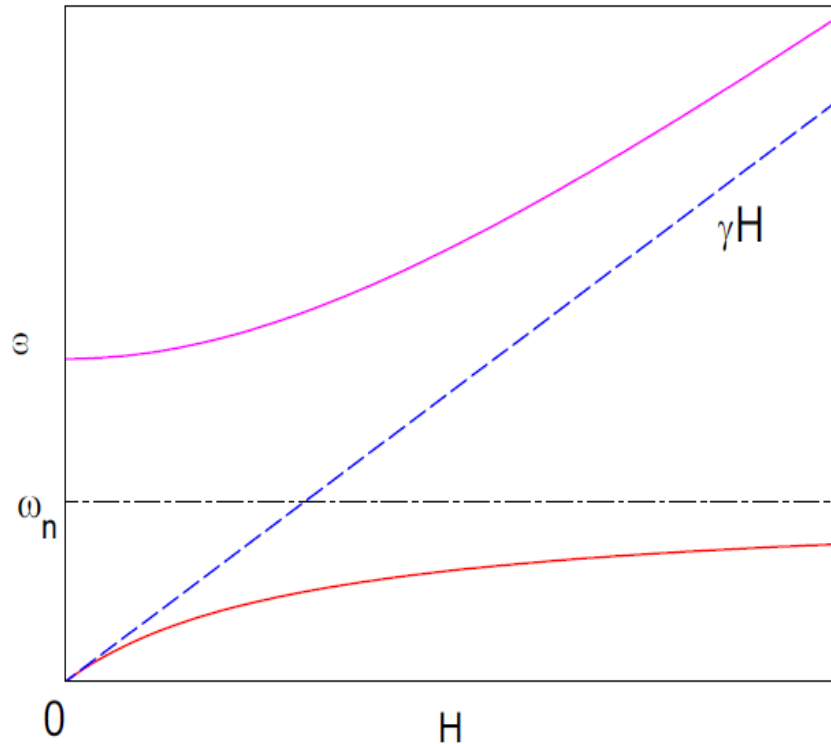


Рисунок 30: Схема возникновения динамического сдвига частоты. Штрих-пунктирная линия — частота ЯМР, пунктирная линия — частота АФМР без учета связи колебаний электронной и ядерной подсистем. Сплошные линии — связанные моды колебаний.

Мы будем описывать динамический сдвиг частоты в $\text{Ba}_2\text{MnGe}_2\text{O}_7$, используя для описания колебаний электронных спинов подход А.Ф. Андреева и В.И.Марченко [7], в работах [21] и [24] он использовался для описания аналогичного эффекта в неколлинеарных антиферромагнетиках.

Напомним, что плотность лагранжиана для антиферромагнетика типа «легкая плоскость» записывается в следующем виде:

$$L_0 = \frac{\chi_{\perp}}{2\gamma^2} (\dot{\vec{l}} + \gamma[\vec{l} \times \vec{H}])^2 + \frac{b}{2} l_z^2, \text{ где } b < 0.$$

Для учета сверхтонкого взаимодействия, следуя работе [24], добавим к лагранжиану следующие слагаемые:

$$L = L_0 + A \vec{M}_1 \vec{m}_1 + A \vec{M}_2 \vec{m}_2 = L_0 + A \mu \vec{l} (\vec{m}_1 - \vec{m}_2),$$

здесь A — перенормированная константа сверхтонкого

взаимодействия, $\vec{M}_{1,2}$ - намагниченность *атома* в первой и второй подрешетках, а $\vec{m}_{1,2}$ - ядерная намагниченность соответствующего атома. Намагниченность атома может быть выражена через параметр порядка $\vec{l}$: $|M_1|=|M_2|=\mu$, $\vec{M}_1=\mu\vec{l}$, $\vec{M}_2=-\mu\vec{l}$, где $\mu=4.66\mu_B$ [10]. Для определенности положим $A>0$, тогда в равновесии $\vec{m}_i \uparrow \vec{M}_i$. Перенормированная константа сверхтонкого взаимодействия может быть выражена через константу взаимодействия для одного атома $A=\frac{\tilde{A}\rho}{\hbar^2\gamma\gamma_n}$, где ρ - концентрация атомов одной подрешетки. Мы рассмотрим случай поля, приложенного вдоль оси y . Равновесные значения параметра порядка и ядерных намагниченностей равны:

$$\vec{l}_0=\begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} , \quad \vec{m}_{10}=\begin{pmatrix} m \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} , \quad \vec{m}_{20}=\begin{pmatrix} -m \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} .$$

При варьировании лагранжиана используем параметризацию $\delta\vec{l}=[\delta\vec{\phi}\times\vec{l}]$, тогда связанное со сверхтонким взаимодействием слагаемое примет вид:

$$A\mu\delta\vec{l}(\vec{m}_1-\vec{m}_2)=A\mu(\vec{m}_1-\vec{m}_2)[\delta\vec{\phi}\times\vec{l}]=A\mu\delta\vec{\phi}[\vec{l}\times(\vec{m}_1-\vec{m}_2)] .$$

Итоговое уравнение для динамики антиферромагнитного параметра порядка будет выглядеть следующим образом:

$$[\ddot{\vec{l}}\times\vec{l}]-2\gamma(Hl)\dot{\vec{l}}-\gamma^2(IH)[l\times H]+\Delta^2\left[\begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ l_z \end{pmatrix}\times\vec{l}\right]+\frac{\gamma^2A\mu}{\chi_\perp}[\vec{l}\times(\vec{m}_1-\vec{m}_2)]=0 ,$$

где $\Delta^2=-\frac{\gamma^2b}{\chi_\perp}$.

Для нахождения частот малых колебаний подставим $\vec{l}=\begin{pmatrix} 1 \\ l_y \\ l_z \end{pmatrix}$,

$$\dot{\vec{l}} = i\omega \begin{pmatrix} 0 \\ l_y \\ l_z \end{pmatrix}, \quad \ddot{\vec{l}} = -\omega^2 \begin{pmatrix} 0 \\ l_y \\ l_z \end{pmatrix}, \quad \text{в результате получаем линеаризованное}$$

уравнение:

$$-\omega^2 \begin{pmatrix} 0 \\ l_z \\ -l_y \end{pmatrix} - \gamma^2 l_y H \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ H \end{pmatrix} + \Delta^2 \begin{pmatrix} 0 \\ l_z \\ 0 \end{pmatrix} + \frac{\gamma^2 A \mu}{\chi_{\perp}} \begin{pmatrix} 0 \\ -(m_{1z} - m_{2z}) + l_z 2m \\ (m_{1y} - m_{2y}) - l_y 2m \end{pmatrix} = 0.$$

Домножив уравнение с l_y на мнимую единицу, получаем систему уравнений для l_y и l_z :

$$\begin{cases} (\omega^2 - \Delta^2 - 2 \frac{\gamma^2 A \mu m}{\chi_{\perp}}) l_z + \frac{\gamma^2 A \mu}{\chi_{\perp}} m_{1z} - \frac{\gamma^2 A \mu}{\chi_{\perp}} m_{2z} = 0 \\ i(\omega^2 - \gamma^2 H^2 - 2 \frac{\gamma^2 A \mu m}{\chi_{\perp}}) l_y + i \frac{\gamma^2 A \mu}{\chi_{\perp}} m_{1y} - i \frac{\gamma^2 A \mu}{\chi_{\perp}} m_{2y} = 0 \end{cases}.$$

Если для проекций параметра порядка и ядерных намагниченностей перейти к комплексным переменным (по схеме $a^{\pm} = a_z \pm i a_y$,

$$a_z = \frac{1}{2}(a^+ + a^-), \quad a_y = \frac{1}{2i}(a^+ - a^-) \text{) и ввести обозначение } \alpha = \frac{\gamma^2 A \mu}{\chi_{\perp}}, \text{ то}$$

после сложения и вычитания уравнений система уравнений примет вид:

$$\begin{cases} (\omega^2 - 2\alpha m) l^+ - \frac{\Delta^2}{2}(l^+ + l^-) - \frac{\gamma^2 H^2}{2}(l^+ - l^-) + \alpha m_1^+ - \alpha m_2^+ = 0 \\ (\omega^2 - 2\alpha m) l^- - \frac{\Delta^2}{2}(l^+ + l^-) + \frac{\gamma^2 H^2}{2}(l^+ - l^-) + \alpha m_1^- - \alpha m_2^- = 0 \end{cases}.$$

Динамика ядерной намагниченности описывается уравнением Ландау-Лифшица:

$$\frac{d\vec{m}_i}{dt} = \gamma_n [\vec{m}_i \times \vec{H}_{eff}^{(i)}],$$

где $\vec{H}_{eff}^{(i)} = \frac{dL}{\rho d\vec{m}_i}$ — эффективное поле на ядре, ρ — концентрация атомов подрешетки. Мы не учитываем внешнее магнитное поле при описании динамики ядерной системы, так как сверхтонкое поле гораздо сильнее внешнего. Получаем:

$$H_{eff}^{(1)} = \frac{1}{\rho} A \vec{M}_1 = \frac{\mu}{\rho} A \vec{l} \quad , \quad H_{eff}^{(2)} = \frac{1}{\rho} A \vec{M}_2 = -\frac{\mu}{\rho} A \vec{l} \quad .$$

В результате получаем систему уравнений для ядерной намагниченности в первой подрешетке m_{1y} , m_{1z} :

$$\begin{cases} i\omega m_{1y} - \frac{\gamma_n \mu A}{\rho} m_{1z} + \frac{\gamma_n \mu A m}{\rho} l_z = 0 \\ \omega m_{1z} + i \frac{\gamma_n \mu A m}{\rho} l_y - i \frac{\gamma_n \mu A}{\rho} m_{1y} = 0 \end{cases} .$$

Введя новую константу $\omega_n = \frac{\gamma_n \mu A}{\rho}$, имеющую смысл несмещенной частоты ЯМР, и переходя к комплексным переменным, получаем конечную систему уравнений:

$$\begin{cases} (\omega - \omega_n) m_1^+ + \omega_n m l^+ = 0 \\ (\omega + \omega_n) m_1^- - \omega_n m l^- = 0 \end{cases} .$$

Аналогично получим систему уравнений для второй подрешетки m_{2y} , m_{2z} :

$$\begin{cases} (\omega + \omega_n) m_2^+ + \omega_n m l^+ = 0 \\ (\omega - \omega_n) m_2^- - \omega_n m l^- = 0 \end{cases} .$$

Матрица полной системы уравнений имеет вид:

$$M = \begin{pmatrix} \omega - \omega_n & 0 & 0 & 0 & m\omega_n & 0 \\ 0 & \omega + \omega_n & 0 & 0 & 0 & -m\omega_n \\ 0 & 0 & \omega + \omega_n & 0 & m\omega_n & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \omega - \omega_n & 0 & -m\omega_n \\ \alpha & 0 & -\alpha & 0 & \omega^2 - \frac{\Delta^2}{2} - \frac{\gamma^2 H^2}{2} - 2\alpha m & -\frac{\Delta^2}{2} + \frac{\gamma^2 H^2}{2} \\ 0 & \alpha & 0 & -\alpha & -\frac{\Delta^2}{2} + \frac{\gamma^2 H^2}{2} & \omega^2 - \frac{\Delta^2}{2} - \frac{\gamma^2 H^2}{2} - 2\alpha m \end{pmatrix}$$

Частоты собственных колебаний должны удовлетворять условию $\det M = 0$. При помощи линейных преобразований можно частично занулить компоненты этой матрицы над главной диагональю, при условии, что $\omega \neq \omega_n$. В результате уравнение на частоты собственных колебаний сведется к детерминанту матрицы 2×2 :

$$C = \begin{pmatrix} \omega^2 - \frac{\Delta^2}{2} - \frac{2\alpha m \omega_n^2}{\omega^2 - \omega_n^2} - \frac{\gamma^2 H^2}{2} - 2\alpha m & -\frac{\Delta^2}{2} + \frac{\gamma^2 H^2}{2} \\ -\frac{\Delta^2}{2} + \frac{\gamma^2 H^2}{2} & \omega^2 - \frac{\Delta^2}{2} - \frac{2\alpha m \omega_n^2}{\omega^2 - \omega_n^2} - \frac{\gamma^2 H^2}{2} - 2\alpha m \end{pmatrix}.$$

Для частот собственных колебаний получаем уравнение:

$$\det C = \left(\omega^2 - \frac{\Delta^2}{2} - \frac{2\alpha m \omega_n^2}{\omega^2 - \omega_n^2} - \frac{\gamma^2 H^2}{2} - 2\alpha m \right)^2 - \left(-\frac{\Delta^2}{2} + \frac{\gamma^2 H^2}{2} \right)^2 = 0.$$

Откуда:

$$\begin{pmatrix} \omega^2 - \frac{2\alpha m \omega_n^2}{\omega^2 - \omega_n^2} - \gamma^2 H^2 - 2\alpha m \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \omega^2 - \Delta^2 - \frac{2\alpha m \omega_n^2}{\omega^2 - \omega_n^2} - 2\alpha m \end{pmatrix} = 0$$

$$\begin{pmatrix} \omega^2 - \gamma^2 H^2 - \frac{2\alpha m \omega_n^2}{\omega^2 - \omega_n^2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \omega^2 - \Delta^2 - \frac{2\alpha m \omega_n^2}{\omega^2 - \omega_n^2} \end{pmatrix} = 0$$

В последнем уравнении вторая скобка описывает небольшую поправку к независимой от поля частоте АФМР, а первая скобка описывает возникновение сверхтонкой щели в спектре АФМР. При $\omega^2 \gg \omega_n^2$ (это предположение легко выполнимо, так как несмещенная частота ЯМР равна примерно 0.5 ГГц, а частоты АФМР в нашем эксперименте выше 9 ГГц)

$$\omega^2 = \gamma^2 H^2 + 2\alpha m = \gamma^2 H^2 + \delta^2.$$

В нулевом поле смещенная частота АФМР равна $\omega^2 = \omega_n^2 + 2\alpha m = \omega_n^2 + \delta^2$.

Для сверхтонкого поля на ядре марганца, равного 50-60 Тл, $(\mu_n H_{eff})/k_B \sim 18 mK \ll 500 mK$. Поэтому намагниченность ядра далека от насыщения в условиях нашего эксперимента, и она подчиняется закону Кюри:

$$m_n = \chi_n H_{eff} = \frac{g_{\text{яд}}^2 I(I+1) \mu_n^2}{3 k_B T} \frac{\mu}{\rho} A = \frac{I(I+1) \gamma_n^2 \hbar^2}{3 k_B T} \frac{\mu}{\rho} A.$$

Тогда для сверхтонкой щели

$$\delta^2 = 2\alpha m = 2 \frac{\gamma^2 \gamma_n^2 (A\mu)^2 \hbar^2 I(I+1)}{3 k_B \chi_{\perp} \rho} \times \frac{1}{T}.$$

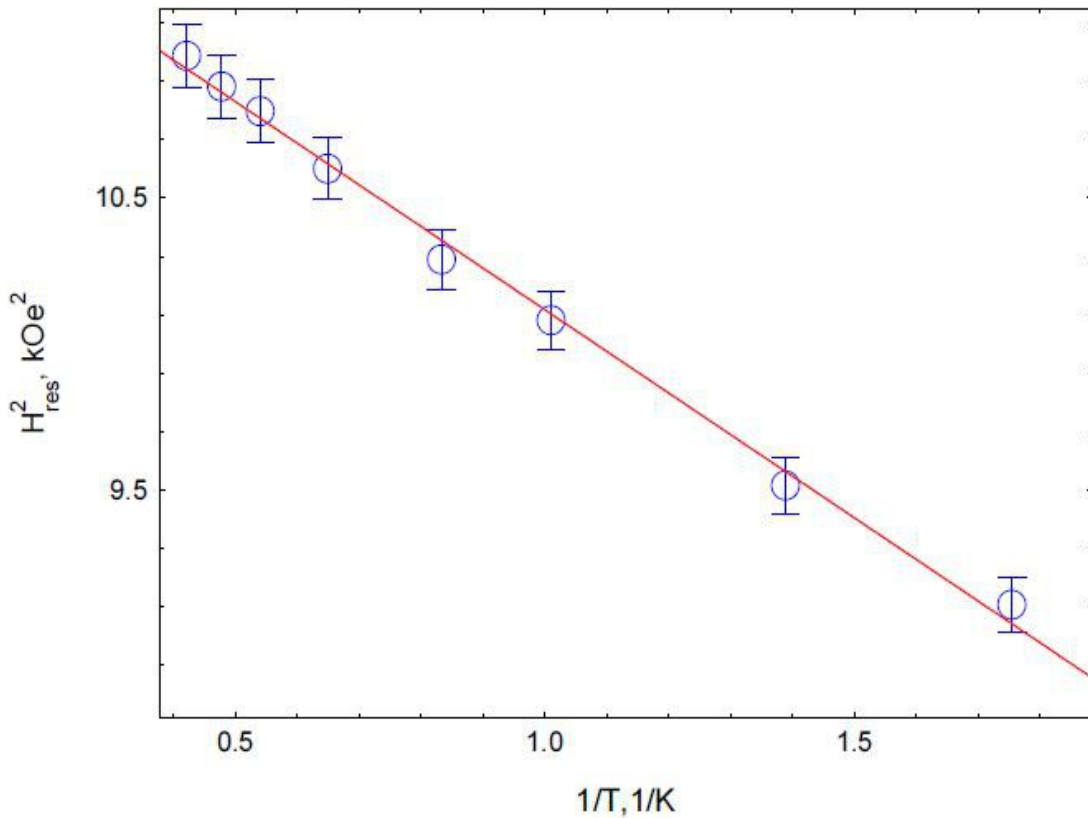


Рисунок 31: Зависимость резонансного поля от температуры для $Ba_2MnGe_2O_7$ при $H \parallel [110]$ и $f=9.67$ ГГц для $T < 2$ К. В выбранных координатах в модели динамического сдвига частоты должна возникать линейная зависимость. Символы: экспериментальные данные. Прямая - подгоночная прямая.

То есть $\delta \propto \frac{1}{\sqrt{T}}$, сверхтонкая щель должна увеличиваться с понижением температуры, не выходя на насыщение, что качественно соответствует экспериментальным результатам (рис. 27). Для количественной проверки этой модели построим зависимость квадрата резонансного поля от обратной температуры (рис. 31). В рамках модели динамического сдвига частоты $H^2 = (\omega/\gamma)^2 - (\delta/\gamma)^2 = H_0^2 - a \times (1/T)$ и в таких координатах экспериментальные точки должны ложиться на прямую.

Видно, что действительно имеется линейная зависимость, коэффициенты подгоночной прямой $a = (1.45 \pm 0.15)$ кЭ²·К, $H_0 = 3.40$ кЭ. Поле H_0 отличается от экспериментально измеренного H_{res} при $T > T_N$ на 1%, что является хорошим согласием.

Полученные параметры, описывающие экспериментальные данные позволяют вычислить константы сверхтонкого взаимодействия. Однако этот расчёт требует использования информации о восприимчивости антиферромагнетика. Из работы [10] известно, что в $\text{Ba}_2\text{MnGe}_2\text{O}_7$ значение восприимчивости ниже температуры Нееля зависит от того, как приложено поле: для поля приложенного вдоль главной оси анизотропии ($H \parallel [001]$) $\chi_{\perp} = 0.26$ ед.СГС/моль , а для поля, приложенного в легкой плоскости ($H \parallel [110]$) $\chi_{\perp} = 0.18$ ед.СГС/моль . Для идеального антиферромагнетика типа «легкая плоскость» такого различия восприимчивостей быть не должно. Мы не можем объяснить данную зависимость восприимчивости от направления приложенного поля. Ниже представлена таблица 4, в которой вычислены значения перенормированной константы сверхтонкого взаимодействия A , константы сверхтонкого взаимодействия в расчете на атом $\tilde{A}$ и несмещенной частоты ЯМР $f_n = \omega_n / (2\pi)$, соответствующие найденному выше значению параметра a , для обоих значений восприимчивости.

Таблица 4: Вычисленные значения перенормированной константы сверхтонкого взаимодействия A , константы сверхтонкого взаимодействия в расчете на атом $\tilde{A}$ и несмещенной частоты ЯМР ω_n для разных значений восприимчивости.

$\chi_{\perp}$, ед.СГС/моль	0.26 ($H \parallel [001]$)	0.18 ($H \parallel [110]$)
A , см ⁻⁶	$4.5 \cdot 10^{46}$	$3.74 \cdot 10^{46}$
$\tilde{A}$, см ⁻¹	0.0118	0.0098
f_n , МГц	822	684

Значение константы сверхтонкого взаимодействия для Mn^{2+} измерялось методом ЭПР для различных соединений [25], ее типичное значение равно 0.008...0.009 1/см. Известна частота ЯМР для различных антиферромагнетиков [15], она составляет 600-680 МГц. Из таблицы 4 видно, что значения константы сверхтонкого взаимодействия и

несмещенной частоты ЯМР, вычисленные для значения восприимчивости, измеренного при $H \parallel [110]$, оказываются ближе к табличным значениям для других соединений марганца. Вероятно, большее значение восприимчивости при $H \parallel [001]$ связано с каким-то дополнительным вкладом в намагниченность образца, выходящим за рамки модели простого антиферромагнетика типа «легкая плоскость».

В работах [15], [19] задача о динамическом сдвиге частоты решалась методом подрешеток. При этом получался аналогичный ответ

$$\omega^2 = \gamma^2 [H^2 + 2 H_{HF} H_E],$$

где H_E — обменное поле, а $H_{HF} \propto \frac{1}{T}$ — сверхтонкое поле. Обменное поле может быть вычислено по полю насыщения (поле насыщения в модели подрешеток равно $2 H_E$) либо по поперечной восприимчивости антиферромагнетика (в модели подрешеток $H_E = M/\chi$, где M — намагниченность подрешетки). В модели подрешеток это одна и та же величина, однако для реального магнетика получаются немного разные результаты. Результаты вычисления сверхтонкого поля для разных подходов к определению обменного поля представлены в таблице 5.

Таблица 5 Вычисленные значения сверхтонкого поля для разных способов определения обменного поля.

	По полю насыщения $H_{sat} = 97.5 \text{ кЭ}$	По восприимчивости при $H \parallel [001]$	По восприимчивости при $H \parallel [110]$
H_{HF}	$H_{HF} = \frac{15 \text{ Э} \cdot K}{T}$	$H_{HF} = \frac{15 \text{ Э} \cdot K}{T}$	$H_{HF} = \frac{10 \text{ Э} \cdot K}{T}$

Для других антиферромагнетиков с марганцем наблюдались близкие значения сверхтонкого поля: для MnCO_3 $H_{HF} = \frac{8.61 \text{ Э} \cdot K}{T}$ [19],

для CsMnF_3 $H_{HF} = \frac{9.15 \text{ Э} \cdot \text{К}}{T}$ [16], для RbMnF_3 $H_{HF} = \frac{9.43 \text{ Э} \cdot \text{К}}{T}$ [17]. Как и для определения константы сверхтонкого взаимодействия, результат вычисления с использованием магнитной восприимчивости, измеренной при $H \parallel [110]$, оказывается ближе к известным данным для других материалов.

Оценка роли сверхтонкого взаимодействия вблизи поля насыщения

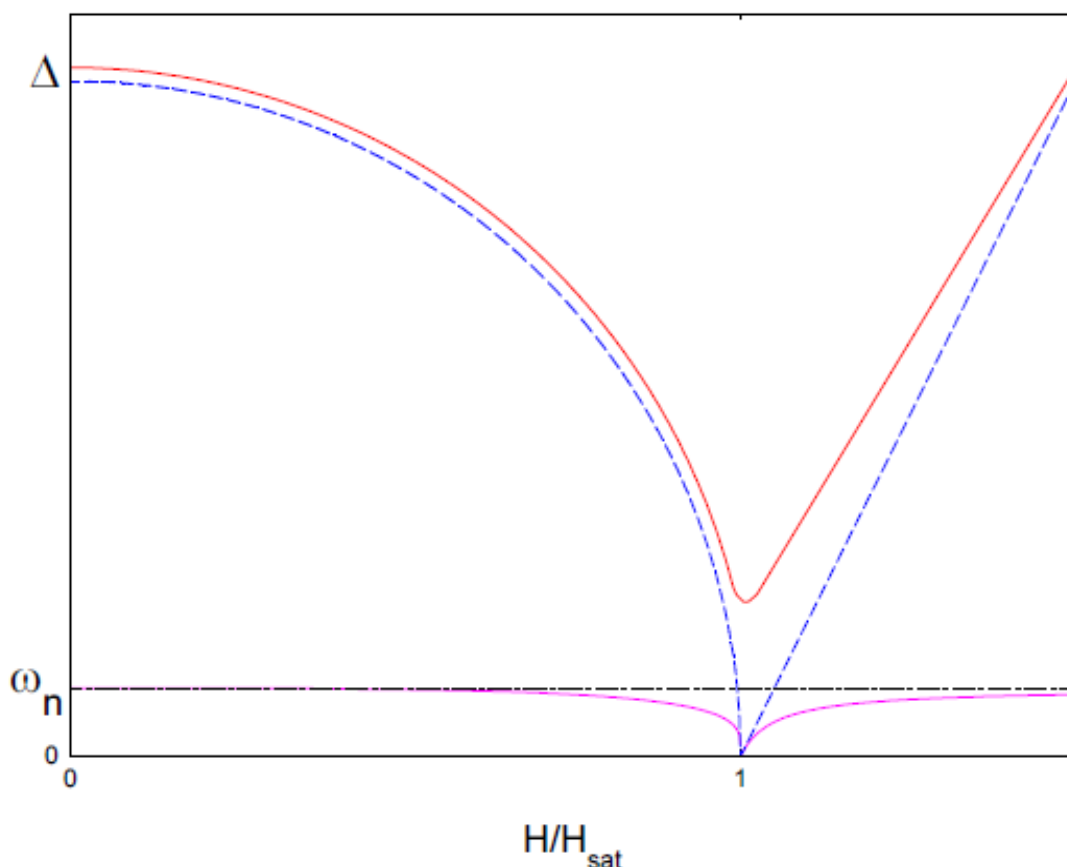


Рисунок 32: Схема возможного возникновения динамического сдвига частоты вблизи поля насыщения. Штрих-пунктирная линия — частота ЯМР, пунктирная линия — частота АФМР без учета связи колебаний электронной и ядерной подсистем. Сплошные линии — связанные моды колебаний.

Одна из частот АФМР для антиферромагнетика типа «легкая плоскость» при поле, приложенном перпендикулярно к оси анизотропии, не зависит от поля в рамках теории А.Ф.Андреева и В.И.Марченко [7]. В модели подрешеток [6] эта частота АФМР зануляется в поле насыщения

по закону $\omega = \Delta \sqrt{1 - \left(\frac{H}{H_{sat}}\right)^2}$. В работе [12] эта мода наблюдалась экспериментально. В наших экспериментах нам удалось увидеть эту моду АФМР при частотах выше 18 ГГц (рис.23), но не удалось наблюдать на частотах 9-17 ГГц, в том числе и в низкотемпературном эксперименте (T=0.45 К) на частоте 11.6 ГГц при сканировании поля до 100 кЭ.

Возможны две причины, по которым эта мода АФМР не наблюдалась в низкочастотных экспериментах:

1. При этом типе колебаний параметра порядка колеблется компонента полной намагниченности, параллельная внешнему полю [6], в то время как в условиях нашего эксперимента поляризация СВЧ поля практически перпендикулярна к внешнему полю.²
2. Вблизи поля насыщения опять происходит пересечение частот АФМР и ЯМР. Это может привести к возникновению динамического сдвига частоты (рис. 32), и если этот эффект окажется очень сильным, то на низких частотах при низкой температуре не будет наблюдаться резонансное поглощение.

Мы сделали оценку величины динамического сдвига частоты в поле насыщения. Мы рассмотрели антиферромагнетик в поле выше поля насыщения в модели подрешеток. Интересующая нас мода колебаний соответствует противофазным колебаниям подрешеток³, частота этих колебаний обращается в ноль в поле насыщения. Энергия связи электронной и ядерной подсистем выписывалась аналогично

2 В тех экспериментах, где эта мода АФМР наблюдалась, образец монтировался не на дно резонатора, и поэтому могли присутствовать различные поляризации СВЧ поля.

3 Это соответствует спиновым волнам с волновым вектором $k = \pi/a$ в простейшей модели классической спиновой цепочки

разобранному выше случаю, учет этой связи приводил к дополнительному эффективному полю на электронной и ядерной подсистемах. Колебания намагниченности электронной и ядерной подсистем описывались уравнениями Ландау — Лифшица. Уравнения для частот связанных колебаний оказались громоздкими, поэтому мы решили их численно, используя параметры сверхтонкого взаимодействия, определенные в предыдущем разделе. Оказалось, что даже при температуре $T=0.45$ К частота электронно-ядерных колебаний в поле насыщения равна примерно 1 ГГц, то есть много меньше частоты нашего эксперимента.

Таким образом, динамический сдвиг частоты не препятствует наблюдению этой моды АФМР вблизи поля насыщения. То, что мы не наблюдали сигнала поглощения, связано с особенностями условий возбуждения данного типа колебаний.

Проявление анизотропии в плоскости (001) при наличии эффекта динамического сдвига частоты

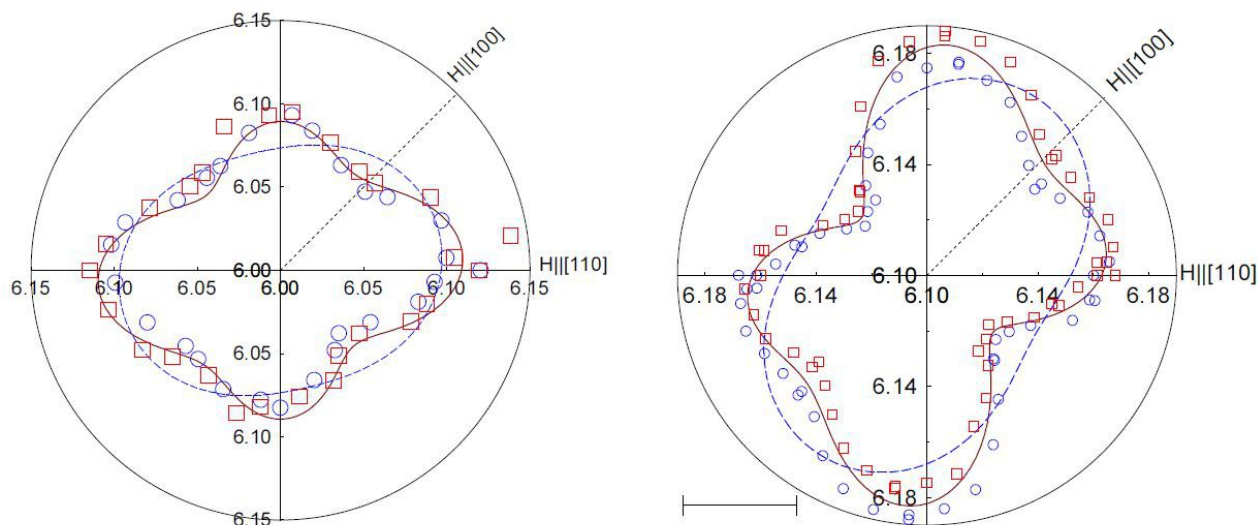


Рисунок 33: Полярные диаграммы зависимости поля АФМР на частоте 18.08 ГГц от направления приложенного в плоскости (001) магнитного поля при температуре 1.7 К для двух разных образцов. Слева: образец массой 15.4 мг, справа: образец массой 4.4 мг. Символы — экспериментальные данные, сплошная кривая — подгонка в модели $H = H_0(1 + a \cos 2\varphi + b \cos 4\varphi)$, пунктирная кривая — подгонка в модели $H = H_0(1 + a \cos 2\varphi)$. Горизонтальный отрезок показывает точность определения резонансного поля.

Как было показано выше, главным эффектом, определяющим смещение поля резонансного поглощения ниже температуры Нееля для поля $H \perp S_4$, оказывается эффект динамического сдвига частоты. Однако слабая анизотропия в плоскости (001) может проявляться в угловой зависимости поля резонансного поглощения.

Частота АФМР с учетом динамического сдвига частоты равна

$$\omega^2 = \omega_0^2 + \delta^2,$$

где ω_0 — несмещенная частота АФМР, а $\delta^2 \propto 1/T$ — квадрат сверхтонкой щели. При наличии анизотропии в плоскости несмещенная частота АФМР зависит от направления приложенного поля (рис. 29), эта зависимость имеет вид [5]

$$\omega_0^2 = (\gamma H)^2 + (\Delta')^2 \cos 4\varphi,$$

где Δ' - связанная с анизотропией в плоскости малая щель (при этом в одной из ориентаций поля наблюдается спин-переориентационный переход в поле $H_c = \Delta' / \gamma$). Объединяя эти выражения, получаем для поля АФМР в эксперименте на фиксированной частоте

$$(\gamma H)^2 = \omega^2 - \delta^2 - (\Delta')^2 \cos 4\varphi$$

$$H \approx H_0 \left(1 - \frac{1}{2} \left(\frac{\Delta'}{\omega} \right)^2 \cos 4\varphi \right), \quad \text{где} \quad \gamma H_0 = \sqrt{\omega^2 - \delta^2} \quad \text{поле АФМР с}$$

учетом только динамического сдвига частоты.

Мы измерили угловую зависимость поля АФМР на частоте 18 ГГц для поля, приложенного в плоскости (001), при температуре 1.7 К для двух образцов с массами 15.4 мг и 4.4 мг, результаты показаны на рис. 33. Наблюдается слабая угловая зависимость поля АФМР, резонансное поле изменяется примерно на 1% при повороте образца. Экспериментальные данные были подогнаны зависимостью

$$H = H_0 [1 + a \cos(2(\varphi - \xi_1)) + b \cos(4(\varphi - \xi_2))] ,$$

здесь параметры ξ_1 и ξ_2 описывают случайную разориентацию образца, слагаемое $\cos 2\varphi$ описывает возможные изменения резонансного поля, связанные с несовпадением оси вращения и оси четвертого порядка. Экспериментальные данные показывают наличие обеих гармоник угловой зависимости, найденные амплитуды гармоник для образцов разных размеров показаны в таблице 6. Амплитуда второй гармоники соответствует отклонению оси вращения от оси четвертого порядка примерно на три градуса.

Это позволяет оценить величину малой щели для обоих случаев по формуле

$$\Delta' = \omega \sqrt{2b} .$$

Таблица 6: Амплитуды гармоник угловой зависимости поля АФМР и величина малой щели для образцов массой 15.4 мг и 4.4 мг.

Масса образца	15.4 мг	4.4 мг
a	0.0019	0.0027
b	0.0025	0.0022
$\Delta'/(2\pi)$, ГГц	1.3	1.25

Резонансное поле максимально при $H \parallel [110]$, это означает (см. рис. 29), что спин-переориентационный переход должен наблюдаться именно в этой ориентации. Ожидаемое поле перехода составляет 0.46 кЭ. Отметим, что в работе [10] наблюдалась небольшая особенность восприимчивости, связываемая авторами со спин-флоп переходом, в поле 1.2 кЭ именно в этой ориентации.

Ширина линии ЭПР в парамагнитной фазе: сравнение с моделью перехода Березинского-Костерлица-Таулеса

В двумерных магнетиках с сильной анизотропией типа «легкая плоскость» (XY-магнетиках) возможен топологический фазовый переход Березинского-Костерлица-Таулеса [2]. При нагревании образца в точке такого перехода возникают свободные вихри, которые могут перемещаться по образцу. В квазидвумерных магнетиках взаимодействие между двумерными системами приводит к формированию обычного магнитного порядка. Однако, в парамагнитной области возможность существования свободных вихрей в двумерных системах приводит к появлению дополнительного канала спиновой релаксации, который будет давать дополнительный вклад в ширину линии магнитного резонанса.

Теория предсказывает, что связанный с вихрями вклад в ширину линии должен зависеть от температуры следующим образом [26]:

$$\Delta H_{BKT} = A \exp \left(\frac{3b}{\sqrt{T/T_{KT} - 1}} \right),$$

где параметр $b = \frac{\pi}{2}$ в идеальном случае (известно, что в реальных системах он может иметь меньшее значение), а T_{KT} – температура перехода Березинского-Костерлица-Таулеса. В присутствии межплоскостного взаимодействия эта температура связана с температурой Нееля соотношением [26]:

$$\frac{T_N - T_{KT}}{T_{KT}} = \frac{4b^2}{[\ln(J/J')]^2},$$

где J и J' – внутриплоскостной и межплоскостной обменные интегралы.

Исследуемое нами соединение $\text{Ba}_2\text{MnGe}_2\text{O}_7$ является квазидвумерным антиферромагнетиком с анизотропией типа «легкая плоскость». Для спина $S=5/2$ эта анизотропия в основном связана с одноионной анизотропией иона марганца, а не со спин-спиновыми взаимодействиями, и поэтому будет проявляться и в парамагнитной фазе. Таким образом, выше температуры Нееля $\text{Ba}_2\text{MnGe}_2\text{O}_7$ удовлетворяет всем требованиям для возможного проявления эффектов, связанных с механизмом БКТ. Поэтому интересно проверить, проявляется ли в нем связанное с таким механизмом уширение линии магнитного резонанса.

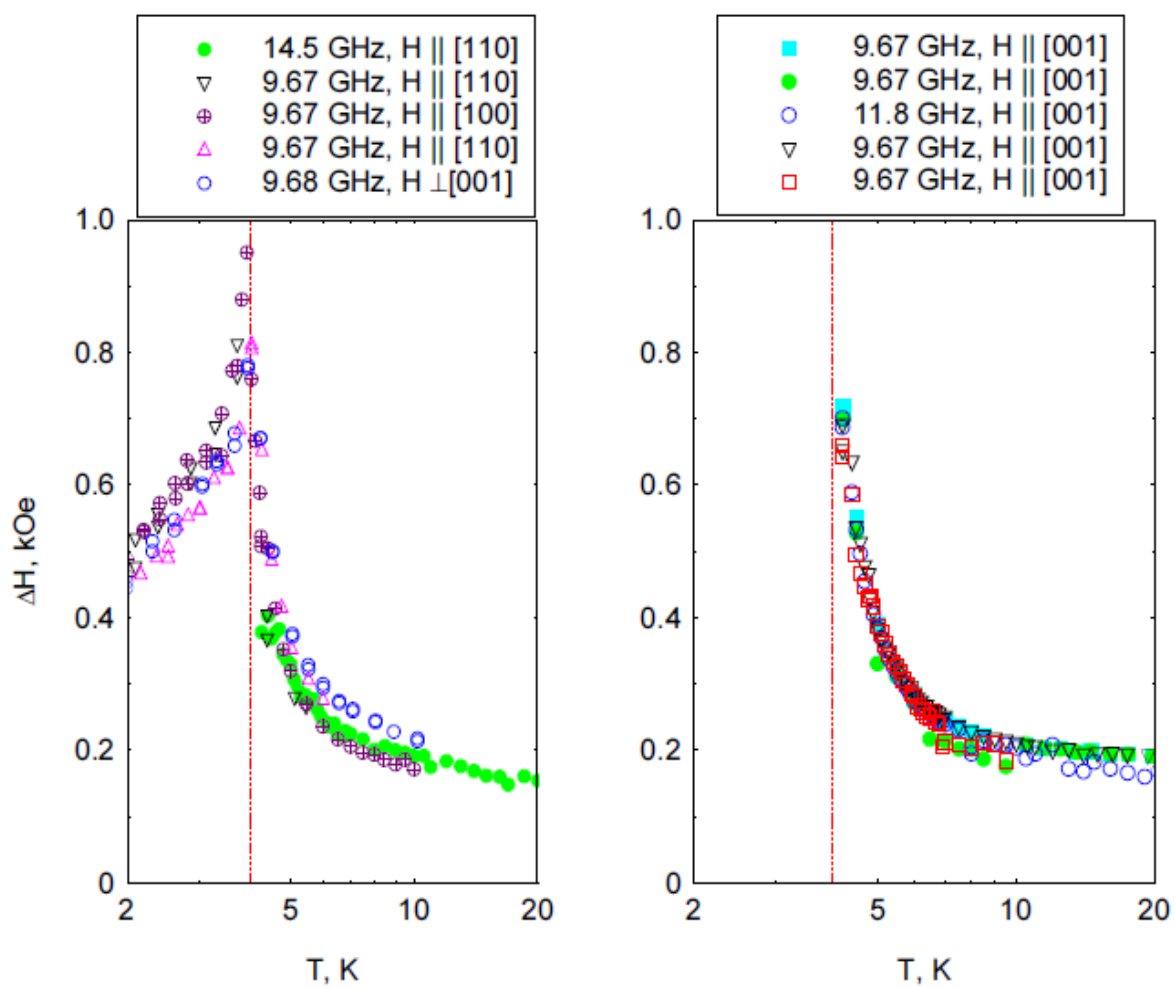


Рисунок 34: Зависимость ширины линии ЭПР в $Ba_2MnGe_2O_7$ от температуры.

Мы измерили температурную зависимость ширины линии магнитного резонанса от температуры Нееля до 20 К для различных ориентаций образца. Результаты показаны на рис. 34. Наблюдается уширение линии ЭПР при приближении к температуре Нееля. Видно, что данные для различных экспериментов при $H \parallel [001]$ и при $H \perp [001]$ близки друг к другу. Наблюдаемый разброс данных для различных экспериментов дает оценку точности определения ширины линии, он в основном связан с искажением наблюдаемой формы линии при большой амплитуде поглощения и с учетом этих искажений в подгоночной модели.

Для сравнения с моделью уширения линии вблизи перехода Березинского-Костерлица-Таулеса необходимо учесть, что есть и другие механизмы релаксации. Мы будем считать, что они не зависят от температуры: $\Delta H = \Delta H_{\text{BKT}}(T) + \Delta H_0$. Вычтем из полученных экспериментальных данных величину ΔH_0 , определенную при температуре 10К: для поля $H \perp [001]$ $\Delta H_0 = 0.148$ кЭ, для поля $H \parallel [001]$ $\Delta H_0 = 0.187$ кЭ.

Мы сделали два варианта подгонки экспериментальных данных. В одном из них параметр b фиксировался равным $\pi/2$, а во втором был подгоночным параметром. Для первого случая температура перехода Березинского-Костерлица-Таулеса, вычисленная по приведенной выше формуле, равна 2.16 К. Для проверки соответствия наших данных модели перехода Березинского-Костерлица-Таулеса проведем ряд преобразований экспериментальных данных:

прологарифмируем $(H - \Delta H_0)$, сделаем замену $x = \frac{1}{\sqrt{\frac{T}{2.16} - 1}}$. В

результате должна получаться линейная зависимость с угловым

коэффициентом $3b$ (рис. 35). Для случая, когда параметр b является подгоночным параметром, температура перехода Березинского-Костерлица-Таулеса также зависит от параметра b по формуле, приведенной выше. Результат подгонки показан на рис. 36. Значение подгоночного параметра $b=1.18\pm0.2$ (что составляет 75% от идеального значения), что соответствует значению температуры перехода Березинского-Костерлица-Таулеса $T_{KT}=2.7$ К. Видно, что экспериментальные данные удовлетворительно ложатся на модельные кривые обоих подходов в интервале температур от 4 до 10 К.

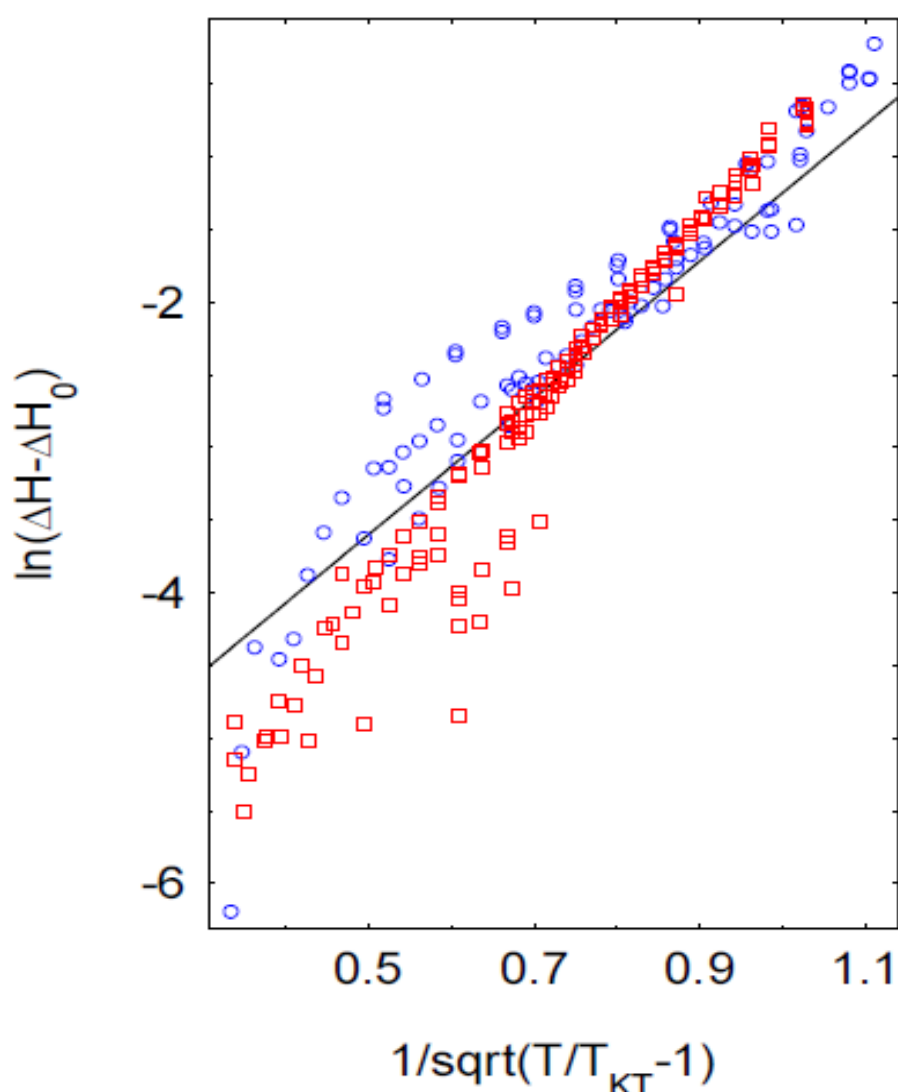


Рисунок 35: Сравнение данных для ширины линии ЭПР с моделью перехода Березинского-Костерлица-Таулеса для зафиксированного значения параметра $b=\pi/2$. Символы — экспериментальные данные: круги — поле $H \perp [001]$, квадраты — поле $H \parallel [001]$. Прямая — теоретическая прямая с наклоном $3b$.

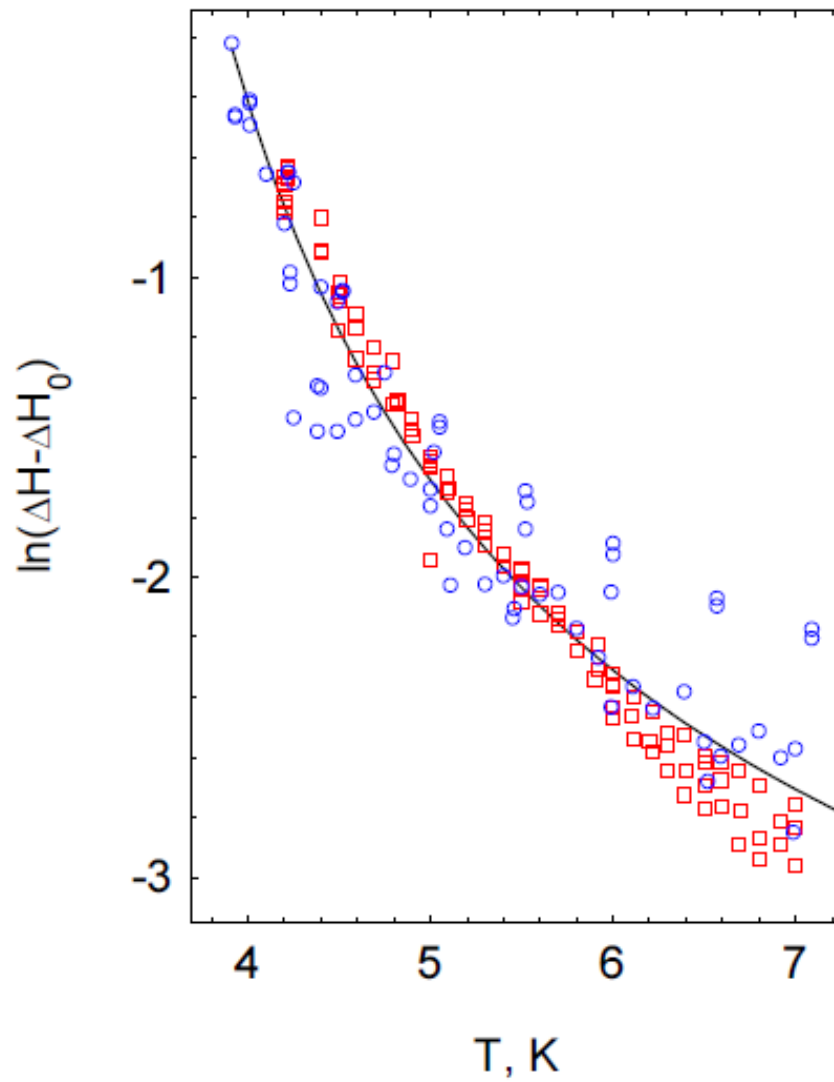


Рисунок 36 Сравнение данных для ширины линии ЭПР с моделью перехода Березинского-Костерлица-Таулеса для незафиксированного значения параметра b . Символы — экспериментальные данные: круги — поле $H \perp [001]$, квадраты — поле $H \parallel [001]$. Сплошная линия — теоретическая кривая, соответствующая значению параметра $b=1.18$.

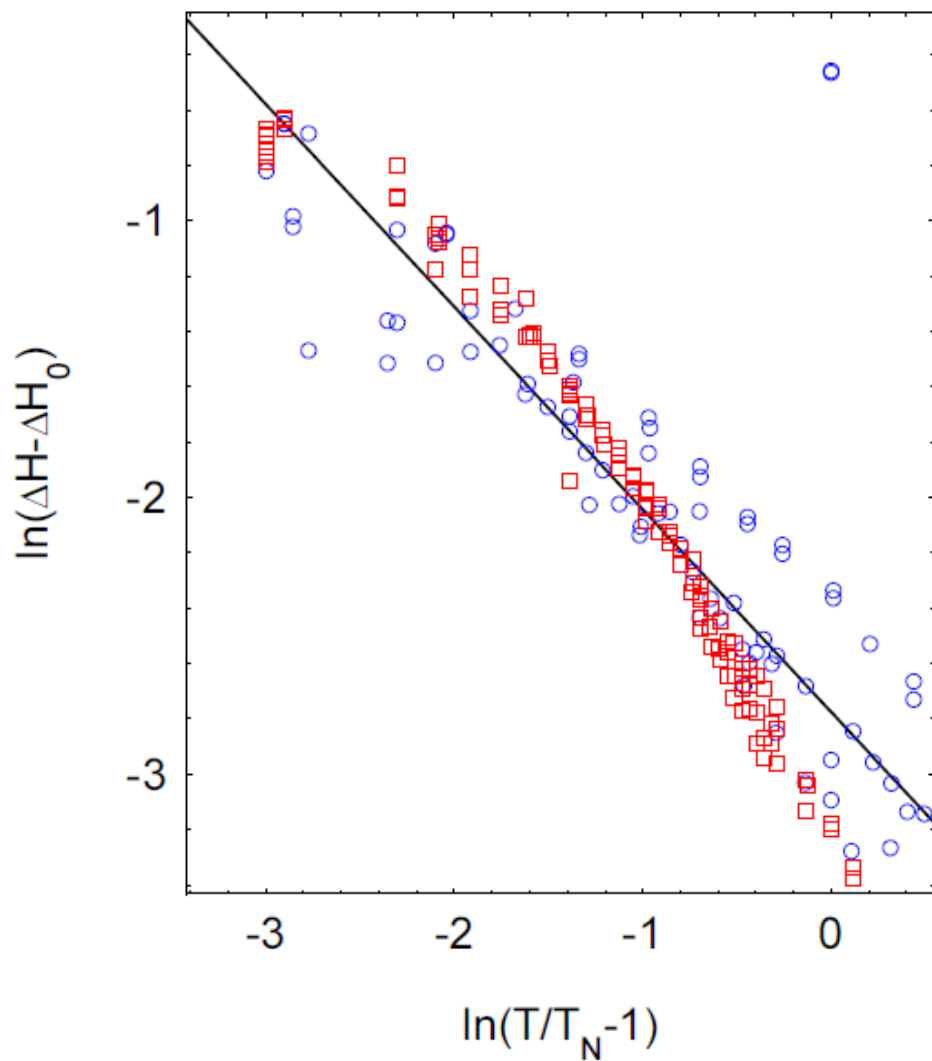


Рисунок 37: Сравнение экспериментальных данных с моделью критического уширения в точке Нееля. Символы - экспериментальные данные: круги - $H \perp [001]$, квадраты - $H \parallel [001]$. Сплошная линия - подгоночная прямая, соответствующая критическому индексу $p=0.73$.

Альтернативно, увеличение ширины линии вблизи температуры перехода T_c может быть связано с критическими явлениями и может быть описано следующей формулой [26]:

$$\Delta H = C \left(\frac{T}{T_c} - 1 \right)^{-p} + \Delta H_0 .$$

Проведем ряд преобразований экспериментальных данных: прологарифмируем $(H - \Delta H_0)$, сделаем замену $x = \ln \left(\frac{T}{T_c} - 1 \right)$. Полученные экспериментальные данные подгоним прямой, где единственный подгоночный параметр определяет критический индекс $p = 0.73 \pm 0.15$. Результаты подгонки показаны на рис. 37. Видно, что наши экспериментальные данные хорошо ложатся на подгоночную прямую и в этой модели.

Таким образом, наблюдаемое уширение линии магнитного резонанса вблизи точки фазового перехода может быть описано как моделью перехода Березинского-Костерлица-Таулеса так и моделью критического уширения в точке Нееля. В рамках нашего эксперимента мы не можем различить эти два случая.

Антиферромагнитный резонанс в квазидвумерном антиферромагнетике $\text{Cu(en)(H}_2\text{O)}_2\text{SO}_4$

Кристаллическая структура $\text{Cu(en)(H}_2\text{O)}_2\text{SO}_4$

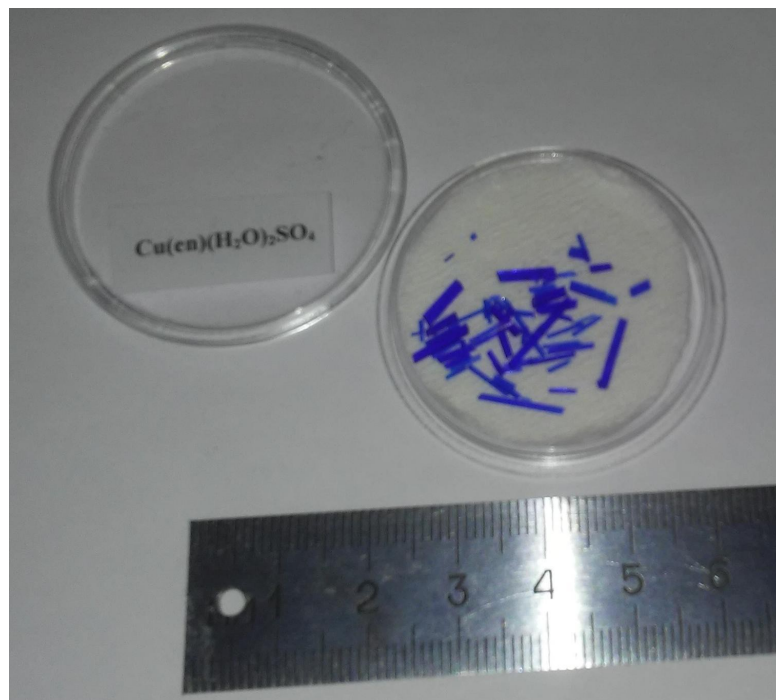


Рисунок 38 Фото образцов $\text{Cu(en)(H}_2\text{O)}_2\text{SO}_4$.

Соединение $\text{Cu(en)(H}_2\text{O)}_2\text{SO}_4$ (en = ethylenediamine = $\text{C}_2\text{H}_8\text{N}_2$) - квазидвумерный антиферромагнетик с моноклинной структурой с пространственной группой C2/c (C^6_{2h}), который ранее исследовался в работах [27], [28]. Кристаллографическая структура этого соединения изучалась методами рентгеновской и нейтронной дифракции, параметры решетки равны $a=7.232 \text{ \AA}$, $b=11.725 \text{ \AA}$, $c=9.768 \text{ \AA}$, $\beta=105.5^\circ$, структура не меняется при охлаждении до 0.45 K . Схема кристаллической структуры этого соединения показана на рис. 39. Кристаллы $\text{Cu(en)(H}_2\text{O)}_2\text{SO}_4$ вырастают в форме тонких вытянутых пластинок, развитая грань которых перпендикулярна оси b , а ось a направлена вдоль длинной стороны пластинки. Поэтому в экспериментах было удобно направлять поле вдоль осей a , b и ортогонального им направления c^* (рис. 38).

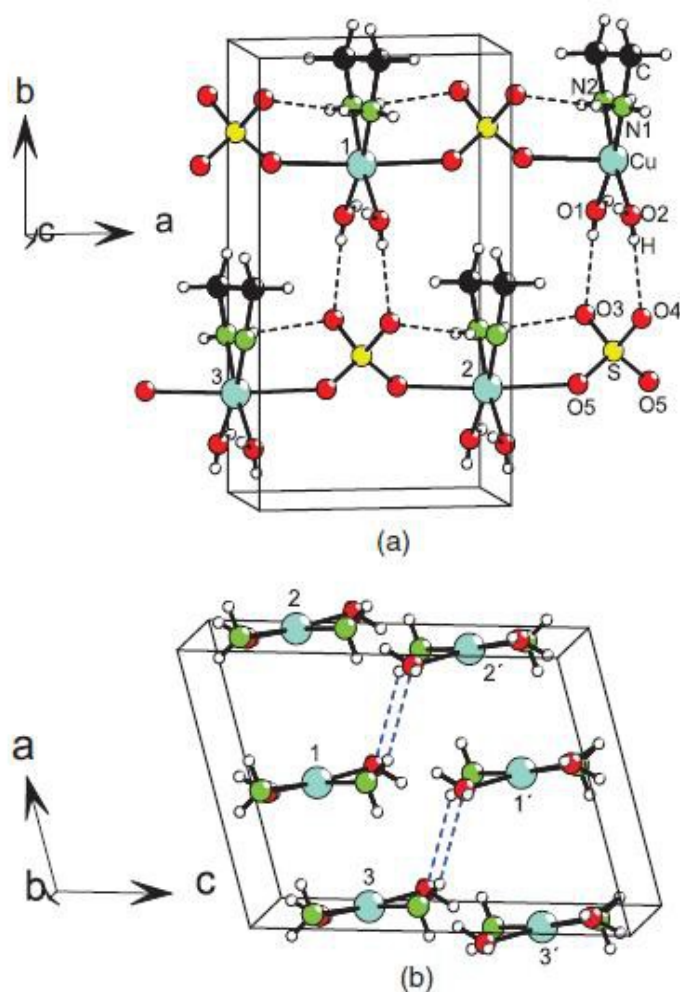


Рисунок 39: (Из статьи [27]) Кристаллическая структура $\text{Cu(en)(H}_2\text{O)}_2\text{SO}_4$.

В отличие от рассматривавшегося ранее соединения $\text{Ba}_2\text{MnGe}_2\text{O}_7$ низкоразмерные магнитные подсистемы не видны явно в кристаллической структуре, сильное различие обменных взаимодействий в разных направлениях связано в $\text{Cu(en)(H}_2\text{O)}_2\text{SO}_4$ не с различием расстояний между магнитными ионами Cu^{2+} ($S=1/2$), а с особенностями перекрытия волновых функций этих ионов. «Первопринципное» моделирование [29] показывает, что взаимодействие между соседними ионами в плоскости (bc) в несколько десятков раз сильнее, чем между ионами в соседних плоскостях. При этом из-за низкой симметрии в плоскости (bc) есть два типа обменных связей, так что эти плоскости могут быть представлены как сильно

взаимодействующие зигзагообразные цепочки (рис. 40). Все плоскости (bc) в структуре $\text{Cu(en)}(\text{H}_2\text{O})_2\text{SO}_4$ эквивалентны друг другу⁴ и связаны трансляцией на вектор $(\vec{a} + \vec{b})/2$.

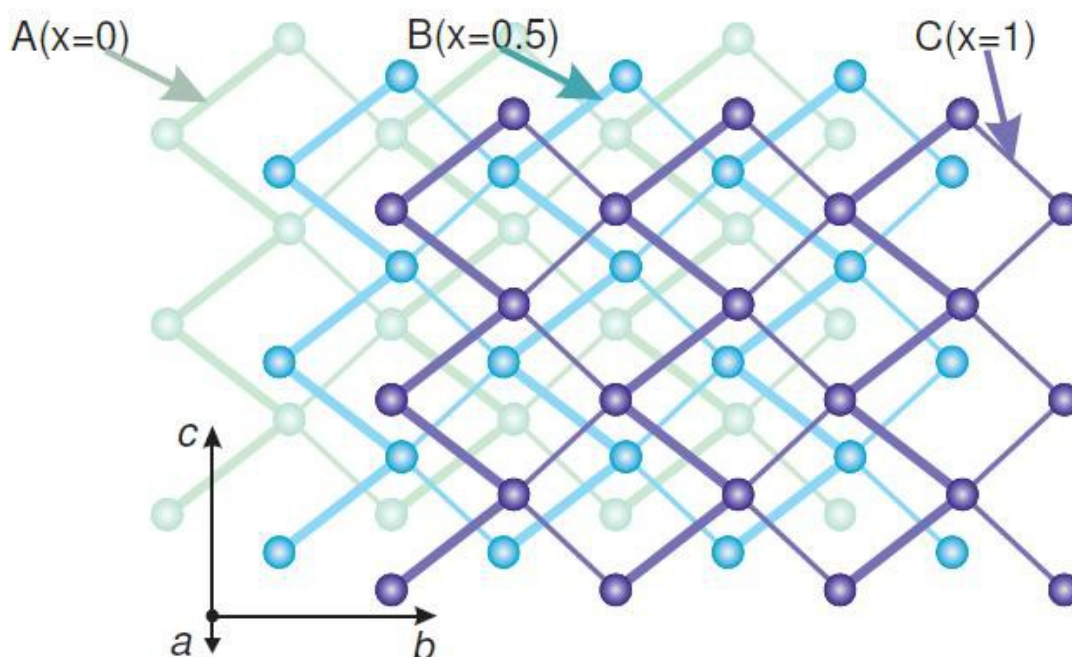


Рисунок 40: Схема расположения двумерных спиновых плоскостей в кристалле $\text{Cu(en)}(\text{H}_2\text{O})_2\text{SO}_4$. Показаны только ионы меди. А, В, С – слои атомов меди, сдвинутые на полпериода вдоль оси a . Слой А содержит ионы 3, 3', слой В – ионы 1, 1', слой С – ионы 2, 2' (рис. 39).

Обменный интеграл внутри цепочек $J_1/k_B = 3.5$ К, обменный интеграл между цепочками в плоскости $J_2 \approx 0.35 J_1$, эти значения были определены по результатам численного моделирования магнитной восприимчивости и теплоемкости (рис.41).

4 На рис. 39 показаны четыре неэквивалентных позиции иона меди в элементарной ячейке, так как эта элементарная ячейка не является примитивной для гранецентрированной моноклинной решетки. В примитивной ячейке содержатся только два иона меди, например. 3 и 3'.

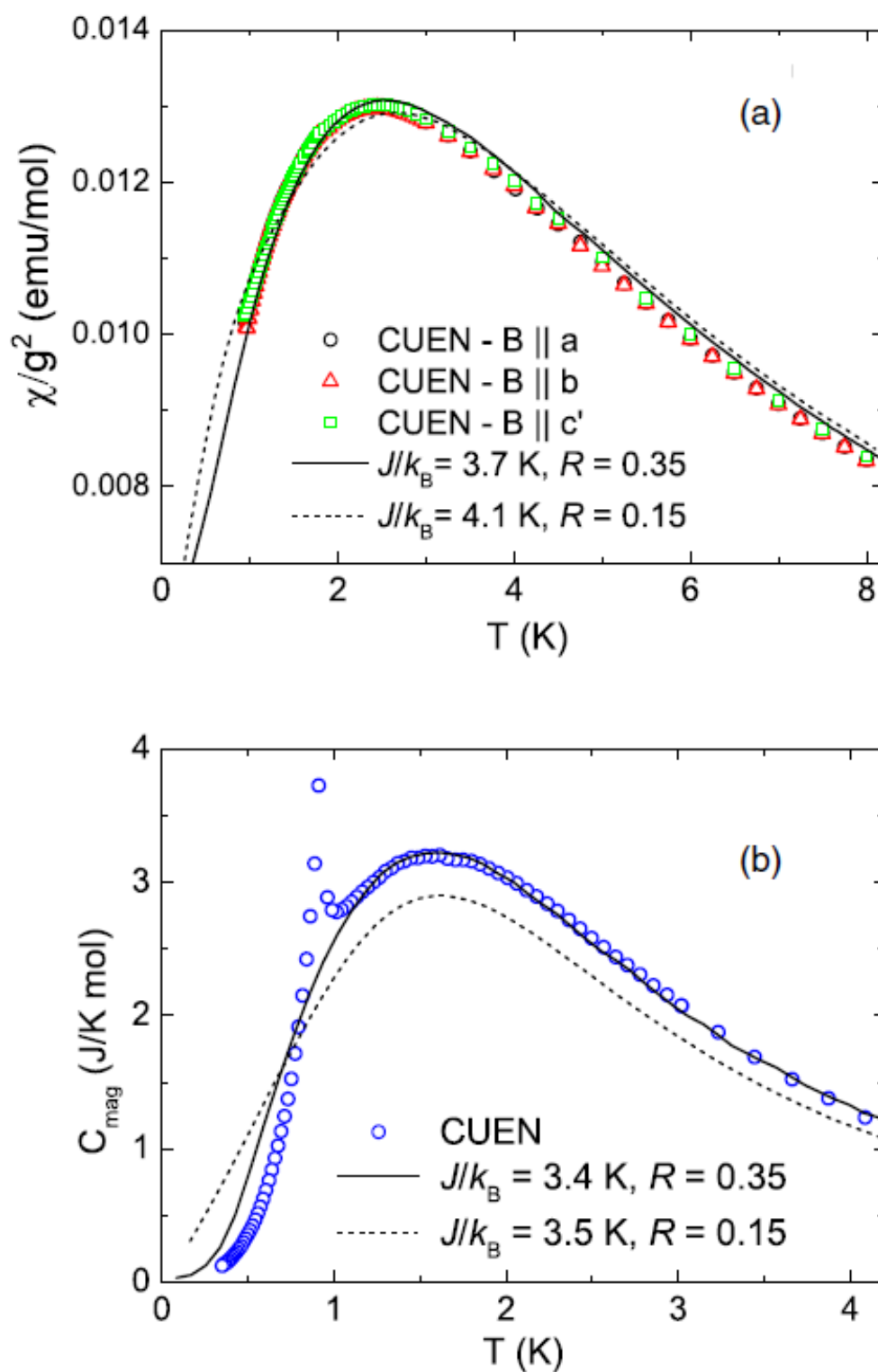


Рисунок 41: (Из статьи [28]) Сравнение экспериментальных значений магнитной восприимчивости (сверху) и теплоемкости (снизу) с результатами моделирования для связанных зигзагообразных цепочек. Символы - экспериментальные данные, кривые - результаты моделирования.

Антиферромагнитный порядок в $\text{Cu(en)(H}_2\text{O)}_2\text{SO}_4$ наступает при $T=0.91$ К. Точка Нееля отмечена пиком на кривой теплоемкости и совпадающим с ним изломом на температурной зависимости магнитной восприимчивости (рис. 42). При температуре ниже температуры Нееля наблюдается излом кривых намагничивания при поле $H\parallel b$ в поле примерно 2 кЭ (рис. 43), что предположительно соответствует спин-флоп переходу и отмечает единственную ось второго порядка b как «легкую ось» анизотропии. Отметим, что представленные на рис. 42 температурные зависимости восприимчивости содержат несколько особенностей, не характерных для простого антиферромагнетика типа «легкая ось»: сразу ниже точки перехода восприимчивость при $H\parallel b$ резко возрастает примерно на 30%, а при $H\parallel a, c^*$ наблюдается заметное различие восприимчивостей, измеренных при охлаждении в нулевом и ненулевом полях. Природа этих особенностей не ясна, отметим отдельно, что симметрия кристалла $\text{Cu(en)(H}_2\text{O)}_2\text{SO}_4$ (наличие центра инверсии между двумя позициями ионов меди) запрещает возникновение слабого ферромагнетизма.

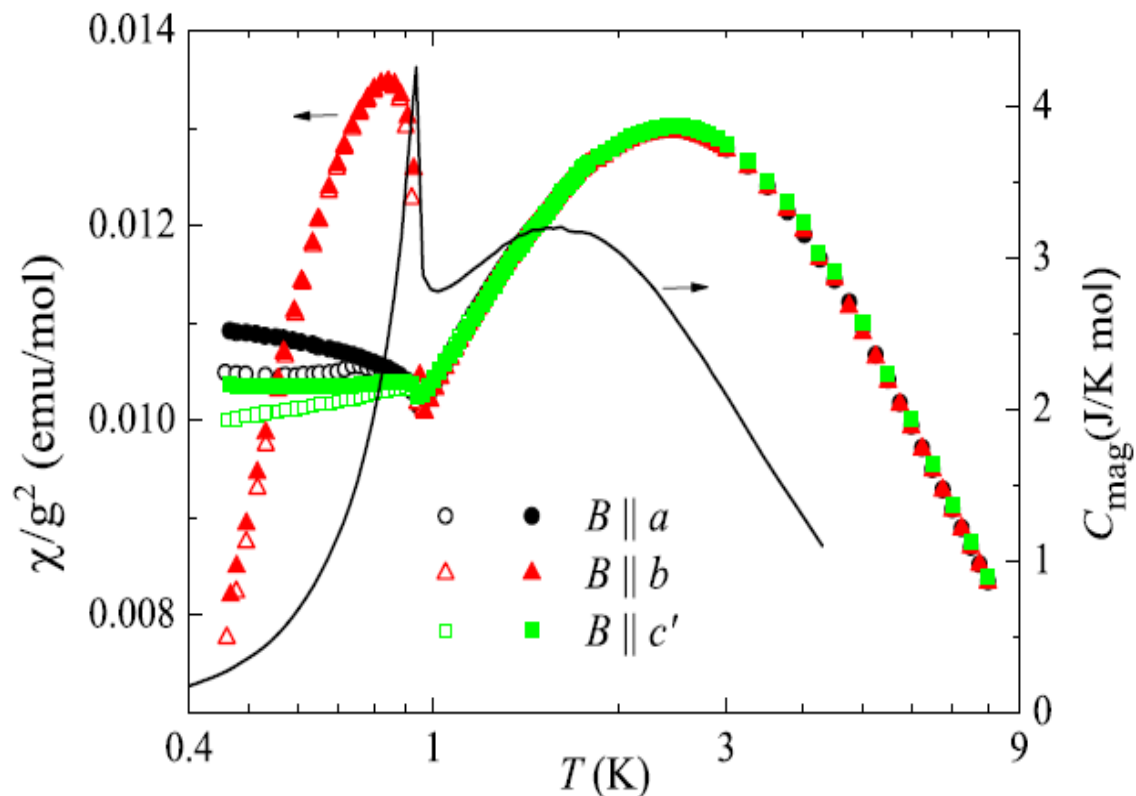


Рисунок 42: (Из статьи [28]) Температурная зависимость восприимчивости при поле $H=100$ Э. Закрашенные и открытые символы — экспериментальные данные, полученные при охлаждении при поле H и в нулевом поле соответственно. Сплошная линия — зависимость теплоемкости от температуры в нулевом поле.

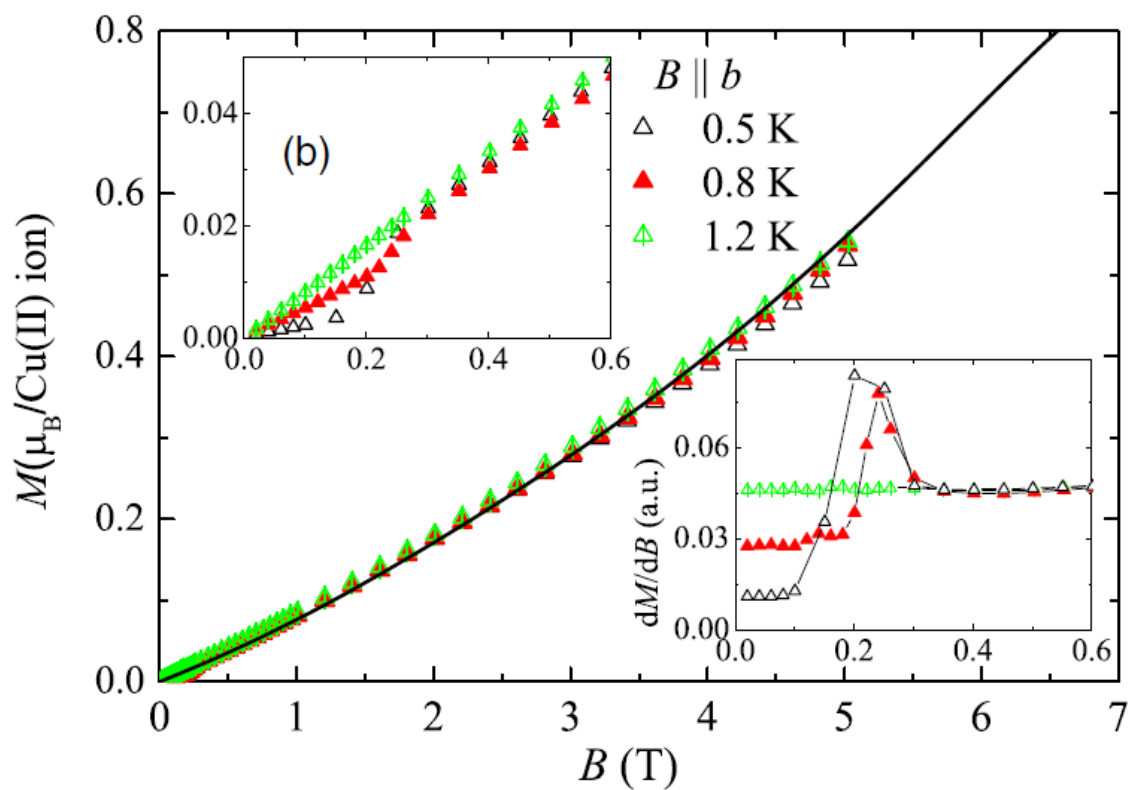


Рисунок 43: (Из статьи [28]) Кривые намагничивания при $H \parallel b$. Символы — экспериментальные данные, измеренные при поле, приложенном вдоль оси b . Сплошная линия — кривая, построенная по результатам численного моделирования магнитной восприимчивости. Верхняя вставка: кривые намагниченности в малых полях. Нижняя вставка: производная намагниченности в малых полях при поле $B \parallel b$.

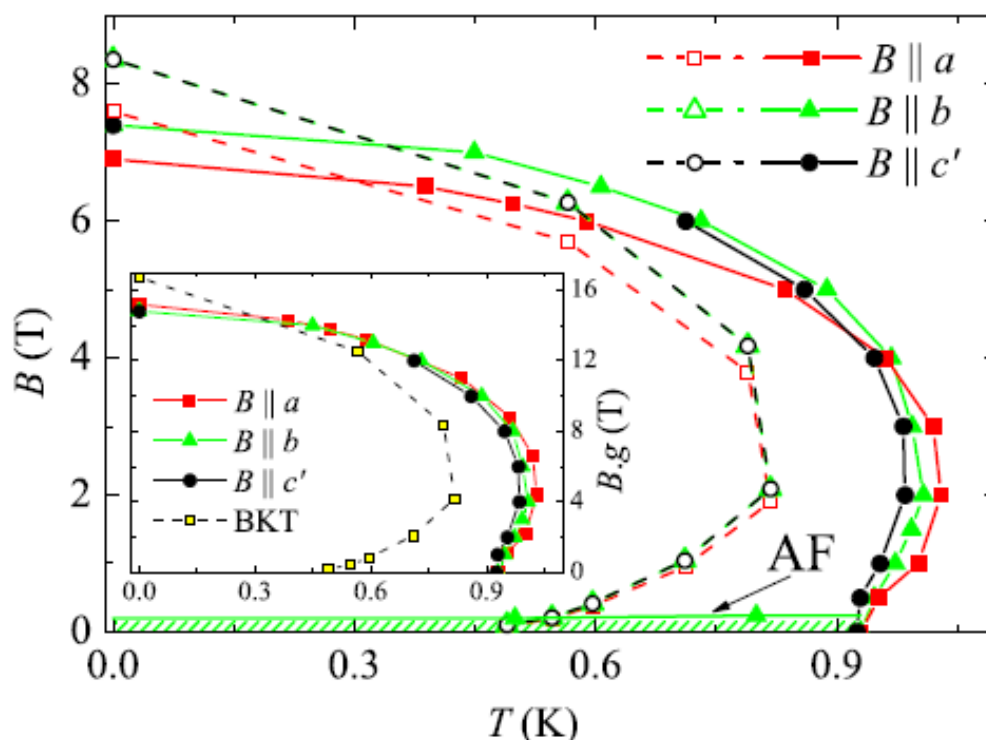


Рисунок 44: (Из статьи [28]) Фазовая диаграмма для $\text{Cu(en)(H}_2\text{O)}_2\text{SO}_4$. Закрашенные символы — экспериментальные данные, открытые символы — модель индуцированного поля перехода Березинского-Костерлица-Таулеса. На вставке: фазовая диаграмма, отмасштабированная с учетом анизотропии g -фактора.

В работе [28] по результатам измерения теплоемкости и намагниченности при разных температурах и в разных магнитных полях была определена магнитная фазовая диаграмма (рис. 44). При приложении поля температура Нееля немного увеличивается (до примерно 1 К при $B=2$ Тл), такое поведение типично для низкоразмерных магнетиков. В поле около 7 Тл наблюдается переход в поляризованную фазу. Приложенное магнитное поле стремится развернуть антиферромагнитный параметр порядка перпендикулярно к полю. Поэтому во внешнем поле в антиферромагнетике возникнет эффективная анизотропия типа «легкая плоскость», приводящая в двумерном случае к индуцированному полем переходу Березинского-Костерлица-Таулеса [30]. На рис. 44 показано сравнение экспериментальной фазовой диаграммы и вычисленной в модели индуцированного перехода Березинского-Костерлица-Таулеса для

значений обменных констант, соответствующих $\text{Cu(en)(H}_2\text{O)}_2\text{SO}_4$. Видно, что имеется неплохое согласие модели и эксперимента, указывающее на возможную важность механизма Березинского-Костерлица-Таулеса для формирования магнитного порядка в $\text{Cu(en)(H}_2\text{O)}_2\text{SO}_4$.

Экспериментальные результаты

Нами были измерены спектры резонансного поглощения для трех основных ориентаций магнитного поля $H \parallel a, b, c^*$. Так как температура Нееля этого соединения ниже 1 К, все представленные эксперименты были выполнены на криостате с откачкой паров гелия-3. На рис. 45 показаны примеры записи линии магнитного резонанса при поле, приложенном вдоль оси b . Выше точки Нееля наблюдается одна нерасщепленная линия поглощения с g -фактором, близким к 2, что типично для ионов Cu^{2+} . Измеренные значения g -фактора в зависимости от направления приложенного поля равны: $g_a = 2.28 \pm 0.02$, $g_b = 2.06 \pm 0.02$, $g_{c^*} = 2.07 \pm 0.02$. Найденные значения близки к значениям, полученным в [27]. В парамагнитной фазе линия магнитного резонанса очень узкая (составляет 10-20 Э при $T = 1.5$ К), что затрудняет ее надежное определение в наших спектрометрах из-за трудноучитываемых искажений формы линии и сравнимой с этой шириной линии неоднородностью поля в компактном сверхпроводящем соленоиде. Поэтому мы не можем провести надежное сравнение спиновой релаксации в парамагнитной фазе с предсказаниями модели перехода Березинского-Костерлица-Таулеса.

При переходе через температуру Нееля линия резонансного поглощения начинает смещаться. При этом ниже примерно 600 мК наблюдается расщепление линии антиферромагнитного резонанса на несколько компонент. Значения резонансного поля, измеренные при минимальной температуре криостата гелия-3 450 мК, показаны на частотно-полевым диаграмме на рис. 46. Видно, что имеется две щели в спектре антиферромагнитного резонанса, равных примерно 5 и 13 ГГц, при $H \parallel b$ наблюдается смягчение одной из мод АФМР в поле около 2 кЭ, при $H \parallel a$ наблюдается мода АФМР, смягчающаяся в поле

насыщения. Общий вид частотно-полевой диаграммы соответствует антиферромагнетику с «легкой», «трудной» и «средней» осями анизотропии, с легкой осью, направленной вдоль оси b кристалла, и трудной осью, близкой к направлению c^* .

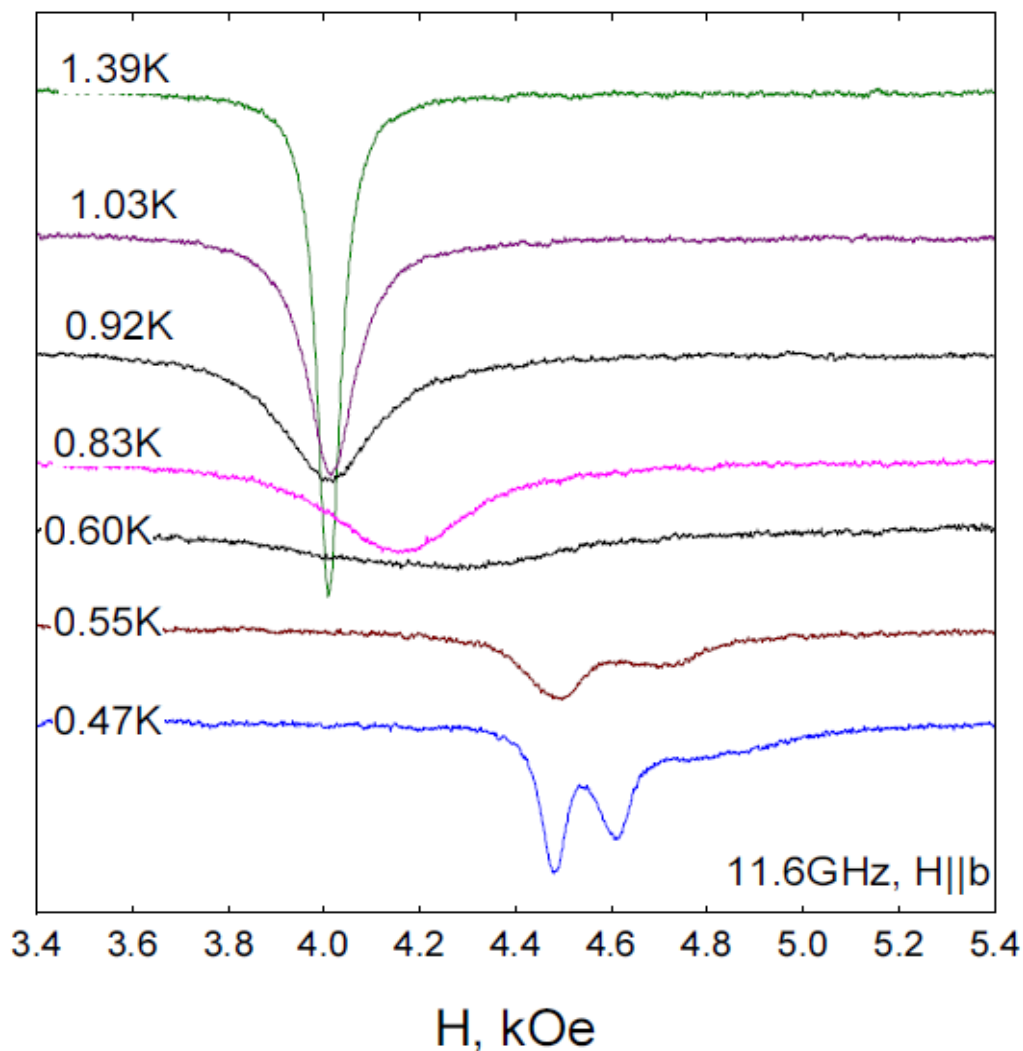


Рисунок 45: Пример записи линий магнитного резонанса при температурах 0.47-1.39 K на частоте 11.6 ГГц при поле, приложенном вдоль оси b .

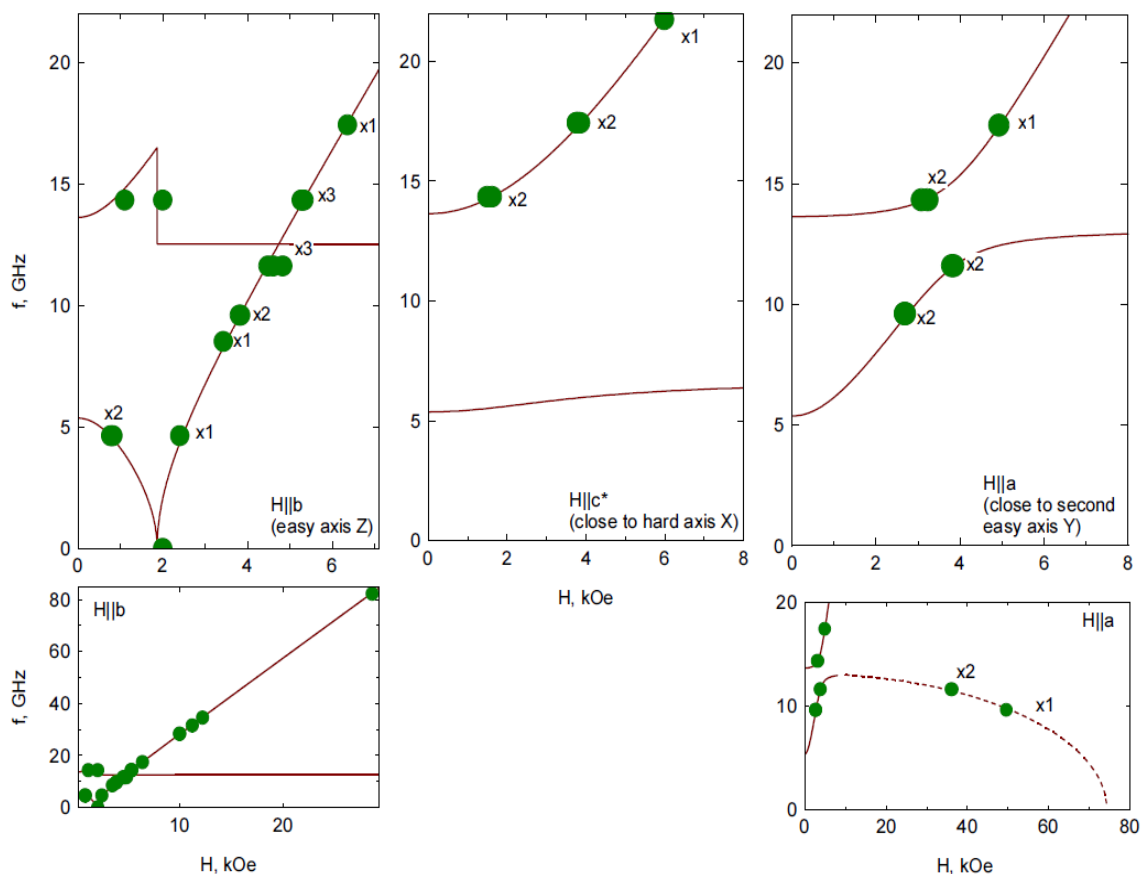


Рисунок 46: Зависимости частоты резонансного поглощения от поля при температуре $T=450$ мК. Верхний ряд: низкочастотные части $f(H)$ в малых полях. Нижний ряд: частотно-полевая диаграммы в более широком интервале частот и полей. Обозначения $x1$, $x2$, $x3$ указывают на количество наблюдаемых расщепленных компонент линий поглощения. Символы — экспериментальные данные, кривые — подгонка в модели коллинеарного антиферромагнетика.

Обсуждение

Измеренные ранее кривые намагничивания [28] указывали на то, что имеется спин-переориентационный переход при $H \parallel b$. При этом в литературе отсутствуют результаты по магнитному рассеянию нейтронов и магнитному резонансу в упорядоченной фазе. Поэтому, вообще говоря, оставался открытым вопрос о типа антиферромагнитного упорядочения: является ли сформировавшийся ниже точки Нееля порядок «обычным» коллинеарным антиферромагнитным порядком или устроен более сложным образом.

Измеренные нами частотно-полевые диаграммы (рис. 46) качественно соответствуют частотно-полевым диаграммам для коллинеарного антиферромагнетика с «легкой», «трудной» и «средней» осями анизотропии [31]. Таким образом, нами получено прямое подтверждение того, что в $\text{Cu(en)(H}_2\text{O)}_2\text{SO}_4$ формируется коллинеарный антиферромагнитный порядок. Особенности частотно-полевой зависимости мод магнитного резонанса указывают на то, что ось b оказывается «легкой» осью анизотропии, а также позволяют уточнить ориентацию других осей анизотропии: «трудная ось» анизотропии оказывается близкой к направлению c^* .

Для количественного анализа зависимости $f(H)$ воспользуемся подходом А.Ф.Андреева и В.И.Марченко [7]. Энергия анизотропии, соответствующая симметрии кристалла $\text{Cu(en)(H}_2\text{O)}_2\text{SO}_4$, может быть записана в виде:

$$U_A = \frac{a_1}{2} I_X^2 + \frac{a_2}{2} I_Y^2 + \xi \chi_{\perp} (\vec{l} \vec{H}) l_a H_a, \text{ где } a_1 > a_2 > 0.$$

Здесь первые два слагаемых описывают положение осей анизотропии: «легкая ось» направлена вдоль оси Z , совпадающей с осью b кристалла, а «трудная ось» направлена вдоль оси X , лежащей в плоскости (ac) . Так

как ось b является единственной осью второго порядка в $\text{Cu(en)}(\text{H}_2\text{O})_2\text{SO}_4$, то ориентация осей анизотропии X и Y оказывается не связанной с кристаллографическими осями. Последнее слагаемое в выражении для энергии анизотропии описывает имеющуюся анизотропию g-фактора [32], выбранная форма записи отражает случайный с точки зрения симметрии кристалла факт, что главная ось g-тензора оказалась направлена вдоль оси a кристалла [27].

Решение уравнений динамики дает следующие уравнения для частот АФМР:

- $\vec{H} \parallel b$, $H < H_{SF}$

$$f_{1,2}^2 = \gamma^2 H^2 + \frac{\Delta_1^2 + \Delta_2^2}{2} \pm \sqrt{2(\Delta_1^2 + \Delta_2^2) \gamma^2 H^2 + (\Delta_1^2 - \Delta_2^2)/4}$$

- $\vec{H} \parallel b$, $H > H_{SF}$

$$f_1^2 = \Delta_1^2 - \Delta_2^2$$

$$f_2^2 = \gamma^2 H^2 - \Delta_2^2$$

- $\vec{H} \parallel a, c^*$

$$\begin{pmatrix} \gamma_{eff}^2 H_X H_Y & -f^2 + \Delta_2^2 + \gamma_{eff}^2 H_Y^2 \\ f^2 - \Delta_1^2 - \gamma_{eff}^2 H_X^2 & -\gamma_{eff}^2 H_X H_Y \end{pmatrix} = 0 \quad , \quad \text{где} \quad \gamma_{eff} = \gamma \quad \text{для} \quad H \parallel c^* \quad ,$$

$$\gamma_{eff} = \gamma \sqrt{1 + 2\xi} \quad \text{для} \quad H \parallel a$$

При описании экспериментальных данных в качестве подгоночных параметров использовались константы анизотропии a_1 , a_2 , гиромагнитное отношение γ , параметр анизотропии g-фактора ξ и угол отклонения «трудной оси» X от кристаллографического направления c^* . Восприимчивость $\chi_{\perp}$ была положена равной 1. Модельные кривые показаны на рис. 46. Значения параметров,

соответствующих наилучшему описанию экспериментальных данных, приведено в таблице 7.

Таблица 7: Значения подгоночных параметров для модельных кривых на частотно-полевой диаграмме.

$\Delta_1 = \gamma \sqrt{a_1 / \chi_{\perp}}$	$(13.6 \pm 0.1) \text{ ГГц}$
$\Delta_2 = \gamma \sqrt{a_2 / \chi_{\perp}}$	$(5.37 \pm 0.05) \text{ ГГц}$
γ	$(2.88 \pm 0.01) \text{ ГГц/кЭ}$
$\xi = \Delta g / g$	(0.10 ± 0.02)
$ \varphi $	$(18 \pm 2)^0$

Смягчающаяся в поле насыщения мода при $H \parallel a$ может быть описана уравнением [6] $f = \Delta \sqrt{1 - (H/H_{sat})^2}$, определенное из подгонки значение поля насыщения $H_{sat} = (74 \pm 1) \text{ кЭ}$ оказывается несколько больше, чем поле насыщения на фазовой диаграмме на рис. 44, равное примерно 63 кЭ.

Наблюдаемые спектры резонансного поглощения (рис. 45) демонстрируют небольшое расщепление в антиферромагнитной фазе. Это расщепление невелико, оно составляет максимум 100-150 Э (несколько процентов от резонансного поля). Расщепление наблюдалось во всех исследованных ориентациях образца в опытах с использованием различных кристаллов. Наиболее четко расщепление наблюдалось в опытах на частотах, близких к щелям в спектре АФМР. Число наблюдаемых расщепленных компонент отмечено на рис. 46, как правило наблюдалось две компоненты, в случаях когда частота эксперимента оказывалась близка к частоте пересечения мод АФМР наблюдалась дополнительная третья компонента.

Такого расщепления не должно быть для обычного коллинеарного антиферромагнетика. Наблюдение раздвоенного сигнала антиферромагнитного резонанса, обе компоненты которого имеют

одинаковые интенсивности, указывает на то, что ниже температуры Нееля в $\text{Cu(en)(H}_2\text{O)}_2\text{SO}_4$ возникают две слегка различные антиферромагнитные подсистемы. Простейшим объяснением такого расщепления могло бы быть двойникование кристалла. Однако, при наличии двойников анизотропия g-фактора привела бы к раздвоению линии парамагнитного резонанса выше температуры Нееля, чего не наблюдалось ни в наших экспериментах, ни в работе [27], где были измерены угловые зависимости ЭПР. Таким образом, двойникование может быть исключено. Другим возможным вариантом является возникновение малых структурных искажений ниже точки Нееля, делающих чередующиеся плоскости (bc) неэквивалентными. Проверка этой гипотезы требует дополнительных исследований (ЯМР или структурных).

Выводы

В нашей работе были исследованы два низкоразмерных антиферромагнетика $\text{Ba}_2\text{MnGe}_2\text{O}_7$ и $\text{Cu(en)(H}_2\text{O)}_2\text{SO}_4$ в неупорядоченном и в упорядоченном состояниях методом магнитного резонанса в диапазоне частот от 4.5 до 120 ГГц при температурах до 450 мК .

В $\text{Ba}_2\text{MnGe}_2\text{O}_7$ нами было подтверждено формирование коллинеарного антиферромагнитного параметра порядка с анизотропией типа «легкая плоскость», определен размер щели в спектре, равный 24 ГГц, была обнаружена связь между ядерными и электронными моментами в ядрах марганца и была определена константа взаимодействия ядерной и электронной подсистем. Также нами было доказано наличие слабой анизотропии в плоскости, перпендикулярной главной оси анизотропии. Мы показали, что температурная зависимость ширины линии ЭПР выше точки Нееля может быть описана в модели перехода Березинского-Костерлица-Таулеса.

В $\text{Cu(en)(H}_2\text{O)}_2\text{SO}_4$ было подтверждено формирование коллинеарного антиферромагнитного параметра порядка с «легкой», «средней» и «трудной» осями анизотропии, были определены оси анизотропии и параметры анизотропии в упорядоченной фазе. Также мы наблюдали расщепление линии антиферромагнитного резонанса, которое может быть связано с формированием ниже температуры Нееля неэквивалентных слабо связанных антиферромагнитных подсистем.

Благодарности

Автор благодарит Глазкова Василия Николаевича за проявленное терпение и помощь в процессе выполнения и написания дипломной работы. Смирнова Александра Ивановича за полезные замечания и полученные знания . Красникову Юлию Владимировну за подробные

ответы на поставленные вопросы и поддержку. Готовко Софью Клементовну за дружелюбную атмосферу.

Также автор благодарит Т.Масуду (International Graduate School of Arts and Science, Yokohama City University) и А.Орендакову (Centre of Low Temperature Physics of SAS and Institute of Physics, P.J.Safarik University) за предоставленные образцы.

Автор выражает благодарность Т.Курцу (Университет Аугсбурга) за программу MeasurementCommander, использовавшуюся для подгонки спектров резонансного поглощения .

Библиография

- 1: N.D.Mermin, H.Wagner, Absence of Ferromagnetism or Antiferromagnetism in One- or Two-Dimensional Isotropic Heisenberg Models, Phys. Rev. Letters 17, 1133 (1966)
- 2: J.M.Kosterlitz, D.J.Thouless, Ordering, metastability and phase transitions in two-dimensional systems, Phys. C 6, 1181 (1973)
- 3: А.П. Пятаков, А.К. Звездин, Магнитоэлектрические материалы и мультиферроики, Успехи физических наук 182, 593 (2012)
- 4: Л.Д.Ландау, Е.М.Лифшиц, Теоретическая физика том 3. Квантовая механика (Нерелятивистская теория), Наука (1989)
- 5: Е.А.Туров, Физические свойства магнитоупорядоченных кристаллов, Академия наук СССР (1963)
- 6: А.Г.Гуревич, Г.А.Мелков, Магнитные колебания и волны, Наука (1994)
- 7: А.Ф.Андреев, В.И.Марченко, Симметрия и макроскопическая динамика магнетиков, Успехи физических наук 130, 39 (1980)
- 8: В.Н.Глазков, Экспериментальное исследование спин-пайерлсовского магнетика с дефектами, ИФП РАН, кандидатская диссертация (2003)
- 9: H. Murakawa, Y.Onose, S.Miyahara, N.Furukawa, Y.Tokura, Comprehensive study of the ferroelectricity induced by the spin-dependent d - p hybridization mechanism in Ba₂XGe₂O₇ (X=Mn, Co, Cu), Phys. Rev. B 85, 174106 (2012)
- 10: T.Masuda, S.Kitaoka, S.Takamizawa, N.Metoki, K.Kaneko, K.C.Rule, K.Kiefer, H.Manaka, H.Nojiri, Instability of magnons in two-dimensional antiferromagnets at high magnetic fields, Phys. Rev. B 81, 100402 (R) (2010)
- 11: Andrew Sazonov , Vladimir Hutanu, Martin Meven, Georg Roth, Robert Georgii, Takatsugu Masuda, and Bálint Náfrádi , Crystal Structure of Magnetoelectric Ba₂MnGe₂O₇ at Room and Low Temperatures by Neutron Diffraction, Inorg. Chem. 57, 5089 (2018)
- 12: Y. Iguchi, Y. Nii, M. Kawano, H. Murakawa, N. Hanasaki, and Y. Onose, Microwave nonreciprocity of magnon excitations in the noncentrosymmetric antiferromagnet Ba₂MnGe₂O₇, Phys. Rev. B 98, 064416 (2018)
- 13: L. J. de Jongh and A. R. Miedema, Experiments on simple magnetic model systems, Advances in Physics 50, 947 (2001)
- 14: В.Н.Глазков, Numerical calculation of antiferromagnetic resonance frequencies for collinear antiferromagnet, 2019, <http://www.kapitza.ras.ru/rgroups/esrgroup/numa.html>
- 15: Е.А.Туров, М.П.Петров, Ядерный магнитный резонанс в ферро- и антиферромагнетиках, Наука (1969)
- 16: Kenneth Lee, A. M. Portis, and G. L. Witt, Magnetic Properties of the Hexagonal Antiferromagnet CsMnF₃, Phys. Rev. 132, 144 (1963)
- 17: Dale T. Teaney, Marvin J. Freiser, and R. W. H. Stevenson, Discovery of a Simple Cubic Antiferromagnet: Antiferromagnetic Resonance in RbMnF₃,

- Phys. Rev. Letters 9, 212 (1962)
- 18: A.S.Borovik-Romanov, N.M.Kreines, L.A.Prozorova, Antiferromagnetic resonance in MnCO_3 , JETP 18, 46 (1964)
- 19: Л.А.Прозорова, Экспериментальное исследование спиновых волн в антиферромагнетиках, ИФП РАН, докторская диссертация (1975)
- 20: A.J.Heeger, A.M.Portis, Dale T. Teaney, Gerald Witt, Double resonance and nuclear cooling in an antiferromagnet, Phys. Rev. Letters 7, 307 (1961)
- 21: Л.А.Прозорова, С.С.Сосин, Д.В.Ефремов, С.В.Петров, Исследование сверхтонкого взаимодействия в антиферромагнетике CsMnI_3 , ЖЭТФ 112, 1893 (1997)
- 22: И.А.Зализняк, Н.Н.Зорин, С.В.Петров, Исследование щели в спектре АФМР в квазиодномерном гексагональном антиферромагнетике CsMnBr_3 , ЖЭТФ 64, 433 (1996)
- 23: А.М.Тихонов, ЯМР на Mn-55 в квазиодномерных неколлинеарных антиферромагнетиках, ИФП РАН, кандидатская диссертация (1998)
- 24: О.Г.Удалов, Спектр ЯМР в неколлинеарном антиферромагнетике $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, ЖЭТФ 140, 561 (2011)
- 25: С.А.Альтшулер, Б.М.Козырев, Электронный парамагнитный резонанс соединений элементов промежуточных групп, Наука (1972)
- 26: M.Heinrich, H.-A.Krug von Nidda, A.Loidl, N.Rogado, R.J.Cava, Potential Signature of a Kosterlitz - Thouless Transition in $\text{BaNi}_2\text{V}_2\text{O}_8$, Phys. Rev. Letters 91, 13 (2003)
- 27: R.Tarasenko, A.Orendacova, E.Cizmar, S.Matas, M.Orendac, I.Potocnak, K.Siemensmeyer, S.Zvyagin, J.Wosnitza, A.Feher, Spin anisotropy in $\text{Cu(en)(H}_2\text{O)}_2\text{SO}_4$: A quasi-two-dimensional $S=1/2$ spatially anisotropic triangular-lattice antiferromagnet, Phys. Rev. B 87, 174401 (2013)
- 28: L.Lederova, A.Orendacova, J.Chovan, J.Strecka, T.Verkholyak, R.Tarasenko, D.Legut, R.Sykora, E.Cizmar, V.Tkac, M.Orendac, A.Feher, Realization of a spin-1/2 spatially anisotropic square lattice in a quasi-two-dimensional quantum antiferromagnet $\text{Cu(en)(H}_2\text{O)}_2\text{SO}_4$, Phys.Rev. B 95, 054436 (2017)
- 29: Rudolf Sykora, Dominik Legut, Magnetic interactions in a quasi-one-dimensional antiferromagnet $\text{Cu(H}_2\text{O)}_2\text{(en)SO}_4$, Applied physics 115, 17B305 (2014)
- 30: A. Cuccoli, T. Roscilde, R. Vaia, and P. Verrucchi, Field-induced XY behavior in the $S=1/2$ antiferromagnet on the square lattice, Phys. Rev. B 68, 060402 (2003)
- 31: T. Nagamiya, K. Yosida and R.Kubo, Antiferromagnetism, Advances in Physics 4, 1 (1955)
- 32: V. N. Glazkov, A. I. Smirnov, A. Revcolevschi, and G. Dhalenne, Magnetic resonance study of the spin-reorientation transitions in the quasi-one-dimensional antiferromagnet $\text{BaCu}_2\text{Si}_2\text{O}_7$, Phys. Rev. B 72, 104401 (2005)