

МИНИСТЕРСТВО ОБРАЗОВАНИЯ И НАУКИ РОССИЙСКОЙ ФЕДЕРАЦИИ
МОСКОВСКИЙ ФИЗИКО-ТЕХНИЧЕСКИЙ ИНСТИТУТ (государственный университет)
ФАКУЛЬТЕТ ОБЩЕЙ И ПРИКЛАДНОЙ ФИЗИКИ
КАФЕДРА ФИЗИКИ И ТЕХНИКИ НИЗКИХ ТЕМПЕРАТУР

ИНСТИТУТ ФИЗИЧЕСКИХ ПРОБЛЕМ ИМ. П. Л. КАПИЦЫ РАН

Юлия Красникова

**Экспериментальное исследование магнитного
резонанса в магнетике типа "спиновая лестница" и в
антиферромагнетике с неколлинеарной структурой**

03.04.01 – Прикладные математика и физика

ВЫПУСКНАЯ КВАЛИФИКАЦИОННАЯ РАБОТА МАГИСТРА

Научный руководитель
к.ф.-м.н., старший научный
сотрудник
Глазков Василий Николаевич

Москва
2016

Содержание

1	Введение	2
2	Методика измерения и образцы	4
2.1	Электронный магнитный резонанс	4
2.1.1	Элементы теории ЭПР	4
2.1.2	ЭПР в спин-щелевом магнетике	6
2.1.3	Магнитный резонанс в упорядоченной фазе антиферромагнетика	6
2.2	Методика эксперимента	7
2.3	Подготовка образцов	10
3	Магнитный резонанс в магнетике типа спиновая лестница	15
3.1	Введение	15
3.1.1	Магнетик типа спиновая лестница	15
3.1.2	Спиновая лестница в $(\text{C}_7\text{H}_{10}\text{N}_2)_2\text{CuBr}_4$	17
3.2	Экспериментальные результаты и обсуждения	21
3.2.1	Анизотропия g -фактора	21
3.2.2	ЭПР при низких температурах	23
3.2.3	Расщепление триплетных подуровней системы связанных димеров взаимодействием Дзялошинского-Мория	26
3.2.4	Анализ высокотемпературной ширины линии ЭПР	27
3.2.5	Зависимость тонкой структуры спектра возбуждений от магнитного поля	28
3.2.6	Зависимость ширины линии ЭПР от температуры	29
3.3	Выводы	31
4	Магнитный резонанс в неколлинеарном антиферромагнетике $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$	33
4.1	Введение	33
4.2	Применение теории обменной симметрии к спиновой динамике $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$	36
4.2.1	Описание спектров АФМР в рамках теории обменной симметрии	36
4.2.2	Применение численных методов к описанию частотно-полевых зависимостей АФМР	37
4.3	Экспериментальные результаты и обсуждения	39
4.3.1	Частотно-полевые зависимости АФМР	39
4.3.2	Перестройка спектра поглощения при антиферромагнитном упорядочении в $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$	42
4.3.3	Наблюдение гистерезиса резонансного поглощения и доменная структура антиферромагнитной фазы $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$	48
4.4	Выводы	53
5	Заключение	54
6	Благодарности	54
	Список литературы	55

1 Введение

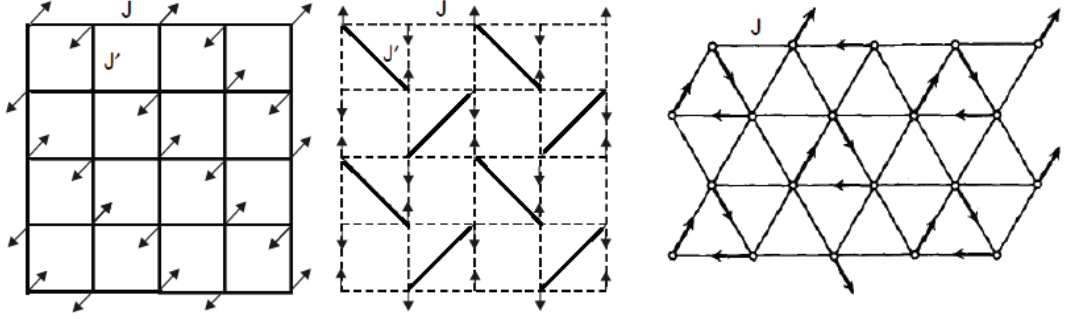


Рис. 1.1: Схемы антиферромагнитного упорядочивания на различных двумерных решетках. Панели слева направо: квадратная решетка, модель Шастри-Сазерленда, треугольная решетка. J , J' – обменные константы, обменные связи отмечены сплошными и пунктирными линиями соответственно, рисунки на основе работ [1], [2].

В кристаллах, содержащих магнитные ионы, во многих случаях гейзенберговское обменное взаимодействие является основным спин-спиновым взаимодействием. На регулярной решетке гамильтониан этого взаимодействия может быть представлен в виде:

$$\hat{\mathcal{H}} = \sum_{\langle i,j \rangle} J_{i,j} \hat{\mathbf{S}}_i \hat{\mathbf{S}}_j = \sum_{\langle i,j \rangle} J_{i,j} (\hat{S}_i^z \hat{S}_j^z + \frac{1}{2} (\hat{S}_i^+ \hat{S}_j^- + \hat{S}_i^- \hat{S}_j^+)), \quad (1.1)$$

здесь индексы i, j нумеруют магнитные ионы на решетке, обозначение $\langle i, j \rangle$ показывает, что каждая пара учитывается при суммировании только один раз.

Для описания свойств такой системы необходимо решить задачу о нахождении ее основного состояния и спектра возбуждений. Для ферромагнетика ($J_{i,j} < 0$) основным состоянием является полностью поляризованное состояние с волновой функцией вида $|\uparrow\uparrow \dots \uparrow\uparrow\rangle$. Для антиферромагнетика ($J_{i,j} > 0$) задача о волновой функции основного состояния оказывается гораздо сложнее. Если перейти к классическому пределу, заменив спиновые операторы спиновыми векторами, и учитывать только взаимодействия ближайших соседей, то минимальную энергию будет иметь состояние с чередующимися направлениями спиновых векторов, так что спины ближайших соседей всегда антипараллельны. Такое состояние называют неелевским. Однако, если аналогичным образом сконструировать волновую функцию

$$\psi_{\mathcal{N}} = |\uparrow\downarrow\uparrow\downarrow \dots \uparrow\downarrow\uparrow\downarrow\rangle, \quad (1.2)$$

то она не является собственной функцией гамильтониана (1.1).

Тем не менее для большинства антиферромагнетиков порядок устанавливается типа неелевского, но среднее значение проекции спина на узле оказывается несколько меньше номинального значения. Этот эффект называется редукцией спина. Для антиферромагнетика на трехмерной кубической решетке эффект редукции спина оценивается в несколько процентов [3].

Однако известны случаи, когда из-за специальной архитектуры обменных связей коллинеарный порядок неелевского типа не реализуется вовсе. Например в классической модели антиферромагнетика на треугольной решетке (рис. 1.1) минимальной

обменной энергии соответствует так называемая 120-ти градусная спиновая структура, которая описывается тремя неколлинеарными подрешетками. Антиферромагнетики такого типа называют неколлинеарными антиферромагнетиками. Неколлинеарный обменный порядок часто встречается в структурах, где присутствуют треугольные мотивы в архитектуре обменных связей. В одномерных спиновых цепочках или в системах, структурным блоком которых является антиферромагнитный димер, порядок не устанавливается вовсе из-за квантовых эффектов [4].

В этой работе будут рассмотрены именно системы, где не реализуется коллинеарный порядок типа неелевского, или порядок вовсе не реализуем: неколлинеарный фрустрированный антиферромагнетик $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, а также магнетик типа спиновая лестница $(\text{C}_7\text{H}_{10}\text{N}_2)_2\text{CuBr}_4$.

Мы покажем, что в магнетике типа спиновая лестница при низких температурах магнитный резонанс связан с квантованными коллективными триплетными возбуждениями. Высокое энергетическое разрешение методики ЭПР позволяет надежно обнаружить тонкую структуру энергетического спектра этих триплетных возбуждений, связанную с анизотропными спин-спиновыми взаимодействиями.

Мы также покажем, что в неколлинеарном антиферромагнетике низкочастотные моды коллективных возбуждений (спиновых волн) могут быть успешно описаны в рамках теории обменной симметрии. Высокая чувствительность методики ЭПР позволяет обнаружить эффекты, связанные с перестройкой структуры магнитных доменов.

Работа выполнена в Институте физических проблем им. П. Л. Капицы.

2 Методика измерения и образцы

2.1 Электронный магнитный резонанс

2.1.1 Элементы теории ЭПР

Рассмотрим простейшую задачу: одиночный спин $1/2$ в магнитном поле. В магнитном поле спиновые подуровни расщепляются в соответствии с проекцией спина на направление магнитного поля, расстояние между спиновыми подуровнями равно $\Delta E = g\mu_B H$. Если помимо постоянного поля приложить переменное магнитное поле малой амплитуды $\mathbf{h} = \mathbf{h}_0 e^{-i\omega t}$, то при совпадении энергии кванта $\hbar\omega$ с расщеплением спиновых подуровней ΔE возможно резонансное поглощение электромагнитного поля.

Вероятность перехода между i -ым и j -ым спиновыми подуровнями под действием поля резонансной частоты определяется "золотым правилом" Ферми [5]:

$$p_{ij} \propto \left| \langle i | (\mathbf{h}_0 \cdot \hat{\mathbf{S}}) | j \rangle \right|^2. \quad (2.1)$$

Возникновение поглощения соответствует появлению резонансной особенности у мнимой части восприимчивости χ'' . Поглощаемая в образце мощность связана с мнимой частью восприимчивости как $P_L = \pi\nu\chi'' \int_s h^2 dV$, где $\int_s h^2 dV$ – интеграл по объему образца от квадрата амплитуды переменного поля.

В идеальном модельном случае сигнал поглощения имел бы нулевую ширину. Наличие спин-спиновых и спин-решеточных взаимодействий в парамагнетике приводит к размытию спиновых подуровней и вызывает уширение линии резонансного поглощения. В простейшем случае диполь-дипольного взаимодействия эффект уширения линии может быть интерпретирован, как возникновение дополнительно к постоянно-му магнитному полю флуктуирующего поля от случайно ориентированных магнитных диполей.

Для описания ширины линии парамагнитного резонанса при высоких температурах существует теория моментов Ван-Флека [6]. Этот формализм позволяет выразить моменты линии поглощения

$$M_n = \int_{-\infty}^{\infty} \omega^n \chi'' d\omega \quad (2.2)$$

через средние значения некоторых комбинаций операторов спин-спиновых взаимодействий. Такой анализ показывает, что уширение линий определяется анизотропными спин-спиновыми взаимодействиями. Для линий поглощения лоренцевой формы (такая форма типична при наличии сильного гейзенберговского обменного взаимодействия), полуширина на полувысоте может быть рассчитана из соотношений (2.3)–(2.5) [7]:

$$\Delta H = C \left(\frac{M_2^3}{M_4} \right)^{1/2}, \quad (2.3)$$

где $\hat{\mathcal{H}}_{anis}$ – анизотропная часть гамильтониана спин-спинового взаимодействия, а $\hat{\mathcal{H}}_{ex}$ – его изотропная (гейзенберговская часть).

$$M_2 = \frac{\langle [\hat{\mathcal{H}}_{anis}, \hat{S}^+] [\hat{S}^-, \hat{\mathcal{H}}_{anis}] \rangle}{h^2 \langle \hat{S}^+ \hat{S}^- \rangle} \quad (2.4)$$

$$M_4 = \frac{\langle [\hat{\mathcal{H}}_{ex}, [\hat{\mathcal{H}}_{anis}, \hat{S}^+] [\hat{S}^-, \hat{\mathcal{H}}_{anis}], \hat{\mathcal{H}}_{ex}] \rangle}{h^4 \langle \hat{S}^+ \hat{S}^- \rangle} \quad (2.5)$$

Таким образом анализ высокотемпературной ширины линии ЭПР открывает возможность к определению параметров анизотропных спин-спиновых взаимодействий.

Анизотропные взаимодействия могут приводить не только к уширению линии. Если спин магнитного иона $S > 1/2$, то из-за совместного действия спин-орбитального взаимодействия и взаимодействия электронов с электрическими полями, создаваемыми кристаллическим окружением магнитного иона, возможно снятие вырождения по проекции спина. Этот эффект называют кристаллическим полем [6]. В простейшем случае аксиальной симметрии кристаллическое поле может быть описано вкладом в спиновый гамильтониан вида:

$$\hat{\mathcal{H}}_{CF} = C\hat{\mathbf{S}}_z^2 \quad (2.6)$$

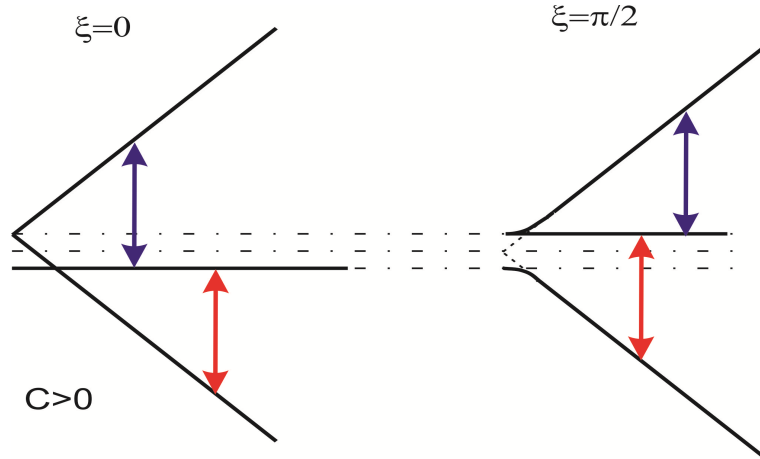


Рис. 2.1: Расщепление уровней энергии спина $S = 1$ в аксиальном кристаллическом поле для магнитного поля, приложенного вдоль оси анизотропии (слева) и перпендикулярно к оси анизотропии (справа). Изображен случай $C > 0$, стрелками показано положение переходов с одинаковой энергией, красной стрелкой показан переход с основного подуровня.

Для случая спина $S = 1$ зависимость энергии спиновых подуровней от магнитного поля может быть найдена аналитически при $\mathbf{H} \parallel z$ и $\mathbf{H} \perp z$ (рис.2.1) [6]. Для произвольной ориентации магнитного поля нахождение собственных значений энергии становится громоздким. Вычисления могут быть упрощены в случае сильного поля ($g\mu_B H \gg C$), когда направление поля является осью квантования, и в первом порядке эффект кристаллического поля может быть описан эффективной константой анизотропии:

$$\hat{\mathcal{H}}_{CF} = C_{eff}\hat{\mathbf{S}}_z^2, \quad C_{eff} = C(3\cos^2 \xi - 1), \quad (2.7)$$

где ξ — угол между магнитным полем и осью анизотропии.

В эксперименте на фиксированной частоте поля резонансного поглощения для переходов с $\Delta S_z = \pm 1$ в присутствии кристаллического поля отличаются и определяются условием:

$$\hbar\omega = g\mu_B H_{1,2} \pm C_{eff} \quad (2.8)$$

Таким образом по величине расщепления компонент тонкой структуры можно определить величину константы анизотропии.

Наконец, отметим связь интегральной интенсивности сигнала ЭПР со статической восприимчивостью. По соотношению Крамерса-Кронига [8]:

$$\chi_0 = \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\chi''(\omega)}{\omega} d\omega, \quad (2.9)$$

поэтому для узкой линии резонансного поглощения: $\int_0^{\infty} \chi''(\omega) d\omega \propto \int_0^{\infty} \chi''(H) dH \propto \chi_0$. То есть интегральная интенсивность ЭПР пропорциональна статической восприимчивости.

2.1.2 ЭПР в спин-щелевом магнетике

Существуют магнетики, к числу которых относится и изучаемый в нашей работе магнетик типа спиновая лестница, в которых несмотря на наличие сильного антиферромагнитного обменного взаимодействия, магнитный порядок не устанавливается до самых низких температур, основное состояние является немагнитным синглетом, а спектр триплетных возбуждений отделен от основного состояния щелью. Такие магнетики называют спин-щелевыми магнетиками. Во многих случаях спин-щелевые магнетики являются системой связанных антиферромагнитных спиновых димеров. Магнитный резонанс в таких системах имеет несколько особенностей.

При низких температурах количество триплетных возбуждений мало и магнитные свойства спин-щелевого магнетика могут быть описаны как свойства разреженного газа коллективных триплетных возбуждений. Поэтому при понижении температуры статическая магнитная восприимчивость и интегральная интенсивность сигнала ЭПР должны экспоненциально вымерзнуть. Кроме того, так как триплетное возбуждение несет спин $S = 1$, для него возможно расщепление спиновых подуровней, аналогичное расщеплению спиновых подуровней магнитных ионов в кристаллическом поле. Это эффективное кристаллическое поле создается анизотропными спин-спиновыми взаимодействиями.

2.1.3 Магнитный резонанс в упорядоченной фазе антиферромагнетика

Низкоэнергетическая динамика антиферромагнетика соответствует коллективным степеням свободы: спиновым волнам. Так как длина волны используемого в экспериментах электромагнитного излучения (~ 1 см) много больше межатомного расстояния, то такое переменное поле вынуждает однородные колебания упорядоченной спиновой структуры. Таким образом, резонансное поглощение в антиферромагнетике соответствует возбуждению спиновых волн с $k = 0$. Зависимость частоты резонансного поглощения от поля содержит информацию о свойствах антиферромагнетика: частота резонансного поглощения в нулевом поле определяется параметрами анизотропии, а при спин-переориентационных переходах в магнитном поле часто смягчается одна из ветвей спектра АФМР.

Задачу о нахождении спектра АФМР можно решать с помощью разных подходов. Один из наиболее распространенных подходов — это разбиение антиферромагнетика на подрешетки из сонаправленных спинов и учет взаимодействия этих подрешеток в модели среднего поля [11]. Но этот метод не всегда является эффективным, он существенно использует необоснованные строго модельные предположения и при этом не всегда является эффективным. Если подрешеток больше, чем две, то размерность системы связанных уравнений динамики для подрешеток растет, и аналитическое решение становится очень громоздким. Спектр спиновых волн может быть найден и квантово-механическим образом с использованием преобразования Холштейна-Примакова [3]. Однако, приме-

нение этого метода к многоподрешеточным антиферромагнетикам также сопряжено с большими вычислительными сложностями.

В этой работе для описания динамики антиферромагнетика будет использоваться теория обменной симметрии Андреева-Марченко [9]. В рамках этого подхода считается, что обменные взаимодействия обеспечивают жесткость упорядоченной спиновой структуры. Тогда эта структура может быть описана не более чем тремя единичными взаимно-ортогональными векторами $\{\mathbf{l}_i\}$, а колебания этой спиновой структуры могут быть описаны как колебания векторов $\{\mathbf{l}_i\}$. Эта теория не использует модельного разбиения на подрешетки, однако ее применимость ограничена малыми полями.

2.2 Методика эксперимента

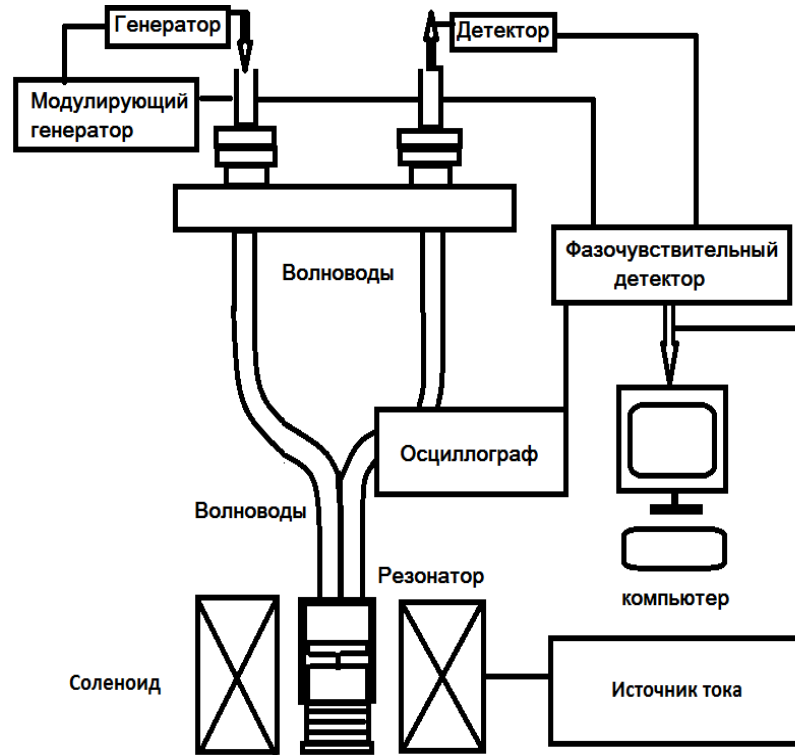


Рис. 2.2: Схема спектрометра.

Схема используемого спектрометра проходного типа представлена на рис. 2.2. Для повышения чувствительности образец помещается в резонатор. Сигнал СВЧ от генератора подводится по одному волноводу к резонатору с образцом, а по другому волноводу сигнал выводится на детектор. Напряжение на квадратичном детекторе пропорционально мощности, прошедшей через резонатор с образцом.

Связь прошедшей и падающей мощности выражается следующим образом [10]:

$$\frac{P_{out}}{P_{in}} = \frac{4\beta_1\beta_2}{(1 + \beta_1 + \beta_2)^2}$$

β_1, β_2 – коэффициенты связи резонатора с подводящими волноводами.

Отношение мощности потерь в образце P_L к мощности омических потерь в стенках резонатора P_0 [10]:

$$\eta = \frac{P_L}{P_0} = 4\pi\alpha Q_0\chi''$$

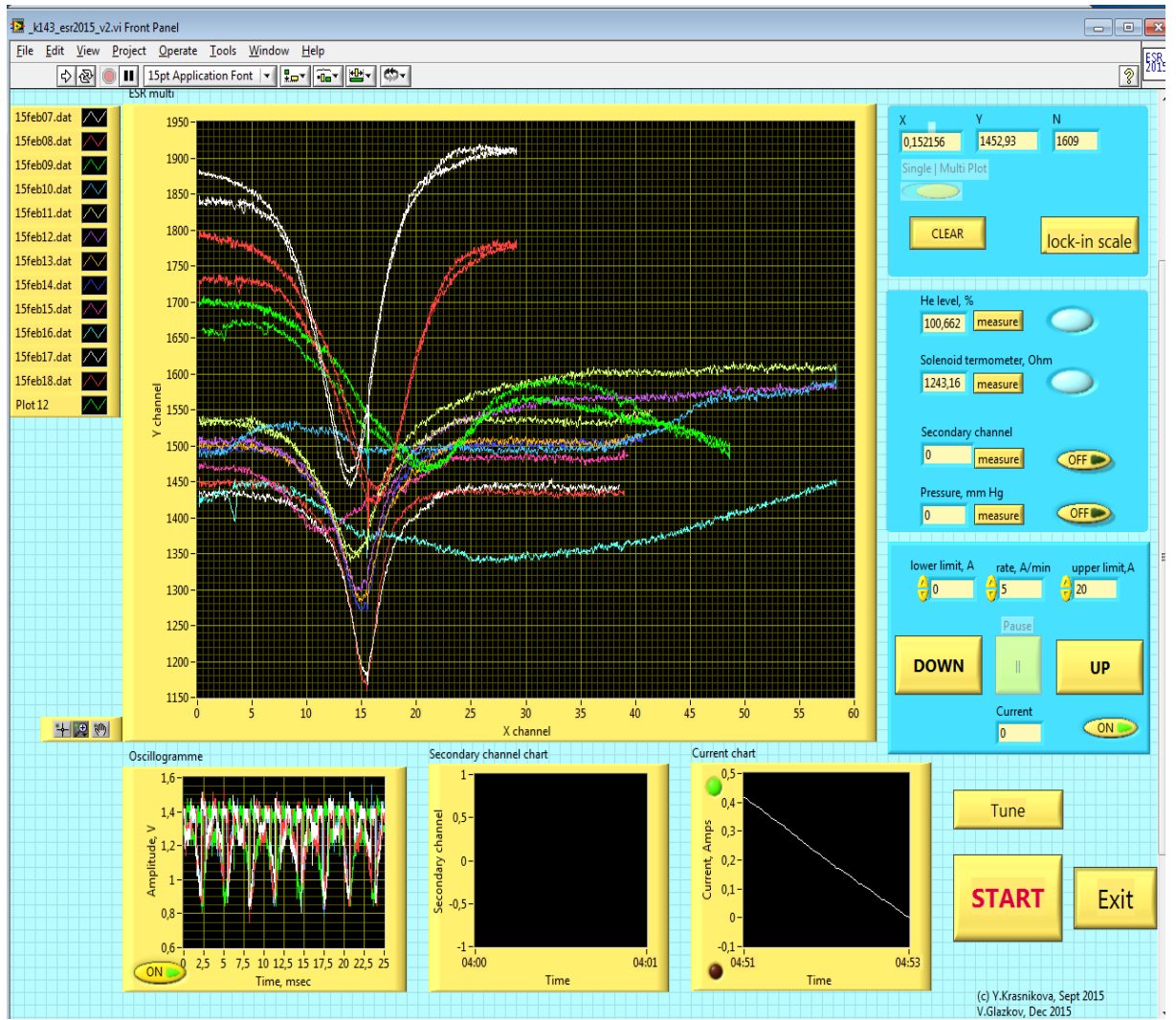


Рис. 2.3: Вид окна рабочей программы для записи спектра.

$$Q_0 = Q_L(1 + \beta_1 + \beta_2),$$

где Q_0 – добротность, связанная только с омическими потерями, выраженная через добротность Q_L того же резонатора с двумя элементами связи, $\alpha = \int_S h^2 dV / \int_{res} h^2 dV$ (интегрирование производится по объему образца и объему резонатора) – коэффициент заполнения резонатора. Коэффициенты связи резонатора с образцом можно выразить через коэффициенты связи пустого резонатора и мнимую часть восприимчивости образца:

$$\beta_i = \frac{\beta_i^{(0)}}{1 + \eta} = \frac{\beta_i^{(0)}}{1 + 4\pi\alpha Q_0 \chi''}$$

Выражение для отношения прошедшей и поступающей мощностей будет зависеть от мнимой части восприимчивости следующим образом:

$$\frac{P_{out}}{P_{in}} = \frac{4\beta_1^{(0)}\beta_2^{(0)}}{(1 + \beta_1^{(0)} + \beta_2^{(0)})^2} \frac{1}{(1 + 4\pi\alpha Q_0 \chi'')^2} \quad (2.10)$$

Таким образом, изменение сигнала на детекторе при малом поглощении пропорционально мнимой части восприимчивости.

В работе использовался набор СВЧ-генераторов, покрывающих диапазон от 9 до 150 ГГц, и несколько спектрометрических вставок с резонаторами различной формы, оптимизированных для различных диапазонов частот.

В ходе эксперимента мощность, прошедшая через резонатор с образцом, записывается как функция медленно изменяющегося магнитного поля. Магнитное поле в низкотемпературных экспериментах создавалось сверхпроводящим соленоидом с максимальным полем 8 или 12 Тл. В высокотемпературных (выше 77 К) экспериментах использовался водоохлаждаемый магнит.

Основная часть экспериментов была выполнена на криостате с откачкой паров ^4He , минимально доступная температура составляла 1.7 К. Несколько серий экспериментов со спин-щелевым магнетиком $(\text{C}_7\text{H}_{10}\text{N}_2)_2\text{CuBr}_4$ и серия измерений с неколлинеарным антиферромагнетиком $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ были выполнены на ЭПР-спектрометре с криостатом с откачкой паров ^3He , минимальная температура, доступная на этой установке составляла 450 мК. Характеристики использованных спектрометров показаны в таблице 1.

Таблица 1: Сводная таблица по использованным экспериментальным установкам

Название используемого спектрометра	Диапазон частот f , ГГц	Диапазон температур T , К	Максимальное магнитное поле B , Тл
Спектрометр с криостатом откачки ^4He (основной)	9-140	1.7-100	8
Спектрометр с криостатом откачки ^4He (только для низкочастотных измерений, выполненных Т. Солдатовым)	4-6	1.2-4.2	8
Спектрометр с криостатом откачки ^3He	22-140	0.45-5	12
Спектрометр с водоохлаждаемым магнитом (для измерений выше 77 К, в лаборатории А. Б. Дровосекова)	17-25	77-300	1.2

Используемое для регистрации спектров электронное оборудование несколько различалось на разных спектрометрах, опишем подробнее оборудование основного спектрометра с металлическим криостатом откачки ^4He (рис. 2.2). Выходная мощность СВЧ-сигнала модулировалась по амплитуде меандром частоты около 1 кГц. Сигнал с детектора поступал на фазочувствительный детектор (Lock-In Amplifier SR830), синхронизированный с частотой модуляции. Усиленный фазочувствительным детектором сигнал визуально контролировался на осциллографе. Измеряемое фазочувствительным детектором значение напряжения передавалось на компьютер по интерфейсу GPIB. Ток через сверхпроводящий соленоид создавался управляемым компьютером источником тока (TDK-Lambda 6-100). Управление источником тока осуществлялось через СОМ-порт. Точное значение проходящего через соленоид тока определялось по падению напряжения на калиброванном сопротивлении (примерно 1 мОм) в цепи соленоида. Напряжение на калиброванном резисторе измерялось мультиметром (Keithley 2000), связанным с компьютером по интерфейсу GPIB. Мультиметр Keithley был снабжен картой, позволяющей переключать измерительные каналы, что дает возможность использовать его же для периодического контроля состояния криостата (измерение уровня гелия и контроль температуры соленоида). Для контроля температуры образца в некоторых спектрометрических вставках размещался термометр сопротивления. Его сопротивле-

ние по четырехточечной схеме считывалось мультиметром В7-78/2. При низкотемпературных измерениях рабочий диапазон мультиметра В7-78/2 подбирался так, чтобы не вызывать перегрев термометра. Мультиметр и осциллограф также были подключены к компьютеру через USB-порты.

Для контроля приборов и записи данных использовалась программа, написанная в среде разработки LabView. В процессе работы была произведена модернизация программы: добавлено программное управление источником тока, подключены по USB-порту мультиметр и осциллограф. Интерфейс программы (рис. 2.3) рассчитан на наблюдение за разверткой сигнала по полю и на контроль основных параметров измерительной установки: температуры соленоида и уровня гелия. В ходе эксперимента записывается в файл и отображается на экране компьютера зависимость сигнала на детекторе от тока через соленоид.

2.3 Подготовка образцов

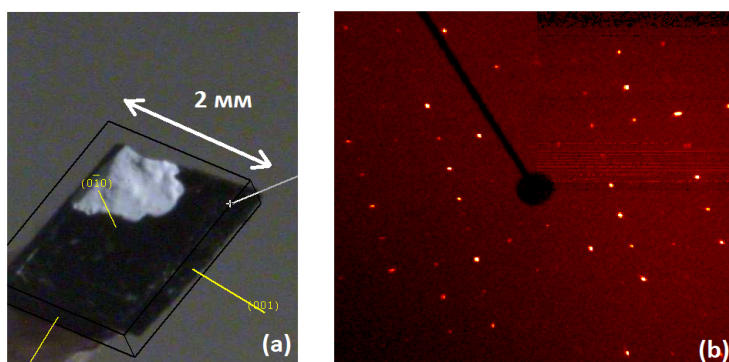


Рис. 2.4: (а) Фотография образца $(C_7H_{10}N_2)_2CuBr_4$, сделанная на камеру дифрактометра BRUKER APEX II, черные линии на панели – построенные по результатам анализа дифрактограмм кристаллографические плоскости, желтые линии – нормали к кристаллографическим плоскостям, белая точка – маркировка для контроля ориентации при монтаже в спектрометр. (б) Пример дифрактограммы, пучок направлен вдоль оси b .

В работе изучались образцы двух соединений. Во-первых, это спин-щелевой магнетик, $(C_7H_{10}N_2)_2CuBr_4$ сокращенно обозначаемый в англоязычной литературе DIMPY. Решетка этого соединения относится к моноклинному типу и описывается кристаллографической группой симметрии $P2_1/n$ (C_{2h}^2), параметры решетки: $a=7.50$ Å, $b=31.61$ Å, $c=8.21$ Å, $\beta=98.97^\circ$. Образцы были выращены методом температурного градиента в лаборатории профессора А. Желудева в ETH Zurich. Полученные монокристаллы имели характерный размер несколько миллиметров. Непрозрачные кристаллы черного цвета имели естественную плоскость огранки перпендикулярную оси b и были вытянуты вдоль оси a . Вторым соединением являлся алюминиево-марганцевый гранат $Mn_3Al_2Ge_3O_{12}$. Образцы были получены методом зонной плавки Б. В. Миллем в МГУ им. М. В. Ломоносова. Решетка кристалла этого соединения имеет кубическую симметрию (группа симметрии O_h^{10}), период кубической решетки $a=11.95$ Å. Исходный монокристалл гранатового оттенка имел объем около 1 см^3 и не имел естественной огранки.

Для экспериментов по магнитному резонансу необходимо прикладывать магнитное поле в известном направлении относительно кристалла. Кристаллы соединения

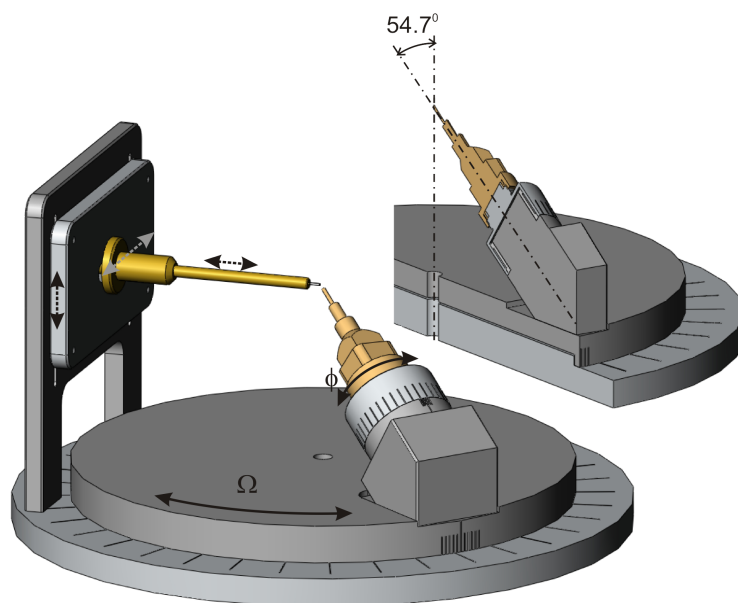


Рис. 2.5: Макет столика дифрактометра, используемый для перенесения ориентации образца. Стрелками показаны направления перемещения подвижных деталей.

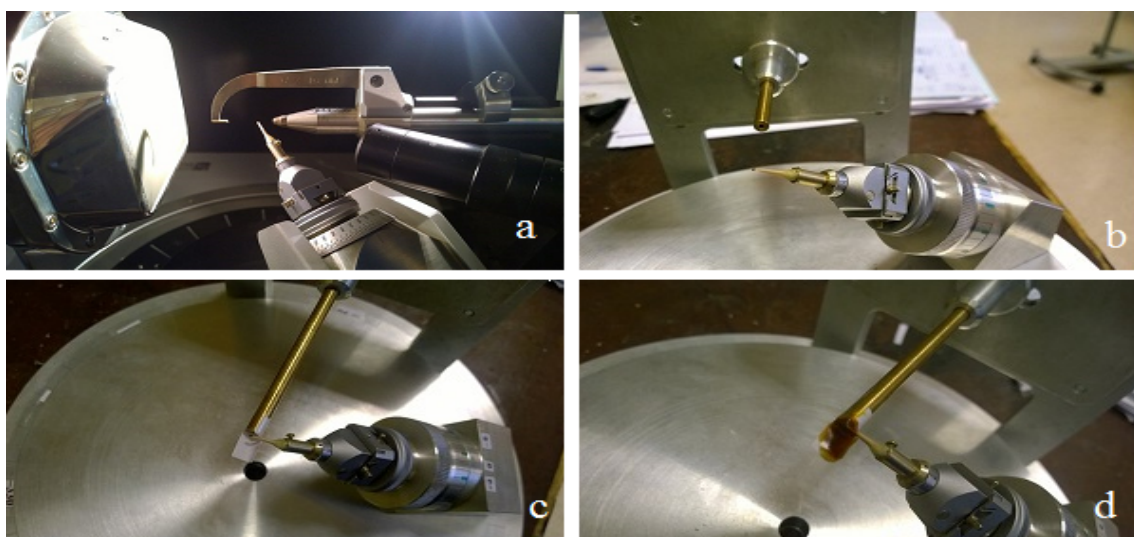


Рис. 2.6: Поэтапное перенесение ориентации образца: а – образец в дифрактометре BRUKER APEX II, б – образец на копии столика дифрактометра, с – подготовка образца к заливке пидеином, d – образец залитый пидеином.

$(\text{C}_7\text{H}_{10}\text{N}_2)_2\text{CuBr}_4$ имеют естественную огранку, однако из-за низкой (моноклинной) симметрии кристалла для определения ориентации поля в плоскости (ac) необходимо однозначно зафиксировать ориентацию кристаллографических осей относительно кристалла. При изучении алюминиево-марганцево граната оказалось необходимым использовать образцы малого размера (масса ≈ 1 мг), для которых также необходимо определить ориентацию осей относительно кристалла.

Для определения ориентации кристаллографических осей использовался рентгеновский дифрактометр марки BRUKER APEX II. Этот дифрактометр предназначен для высокоточного рентгеноструктурного анализа образцов малого размера. В дифракто-

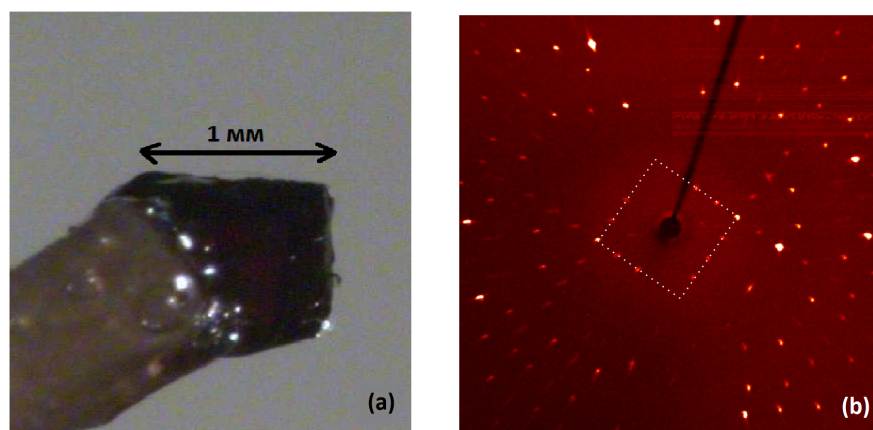


Рис. 2.7: (а) Фотография образца соединения $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, сделанная на камеру дифрактометра BRUKER APEX II, 1 мм – характерный размер. (b) Пример дифрактограммы, пучок направлен вдоль $[100]$, белый пиксель является вспомогательным построением квадрата для выделения 90-градусной симметрии.

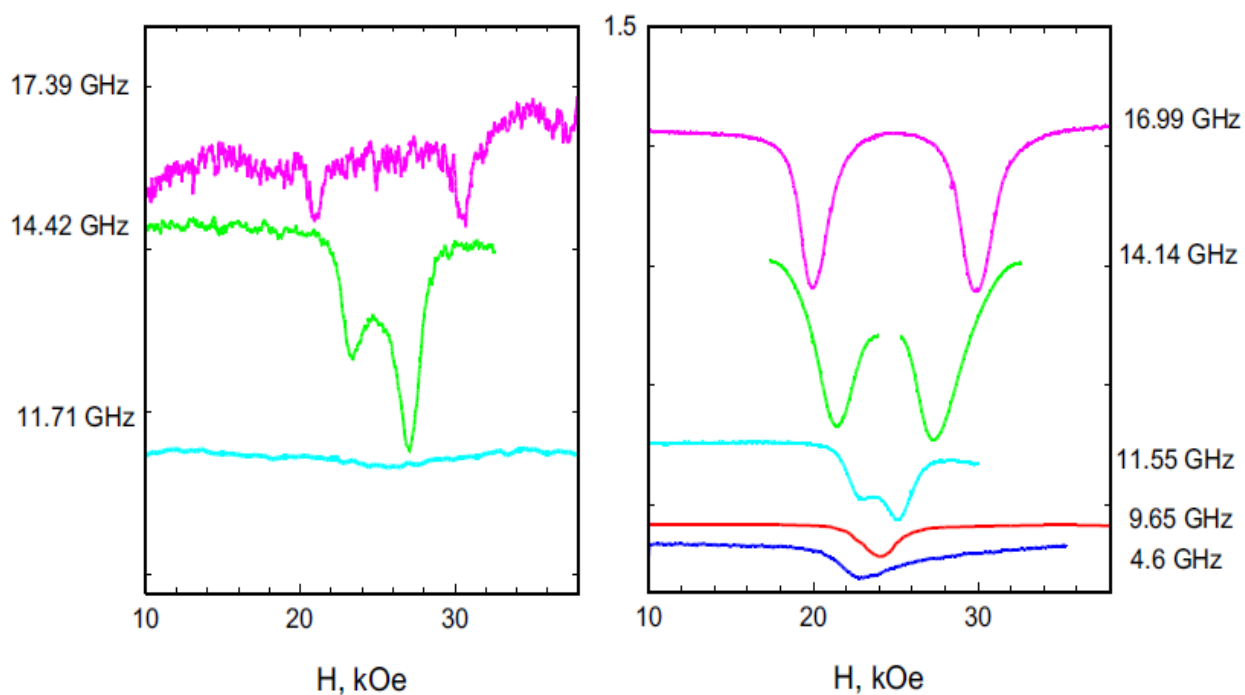


Рис. 2.8: Спектры поглощения в $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ для двух образцов в $\text{H} \parallel [100]$. Левая панель: измерения в маленьком образце, точность выставления ориентации 3° . Правая панель: измерения в большом образце, точность выставления ориентации лучше 1° .

метре BRUKER APEX II используется монохроматическое рентгеновское излучение (K_α линия молибдена с длиной волны $0.71 \text{ \AA}$), в ходе измерения делается серия снимков дифракционных картин в разных ориентациях образца относительно пучка, дальней-

шая автоматизированная обработка этих снимков позволяет расшифровать структуру кристаллов. Нам необходимо было определить ориентацию кристаллографических осей относительно образца и перенести образец в нужной ориентации в спектрометр. В стандартном программном пакете дифрактометра есть возможность измерив несколько дифракционных картин произвести грубую оценку параметров решетки и визуализировать расположение стандартных граней. Эта опция позволила зафиксировать ориентацию кристаллографических осей относительно кристалла $(\text{C}_7\text{H}_{10}\text{N}_2)_2\text{CuBr}_4$, имеющего естественную огранку (рис. 2.4). Для однозначности последующего монтажа один из уголков кристалла помечался белым маркером.

Образцы граната не имели естественной огранки, и для них задача об определении осей кристалла и переносе желаемой ориентации кристалла в спектрометр оказалась сложнее. Для решения этой задачи была изготовлена копия столика для монтажа головки дифрактометра (рис. 2.5), то есть фактически восстановлена система координат дифрактометра. Дифрактометр BRUKER APEX II позволяет после грубого определения параметров решетки делать ориентированные снимки дифракционной картины, направляя рентгеновский пучок вдоль желаемого направления кристалла. При этом вычисляются углы поворота столика (Ω) и головки дифрактометра (ϕ), которые доступны пользователю. После того как образец был выставлен на дифрактометре желаемым направлением вдоль пучка, образец вместе с головкой переносился на копию столика дифрактометра, на которой затем выставлялись углы Ω и ϕ . При этом желаемое кристаллографическое направление оказывалось сориентировано вдоль стержня, копирующего направление рентгеновского пучка. Торец стержня подводился как можно ближе к образцу и образец заливался расплавленным пицеином. Для предотвращения растекания пицеина на стержень монтировалась бумажная опалубка. Таким образом образец становился "взвешенной частицей" в куске пицеина. При протекании пицеина по торцу латунного стержня образовывалась плоскость, нормальная к желаемому направлению. На эту плоскость образец после отделения от головки дифрактометра крепился в резонатор. Основные этапы перенесения ориентации показаны на рис. 2.6.

Точность выставления ориентации зависит от точности сборки копии столика, точности нанесения шкал отсчета углов, возможного люфта деталей, погрешности при заливке образца пицеином и демонтаже со стойки. Люфт подвижных деталей оценивается в 0.5 мм при плече 100 мм, что соответствует подкосу в 0.3 градуса. Шкала отсчета угла Ω имеет точность 1° , шкала отсчета угла ϕ имеет точность 2° . Угол наклона оси вращения головки дифрактометра при изготовлении контролировался с точностью в один градус. Таким образом, заложенная точность выставления ориентации составляет около $2^\circ - 3^\circ$.

Характерные линейные размеры устанавливаемых образцов лежат в диапазоне от 1 до 3 мм. Таким образом, удалось установить образцы $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ в ориентациях $\text{H}||[100]$, $\text{H}||[111]$, $\text{H}||[110]$. Примеры дифрактограмм и фотографий отдельных образцов представлены на рис. 2.4 и 2.7.

Для определения точности выставления ориентации был проведен контрольный эксперимент. В алюминиево-марганцевом гранате при поле, приложенном вдоль оси $[100]$, наблюдается спин-переориентационный переход в поле около 20 кЭ, в поле перехода одна из частот АФМР зануляется. Эта особенность очень чувствительна к разориентации образца: при отклонении поля от точной ориентации частота АФМР в окрестности перехода падает не до нуля. На контрольном образце, который был нам предоставлен А. М. Тихоновым выставленным с точностью в 1° , сигнал резонансного поглощения вблизи поля перехода наблюдался на частотах выше 4.6 ГГц. На образце, сориентированном при помощи описанной процедуры, сигнал поглощения наблюдался только

выше 12 ГГц (рис. 2.8). Моделирование частотно-полевых зависимостей показывает, что минимальная частота АФМР в 12 ГГц соответствует отклонению от точной ориентации в 3° .

3 Магнитный резонанс в магнетике типа спиновая лестница

3.1 Введение

3.1.1 Магнетик типа спиновая лестница

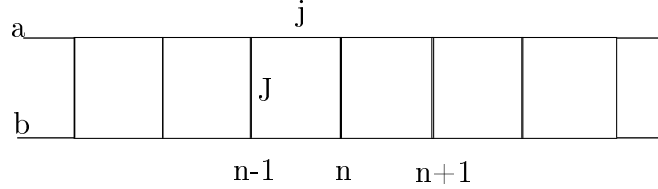


Рис. 3.1: Схема обменных связей в магнетике типа "спиновая лестница".

Спиновой лестницей называют модель магнетика, включающую в себя две обменно-связанных спиновых цепочки (рис. 3.1). Из-за схожести геометрии обменных связей с обычной садовой лестницей межцепочечные связи называют "перекладинами" спиновой лестницы, а сами цепочки – "направляющими" спиновой лестницы. Для описания спиновой лестницы вводят две величины: первая J – обменная константа, описывающая связь между цепочками и вторая j – внутри цепочек. Гамильтониан спиновой лестницы записывается в виде:

$$\hat{\mathcal{H}} = \sum_n (J \hat{\mathbf{S}}_{n,a} \hat{\mathbf{S}}_{n,b} + j (\hat{\mathbf{S}}_{n,a} \hat{\mathbf{S}}_{n+1,a} + \hat{\mathbf{S}}_{n,b} \hat{\mathbf{S}}_{n+1,b})) \quad (3.1)$$

Мы будем рассматривать случай, когда обе обменные константы антиферромагнитного знака $J, j > 0$.

В отличие от классического антиферромагнетика в такой системе формирование дальнего порядка не происходит вплоть до самых низких температур. Важной особенностью спиновой лестницы является наличие щели в энергетическом спектре при любом соотношении обменных констант. Щель отделяет немагнитное синглетное основное состояние от триплетных возбуждений, ее величина определяется значением обменных констант. Величина щели и дисперсия триплетных возбуждений может быть вычислена аналитически в случае лестницы с преобладающим взаимодействием вдоль перекладин, задача в этом случае сводится к системе связанных димеров и решается в рамках теории возмущений. Что касается общей модели с произвольными константами обмена, и в частности случая $j \gg J$, то спектр элементарных возбуждений таких спиновых лестниц описывается только с применением численных методов. На рис. 3.2 приведены полученные численно спектры возбуждений для спиновой лестницы при различном соотношении обменных интегралов [12].

Наличие щели в спектре возбуждений приводит к качественному изменению низкотемпературных магнитных свойств. В качестве простейшей иллюстрации можно рассмотреть антиферромагнитный димер: пару спинов $S = 1/2$, связанных антиферромагнитным обменным взаимодействием. Основным состоянием димера является синглет $S = 0$ с волновой функцией $\psi_{00} = \frac{1}{\sqrt{2}} (|\uparrow\downarrow\rangle - |\downarrow\uparrow\rangle)$, а возбужденными состояниями являются триплетные подуровни с $S = 1$ и $S_z = +1, 0, -1$ ($\psi_{11} = |\uparrow\uparrow\rangle$, $\psi_{10} = \frac{1}{\sqrt{2}} (|\uparrow\downarrow\rangle + |\downarrow\uparrow\rangle)$),

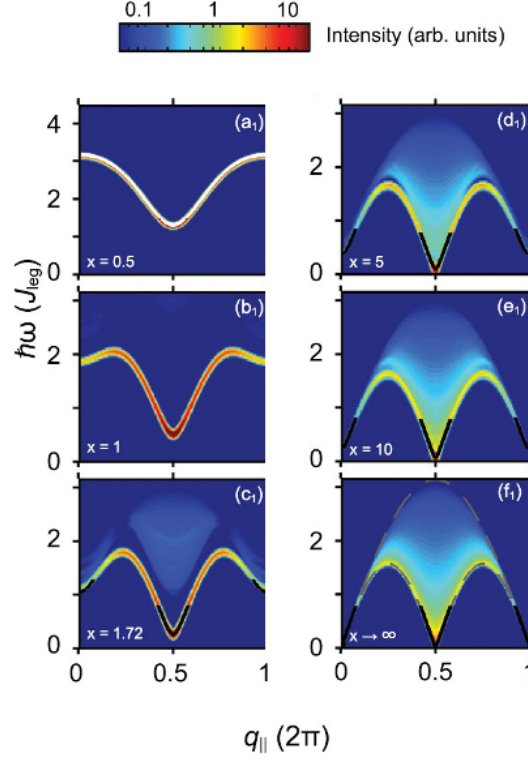


Рис. 3.2: Численный расчет динамического структурного фактора неупругого рассеяния нейтронов для спиновой лестницы. Результаты представлены для различных соотношений обменных интегралов $x = j/J$. На основе рисунка из работы [12].

$\psi_{1-1} = |\downarrow\downarrow\rangle$). Расстояние между синглетным и триплетным уровнями в нулевом поле равно константе обменного взаимодействия J . При приложении магнитного поля триплетные подуровни расщепляются по проекции спина $E = J + g\mu_B H S_z$ (рис. 3.3), здесь мы отсчитываем энергию от синглетного уровня. Тогда намагниченность димера в малых полях:

$$M = \frac{g\mu_B \left(e^{-\frac{J-g\mu_B H}{T}} - e^{-\frac{J+g\mu_B H}{T}} \right)}{1 + e^{-\frac{J-g\mu_B H}{T}} + e^{-\frac{J+g\mu_B H}{T}} + e^{-\frac{J}{T}}} \approx 2 \frac{(g\mu_B)^2}{T} e^{-\frac{J}{T}} H \quad (3.2)$$

То есть, при низких температурах намагниченность должна экспоненциально вымерзнуть. С ростом магнитного поля в поле $H_c = J/(g\mu_B)$ энергия одного из триплетных подуровней сравнивается с энергией синглетного основного состояния. При дальнейшем повышении поля основным состоянием димера становится поляризованное состояние с $S_z = -1$. Таким образом, при $T = 0$ намагниченность димера остается равной нулю вплоть до H_c и скачкообразно достигает намагниченности насыщения $g\mu_B$ выше H_c .

Свойства многоспиновой спин-щелевой системы (в том числе и спиновой лестницы) качественно похожи на свойства димера. Триплетные возбуждения спин-щелевой системы делокализованы, их спектр имеет некоторую дисперсию, но они также характеризуются определенным спином $S = 1$ и проекцией спина $S_z = +1, 0, -1$. При низких температурах заселено только дно спектра возбуждений, поэтому намагниченность в малых полях также будет экспоненциально мала $M \propto e^{-\Delta/T}$, где Δ – щель в спектре возбуждений. В критическом поле $H_c = \Delta/(g\mu_B)$ энергия одного из триплетных

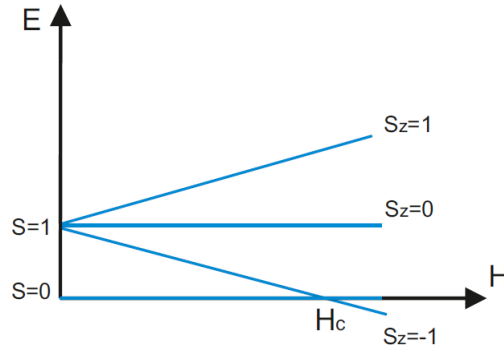


Рис. 3.3: Схема энергетических уровней антиферромагнитного димера в магнитном поле. Ось z соответствует направлению поля.

подуровней также сравнивается с энергией синглетного основного состояния, при $T = 0$ выше H_c возникнет ненулевая намагниченность. Однако в отличие от димера намагниченность насыщения будет достигаться в большем поле $H_{sat} \simeq J_{max}/(g\mu_B)$, где J_{max} – наибольшая из констант обменного взаимодействия.

Спин-щелевое неупорядоченное состояние является устойчивым, однако при закрытии щели в спектре в поле H_c трехмерность архитектуры обменных связей в реальном кристалле может привести к тому, что антиферромагнитное состояние нееевского типа окажется энергетически выгодным. Такой переход в индуцированное полем антиферромагнитное состояние наблюдался во многих спин-щелевых магнетиках [13], [14]. Теоретическое описание этого необычного фазового перехода в обменном приближении оказывается формально эквивалентно бозе-конденсации магнонов [15], [14].

3.1.2 Спиновая лестница в $(C_7H_{10}N_2)_2CuBr_4$

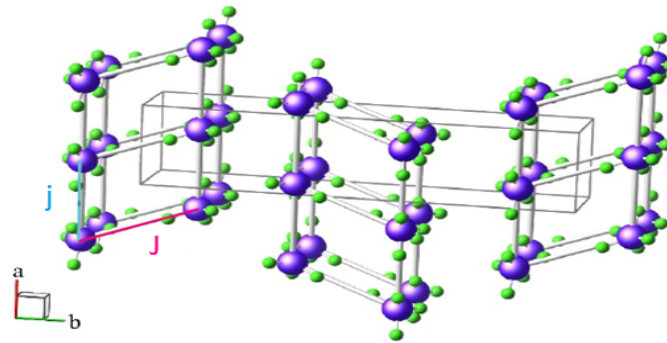


Рис. 3.4: Структура спиновых лестниц в $(C_7H_{10}N_2)_2CuBr_4$. Сиреневым отмечены ионы Cu^{2+} , зеленым ионы Br , a , b – кристаллографические оси. Линиями показаны обменные связи и указаны соответствующие обменные константы. Органические комплексы $C_7H_{10}N_2$ не показаны.

К магнетикам типа спиновая лестница относится изученное нами соединение $(C_7H_{10}N_2)_2CuBr_4$. Фрагмент структуры этого соединения изображен на рис. 3.4. Единственными магнитными ионами являются ионы меди Cu^{2+} , окруженные неправильными тетраэдрами ионов Br . В элементарной ячейке присутствует четыре иона меди,

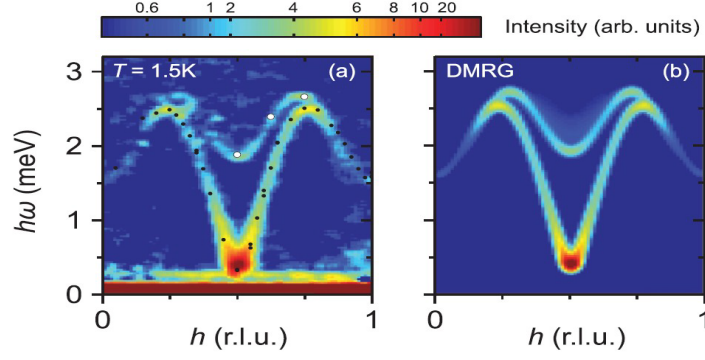


Рис. 3.5: Левая панель – цветовая карта экспериментально измеренных интенсивностей неупругого рассеяния нейтронов в $(\text{C}_7\text{H}_{10}\text{N}_2)_2\text{CuBr}_4$ при $T=1.5$ К. Правая панель – смоделированная численно методом DMRG цветовая карта интенсивности рассеяния с параметрами $j=1.42$ мэВ и $J=0.82$ мэВ [16].

формирующих перекладины двух спиновых лестниц. Сами лестницы образуются при трансляции этих пар вдоль оси a . В результате формируется два типа эквивалентных лестниц, которые совмещаются сдвиговой осью второго порядка.

Значения обменных интегралов $j=1.42$ мэВ и $J=0.82$ мэВ и величина щели $\Delta=0.33$ мэВ были получены из нейтронографических исследований [16]: экспериментально измеренный спектр возбуждений сравнивался с результатами расчета методом DMRG и оказалось возможным полностью описать наблюдаемый спектр двумя обменными константами (рис. 3.5). Таким образом, нейтронографические данные подтверждают соответствие $(\text{C}_7\text{H}_{10}\text{N}_2)_2\text{CuBr}_4$ модели спиновой лестницы. При этом, в отличие от других известных соединений этого типа, $(\text{C}_7\text{H}_{10}\text{N}_2)_2\text{CuBr}_4$ оказывается примером спиновой лестницы с доминирующим взаимодействием вдоль направляющих.

Поведение намагниченности в $(\text{C}_7\text{H}_{10}\text{N}_2)_2\text{CuBr}_4$ также соответствует ожидаемому для спиновой лестницы. На рис. 3.6 представлены данные по определению восприимчивости из работы [17]. Измерения проводились в диапазоне от 1.8 до 325 К, при приложенном поле величиной 1 кЭ. Наличие максимума восприимчивости при температуре порядка главного обменного интеграла является свойством низкоразмерного гейзенберговского антиферромагнетика, быстрый спад на низких температурах объясняется наличием энергетической щели в спектре. Сплошная кривая на рисунке соответствует численному расчету для спиновой лестницы с параметрами $j=16.9$ К, $J=8.7$ К (1.46 и 0.75 мэВ, соответственно). Эти параметры близки к значениям, определенным в опытах по неупругому рассеянию нейтронов, небольшое различие вероятно связано с меньшей точностью использованного в работе [17] численного метода (использовалось высокотемпературное разложение) и с меньшей надежностью определения обменных параметров по кривой восприимчивости. Экспериментально измеренные кривые низкотемпературной намагниченности из работ [18, 19] показаны на рис. 3.7. Изломы на этих кривых соответствуют двум критическим полям: в поле 2.8 Тл закрывается спиновая щель и намагниченность начинает расти, достигая насыщения в поле около 30 Тл. Зависимость намагниченности от магнитного поля выше поля закрытия спиновой щели может быть описана численным моделированием методом DMRG для спиновой лестницы с теми же обменными параметрами, что использовались для описания спектра элементарных возбуждений на рис. 3.5.

Как уже отмечалось, при низкой температуре выше поля закрытия спиновой щели

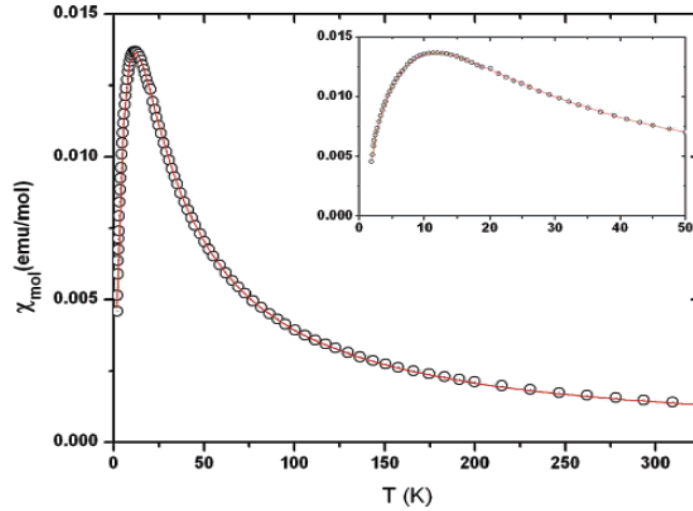


Рис. 3.6: Температурная зависимость восприимчивости в $(\text{C}_7\text{H}_{10}\text{N}_2)_2\text{CuBr}_4$ из работы [17] в поле 1 кЭ. Точки экспериментальные данные, сплошная кривая – численный расчет методом высокотемпературного разложения.

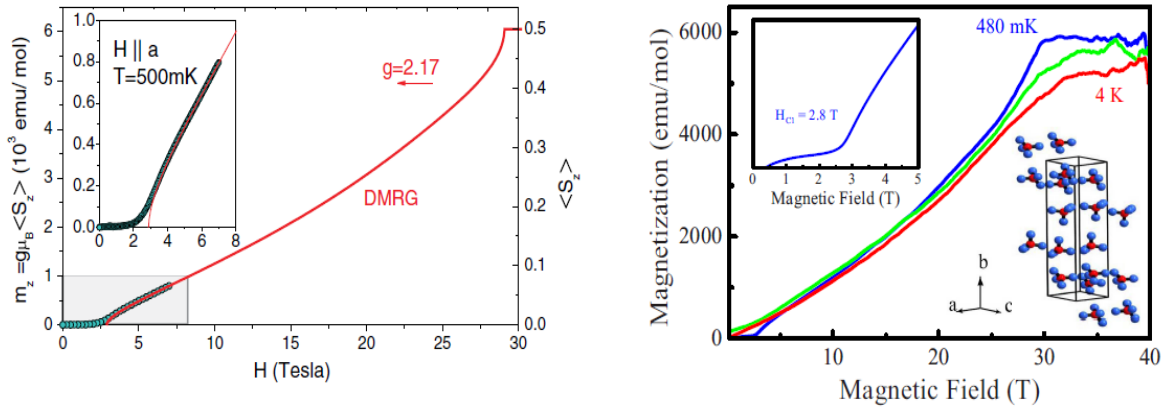


Рис. 3.7: Высокополевая намагниченность для $(\text{C}_7\text{H}_{10}\text{N}_2)_2\text{CuBr}_4$. Левая панель – $\mathbf{H}||a$, из работы [18], правая панель – $\mathbf{H}||b$, из работы [19].

возможно формирование индуцированного полем антиферромагнитного порядка. Низкотемпературные измерения теплоемкости [18] показали, что такой фазовый переход в $(\text{C}_7\text{H}_{10}\text{N}_2)_2\text{CuBr}_4$ имеет место. Полученная в этих измерениях фазовая диаграмма показана на рис. 3.8. Максимальная температура при которой наблюдается упорядочение составляет 300 мК и недостижима для нас. Фазовая граница между упорядоченной и неупорядоченной фазами моделировалась в работе [18] методом DMRG с учетом межлестничного взаимодействия в модели среднего поля, что позволило оценить межлестничное обменное взаимодействие $nJ' = 6.3$ мкЭВ, где n – число соседних лестниц.

Таким образом, свойства $(\text{C}_7\text{H}_{10}\text{N}_2)_2\text{CuBr}_4$ довольно хорошо описываются с помощью гейзенберговского гамильтониана. Однако в реальных кристаллах помимо гейзенберговского взаимодействия всегда присутствуют и анизотропные спин-спиновые взаимодействия: дипольное взаимодействие, а также так называемые анизотропные обменные взаимодействия. Анизотропные обменные взаимодействия в кристаллах обычно

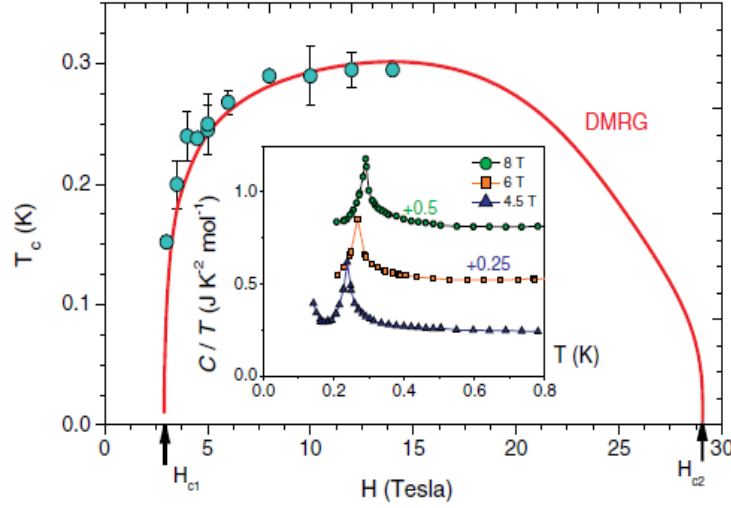


Рис. 3.8: Фазовая диаграмма $(\text{C}_7\text{H}_{10}\text{N}_2)_2\text{CuBr}_4$ из работы [18]. Индуцированная полем антиферромагнитная фаза находится между полями H_{c1} и H_{c2} . На главной панели: символы – положения максимума теплоемкости, кривая – моделирование методом DMRG с учетом межлестничного взаимодействия в модели среднего поля. На вставке: примеры кривых C/T . Поле приложено вдоль оси b .

сильнее диполь-дипольного взаимодействия, их микроскопическая природа связана со спин-орбитальным взаимодействием. Парное анизотропное спин-спиновое взаимодействие можно разбить на сумму симметричного и антисимметричного по перестановке спинов слагаемых:

$$\hat{\mathcal{H}}_{anis} = \mathbf{D}[\hat{\mathbf{S}}_1 \times \hat{\mathbf{S}}_2] + \sum_{\alpha\beta} J_{\alpha\beta} \hat{S}_{1\alpha} \hat{S}_{2\beta}, \quad J_{\alpha\beta} = J_{\beta\alpha} \quad (3.3)$$

Первое (антисимметричное) слагаемое называют взаимодействием Дзялошинского-Мория, второе — симметричным анизотропным обменным взаимодействием. Обычно для симметричного анизотропного обменного взаимодействия подбирают калибровку $\sum J_{\alpha\alpha} = 0$.

Наличие анизотропных спин-спиновых взаимодействий изменяет свойства спектра возбуждений спин-щелевого магнетика: снимается вырождение по проекции спина в нулевом поле. Также эти анизотропные взаимодействия определяют симметрию индуцированной полем упорядоченной фазы (понижая ее по сравнению с гейзенберговским случаем), определяя таким образом точность применения модели бозе-эйнштейновской конденсации магнонов.

Величина параметров анизотропного обменного взаимодействия выражается через константу спин-орбитальной связи. Эта же константа определяет анизотропию g -фактора. Это позволяет [20] оценить константы взаимодействия по измеряемой анизотропии g -фактора Δg : $D/J \sim \Delta g/g$ и $J_{\alpha\beta} \sim (\Delta g/g)^2$.

Ориентация вектора $\mathbf{D}$ и соотношение между компонентами тензора $J_{\alpha\beta}$ определяется симметрией кристалла. В частности, взаимодействие Дзялошинского-Мория запрещено, если между парой ионов есть центр инверсии. Анализ симметрии $(\text{C}_7\text{H}_{10}\text{N}_2)_2\text{CuBr}_4$ показывает, что несмотря на низкую симметрию кристалла разрешенные ориентации вектора $\mathbf{D}$ образуют очень простую геометрию. Наличие центра инверсии на ступеньке спиновой лестницы запрещает взаимодействие Дзялошинского-Мория

на ступеньке, а так как направляющие лестниц образуются в результате трансляций, то вектор Дзялошинского вдоль направляющей однороден. Наличие центра инверсии требует антипараллельной ориентации векторов Дзялошинского на двух направляющих лестницы. Ориентации векторов Дзялошинского на по-разному сориентированных лестницах взаимно связаны наличием оси второго порядка.

Высокое энергетическое разрешение метода ЭПР позволяет изучать влияние различных слабых анизотропных спин-спиновых взаимодействий на свойства спин-щелевого магнетика. Дополнительный интерес этому исследованию придает недавно обнаруженное явление расщепления континуума возбуждений спиновой цепочки при наличии однородного взаимодействия Дзялошинского [21].

В дальнейших разделах мы покажем, что магнитный резонанс в $(\text{C}_7\text{H}_{10}\text{N}_2)_2\text{CuBr}_4$ соответствует магнитному резонансу коллективных триплетных возбуждений, и что индивидуальные сигналы неэквивалентных спиновых лестниц могут быть разрешены благодаря анизотропии g -фактора. Оказалось, что при низких температурах возникает дополнительное расщепление линий резонансного поглощения, связанное с тонкой структурой спектра триплетных возбуждений. Возникновение этой тонкой структуры может быть качественно объяснено влиянием взаимодействия Дзялошинского-Мория, это же взаимодействие оказывается ответственным за высокотемпературную ширину линии в $(\text{C}_7\text{H}_{10}\text{N}_2)_2\text{CuBr}_4$.

ЭПР в $(\text{C}_7\text{H}_{10}\text{N}_2)_2\text{CuBr}_4$ изучался также в работах [22], [24]. В работе [24] исследовался ЭПР на порошковом образце при температуре 4.2 К, большей значения энергетической щели. В результате были получены главные значения аксиального g -тензора $g_{\parallel} = 2.307$, $g_{\perp} = 2.053$. В работе [22], выполненной одновременно с нашей работой и независимо от нее, исследовался ЭПР в высоких магнитных полях и была обнаружена дополнительная мода резонансного поглощения на частотах выше 200 ГГц, чье наличие также объясняется присутствием взаимодействия Дзялошинского-Мория.

3.2 Экспериментальные результаты и обсуждения

3.2.1 Анизотропия g -фактора

Из-за наличия спин-орбитального взаимодействия, g -фактор магнитных ионов в реальном кристалле оказывается анизотропным и в общем случае описывается тензором $\{g_{\alpha\beta}\}$. Зеемановский вклад в гамильтониан тогда имеет вид $\hat{H}_Z = \sum_{\alpha\beta} g_{\alpha\beta} \mu_B \hat{S}_{\alpha} H_{\beta}$.

Оказывается, что для поля, приложенного в произвольном направлении $\mathbf{n}_H$, расщепление спиновых подуровней можно описать эффективным g -фактором $E_Z = g_{eff} \mu_B H S_H$, где S_H – проекция спина на направление поля. Эффективный g -фактор зависит от ориентации и равен:

$$g_{eff}^2 = g_1^2(\mathbf{n}_H \mathbf{x}_1)^2 + g_2^2(\mathbf{n}_H \mathbf{y}_1)^2 + g_3^2(\mathbf{n}_H \mathbf{z}_1)^2, \quad (3.4)$$

где $\mathbf{x}_1, \mathbf{y}_1, \mathbf{z}_1$ – собственные вектора g -тензора, $\mathbf{n}_H$ – единичный вектор в направлении поля, g_1, g_2, g_3 – главные значения g -тензора. Таким образом, измерение угловой зависимости эффективного g -фактора позволяет определить характеристики g -тензора.

Для определения этих параметров мы измерили при азотной температуре серии угловых зависимостей поля резонансного поглощения. При этом поле прикладывалось в нескольких кристаллографических плоскостях: в плоскости (ab) , (ac^*) , и в плоскости, образуемой вектором обратной решетки $\mathbf{c}^*$ и биссектрисой плоскости (ab) . В дальнейшем анализе мы будем использовать декартову систему координат с $X \parallel \mathbf{a}$ и $Y \parallel \mathbf{b}$ (рис.

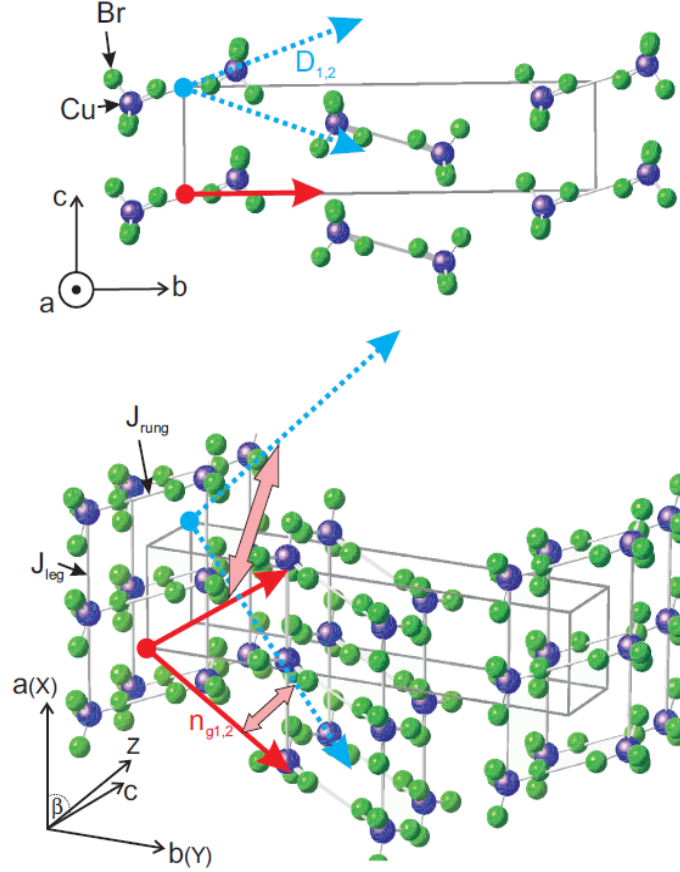


Рис. 3.9: Фрагмент структуры $(\text{C}_7\text{H}_{10}\text{N}_2)_2\text{CuBr}_4$ с указанием системы координат, связанной с кристаллографическими осями. Красные стрелки – определенная из эксперимента ориентация главных осей g -тензора для двух лестниц, синие пунктирные стрелки – определенные из эксперимента направления вектора Дзялошинского для двух спиновых лестниц, широкие стрелки показывают относящиеся к одной лестнице ось g -тензора и вектор Дзялошинского.

3.9). Мы наблюдали изменение положения поля резонансного поглощения в зависимости от ориентации приложенного поля. Наблюдаемый спектр поглощения состоял из одной линии при вращении поля вокруг оси второго порядка, когда обе спиновые лестницы эквивалентны, и расщеплялся на две компоненты в других ориентациях (рис. 3.10).

Анализ угловой зависимости g -фактора в $(\text{C}_7\text{H}_{10}\text{N}_2)_2\text{CuBr}_4$ облегчается тем, что внутри одной спиновой лестницы g -тензоры всех ионов одинаковые (позиции ионов в лестнице связаны операциями инверсии и трансляции). Оказалось, что наблюдаемую угловую зависимость g -фактора можно описать, считая g -тензор аксиальным. Главные оси g -тензора на разных лестницах параметризуются как $\mathbf{n}_{1,2} = (\pm \sin \Theta \cos \phi; \cos \Theta; \pm \sin \Theta \sin \phi)$, где полярный угол Θ отсчитывается от оси второго порядка b . Подгонка методом наименьших квадратов позволила определить главные значения $g_{\parallel} = 2.296 \pm 0.010$, $g_{\perp} = 2.040 \pm 0.006$ и ориентацию главной оси $\Theta = (34.8 \pm 1.5)^\circ$ и $\phi = (178 \pm 4)^\circ$. Направления главных оси показаны на рис. 3.9, мы не можем различить к какой из лестниц относится главная ось конкретного g -тензора. Подробности этого анализа представлены в дипломной работе [23].

Главные значения g -фактора соответствуют результатам измерений на порошке

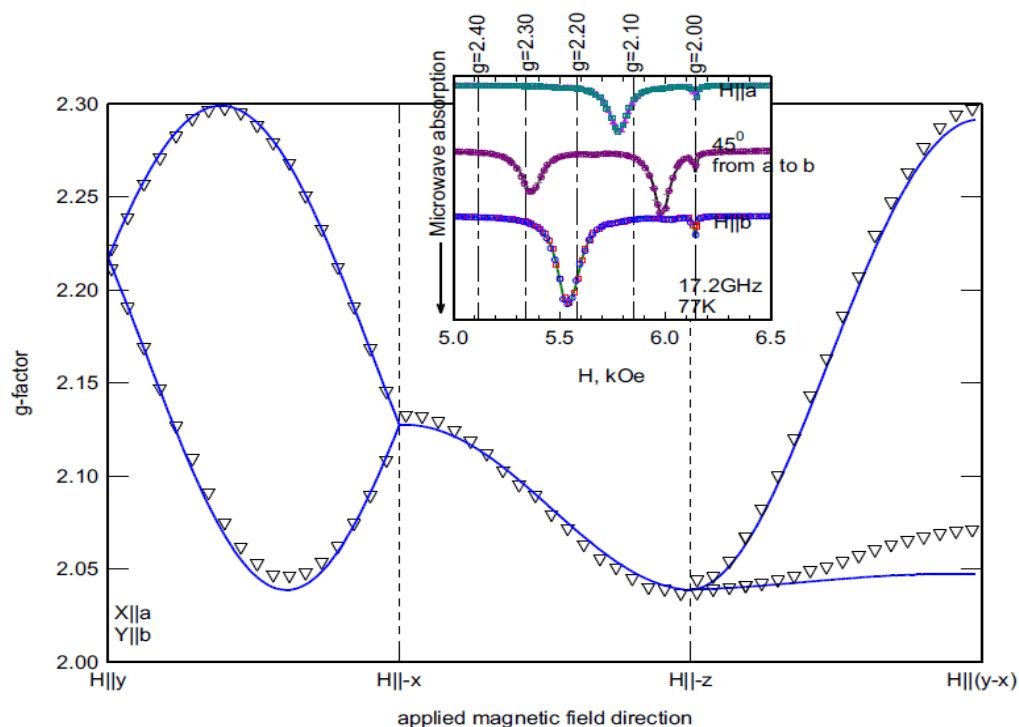


Рис. 3.10: Угловая зависимость g - фактора $(\text{C}_7\text{H}_{10}\text{N}_2)_2\text{CuBr}_4$. График получен в результате сшивки данных для различных ориентаций относительно постоянного поля. Сплошные линии соответствуют расчету в модели одноосного g - тензора, точкам соответствуют экспериментальные данные (размеры символов больше погрешности). На вставке пример первичных данных.

($g_{\parallel} = 2.307, g_{\perp} = 2.053$) [24], но благодаря измерениям на монокристалле мы смогли определить и ориентацию главной оси. С точностью эксперимента главная ось g - тензора лежит в плоскости (ab) кристалла, что является случайным совпадением, а не определяется симметрией.

3.2.2 ЭПР при низких температурах

Для низкотемпературных (ниже 77 K) измерений образец монтировался в двух фиксированных ориентациях: $\mathbf{H}||b$ и $\mathbf{H}||(X+Y)$ (по биссектрисе плоскости (ab)). В первом случае обе спиновые лестницы эквивалентны и наблюдается одна линия поглощения, второй случай соответствует максимальному расщеплению компонент линии ЭПР. Каждая из компонент сигнала резонансного поглощения при $\mathbf{H}||(X+Y)$ соответствует поглощению от одного из типов лестниц.

Температурная эволюция линии резонансного поглощения представлена на рис. 3.11. С понижением температуры положение компонент резонансной линии не изменяется. При понижении температуры ниже 3 K интегральная интенсивность компонент резонансного поглощения начинает убывать и поглощение практически пропадает при температуре 0.45 K. Такое изменение интенсивности соответствует наличию щели в спектре возбуждений (известное из опытов по неупругому рассеянию нейтронов значение щели в нулевом поле равно 3.85 K).

При температуре около 1 K наблюдалось дополнительное расщепление компонент линии поглощения, соответствующих различным спиновым лестницам, на пары субком-

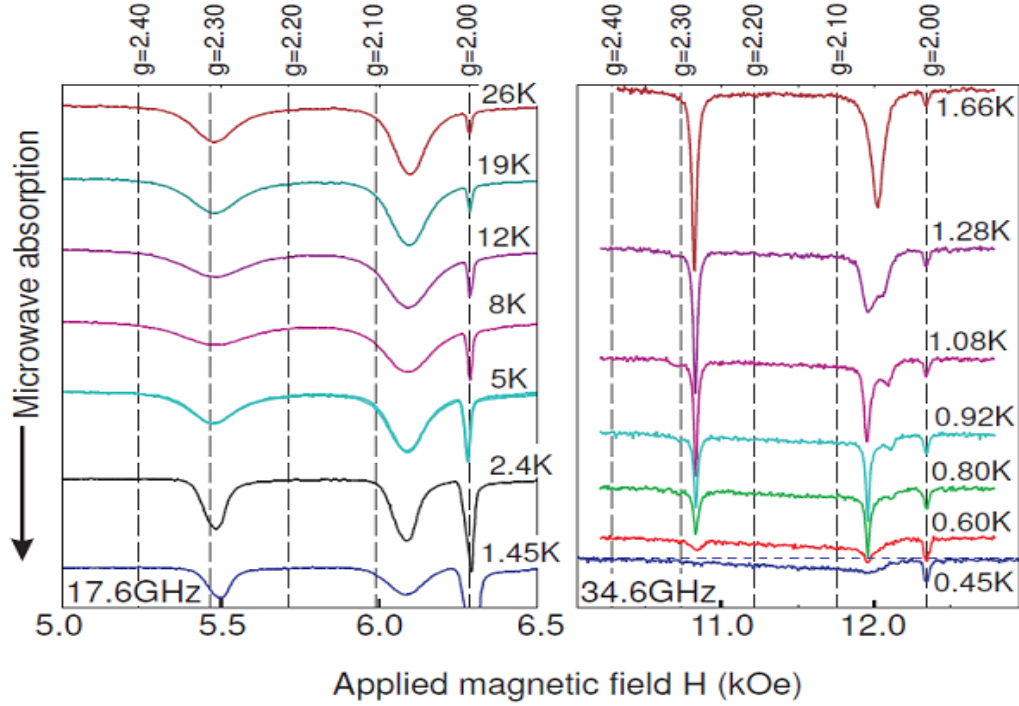


Рис. 3.11: Низкотемпературные спектры поглощения в $(\text{C}_7\text{H}_{10}\text{N}_2)_2\text{CuBr}_4$, $\mathbf{H} \parallel (\mathbf{X} + \mathbf{Y})$. Левая панель $f=17.6$ ГГц, правая панель $f=34.6$ ГГц. Вертикальные пунктирные линии соответствуют определенным значениям g -фактора, указанным над графиками. Узкая линия при $g=2.00$ – метка ДФПГ.

понент (A1,2 и B1,2 на рис. 3.11). Возникающие субкомпоненты существенно отличаются по интенсивности друг от друга, при дальнейшем охлаждении обе субкомпоненты вымерзают. Интенсивность сигналов вымерзает с понижением температуры согласно термоактивационному закону $I \sim \exp(-\Delta/T)$ (рис. 3.12). Однако величина энергии активации существенно отличается для более интенсивной и менее интенсивной субкомпоненты: на частоте эксперимента $f=34.6$ ГГц для интенсивных субкомпонент A1 и B1 $\Delta = (2.2 \pm 0.2)$ K, а для слабых субкомпонент $\Delta = (4.5 \pm 0.7)$ K.

Мы провели серию измерений ниже 1 K на различных частотах, что позволило построить зависимость значения энергии активации от частоты ЭПР эксперимента (рис. 3.12). Оказалось, что энергия активации для слабых субкомпонент почти постоянна, а энергия активации для более интенсивных субкомпонент уменьшается с ростом частоты. Эта зависимость может быть объяснена, если учесть изменение энергии различных триплетных подуровней в магнитном поле (см. вставку на рис. 3.12): более интенсивные субкомпоненты соответствуют переходу $|1\rangle \rightarrow |0\rangle$ из нижнего подуровня, слабые субкомпоненты – переходу $|0\rangle \rightarrow |-1\rangle$. Тогда энергия активации интенсивных субкомпонент $\Delta_1 = \Delta_0 - g\mu_B H = \Delta_0 - hf$, а слабых субкомпонент $\Delta_2 = \Delta_0$, где Δ_0 – величина щели в нулевом поле. Наши данные (рис. 3.12) описываются этой зависимостью без подгоночных параметров, если для Δ_0 взять значение 3.85 K из работы по неупругому рассеянию нейтронов [16].

В обменном приближении при измерении на фиксированной частоте поля резонансного поглощения для переходов $|0\rangle \rightarrow |-1\rangle$ и $|1\rangle \rightarrow |0\rangle$ (переходы A1 и A2 на вставке к рис. 3.12) совпадали бы. Наблюдаемое расщепление свидетельствует о снятии вырожде-

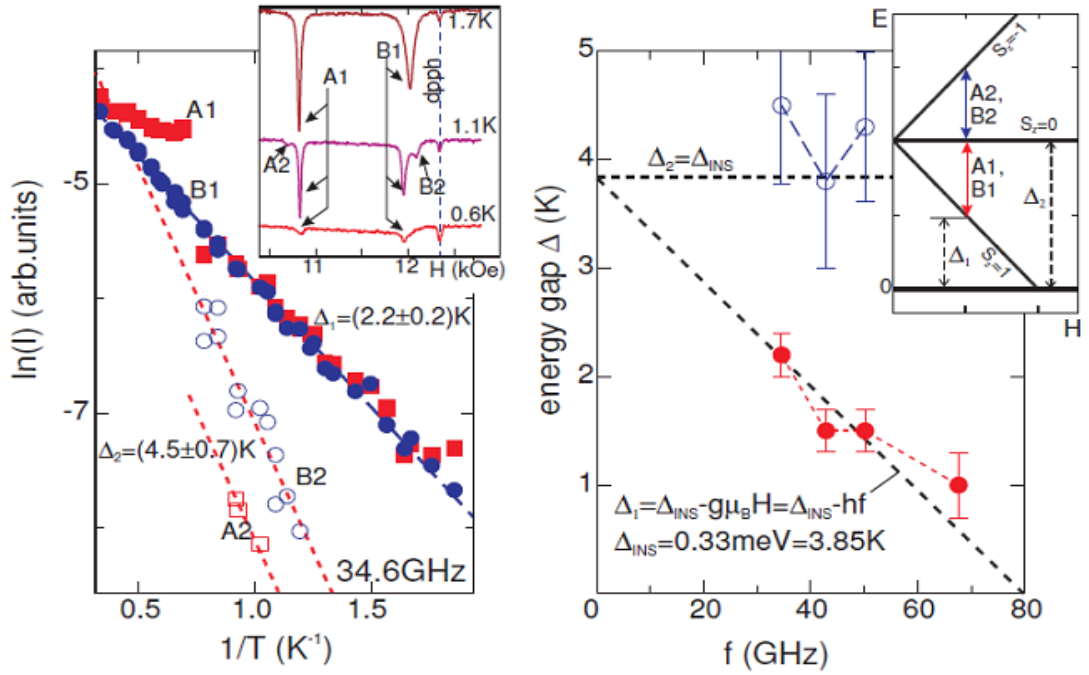


Рис. 3.12: Левая панель: зависимость интегральной интенсивности поглощения от обратной температуры, в логарифмической шкале. Частота $f=34.6$ ГГц. Символы – экспериментальные данные, метки A1,2 и B1,2 обозначают интенсивности различных субкомпонент линий поглощения (см. вставку). Пунктирные прямые – подгонка активационным законом $e^{-\Delta/T}$ с указанным на рисунке значением энергии активации. Правая панель: зависимость энергии активации от частоты, на которой записывается линия поглощения. Символы – результаты обработки экспериментальных данных. Пунктир – значения щели в спектре для поля резонансного поглощения. На вставке – схема энергетических уровней и резонансные переходы.

ния триплетного уровня под действием анизотропных спин-спиновых взаимодействий. Этот эффект может быть описан как расщепление триплетных подуровней в нулевом поле под действием эффективного кристаллического поля (см. разделы 2.1.1 и 2.1.2). Также видно, что слабые субкомпоненты находятся по разную сторону от интенсивных (см. рис. 3.11 и рис. 3.15). Различие в относительном положении слабых субкомпонент можно связать с известной задачей о расщеплении спиновых подуровней спина $S=1$ в магнитном поле для различных направлений магнитного поля относительно оси анизотропии. Как известно (см. рис. 2.1 и уравнение (2.7)), при приложении поля перпендикулярно оси анизотропии эффективная константа анизотропии меняет знак и интенсивная компонента спектра поглощения (соответствующая переходу с нижнего подуровня) меняет свое положение относительно слабой компоненты. Так как неэквивалентные спиновые лестницы по разному сориентированы относительно кристалла, может оказаться, что для одной из лестниц магнитное поле приложено близко к оси анизотропии, а для другой – близко к ортогональному к оси анизотропии направлению, что объясняет наблюдаемое различие положений интенсивной и слабой субкомпонент.

Максимальное расщепление субкомпонент δH наблюдается для правой компоненты линии поглощения (см. рис. 3.11 и рис. 3.15), оно составляет примерно 150 Э. Если считать, что в этом случае поле оказалось случайно приложенным близко к оси анизотро-

пии, то можно оценить эффективную константу анизотропии из (2.8): $g\mu_B\delta H = 2C_{eff}$, откуда $C_{eff}=10$ мК. Эта же величина определяет величину расщепления триплетных подуровней в нулевом поле, она гораздо меньше величины щели (3.8 К) и величины обменного взаимодействия. Высокое энергетическое разрешение ЭПР позволяет зафиксировать такую тонкую структуру спектра возбуждений.

3.2.3 Расщепление триплетных подуровней системы связанных димеров взаимодействием Дзялошинского-Мория

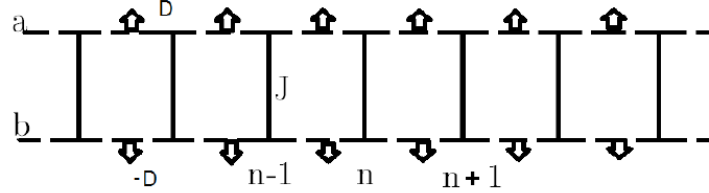


Рис. 3.13: Модель связанных взаимодействием Дзялошинского-Мория димеров. Стрелки показывают направление вектора Дзялошинского.

В $(C_7H_{10}N_2)_2CuBr_4$ симметрией разрешено взаимодействие Дзялошинского-Мория, однородное вдоль спиновых лестниц. В этом разделе мы покажем, что такое взаимодействие будет приводить к расщеплению триплетных подуровней.

Решить задачу об учете взаимодействия Дзялошинского-Мория для реальной спиновой лестницы в $(C_7H_{10}N_2)_2CuBr_4$ с доминирующим обменным взаимодействием вдоль направляющих мы не можем. Для оценки мы рассмотрим модельную задачу о системе димеров, связанных взаимодействием Дзялошинского-Мория той же геометрии, что и в $(C_7H_{10}N_2)_2CuBr_4$. Схематически эта задача представлена на рис. 3.13.

Невозмущенной задачей являются невзаимодействующие димеры. Учтем взаимодействие Дзялошинского-Мория между димерами как возмущение, считая что вектор Дзялошинского направлен вдоль оси z:

$$\begin{aligned} \hat{V} &= D \left[\hat{\mathbf{S}}_{na} \times \hat{\mathbf{S}}_{n+1,a} \right]_z - D \left[\hat{\mathbf{S}}_{nb} \times \hat{\mathbf{S}}_{n+1,b} \right]_z = \\ &= \frac{D}{2i} \sum_n (\hat{S}_{n,a}^- \hat{S}_{n+1,a}^+ - \hat{S}_{n,a}^+ \hat{S}_{n+1,a}^- - \hat{S}_{n,b}^- \hat{S}_{n+1,b}^+ + \hat{S}_{n,b}^+ \hat{S}_{n+1,b}^-) \end{aligned} \quad (3.5)$$

Волновые функции нулевого приближения составляются на основе волновых функций n-ого димера:

$$\begin{aligned} \psi_{n0} &= \frac{|\uparrow\downarrow\rangle_n - |\downarrow\uparrow\rangle_n}{\sqrt{2}} \\ \psi_{n11} &= |\uparrow\uparrow\rangle_n \\ \psi_{n1-1} &= |\downarrow\downarrow\rangle_n \\ \psi_{n10} &= \frac{|\uparrow\downarrow\rangle_n + |\downarrow\uparrow\rangle_n}{\sqrt{2}} \end{aligned}$$

Волновая функция основного состояния системы невзаимодействующих димеров $\psi^{(0)} = \prod_n \psi_{n,0}$, волновая функция одночастичного возбуждения с $S_z = 1$ $\psi_{n11}^{(1)} = \prod_{n=1}^{n-1} \psi_{n,0} |\uparrow\uparrow\rangle_n \prod_{n+1}^N \psi_{n,0}$ и аналогично для других проекций спина.

Рассмотрим действие оператора возмущения (3.5) на основное состояние и одночастичные возбужденные:

$$\begin{aligned}\hat{V}\psi^{(0)} &= 0 \\ \hat{V}\psi_{n10}^{(1)} &= 0\end{aligned}$$

Ненулевой вклад возникает при действии оператора на функцию $\psi_{n11}^{(1)}$:

$$\hat{V}\psi_{n11}^{(1)} = \frac{D}{2i}(-\psi_{n10;(n+1)11}^{(2)} + \psi_{n10;(n-1)11}^{(2)}) \quad (3.6)$$

Таким образом, взаимодействие Дзялошинского-Мория смешивает одночастичные и двухчастичные состояния. Возникает поправка по энергии во втором порядке теории возмущений к состояниям с $S_z = \pm 1$ величины $\delta E = -\frac{D^2}{2J}$.

Учет слабого междимерного обменного взаимодействия приведет к возникновению дисперсии возбуждений. Однако, так как обменное взаимодействие сохраняет величину проекции спина, то расщепление между состояниями с $S_z = 0$ и $S_z = \pm 1$ при этом сохранится.

Оценим отсюда величину взаимодействия Дзялошинского-Мория, необходимую для описания наблюдаемой тонкой структуры. Расщепление триплетных подуровней, оцененное по расщеплению субкомпонент тонкой структуры $\delta E = 10$ мК, в качестве обменной константы подставим величину щели $\Delta = 3.8$ К. Тогда $D \simeq 0.3$ К. Эта величина согласуется с классической оценкой [20] $D/J \sim \Delta g/g$.

3.2.4 Анализ высокотемпературной ширины линии ЭПР

Независимым способом определения параметров анизотропных спин-спиновых взаимодействий является анализ угловой зависимости высокотемпературной ширины линии резонансного поглощения (см. раздел 2.1.1). Для этого нами была измерена зависимость ширины линии ЭПР от ориентации магнитного поля при температуре 77 К (рис. 3.14). Эти же данные использовались для определения угловой зависимости g -фактора, пример записи линий поглощения показан на рис. 3.10. Значение ширины линии определялось подгонкой экспериментальных данных линией поглощения лоренцевой формы. Типичная ширина линии составляла 40 Э. Погрешность определения ширины линии оценивается в 4 Э и в основном определяется неоднородностью поля на размере образца и зашумленностью линий поглощения.

Теоретический анализ этих экспериментальных данных был проведен М. Файзулиным (Казанский государственный университет) [25]. Если учитывать только взаимодействие Дзялошинского-Мория, то удастся качественно воспроизвести угловые зависимости (рис. 3.14): удастся описать величину анизотропии ширины линии и положение максимумов и минимумов. Однако для полного количественного соответствия необходимо дополнительно учесть либо изотропный вклад в ширину линии в 12 Э (этот вклад может быть связан со спин-решеточной релаксацией), либо учесть вклад более слабого симметричного анизотропного обменного взаимодействия. В результате удалось определить величину и направление вектора Дзялошинского: $D_x = 0.21$ К, $D_y = -0.20$ К, $D_z = 0.11$ К. Ориентация векторов Дзялошинского на разных лестницах показана на

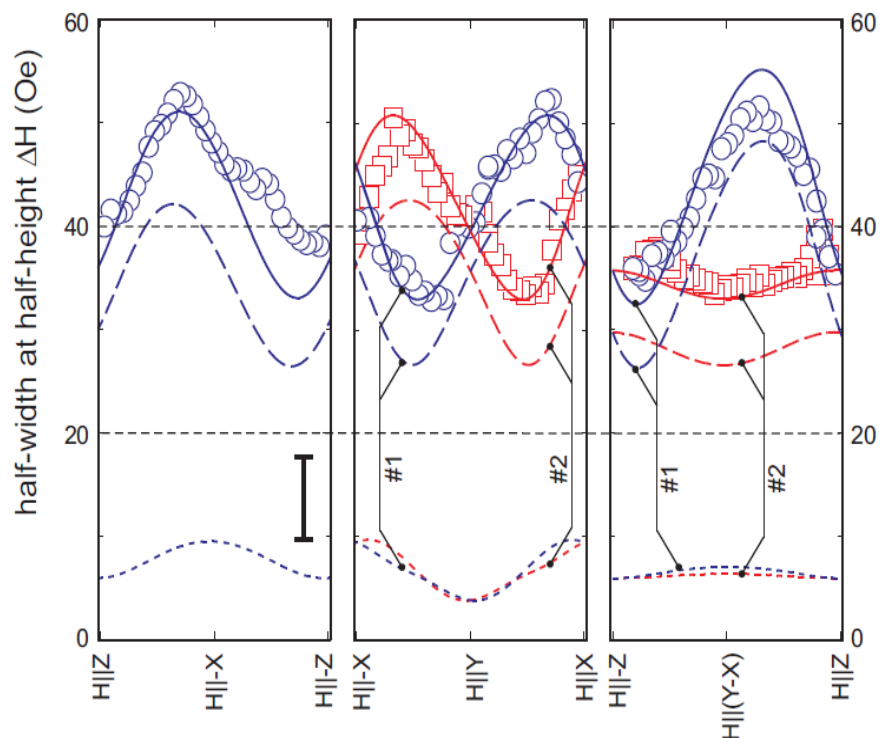


Рис. 3.14: Угловая зависимость ширины линии для $(\text{C}_7\text{H}_{10}\text{N}_2)_2\text{CuBr}_4$. Символами отмечены экспериментальные данные, пунктиром – расчет для взаимодействия Дзялошинского-Мория, точками – расчет для симметричного анизотропного взаимодействия, сплошной линией – суммарный эффект от анизотропных взаимодействий. Вертикальный отрезок показывает полную погрешность определения ширины линии. Отметки 1 и 2 указывают на вклады, относящиеся к одному типу лестниц.

рис. 3.9. Длина вектора Дзялошинского равна 0.3 К, что находится в соответствии с оценкой, произведенной по величине расщепления субкомпонент линии резонансного поглощения при низкой температуре.

3.2.5 Зависимость тонкой структуры спектра возбуждений от магнитного поля

Расщепление субкомпонент наблюдалось на различных частотах ЭПР эксперимента (рис. 3.15). При частоте выше $f_c = \Delta/h = 79.8$ ГГц резонансное поглощение наблюдается выше поля закрытия спиновой щели, при этом расщепление уже не наблюдается. Расщепление на субкомпоненты наблюдалось на частотах ниже 50 ГГц. Оно максимально на самых низких частотах и равно 150 ± 10 Э для правой компоненты и 110 ± 10 Э для левой компоненты. При этом на частоте 50 ГГц (составляющей примерно 2/3 от f_c) величина расщепления для правой компоненты уменьшилась почти в два раза относительно максимального значения (рис. 3.16).

Теоретического описания для зависимости расщепления субкомпонент от частоты ЭПР эксперимента (то есть от величины резонансного поля, в котором это расщепление наблюдается) нет. С точностью эксперимента уменьшение расщепления можно описать линейной зависимостью (рис. 3.16), зануляющейся в критическом поле закрытия спиновой щели. В простой модели, описывающей расщепление триплетных подуровней как действие эффективного кристаллического поля, энергия триплетных подуровней ли-

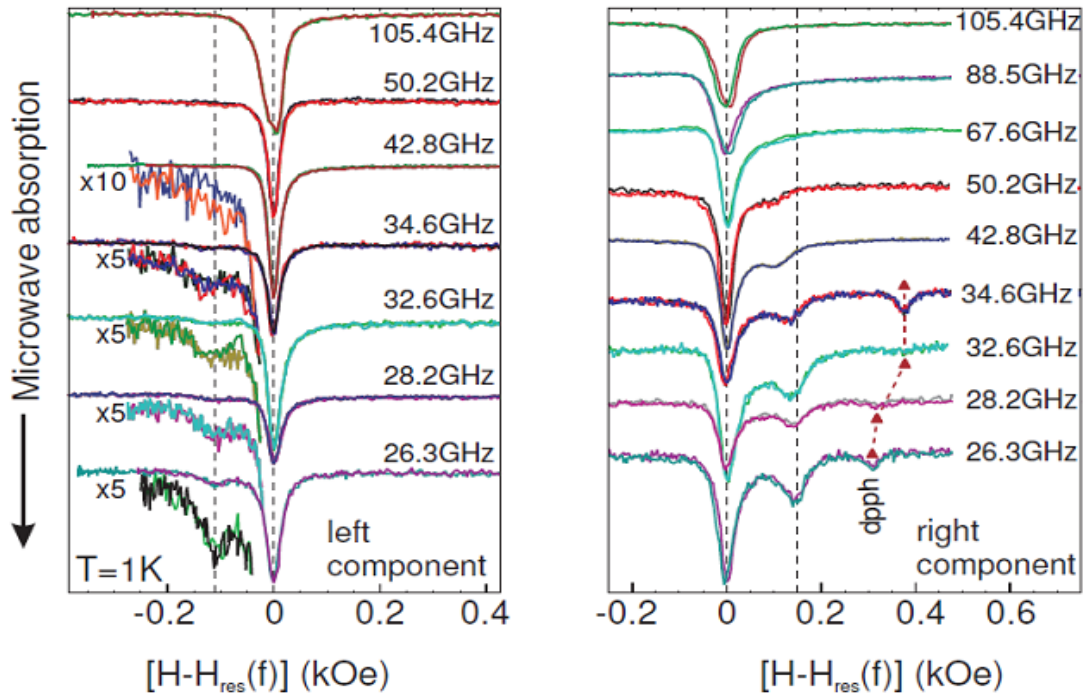


Рис. 3.15: Расщепление субкомпонент линий поглощения на различных частотах при $T=1$ К, $\mathbf{H} \parallel (X+Y)$. Для наглядности левая и правая компоненты показаны отдельно, нуль отсчета поля смещен в резонансное поле интенсивной субкомпоненты. Вертикальные пунктирные линии показывают положение субкомпонент на самой низкой частоте. Треугольниками на правой панели отмечено положение маркера ДФПГ. На левой панели фрагменты линий поглощения отмасштабированы для выделения слабой субкомпоненты.

нейна по полю и расщепление не должно зависеть от поля вовсе. В макроскопической теории спин-щелевых магнетиков Фарутина-Марченко [26] при учете анизотропных взаимодействий зависимость энергии триплетных подуровней от поля может становиться нелинейной вблизи критического поля, однако ширина этой области нелинейности порядка расщепления подуровней в нулевом поле. В случае $(\text{C}_7\text{H}_{10}\text{N}_2)_2\text{CuBr}_4$ это составило бы 100-200 Э, в то время как заметное изменение расщепления наблюдается в поле, меньшем критического на 1 Тл.

Возможно, наблюдаемая зависимость расщепления от магнитного поля связана с однородностью взаимодействия Дзялошинского-Мория в $(\text{C}_7\text{H}_{10}\text{N}_2)_2\text{CuBr}_4$. В недавних работах [21], [27], [28] наблюдалось расщепление линии ЭПР в одномерных магнетиках Cs_2CuCl_4 и $\text{K}_2\text{CuSO}_4\text{Br}_2$ под действием однородного вдоль цепочек взаимодействия Дзялошинского-Мория, которое медленно исчезало при приближении к полю насыщения. Строгое решение задачи об изменении спектра возбуждения в спиновой лестнице при наличии однородного взаимодействия Дзялошинского-Мория требует дополнительных теоретических усилий.

3.2.6 Зависимость ширины линии ЭПР от температуры

Как уже отмечалось, ширина линии ЭПР связана с различными процессами релаксации и, в частности, с действием анизотропных спин-спиновых взаимодействий. Температурная зависимость ширины линии позволяет выделить вклады различных ре-

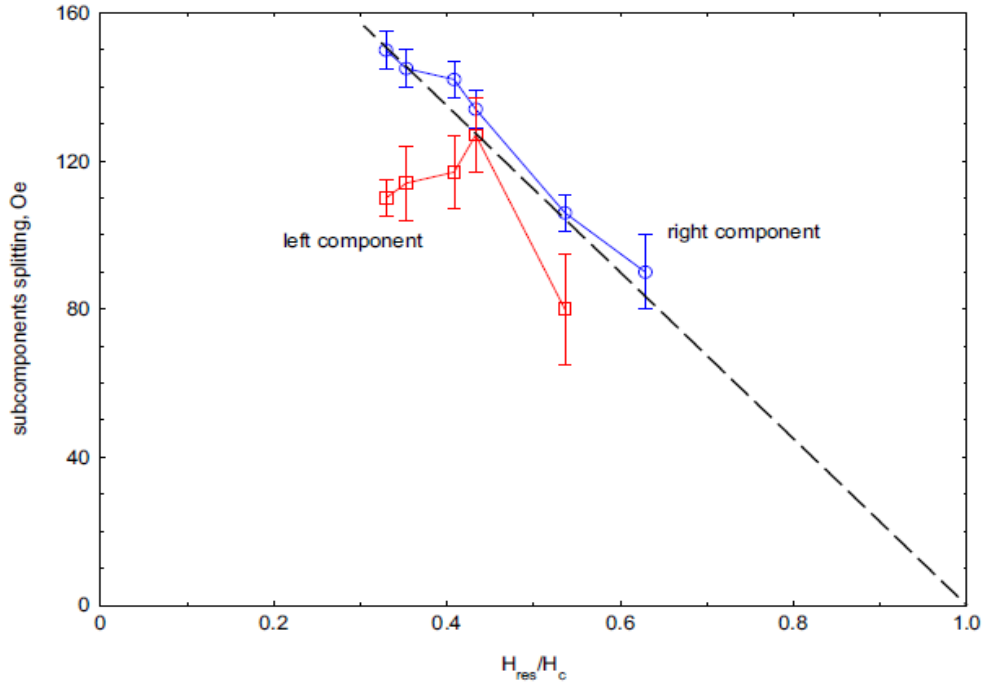


Рис. 3.16: Зависимость расщепления субкомпонент от нормированного магнитного поля. Кружки соответствуют расщеплению правой компоненты, квадратики – расщеплению левой компоненты. Пунктирная прямая проведена для наглядности. Магнитное поле нормировано на критическое поле закрытия спиновой щели.

лаксационных процессов.

Температурная зависимость ширины линии была измерена в двух ориентациях магнитного поля $\mathbf{H}||b$ и $\mathbf{H}||(X + Y)$ в широком диапазоне температур от 400 мК до 300 К (рис. 3.17). Для того, чтобы перекрыть такой диапазон использовалось несколько спектрометров и измерения проводились на разных частотах. Области температур в которых проводилось исследование в каждом из спектрометров перекрывались, в области перекрытия значения ширины линии, измеренные на разных частотах, совпадали в пределах погрешности. Значение ширины линии определялось подгонкой компонент линий поглощения линиями лоренцевой формы, в области температур, в которой наблюдалось расщепление субкомпонент, учитывалась только интенсивная субкомпонента.

Температурная зависимость ширины линии проявляет немонотонный характер (рис. 3.17). Основной вклад в ширину линии при высоких температурах ($T > 77$ К) дает, по-видимому спин-решеточная релаксация, с понижением температуры ее вклад падает из-за уменьшения количества фононов. При температуре 70-90 К ширина линии демонстрирует локальный минимум, при понижении температуры ниже 70 К она начинает расти. Рост ширины линии вероятно связан с усилением спин-спиновой релаксации по мере установления ближнего порядка, подобный рост наблюдался и в других квазиодномерных магнетиках [7]. Таким образом, можно считать, что при температуре 77 К спин-решеточная релаксация уже практически не дает вклада, а спин-спиновая релаксация близка к своему высокотемпературному пределу. Это оправдывает применение высокотемпературного предела к анализу угловой зависимости ширины линии при этой температуре.

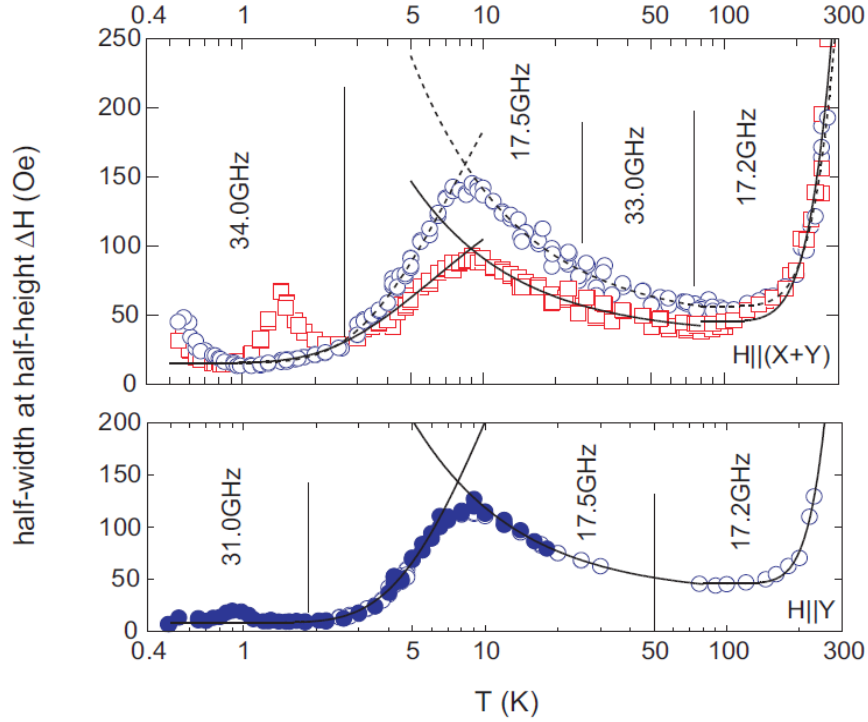


Рис. 3.17: Температурная зависимость ширины линии поглощения для $(\text{C}_7\text{H}_{10}\text{N}_2)_2\text{CuBr}_4$. На верхней панели: кружки относятся к левой компоненте, квадратики – к правой. Погрешность находится в пределах размеров символов. Сплошные кривые являются вспомогательными.

При понижении температуры ниже 10 К ширина линии начинает уменьшаться. Это уменьшение можно качественно интерпретировать как следствие наличия щели в спектре. При понижении температуры уменьшается концентрация газа триплетных возбуждений, эффект взаимодействия возбуждений друг с другом вымерзает, время жизни возбуждений растет, и ширина линии уменьшается. При температуре около 1 К наблюдается локальный максимум ширины линии, связанный с возникновением расщепления субкомпонент. При $\mathbf{H} \parallel (\mathbf{X} + \mathbf{Y})$ наблюдалось уширение линии ЭПР при температуре ниже 1 К, причина этого уширения неизвестна.

Таким образом, при различных температурах работают разные механизмы спиновой релаксации. Возможно, что температурная зависимость ширины линии может быть описана в компактной модели, включающей две обменные константы спиновой лестницы и вектор Дзялошинского, однако построение такой модели требует отдельной теоретической работы.

3.3 Выводы

Экспериментально обнаружен сигнал ЭПР от триплетных возбуждений в магнетике типа спиновая лестница $(\text{C}_7\text{H}_{10}\text{N}_2)_2\text{CuBr}_4$. Анизотропия g -фактора позволяет разрешить сигналы поглощения от двух типов кристаллографически неэквивалентных спиновых лестниц. При низкой температуре интенсивность резонансного поглощения экспоненциально вымерзает в соответствии с щелевым характером спектра возбуждений.

Методом ЭПР удалось обнаружить расщепление линии резонансного поглощения, связанное с тонкой структурой спектра триплетных возбуждений в $(\text{C}_7\text{H}_{10}\text{N}_2)_2\text{CuBr}_4$,

наблюдение тонкой структуры является прямым доказательством того, что возбуждение несет спин $S = 1$. Определенное из эксперимента расщепление триплетных уровней в нулевом поле составляет $\delta E \simeq 10$ мК.

Это расщепление может быть качественно описано учетом разрешенного симметрией кристалла $(\text{C}_7\text{H}_{10}\text{N}_2)_2\text{CuBr}_4$ взаимодействия Дзялошинского-Мория, однородного вдоль спиновых лестниц. О наличии взаимодействия Дзялошинского-Мория также свидетельствует анизотропия высокотемпературной ширины линии ЭПР. Величина вектора Дзялошинского, определенная из анализа ширины линии, составляет $|\mathbf{D}| \approx 0.3$ К.

Обнаружена зависимость тонкой структуры спектра возбуждений от магнитного поля и зависимость спин-спиновой релаксации от температуры. Эти зависимости пока не объяснены. Возможно, что это объяснение может быть получено в рамках компактной модели, включающей две обменные константы спиновой лестницы и вектор Дзялошинского, однако анализ такой модели требует отдельной теоретической работы.

Результаты этой части опубликованы в [25].

4 Магнитный резонанс в неколлинеарном антиферромагнетике $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$

4.1 Введение

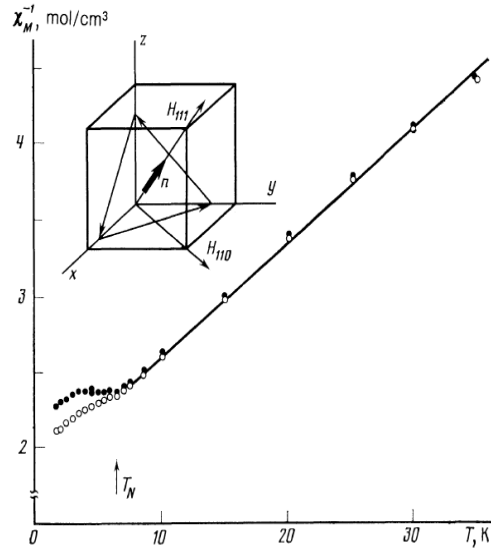


Рис. 4.1: Температурная зависимость обратной восприимчивости для алюминий-марганцевого граната. Закрашенные символы – $H \parallel [110]$, пустые – $H \parallel [111]$. Из работы [30].

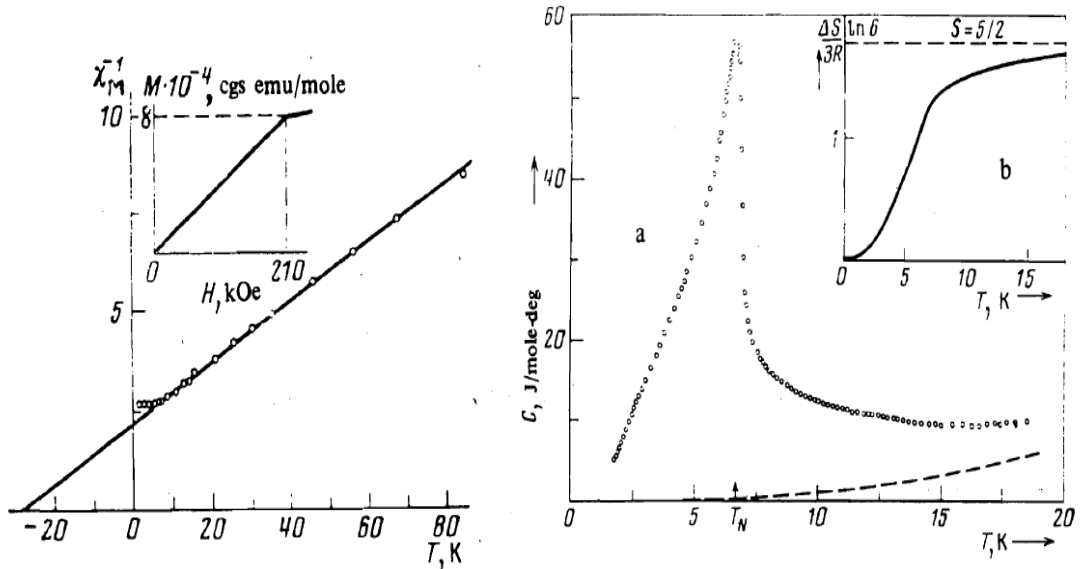


Рис. 4.2: Левая панель: температурная зависимость обратной восприимчивости $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, на вставке – кривая намагничивания до поля насыщения. Правая панель: температурная зависимость теплоемкости, точки – экспериментальные данные, пунктир – решеточная теплоемкость, на вставке – температурная зависимость энтропии. Из работы [31].

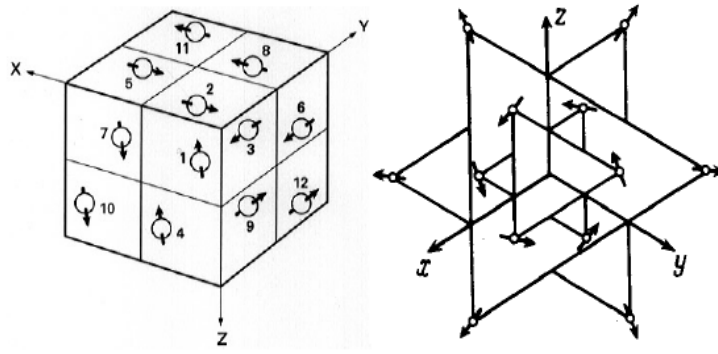


Рис. 4.3: Схемы представления двенадцати-подрешеточного упорядочивания магнитных моментов марганца в $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ из работ [32], [29].

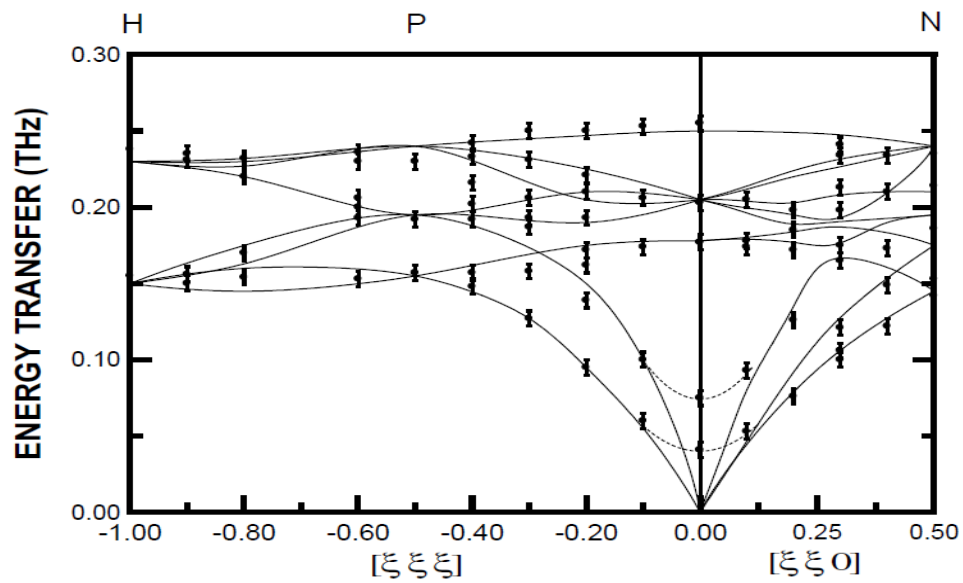


Рис. 4.4: Спектр магнов для алюминий-марганцевого граната, полученный методом неупругого рассеяния нейтронов. Точки – экспериментальные данные, сплошные линии – теоретический расчет, данные из работы [29].

Неколлинеарный антиферромагнетик $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ изучался различными методами. Переход в антиферромагнитно-упорядоченное состояние происходит при температуре $T_N = 6.3 \dots 6.8$ K [29], [30], [31]. Этот переход отмечается λ -аномалией на кривой теплоемкости (рис. 4.2) и особенностью восприимчивости (рис. 4.1, рис. 4.2). Поле насыщения при температуре 3 K составляет 210 кЭ (рис. 4.2). Температура Кюри по экспериментальным данным находится в диапазоне $\theta = -28 \dots -25$ K [30], [31]. Температура Нееля оказывается примерно в четыре раза меньше температуры Кюри, что указывает на наличие фрустрации в магнитной системе.

Магнитная структура определена методом упругого рассеяния нейтронов [29]. Магнитная элементарная ячейка совпадает с кристаллографической и содержит 12 ионов марганца в примитивной ячейке. При низких температурах реализуется сложный неколлинеарный магнитный порядок, описываемый двенадцатиподрешеточной моделью [33]. Расположение упорядоченных локальных магнитных моментов изображено

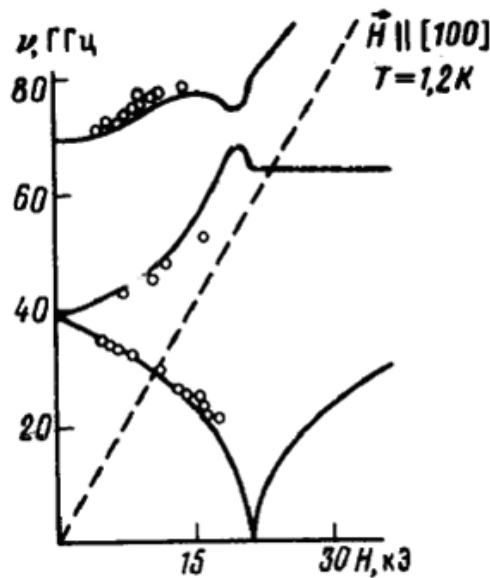


Рис. 4.5: Частотно-полевая зависимость АФМР в ориентации $H \parallel [100]$, при температуре $T=1.2$ К [32].

на рис. 4.3. Магнитные моменты лежат в плоскости (111) кубического кристалла [33]. В кубическом кристалле есть четыре эквивалентных направления типа [111], поэтому в точке Нееля может возникать несколько антиферромагнитных доменов. В магнитном поле эквивалентность этих доменов будет нарушаться, в работе [30] наблюдались особенности в магнитострикции кристалла $Mn_3Al_2Ge_3O_{12}$, связанные с существованием таких доменов.

Динамика магнитных возбуждений изучалась методом неупругого рассеяния нейтронов [29] и методом антиферромагнитного резонанса [32]. В работе [29] определены дисперсионные кривые спиновых волн (рис.4.4). Помимо "акустических" мод обнаружены "оптические" моды спиновых волн с щелью 250 ГГц при $k = 0$. Спектр спиновых волн описан моделью с пятью обменными константами, наибольший из обменов (между ближайшими соседями) составляет 0.7 К (рис.4.4). Также "акустические" моды изучались методом АФМР [32]. Частотно-полевые зависимости были получены в различных ориентациях магнетика относительно постоянного поля, пример частотно-полевой зависимости, полученной в ориентации $H \parallel [100]$, представлен на рис. 4.5. На частотно-полевых зависимостях наблюдается три ветви, соответствующие различным типам колебаний спиновой структуры. В нулевом поле частота колебаний составляет для различных мод примерно 40 ГГц и 70 ГГц при температуре $T=1.2$ К.

Свойства упорядоченной фазы изучались также методом ЯМР. При этом было обнаружено нелинейное поглощение радиоволн, предположительно связанное с колебаниями доменных границ [34].

Целью нашей работы являлось уточнение частотно-полевой зависимости АФМР в более широком диапазоне частот и полей, поиск "оптических" мод спиновых волн и изучение эффектов, связанных с доменной структурой.

4.2 Применение теории обменной симметрии к спиновой динамике $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$

4.2.1 Описание спектров АФМР в рамках теории обменной симметрии

Спиновая динамика $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ может быть описана в рамках теории обменной симметрии Андреева-Марченко [9], [32]. В рамках этой теории неколлинеарная копланарная антиферромагнитная структура описывается с помощью пары векторов $\mathbf{l}_1, \mathbf{l}_2$, таких что, $\mathbf{l}_1 \perp \mathbf{l}_2, \mathbf{l}_1^2 = \mathbf{l}_2^2 = 1$. Для удобства записи уравнений дополнительно вводится еще один вектор, нормальный к двум другим, его можно выразить следующим образом: $\mathbf{n} = [\mathbf{l}_1 \times \mathbf{l}_2]$.

В нулевом поле ориентация этих векторов в пространстве (ориентация спиновой структуры относительно кристалла) определяется минимумом энергии анизотропии. Энергия анизотропии должна быть инвариантна к преобразованиям симметрии данного кристалла. В кубическом кристалле $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ независимыми операциями симметрии являются оси третьего и четвертого порядка, описываемые операторами поворота C_3, C_4 . Для магнитной структуры марганцевого граната действие этих операторов на вектора $\mathbf{l}_1, \mathbf{l}_2$ описывается следующим образом:

$$C_4\mathbf{l}_1 = \mathbf{l}_1, C_4\mathbf{l}_2 = -\mathbf{l}_2, C_3\mathbf{l}_1 = -\frac{1}{2}\mathbf{l}_1 - \frac{\sqrt{3}}{2}\mathbf{l}_2, C_3\mathbf{l}_2 = -\frac{1}{2}\mathbf{l}_2 + \frac{\sqrt{3}}{2}\mathbf{l}_1,$$

Действие таких операторов на энергию анизотропии не должно приводить к ее изменению. Можно показать, что для данного соединения энергия анизотропии записывается в виде:

$$U_A = \lambda \left[\frac{2}{\sqrt{3}}(l_{1x}l_{2x} - l_{1y}l_{2y}) + l_{1z}^2 - l_{2z}^2 \right]$$

В данном случае высокая симметрия обеспечивает наличие только одного инварианта второго порядка.

Для описания спиновой динамики используется лагранжев формализм, лагранжиан спиновой структуры имеет вид:

$$L = T - U = \frac{I}{2}(\dot{\mathbf{l}}_1 + \gamma[\mathbf{l}_1 \times \mathbf{H}])^2 + \frac{I}{2}(\dot{\mathbf{l}}_2 + \gamma[\mathbf{l}_2 \times \mathbf{H}])^2 + \frac{I'}{2}(\dot{\mathbf{n}} + \gamma[\mathbf{n} \times \mathbf{H}])^2 - \lambda \left[\frac{2}{\sqrt{3}}(l_{1x}l_{2x} - l_{1y}l_{2y}) + l_{1z}^2 - l_{2z}^2 \right] \quad (4.1)$$

Для нахождения частот малых колебаний спиновой структуры надо найти минимум потенциальной энергии:

$$P = - \sum_i \frac{I_i}{2} (\gamma[\mathbf{l}_i \times \mathbf{H}])^2 + U_A(\{\mathbf{l}_i\}), \quad (4.2)$$

где $I_1 = I_2 = I, I_3 = I', \mathbf{l}_3 = \mathbf{n}$, и разложить функцию Лагранжа в его окрестности. Для варьирования в качестве малой добавки удобно использовать поворот векторов параметра порядка на малый угол $\delta\mathbf{l}_i = [\delta\phi \times \mathbf{l}_i]$. После этого варьированием функции Лагранжа можно найти все возможные типы колебаний и определить их собственные частоты.

Для получения аналитического результата для частотно-полевого зависимости нужно знать ориентацию спиновой структуры. Единственным случаем, когда это возможно является ориентация приложенного магнитного поля $\mathbf{H} || [111]$. В этом случае для

устойчивого домена плоскость спиновой структуры всегда остается перпендикулярной направлению магнитного поля. Частоты колебаний в зависимости от магнитного поля для этой ориентации:

$$\begin{aligned}\omega_{1,2} &= \sqrt{\left(\frac{I_1}{I_1 + I_3} \gamma H\right)^2 + \frac{4}{3} \frac{\lambda}{(I_1 + I_3)}} \pm \frac{I_3}{I_1 + I_3} \gamma H \\ \omega_3 &= \sqrt{\frac{8}{3} \frac{\lambda}{I_1}}\end{aligned}$$

Эти выражения с точностью до обозначений совпадают с результатом работы [32]. В этих выражениях гиромагнитное отношение γ должно совпадать с гиромагнитным отношением свободного электрона. Отметим также, что при одновременном масштабировании констант I_1 , I_3 , λ ответ для собственных частот не меняется. Это позволяет произвольно зафиксировать значение одной из констант и оставляет только два подгоночных параметра.

4.2.2 Применение численных методов к описанию частотно-полевых зависимостей АФМР

В произвольной ориентации магнитного поля не удастся аналитически получить частоты АФМР: ориентация спиновой структуры зависит от магнитного поля сложным образом. Поэтому возникает необходимость численного решения уравнений спиновой динамики. Мы решили эту задачу также в рамках теории обменной симметрии. Для вычислений использовалась среда **Matlab**. Эта среда содержит большой набор встроенных функций для минимизации, дифференцирования, решения уравнений, при этом некоторые вычисления выполняются аналитически.

В самом общем виде лагранжиан для антиферромагнетика записывается как:

$$L = \sum_i \frac{I_i}{2} \left(\dot{\mathbf{l}}_i + \gamma [\mathbf{l}_i \times \mathbf{H}] \right)^2 - U_A(\{\mathbf{l}_i\}) \quad (4.3)$$

где $U_A(\{\mathbf{l}_i\})$ – энергия анизотропии. Параметры $\{I_i\}$ связаны со значениями магнитной восприимчивости χ_j при приложении поля вдоль $\mathbf{l}_j$: $\chi_1 = \gamma^2(I_2 + I_3)$, $\chi_2 = \gamma^2(I_1 + I_3)$, $\chi_3 = \gamma^2(I_1 + I_2)$. Параметры лагранжиана являются входными параметрами для дальнейших вычислений и подбираются для наилучшего описания частотно-полевых зависимостей.

Ориентация векторов $\mathbf{l}_i$ описывалась углами Эйлера. Положение равновесия находится из условия минимума потенциальной энергии (4.2). Для минимизации использовалась функция **fminsearch**, в которой реализован симплексный алгоритм поиска минимума.

Уравнения динамики получаются варьированием действия $S = \int L dt$. В качестве переменных варьирования мы также использовали углы Эйлера. Потенциальная энергия для численного решения заменялась на ее квадратичную форму в точке минимума. Получаем лагранжиан вида:

$$L = \sum_i \frac{I_i}{2} (\dot{\mathbf{l}}_i)^2 + \gamma \sum_i I_i \left(\dot{\mathbf{l}}_i [\mathbf{l}_i \times \mathbf{H}] \right) - \frac{1}{2} \sum_{\alpha, \beta} \left(\frac{\partial^2 P}{\partial \phi_\alpha \partial \phi_\beta} \right)_0 \phi_\alpha \phi_\beta, \quad (4.4)$$

где ϕ_α – отклонение соответствующего угла Эйлера от точки минимума.

При варьировании кинетической энергии можно воспользоваться тем, что действие содержит интеграл по времени, поэтому полные производные по времени не существенны. Это позволяет при вычислении производных воспользоваться следующими соотношениями:

$$\frac{\partial(\dot{\mathbf{l}}_i)^2/2}{\partial\phi_\alpha} \rightarrow -\ddot{\mathbf{l}}_i \frac{\partial \mathbf{l}_i}{\partial\phi_\alpha}, \quad \frac{\partial(\dot{\mathbf{l}}_i[\mathbf{l}_i \times \mathbf{H}])}{\partial\phi_\alpha} \rightarrow -2[\dot{\mathbf{l}}_i \times \mathbf{H}] \frac{\partial \mathbf{l}_i}{\partial\phi_\alpha} \quad (4.5)$$

Тогда уравнения динамики запишутся в виде:

$$\sum_i I_i \ddot{\mathbf{l}}_i \frac{\partial \mathbf{l}_i}{\partial\phi_\alpha} + 2\gamma \sum_i I_i [\dot{\mathbf{l}}_i \times \mathbf{H}] \frac{\partial \mathbf{l}_i}{\partial\phi_\alpha} + \left(\frac{\partial^2 \mathbf{P}}{\partial\phi_\alpha \partial\phi_\beta} \right)_0 = \mathbf{0} \quad (4.6)$$

Для нахождения собственных частот колебаний воспользуемся гармонической подстановкой вида: $\phi_\alpha(t) = \phi_\alpha^0 e^{i\omega t}$. После ее подстановки в производные по времени получается система уравнений относительно ω , ее матрица коэффициентов:

$$M_{\alpha\beta} = -\omega^2 \sum_i I_i \left(\left(\frac{\partial \mathbf{l}_i}{\partial\phi_\alpha} \right)_0 \left(\frac{\partial \mathbf{l}_i}{\partial\phi_\beta} \right)_0 \right) + \\ + 2i\omega\gamma \sum_i I_i \left(\left(\frac{\partial \mathbf{l}_i}{\partial\phi_\alpha} \right)_0 \left[\frac{\partial \mathbf{l}_i}{\partial\phi_\beta} \times \mathbf{H} \right] \right) + \left(\frac{\partial^2 P}{\partial\phi_\alpha \partial\phi_\beta} \right)_0 \quad (4.7)$$

Существование нетривиальных решений требует выполнения условия $\det M = 0$. Таким образом получалось комплексное уравнение шестой степени относительно ω , которое численно решалось функцией `solve` среды **Matlab**. По физическому смыслу ω должна быть вещественна, поэтому комплексные коэффициенты при нечетных степенях ω должны зануляться. На практике возникает ошибка округления из-за которой корни приобретают небольшую комплексную добавку. Эта добавка отбрасывалась. Также решению ω всегда соответствует парное $-\omega$, поэтому из шести решений уравнения $\det M = 0$ выбиралось три положительных. Таким образом определялось три частоты собственных колебаний спиновой системы.

Построение модельной частотно-полевой зависимости осуществлялось в цикле по следующей схеме:

1. Задание параметров модели, направления магнитного поля, границ изменения магнитного поля и шага по полю;
2. Выбор очередного значения поля и нахождение ориентации векторов $\mathbf{l}_i$ (углов Эйлера), обеспечивающих минимум потенциальной энергии при заданном поле;
3. Расчет коэффициентов матрицы M в точке минимума;
4. Решение уравнения $\det M = 0$ относительно ω ;
5. Переход к следующему значению поля и продолжение вычисления с п.2.

В результате выполнения этого алгоритма получается модельная частотно-полевая зависимость, которая сразу отображается на экране средствами **Matlab** и сохраняется в файл для последующего сравнения с экспериментальными данными. Также при необходимости можно сохранить информацию о равновесной ориентации векторов $\mathbf{l}_i$.

4.3 Экспериментальные результаты и обсуждения

4.3.1 Частотно-полевые зависимости АФМР

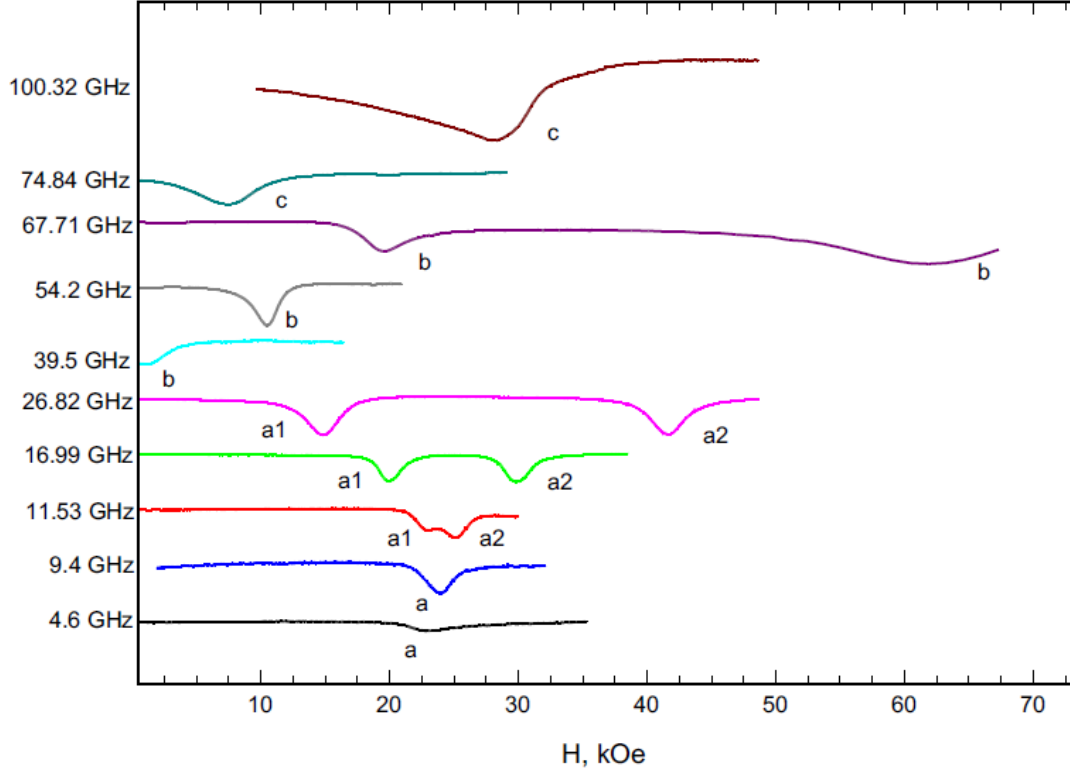


Рис. 4.6: Примеры записи спектров поглощения в $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ на различных частотах в ориентации $H \parallel [100]$ при температуре $T=1.8$ К, a,b,c – различные ветви АФМР, отмеченные в соответствии с рис. 4.7 (верхняя левая панель). Данные на частоте 4.6 ГГц получены Т. Солдатовым.

Примеры спектров резонансного поглощения в $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, полученных при температуре 1.8 К при $H \parallel [100]$, показаны на рис. 4.6. Определенные по таким спектрам частотно-полевые зависимости АФМР для ориентаций магнитного поля $H \parallel [100]$, $H \parallel [111]$, $H \parallel [110]$ показаны на рис. 4.7. Измерения проводились на частотах от 5 до 120 ГГц и в полях до 70 кЭ. Этот диапазон частот и полей существенно расширяет диапазон измерений представленный в работе [32].

Во всех ориентациях наблюдается три ветви АФМР. В нулевом поле резонансные частоты примерно равны 40 и 70 ГГц (при температуре 1.8 К). Также наблюдаются характерные линейные асимптотики в больших полях с наклоном меньше γH . Низкочастотная ветвь при $H \parallel [100]$ смягчается в поле около 23 кЭ.

Полученные частотно-полевые зависимости могут быть описаны в рамках теории обменной симметрии Андреева-Марченко. Для вычисления кривых $f(H)$ во всех ориентациях использовался численный алгоритм, описанный выше. Наилучшему описанию экспериментальных данных при температуре 1.8 К соответствуют значения параметров $\gamma=2.8$ ГГц/кЭ ($17.59 \frac{10^9 \text{ рад}}{\text{с} \cdot \text{кЭ}}$), $\lambda=1$ кЭ², $I_1 = I_2=1.36 \times 10^{-5} \frac{\text{кЭ}^2}{(10^9 \text{ рад} \cdot \text{с}^{-1})^2}$, $I_3=9.04 \times 10^{-6} \frac{\text{кЭ}^2}{(10^9 \text{ рад} \cdot \text{с}^{-1})^2}$, модельные кривые показаны на рис. 4.7. Эти параметры соответствуют величинам щелей $\nu_{01}=38.6$ ГГц, $\nu_{02}=70.6$ ГГц и критическому полю $H_c=24.6$ кЭ, значение

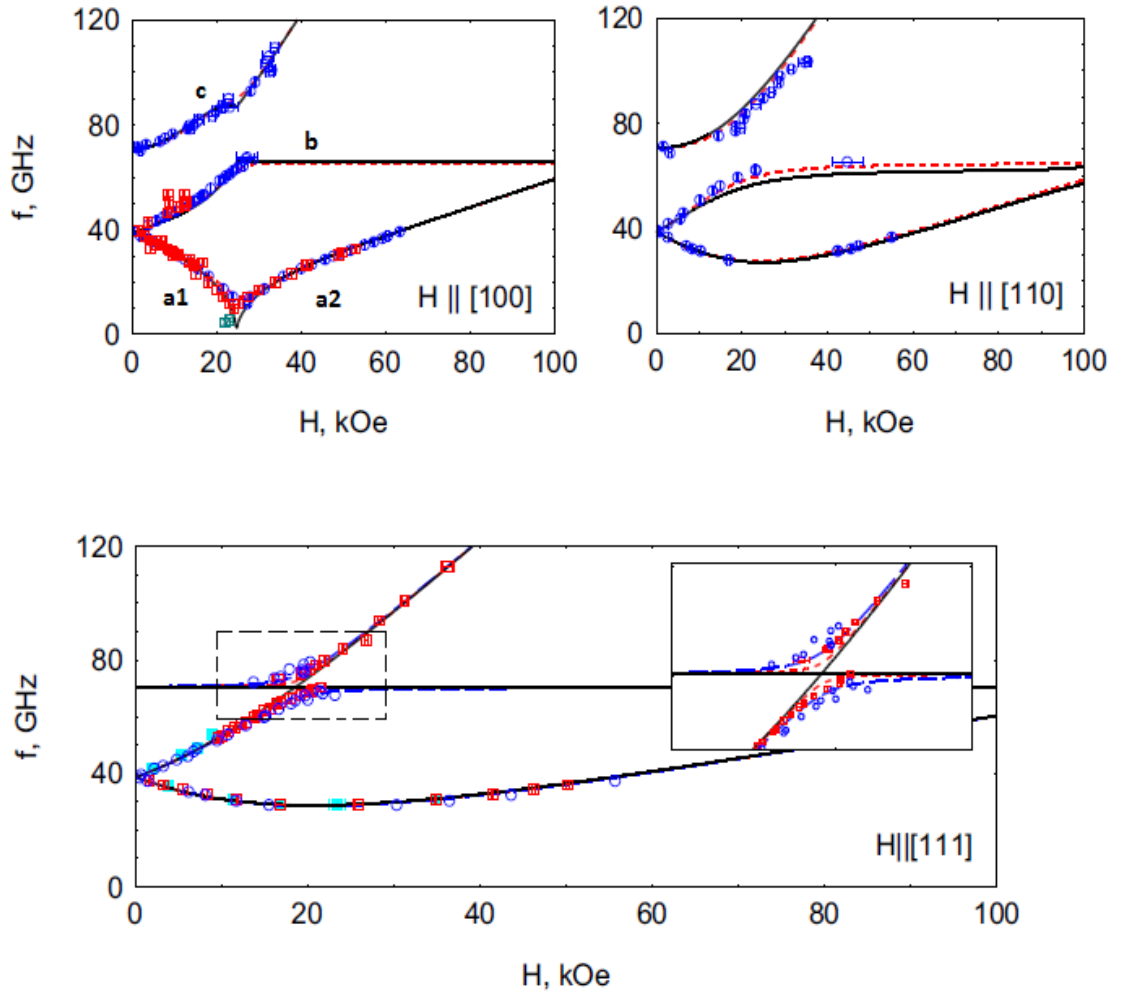


Рис. 4.7: Частотно-полевая зависимость АФМР для различных ориентаций образца $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ относительно поля: $H \parallel [100]$, $H \parallel [110]$ – две верхние панели, $H \parallel [111]$ – нижняя панель. Символы – экспериментальные данные. Синие и красные символы соответствуют измерениям на различных образцах в спектрометрах с криостатом ^4He на температуре около 1.8 К. Голубыми символами отмечены данные, полученные на приборе с криостатом ^3He при $T=1.5$ К. Данные на частоте 4.6 ГГц при $H \parallel [100]$, полученные Т. Солдатовым при $T=1.8$ К, обозначены зелеными символами. Сплошные линии – теоретические расчеты в точной ориентации магнитного поля, красным пунктиром показаны результаты расчета при отклонении поля на 5° от точной ориентации ($[1.2; 1; 1]$, $[0.125; 1; 1]$, $[0.088; 0; 1]$, соответственно), на нижней панели синим пунктиром показаны результаты расчета при отклонении поля на 10° ($[1.45; 1; 1]$). На вставке к нижней панели показана увеличенная окрестность пересечения мод АФМР. Обозначения мод a, b, c для $H \parallel [100]$ соответствуют рис. 4.6.

параметра $\eta = \frac{I_1 - I_3}{I_1 + I_3} = \frac{\chi_3 - \chi_1}{\chi_1} = 0.20$. При определении модельных параметров наибольший вес придавался слабозависящим от небольшой разориентации образца особенностям зависимости $f(H)$: величине меньшей из щелей $\nu_0 \approx 39$ ГГц и высокополевому поведению низкочастотной моды при $H \parallel [100]$. Необходимо подчеркнуть, что на самом деле все экспериментальные данные на рис. 4.7 описываются двумя независимыми параметрами: значение константы γ в рамках теории Андреева-Марченко соответствует гиромагнитному отношению свободного электрона и зафиксировано, а из трех констант

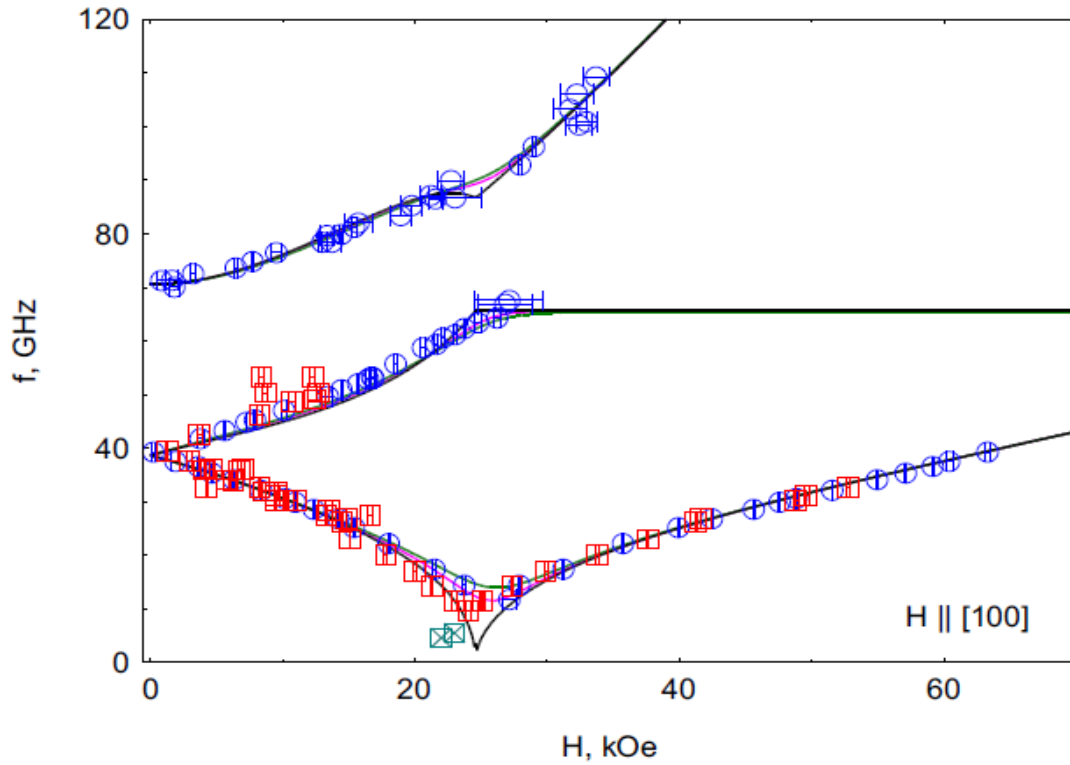


Рис. 4.8: Частотно-полевая зависимость АФМР для ориентации $H \parallel [100]$. Точки – экспериментальные данные. Открытые квадратики и кружочки – данные, полученные для разных образцов с разной точностью выставления ориентации. Перечеркнутые квадратики – данные Т. Солдатова. Сплошная черная линия – теоретические расчеты для точной ориентации поля, зеленая – с отклонением поля в 5° от направления $[100]$, розовая – с отклонением в 3° . Температура 1.8 K.

λ , I_1 , I_3 одна может быть произвольно зафиксирована для описания частотно-полевых зависимостей (мы положили $\lambda=1 \text{ кЭ}^2$).

В алюминий-марганцевом гранате может формироваться четыре домена с разной ориентацией плоскости спиновой структуры. При поле $H \parallel [100]$ все домены эквивалентны, при поле $H \parallel [111]$ и $H \parallel [110]$ домены становятся неэквивалентными. Можно было бы ожидать наблюдение в этих ориентациях нескольких семейств линий поглощения, относящихся к разным доменам, моделирование показывает, что положение резонансного поглощения для разных доменов существенно отличается. На практике такого не наблюдается, наблюдаются линии поглощения только от одного выгодного домена. Это указывает на то, что образец монодоменизируется в малых полях, подробнее эффекты, связанные с доменами, будут рассмотрены далее.

Смягчение низкочастотной ветви АФМР при $H \parallel [100]$ соответствует спин-переориентационному переходу. Этот переход отличается от обычного спин-флопа в коллинеарном антиферромагнетике. При обычном спин-флоп переходе смена ориентации параметра порядка происходит скачком, а в $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ при $H \parallel [100]$ происходит плавный поворот плоскости спиновой структуры. Угол между нормалью к плоскости спиновой структуры и направлением магнитного поля определяется выражением:

$$\cos \xi = \frac{1}{\sqrt{3}} \times \frac{\lambda}{\lambda - \frac{I_1 - I_3}{2} \gamma^2 H^2} \quad (4.8)$$

Поворот заканчивается в поле $H_c = \sqrt{\frac{2(\sqrt{3}-1)\lambda}{\sqrt{3}\gamma^2(I'-I)}}$, в этом же поле должна занулиться частота АФМР.

В эксперименте такому занулению может мешать несколько факторов. Во-первых, спин-переориентационные переходы очень чувствительны к точности выставления образца относительно магнитного поля. Во-вторых, в соединениях марганца сильно взаимодействие электронной и ядерной спиновых подсистем в результате которого при пересечении с частотой ЯМР (около 600 МГц [35]) могут образоваться расталкивающиеся коллективные электронно-ядерные моды спиновой прецессии. В легкоплоскостных антиферромагнетиках с ионами марганца MnCO_3 и CsMnF_3 этот эффект приводил к открытию щели в спектре АФМР величиной 4–5 ГГц [36].

Мы изучали несколько образцов, сориентированных с различной точностью. Для высокочастотных измерений (выше 20 ГГц) использовался образец малого размера, процесс переноса ориентации из рентгеновского дифрактометра описан в разделе 2.3. На этом образце мы наблюдали, что вблизи H_c линии поглощения сливаются вблизи частоты 12 ГГц (рис. 4.8). Это очевидно связано с небольшой разориентацией образца: численное моделирование показывает, что такое значение минимальной частоты низкочастотной моды АФМР соответствует подкосу в 3° . Для низкочастотных измерений (ниже 20 ГГц) использовался большой образец, в котором ось [100] была выставлена с точностью лучше 1° (сориентированный образец предоставлен А. М. Тихоновым). На этом образце мы наблюдали две разрешенные линии поглощения в окрестности H_c вплоть до 11 ГГц, на частоте 9 ГГц мы наблюдали практически слившиеся линии поглощения, а в экспериментах Т. Солдатова слившиеся линии поглощения вблизи H_c наблюдались вплоть до частоты около 5 ГГц. Таким образом, если расталкивание электронной и ядерной мод вблизи H_c имеет место, то оно не превышает 4–5 ГГц.

Другой особенностью частотно-полевых зависимостей является пересечение некоторых ветвей при $H \parallel [111]$. На практике наблюдается небольшое расталкивание этих ветвей (рис. 4.7). Это расталкивание может быть описано разориентацией образца примерно на 5° .

4.3.2 Перестройка спектра поглощения при антиферромагнитном упорядочении в $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$

При переходе через точку Нееля T_N резонансное поглощение в образце меняется. Выше T_N это парамагнитный резонанс с линейной зависимостью $f(H)$, а ниже T_N – антиферромагнитный резонанс со сложной частотно-полевой зависимостью. В эксперименте на фиксированной частоте это приводит к зависимости поля резонансного поглощения от температуры.

Мы провели измерения температурной эволюции поглощения в ориентациях магнитного поля $H \parallel [100]$ и $H \parallel [111]$ (рис. 4.9 и рис.4.10). Для измерений была выбрана частота вблизи низкотемпературного значения щели АФМР, так как при этом смещение резонансного поля максимальное. Выше температуры перехода (при 9 К) положение линии поглощения соответствует g -фактору 2.03 ± 0.02 для $H \parallel [111]$ и 2.01 ± 0.02 для $H \parallel [100]$. При контрольных измерениях при азотной температуре на частоте 17.5 ГГц наблюдалось поглощение с изотропным g -фактором 2.01 ± 0.02 и полушириной линии поглощения (0.78 ± 0.06) кЭ. При переходе через точку Нееля при $H \parallel [111]$ по-

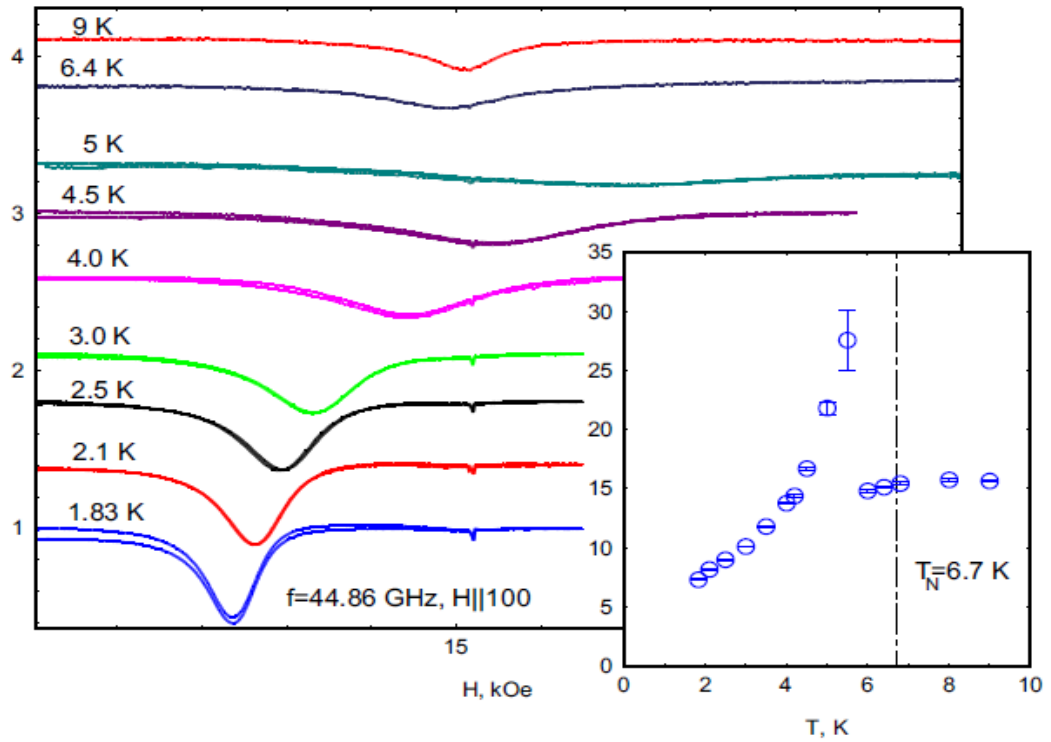


Рис. 4.9: Изменение спектра поглощения в $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ зависимости от температуры для ориентации $\text{H}||[100]$ на фиксированной частоте $f=44.86$ ГГц. На вставке: зависимость положения пика от температуры, пунктиром отмечена температура Нееля $T_N=6.7$ К.

ле резонансного поглощения монотонно убывает, что соответствует росту щели. При $\text{H}||[100]$ зависимость резонансного поля от температуры немонотонна и демонстрирует разрыв, связанный с "переключением" при понижении температуры с ветви **c** на ветвь **b** частотно-полевой зависимости (рис. 4.7).

В ориентации магнитного поля $\text{H}||[111]$ дополнительно была проведена серия экспериментов в спектрометре с криостатом ^3He . Использовался тот же образец залитый пицеином, что и в опытах с криостатом ^4He , но в отличие от криостата ^4He теплообменного газа не было и образец находился в вакууме. По всей видимости это привело к ослаблению теплообмена между образцом и резонатором: при охлаждении резонатора до температуры 1.4 К в течение примерно часа резонансное поглощение наблюдалось в поле парамагнитного резонанса. Подобных эффектов не наблюдалось в опытах с криостатом ^4He при почти той же температуре. После ожидания в течение часа сигнал поглощения сместился в положение, соответствующее антиферромагнитному резонансу. Значение резонансного поля при этом совпадает с результатом опытов с криостатом ^4He при близкой температуре (см. голубые символы на рис. 4.7). После установления этого равновесия мы не заметили сильной зависимости наблюдаемого поглощения от подаваемой в резонатор СВЧ-мощности и от направления и скорости развертки магнитного поля, что говорит о наличии достаточного для отвода поглощаемой в эксперименте СВЧ-мощности теплового контакта. Предположительно такое длительное остывание образца связано с большой теплоемкостью образца в окрестности точки перехода из парамагнитной фазы в антиферромагнитную (рис. 4.2). Тепло, которое необходимо от-

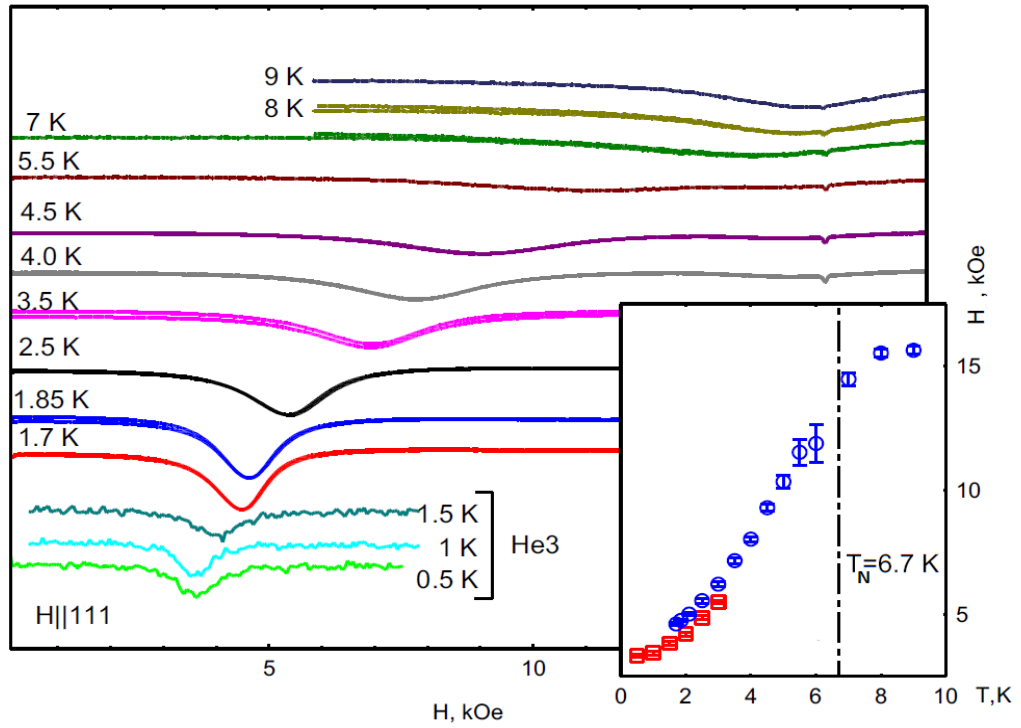


Рис. 4.10: Изменение спектра поглощения в $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ зависимости от температуры для ориентации $H \parallel [111]$. Показаны объединенные данные записи спектра поглощения с двух спектрометров: с откачкой паров ^4He (1.7 – 9 K) на частоте $f = 44.84$ ГГц и с откачкой паров ^3He (0.5 – 1.5 K) на частоте $f = 44.24$ ГГц. На вставке: зависимость положения пика от температуры, пунктиром отмечена температура Нееля $T_N = 6.7$ K. Данные, отмеченные синими символами получены в спектрометре с криостатом с ^4He , красные – в спектрометре с криостатом ^3He .

вести от образца при охлаждении ниже точки Нееля $Q = \int C dT$ составляет примерно 150 Дж/моль, то есть 0.25 мДж для образца массой 1 мг. Отведение этого тепла в течение часа требует средней мощности теплоотвода 70 нВт. Известно по опыту работ с этим спектрометром, что при измерениях на спектрометре с криостатом ^3He типичное резонансное поглощение СВЧ-мощности составляет около 10 нВт. Таким образом, можно надеяться, что имеющегося неидеального теплового контакта хватает на термализацию образца в условиях эксперимента. Мы планируем провести дополнительные эксперименты по измерению низкотемпературных спектров АФМР с более надежным тепловым контактом образца и резонатора. На рис. 4.10 приведены данные по температурной зависимости поля резонансного поглощения до 0.5 K по показаниям термометра, установленного на резонаторе.

При анализе данных температурной зависимости поля резонансного поглощения основной сложностью является одновременная зависимость от температуры и величины щели, и динамических констант. Такое сложное поведение не позволяет, как в коллинеарных антиферромагнетиках, воспользоваться простейшим корневой закон $\nu = \sqrt{\nu_0^2 + (\gamma H)^2}$ для определения зависимости щели от температуры. Для решения этой задачи температурные зависимости поля резонансного поглощения были измерены при $H \parallel [111]$ на трех частотах близких к щели: 41.43 ГГц, 44.24 ГГц, 49.06 ГГц. Для каж-

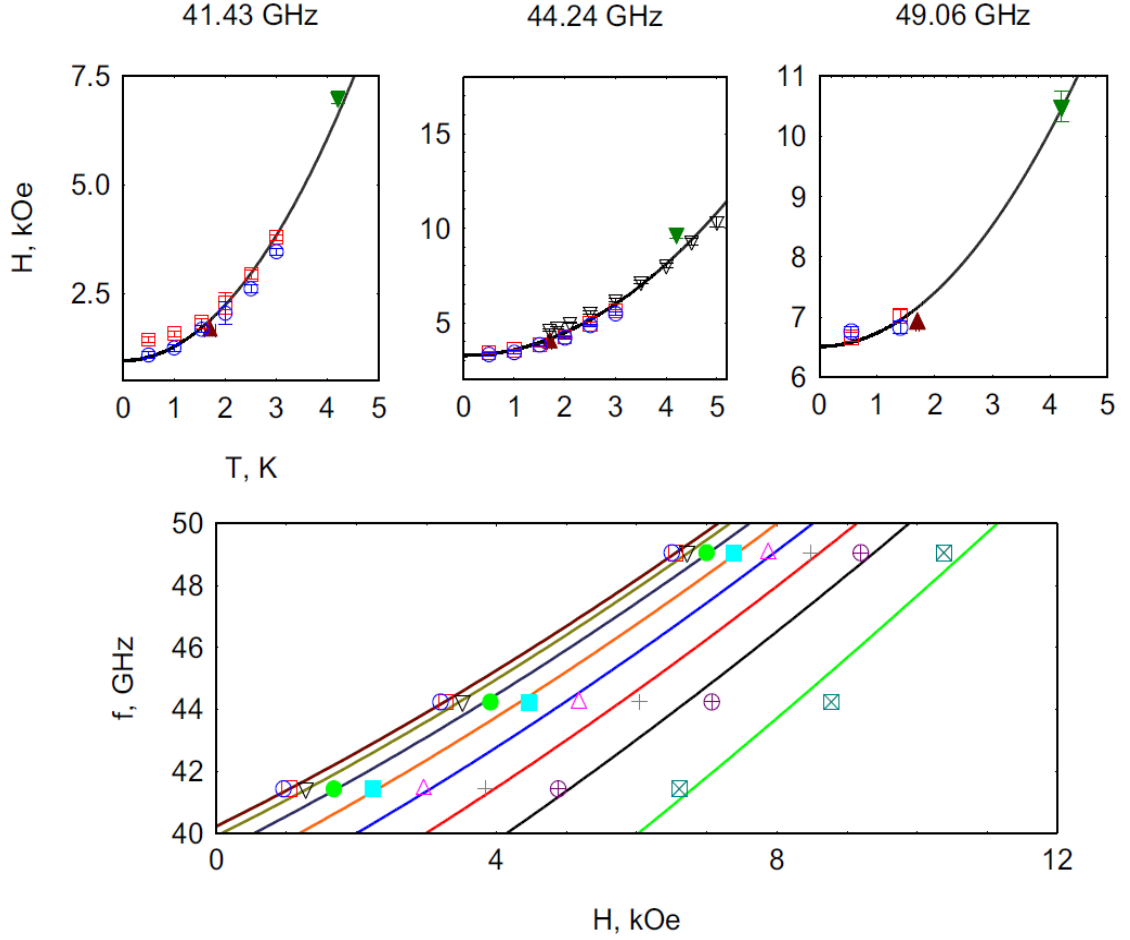


Рис. 4.11: Три верхних панели: температурная зависимость резонансного поля на различных частотах в ориентации $H \parallel [111]$. Красные и синие символы – данные полученные при низких температурах на приборе с откачкой паров ^3He . Черные и зеленые символы – на приборе с откачкой ^4He . Коричневые точки получены по данным из работы [32]. Сплошные линии результат подгонки параболой. Нижняя панель: частотно-полевая зависимость, построенная по экстраполяции данных при температурах 0 К, 0.5 К, 1 К, 1.5 К, 2 К, 2.5 К, 3 К, 3.5 К, 4.2 К (слево - направо), точки – результат экстраполяции, прямые линии – подгонка по формуле для частоты при $H \parallel [111]$ (4.9).

дой частоты была построена зависимость положения резонансного пика поглощения от температуры (рис. 4.11), которая описывается эмпирической зависимостью $aT^2 + b$. С использованием этих эмпирических зависимостей были построены частотно-полевые зависимости для серий температур от 0 до 4.2 К (рис. 4.11). Эти данные для каждой отдельной температуры подгонялись кривой, соответствующей ветви АФМР при поле, направленном вдоль $[111]$:

$$\nu = \sqrt{\nu_{01}^2 + \left(\frac{1+\eta}{2} \gamma H \right)^2} + \frac{1-\eta}{2} \gamma H, \quad (4.9)$$

где $\eta = \frac{I_1 - I_3}{I_1 + I_3} = \frac{\chi_3 - \chi_1}{\chi_1}$.

Таким образом были определены температурные зависимости щели $\nu_{01}(T)$ и параметра $\eta(T)$ (рис. 4.12). Полученные данные хорошо соответствуют значениям, опреде-

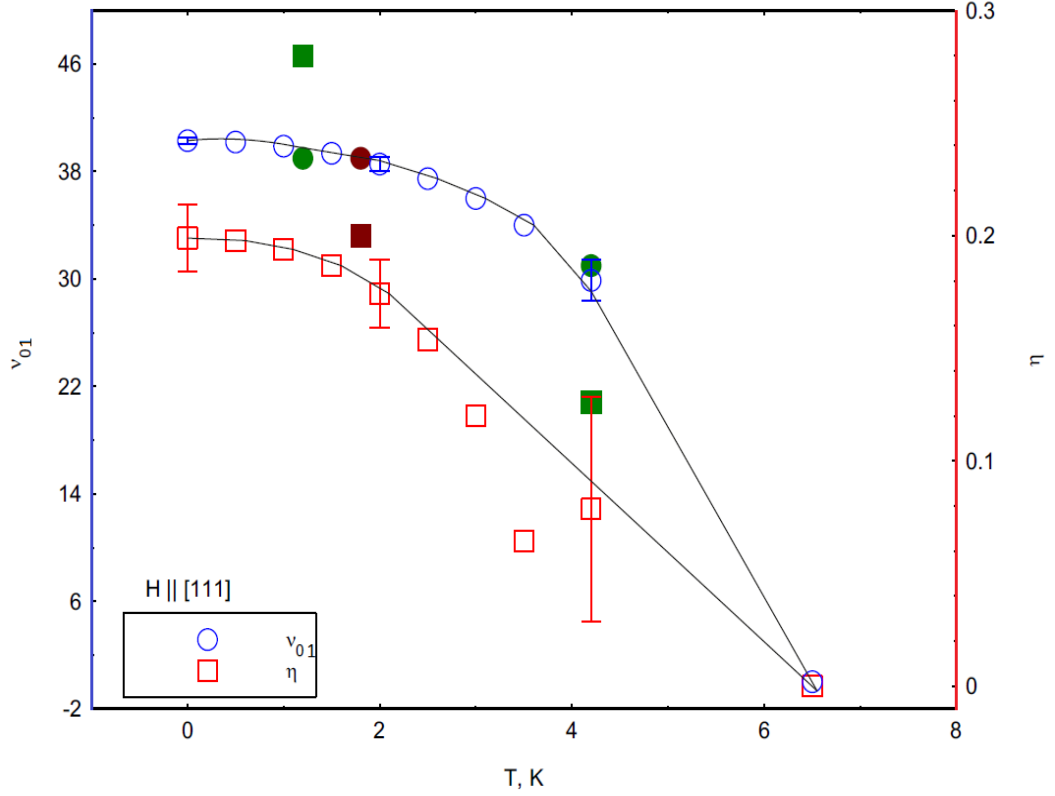


Рис. 4.12: Температурная зависимость нижней щели АФМР (круглые символы) и температурная зависимость параметра η , связанного с отношением продольной и поперечной восприимчивостей (квадратные символы). Открытые символы получены по температурным зависимостям резонансного поля при $H \parallel [111]$ (см. текст). Закрашенные символы получены по результатам подгонки частотно-полевых зависимостей: коричневые символы ($T=1.8$ К) – результаты этой работы, зеленые (1.2 К и 4.2 К) – из работы [32]. Сплошные кривые проведены для наглядности.

ленным по подгонке полных частотно-полевых зависимостей при нескольких температурах. Отличие параметра η , определенного в работе [32] при температуре 1.2 К, от наших результатов можно объяснить отсутствием в работе [32] высокополевых данных: параметр η определяет асимптотический наклон низкочастотной моды АФМР и с большей точностью определяется из высокополевых данных.

В точке перехода обе величины должны зануляться, ожидается, что в окрестности щель будет зависеть от температуры корневым образом $\nu_0 \propto (T_N - T)^{1/\alpha}$, а параметр $\eta = \frac{\chi_3 - \chi_1}{\chi_1} \propto (T_N - T)$. Однако, точно проследить эту эволюцию не удастся. При низкой температуре значения параметров приближаются к своим предельным значениям, не указывая на рост сверхтонкого вклада в щель, который типичен для некоторых антиферромагнетиков с марганцем [36]. Это видимо связано с тем, что в алюминиево-марганцевом гранате чисто электронная щель в спектре АФМР заметно превосходит сверхтонкую.

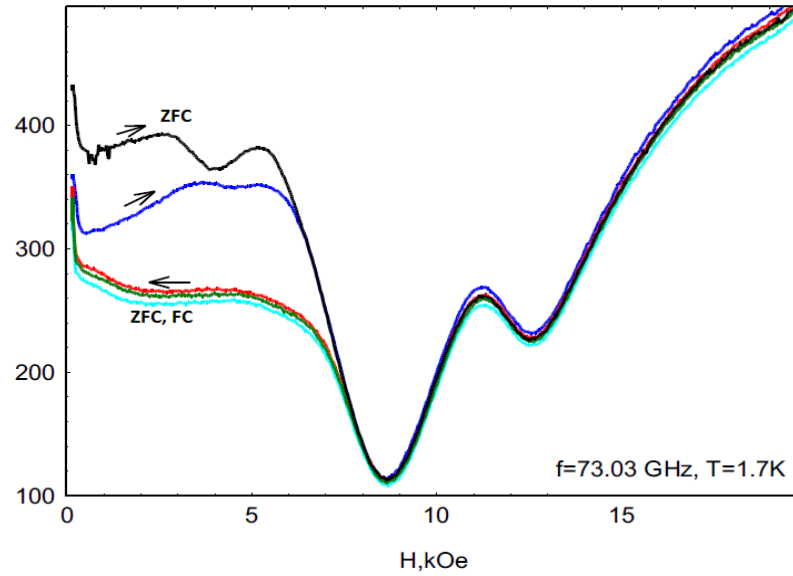


Рис. 4.13: Записи линий поглощения в $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, полученные при увеличении и уменьшении поля, в различных условиях. Направление прохода показано стрелкой. ZFC – нагревание в нулевом поле выше температуры Нееля $T_N=6.7$ К с последующим охлаждением, FC – проход вниз по полю после нагрева выше температуры Нееля с последующим охлаждением в поле 30 кЭ. $H \parallel [100]$, $f=73.03$ ГГц, $T=1.7$ К. Измерения проводились на большом образце, присутствуют искажения формы линии поглощения.

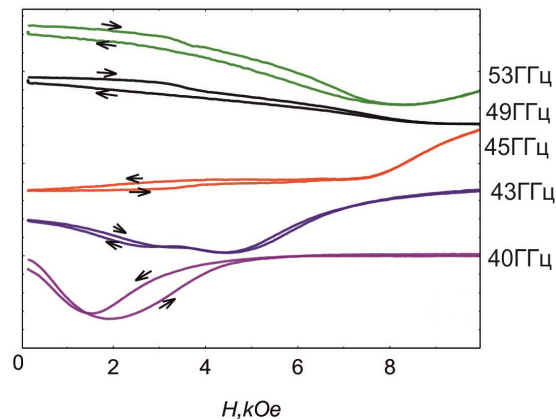


Рис. 4.14: Записи линий поглощения в $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ на различных частотах, полученные при увеличении и уменьшении поля. Направление прохода показано стрелкой. $H \parallel [100]$, $T=1.7$ К. Измерения проводились на большом образце, присутствуют искажения формы линии поглощения.

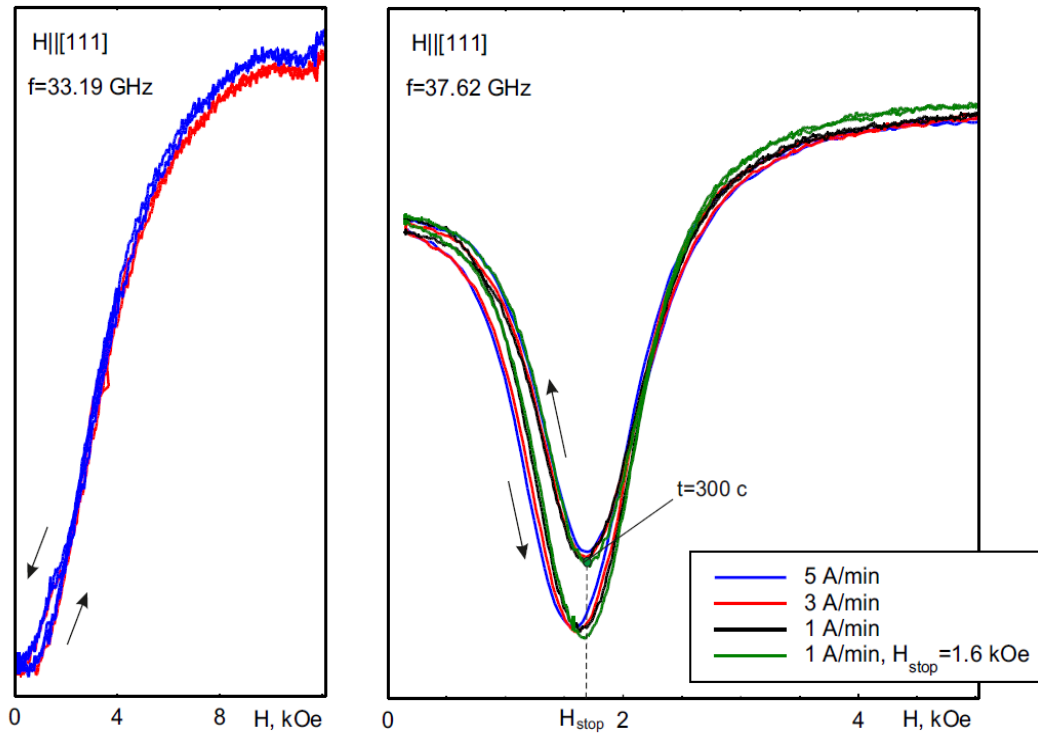


Рис. 4.15: Гистерезис резонансного поглощения в $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ на частотах $f=33.19$ ГГц и $f=37.62$ ГГц для разных образцов в ориентации поля $\mathbf{H}||[111]$ при температуре $T=1.8$ К. Стелочками указаны направления прохода по полю. Левая панель: красная кривая – развертка по полю до 20 кЭ, синяя – до 12 кЭ, слабая линия поглощения в 12 кЭ – ДФПГ. Правая панель: экспериментальные кривые получены при разных скоростях развертки, отмеченная точка соответствует ожиданию в течение 300 с в поле 1.6 кЭ на обратном проходе по полю. Измерения проводились на маленьком образце, искажения формы линии незначительны.

4.3.3 Наблюдение гистерезиса резонансного поглощения и доменная структура антиферромагнитной фазы $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$.

Магнитная структура $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ компланарна, упорядоченные спины лежат в плоскости перпендикулярной направлению типа $[111]$. Поэтому ниже точки Нееля может формироваться четыре типа доменов с разной ориентацией спиновой плоскости ($\mathbf{n}||[111]$, $[-1-11]$, $[1-1-1]$, $[-11-1]$). При переходе через точку Нееля в нулевом поле все эти магнитные домены равновероятны. Из-за анизотропии магнитной восприимчивости при приложении магнитного поля какие-то домены могут быть более выгодными. Поэтому доменная структура может управляться магнитным полем и зависит от предистории образца (например, охлаждался ли образец в поле или без поля).

Резонансное поле АФМР зависит от ориентации магнитного поля относительно плоскости спиновой структуры. Поэтому при наличии в образце различных доменов в линии поглощения должны присутствовать вклады от этих доменов, а при перестройке доменной структуры форма линии поглощения будет изменяться. Поэтому по спектру резонансного поглощения можно судить о доменной структуре образца.

При измерениях частотно-полевых зависимостей не было обнаружено регулярного появления дополнительных компонент линий поглощения. Это говорит о монодомени-

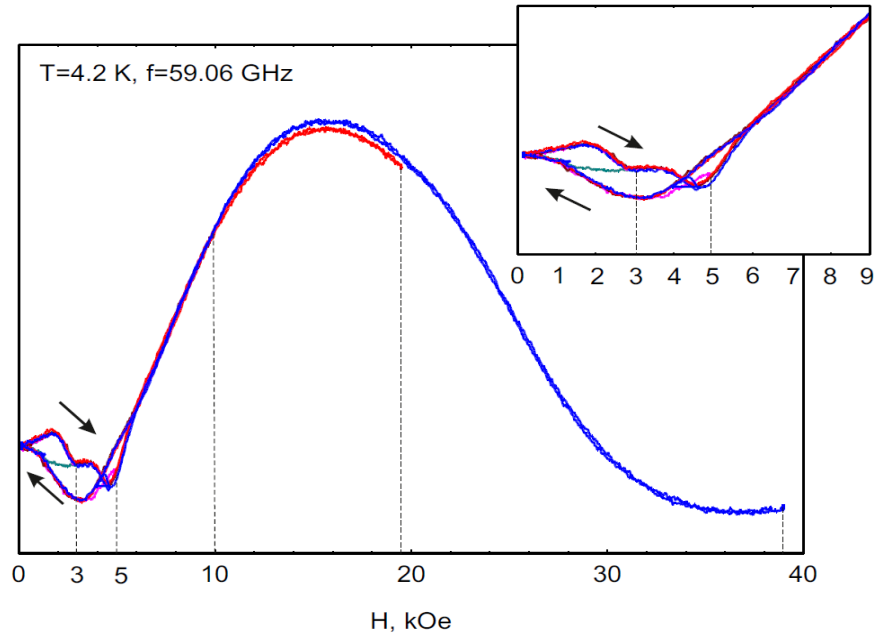


Рис. 4.16: Гистерезис резонансного поглощения в $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ на частоте $f=59.06$ ГГц для различных диапазонов развертки по полю (максимальное поле отмечено пунктиром). Стелочками указаны направления прохода по полю. Ориентация поля $\text{H}||[100]$, температура $T=4.2$ К. Измерения проводились на большом образце, присутствуют искажения формы линии поглощения.

зации образца в умеренных полях. Для исследования перестройки доменной структуры в малых полях удобно проводить АФМР эксперименты на частотах вблизи щелей (40 ГГц и 70 ГГц), когда резонансное поглощение наблюдается в малых полях.

Мы наблюдали гистерезис поглощения в малых полях для различных образцов при $\text{H}||[111]$, $\text{H}||[110]$ и $\text{H}||[100]$ на различных частотах вблизи обеих щелей (рис. 4.13 – 4.18). Первые опыты при $\text{H}||[100]$ были выполнены на большом образце с поперечным размером несколько миллиметров. Оказалось, что для такого образца длина волны СВЧ-излучения сравнима с размером образца и в образце возможно формирование стоячей волны. Условие формирования стоячей волны зависит от коэффициента преломления образца, который зависит от действительной части магнитной восприимчивости, которая сильно меняется в окрестности резонансного поглощения. Это приводит к искажению наблюдаемой формы линии (рис. 4.13), что затрудняет определение поля резонансного поглощения. Эти искажения однако не мешают обнаружению гистерезиса наблюдаемой формы линии поглощения, а большой размер образца даже усиливает наблюдаемый эффект. В дальнейшем измерения проводились с образцами меньших размеров, в которых таких искажений не было, но гистерезис по-прежнему наблюдался (рис. 4.15).

Наблюдение гистерезиса может быть связано с различными техническими причинами: плохая термализация образца и перегрев его поглощаемой мощностью, запаздывание электроники и т. д. Для исключения таких возможностей были сделаны контрольные эксперименты: линия поглощения записывалась с разной скоростью развертки поля (рис. 4.15, рис. 4.18), с разной подаваемой СВЧ-мощностью (рис. 4.18), измерения проводились на разных образцах с различными способами монтажа и различными тепло-

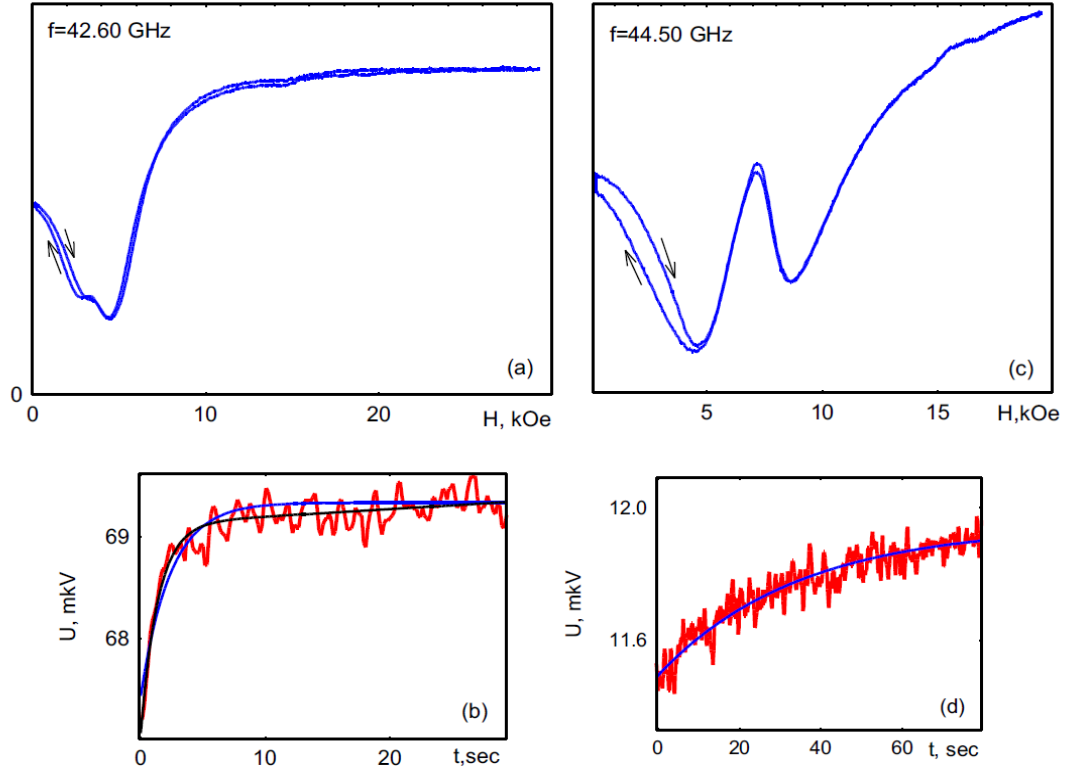


Рис. 4.17: (а), (с) – гистерезис резонансного поглощения в $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ для двух частот $f=42.60$ ГГц и $f=44.50$ ГГц в поле $H||[100]$ при температуре $T=1.7$ К. Стелочками указаны направления прохода по полю. Измерения проводились на большом образце, присутствуют искажения формы линии поглощения. (b), (d) – релаксация сигнала на детекторе после возврата в нулевое поле ((b) – 42.6 ГГц, (d) – 44.5 ГГц). Гладкие кривые – подгонка экспоненциальным законом релаксации, характерное время релаксации для данных на панели (b) около двух секунд, на панели (с) около 30 секунд (см. таблицу 2).

выми контактами (рис. 4.13 – 4.18). При этом гистерезис сохранялся. Гистерезис также наблюдался в различных спектрометрах, что позволяет исключить его связь с каким-то паразитным поглощением в резонаторе.

Нами были проделаны серии экспериментов с охлаждением образца в нулевом и высоком поле (рис. 4.13). Оказалось, что при охлаждении образца через точку Нееля в нулевом поле записываемая с ростом поля линия поглощения отличается как от линии поглощения, записываемой с уменьшением поля, так и от линии поглощения, записываемой с ростом поля после захода в большие поля. Линия поглощения, записываемая с уменьшением поля повторяется независимо от предистории образца, включая охлаждение через точку Нееля в поле. Такое поведение также указывает на связь наблюдаемого гистерезиса со свойствами образца, а не техническими причинами.

Для всех исследованных ориентаций образца линии поглощения, записываемые с увеличением и уменьшением поля совпадают выше некоторого порогового поля H^* . Величина этого поля зависит от ориентации: при $T=1.8$ К для $H||[100]$ $H^* = (7.5 \pm 0.5)$ кЭ, для $H||[110]$ $H^* = (3.5 \pm 0.5)$ кЭ, для $H||[111]$ $H^* = (2.0 \pm 0.2)$ кЭ. Температурную зависимость мы систематически не исследовали, для $H||[100]$ при $T=4.2$ К пороговое поле уменьшилось до $H^* = (6.0 \pm 0.2)$ кЭ. Если при записи линии поглощения, не

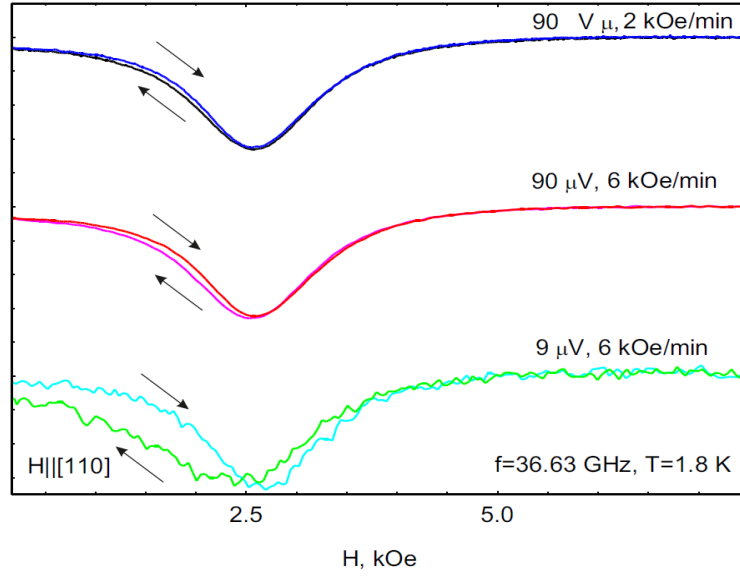


Рис. 4.18: Гистерезис резонансного поглощения в $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ на частоте $f=36.63$ ГГц для различных значений подаваемой СВЧ-мощности и скоростей развертки по полю. Скорость развертки и величина сигнала на квадратичном детекторе вдали от резонансного поглощения показаны рядом с соответствующими кривыми. Ориентация поля $H||[110]$, температура $T=1.8$ К. Измерения проводились на маленьком образце, искажения формы линии незначительны.

доходя до порогового поля, начать уменьшать поле, гистерезис сохраняется, но "петля гистерезиса" уменьшается (рис. 4.16).

Таблица 2: Времена релаксации сигнала на детекторе после возврата в нулевое поле, полученные в различных экспериментах.

Частота эксперимента, ГГц	Подгонка вида $a - be^{-t/\tau}$	Подгонка вида $a - be^{-t/\tau} + ct$
	τ , с	τ , с
75.52	23.9	53.4
73.03	21.2	21.3
42.60	1.4	2.4
44.50	34.4	14.0
44.84	12.5	6.0

В экспериментах при температуре $T=4.2$ К при возвращении в нулевое поле сигнал (напряжение на детекторе) возвращался в исходную точку (рис. 4.16), а в экспериментах при $T=1.7$ К сигнал возвращался к новому значению и затем медленно релаксировал к исходному значению уже в нулевом поле (рис. 4.17). Характерное время релаксации составляло порядка 20 секунд (см. рис. 4.17 и таблицу 2). Для контроля такой медленной динамики был проведен дополнительный эксперимент, в котором при выводе поля развертка поля останавливалась на время 300 секунд в поле меньшем порогового (выбиралось значение поля с максимальным отличием сигнала поглощения, записываемого с уменьшением и увеличением поля). При этом за время ожидания заметного изменения сигнала не было и при дальнейшем выведении поля сигнал следовал обычной траектории (рис. 4.15).

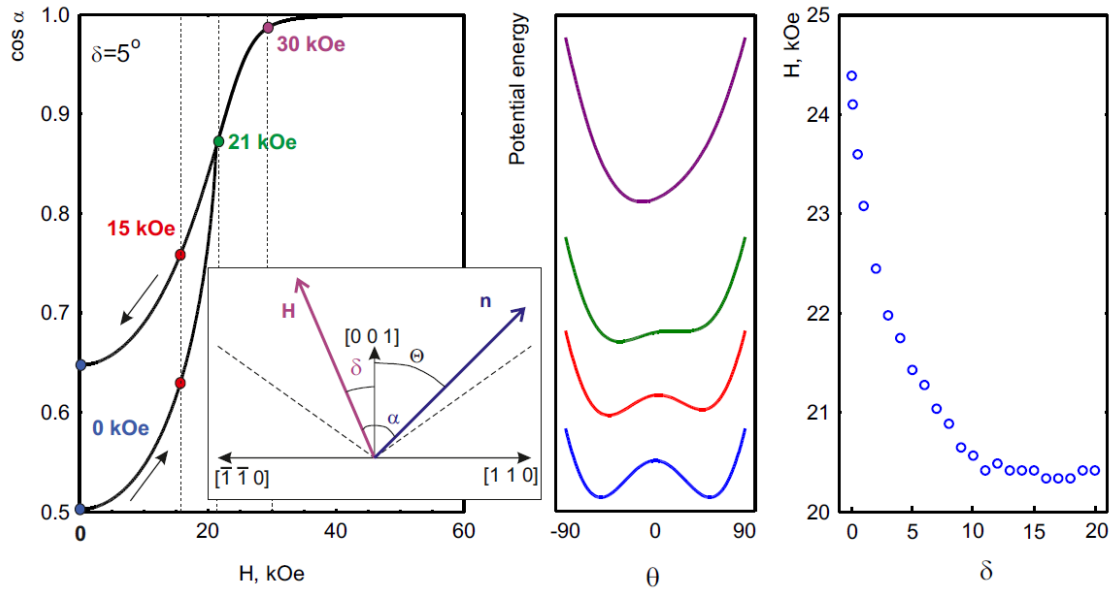


Рис. 4.19: Левая панель: численное моделирование наблюдения гистерезиса в $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$. Поле приложено в направлении $[-\xi - \xi 1]$ под углом $\delta = 5^\circ$ к оси $[001]$, начальная ориентация вектора $\mathbf{n}$ параллельна $[111]$. На вставке показано схематичное изображение векторов нормали и магнитного поля относительно выделенных направлений кубического кристалла. Средняя панель: зависимость потенциальной энергии от угла между направлением $[001]$ (θ на вставке левой панели) и вектором $\mathbf{n}$ (потенциальная энергия минимизована по повороту вокруг $\mathbf{n}$). Расчет произведен для различных значений поля в соответствии с точками выделенными на левом графике. Правая панель: зависимость порогового поля, при котором начинается гистерезис от угла отклонения от выделенного направления $[001]$ (δ на вставке левой панели).

Таким образом, наши экспериментальные результаты указывают на существование в $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ доменной структуры, которая подавляется зависящим от ориентации магнитным полем величиной 2–8 кЭ. Медленное восстановление равновесной доменной структуры в нулевом поле возможно связано с пиннингом доменных границ. В работе [30] также наблюдалась монодоменизация образца в таких малых полях. В работе [34] нелинейное поглощение наблюдалось в полях вплоть до поля спин-переориентационного перехода (24 кЭ), в то время как по нашим данным образец монодоменизируется выше 8 кЭ.

Мы численно смоделировали устойчивость различных доменов в магнитном поле. Для этого в среде **Matlab** была написана программа, которая моделировала эксперимент по наблюдению гистерезиса: расчет начинался с зафиксированного домена с $\mathbf{n}||[111]$ и программа отслеживала положение локального минимума потенциальной энергии при увеличении и последующем уменьшении величины приложенного поля. Параметры потенциальной энергии брались те же, что и параметры, используемые при описании частотно-полевой зависимости АФМР при $T=1.8$ К. В ориентации $\mathbf{H}||[-1-11]$ энергетически невыгодный домен ($\mathbf{n}||[111]$ в нулевом поле) всегда остается в локальном минимуме потенциальной энергии. В точной ориентации $\mathbf{H}||[001]$ все домены эквивалентны, с ростом поля спиновая плоскость плавно поворачивается и в поле выше критического $\mathbf{n}||[001]$. При выведении поля ниже H_c случайно выбирается один из доменов $\mathbf{n}||[-1-11]$ или $[111]$. При небольшом отклонении поля от $[001]$ эти домены перестают быть эквивалентными. Мы обнаружили, что при этом один из доменов оказывается абсолютно

неустойчив выше некоторого поля (4.19). Это поле потери устойчивости слабо зависит от угла подкоса и его величина близка к полю спин-переориентационного перехода, то есть в три раза превышает наблюдаемое при $H \parallel [100]$ пороговое поле. При $H \parallel [1-10]$ невыгодный домен ($n \parallel [111]$ в нулевом поле) также оказывается абсолютно неустойчив в поле около 30 кЭ, что также заметно превышает наблюдаемое пороговое поле. Таким образом наблюдаемая перестройка доменной структуры видимо не связана с потерей абсолютной устойчивости некоторых доменов.

4.4 Выводы

Для алюминий-марганцевого граната была получена частотно-полевая зависимость АФМР в расширенном диапазоне частот и полей для трех основных ориентаций магнитного поля. Наблюдается три ветви АФМР с щелями около 40 и 70 ГГц, наблюдается смягчение низкочастотной моды АФМР вблизи точки спин-переориентационного перехода. По сравнению с работой [32] получены новые данные на частотах ниже 20 ГГц и выше 80 ГГц и данные в полях выше 30 кЭ.

Частотно-полевая зависимость была проанализирована в рамках теории обменной симметрии, была решена задача нахождения частотно-полевой зависимости АФМР численными методами. Определены параметры, описывающие спиновую динамику $Mn_3Al_2Ge_3O_{12}$.

Не было обнаружено следов взаимодействия электронной и ядерной подсистем. При спин-переориентационном переходе одна из мод АФМР смягчается минимум до 4.5 ГГц (низкочастотные данные получены Т. Солдатовым), в низкотемпературных экспериментах не обнаружено роста сверхтонкого вклада в щель АФМР.

Обнаружен гистерезис резонансного поглощения, связанный с перестройкой доменной структуры образца. Обнаружено, что образец монодоменизируется выше некоторого порогового поля, величина которого зависит от ориентации.

5 Заключение

В работе были исследованы методом ЭПР свойства магнетиков с антиферромагнитным взаимодействием спинов, не демонстрирующих традиционного коллинеарного неелевского упорядочения при низких температурах: магнетик типа спиновая лестница $(\text{C}_7\text{H}_{10}\text{N}_2)_2\text{CuBr}_4$ и неколлинеарный антиферромагнетик $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$.

Методом ЭПР удалось обнаружить ЭПР триплетных возбуждений и тонкую структуру спектров ЭПР в $(\text{C}_7\text{H}_{10}\text{N}_2)_2\text{CuBr}_4$. Вымерзание интенсивности сигнала ЭПР при низких температурах подтверждает наличие щели в спектре возбуждений. Наблюдение тонкой структуры является независимым подтверждением того, что элементарное возбуждение спиновой лестницы несет спин $S = 1$. Наблюдение тонкой структуры и анализ ширины линии позволили оценить степень отличия $(\text{C}_7\text{H}_{10}\text{N}_2)_2\text{CuBr}_4$ от идеальной модели гейзенберговской спиновой лестницы. Показано, что основным анизотропным спин-спиновым взаимодействием в этом соединении является взаимодействие Дзялошинского-Мория, однородное вдоль спиновых лестниц, и оценена величина этого взаимодействия. Обнаружена зависимость тонкой структуры спектра возбуждений от магнитного поля и зависимость спин-спиновой релаксации от температуры.

Для алюминий-марганцевого граната была получена и проанализирована частотно-полевая зависимость АФМР в расширенном диапазоне частот и полей. Определены параметры, описывающие спиновую динамику $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$. Обнаружен гистерезис резонансного поглощения, связанный с перестройкой доменной структуры образца. Обнаружено, что образец монодоменизируется выше некоторого порогового поля, величина которого зависит от ориентации.

Кроме этого разработана и апробирована методика переноса ориентации образца из рентгеновского дифрактометра BRUKER APEX II в ЭПР-спектрометр.

6 Благодарности

Автор благодарит за помощь в процессе выполнения и написания работы и поддержку Глазкова Василия Николаевича, Марченко Владимира Ивановича и Тихонова Алексея Михайловича за полезные замечания и интерес к работе, Солдатову Тимофея за оказание поддержки и содействия в проведении эксперимента и всех сотрудников группы спиновой динамики: Прозорову Людмилу Андреевну, Смирнова Александра Ивановича, Свистова Леонида Евгеньевича и Сергейчеву Алену за обсуждения и дружелюбную вдохновляющую атмосферу.

Отдельно автор хочет поблагодарить Дровосекова Алексея Борисовича за предоставление оборудования и помощь в проведении экспериментов.

Также автор благодарит профессора Андрея Желудева (ETH Zurich) и профессора Б. В. Милля (МГУ) за предоставление образцов.

Автор благодарит сотрудников механической и гелиевой мастерских Института физических проблем им. П. Л. Капицы, без работы которых не удалось бы провести эти исследования.

Работа выполнена при поддержке грантов РФФИ, гранта Совета по грантам Президента РФ для поддержки ведущих научных школ и гранта Фонда содействия отечественной науки.

Список литературы

- [1] Ming-Che Chang, Min-Fong Yang, arXiv:0812.0402v1 [cond-mat.str-el], (2008).
- [2] I. A. Zaliznyak, V. I. Marchenko, S. V. Petrov, L. A. Prozorova, and A. V. Chubukov, *Pis'maZh. Eksp. Teor. Fiz.* **47**, 172 (1988).
- [3] Ч. Киттель, *Квантовая теория твердых тел*, Москва (1967).
- [4] Hans-Jurgen Mikeska and Alexei K. Kolezhuk, *One-Dimensional Magnetism*, Lect. Notes Phys. **645**, 1 (2004).
- [5] Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Теоретическая физика. Том 3. Квантовая механика. Нерелятивистская теория*, Москва (2002).
- [6] С. А. Альтшулер, Б. М. Козырев, *Электронный парамагнитный резонанс соединений элементов промежуточных групп*, Москва (1972).
- [7] M. A. Fayzullin, R. M. Eremina, M. V. Eremin, A. Dittl, N. van Well, F. Ritter, W. Assmus, J. Deisenhofer, H.-A. K. von Nidda, and A. Loidl, *Phys. Rev. B* **88**, 174421 (2013).
- [8] Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Теоретическая физика. Том 5. Статистическая физика. Часть 1*, Москва (2002).
- [9] А. Ф. Андреев, В. И. Марченко, *УФН*, **130**, 1, (1980).
- [10] Г. Д. Богомолов, *Прикладная электродинамика*, Учебное пособие МФТИ, Долгопрудный (1979).
- [11] Р. Кубо, *Статистическая механика*, Москва (1967).
- [12] D. Schmidiger, S. Muhlbauer, and A. Zheludev, *Phys. Rev. B.*, **88**, 094411 (2013).
- [13] A. Oosawa, M. Ishii, and H. Tanaka, *J.Phys.: Condens. Matter*, **11**, 265 (1999).
- [14] V. Zapf, M. Jaime, and C. D. Batista, *Rev. Mod. Phys.*, **86**, 563 (2014).
- [15] T. Giamarchi, C. Ruegg, and O. Tchernyshev, *Nature Phys.* **4**, 198 (2008).
- [16] D. Schmidiger, P. Bouillot, T. Guidi, R. Bewley, C. Kollath, T. Giamarchi, and A. Zheludev, *Phys. Rev. Lett.*, **111**, 107202 (2013).
- [17] A. Shapiro, C. P. Landee, M. M. Turnbull, J. Jornet, M. Deumal, J. J. Novoa, M. A. Robb, and W. Lewis, *J. Am. Chem. Soc.* **129**, 952 (2007).
- [18] D. Schmidiger, P. Bouillot, S. Muhlbauer, S. Gvasaliya, C. Kollath, T. Giamarchi, and A. Zheludev, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 167201 (2012).
- [19] J. L. White, C. Lee, O. Gunaydin-Sen, L. C. Tung, H. M. Christen, Y. J. Wang, M. M. Turnbull, C. P. Landee, R. D. McDonald, S. A. Crooker, J. Singleton, M.-H. Whangbo, and J. L. Musfeldt, *Phys. Rev. B* **81**, 052407 (2010).
- [20] А. Абрагам, Б. Блини, *Электронный парамагнитный резонанс переходных ионов*, Москва (1972).

- [21] K. Yu. Povarov, A. I. Smirnov, O. A. Starykh, S. V. Petrov, and A. Ya. Shapiro, *Phys. Rev. Lett.* **107**, 037204 (2011).
- [22] M. Ozerov, M. Maksymenko, J. Wosnitsa, A. Honecker, C. P. Landee, M. M. Turnbull, S. C. Furuya, T. Giamarchi, and S. A. Zvyagin, *Phys. Rev. B.*, **92R**, 24113 (2015).
- [23] Ю. В. Красникова, *Электронный парамагнитный резонанс в магнетиках типа "спиновая лестница"*. Выпускная квалификационная работа бакалавра, МФТИ (2014).
- [24] H. Ohta, T. Yamasaki, S. Okubo, T. Sakurai, M. Fujisawa, and H. Kikuchi, *J. Phys.: Conf. Ser.* **320**, 012026 (2011).
- [25] V. N. Glazkov, M. Fayzullin, Yu. Krasnikova, G. Skoblin, D. Schmidiger, S. Muhlbauer, and A. Zheludev *Phys. Rev. B*, **92**, 184403 (2015).
- [26] A. M. Farutin and V. I. Marchenko, *Zh. Eksp. Teor. Fiz.*, **131**, 860 (2007).
- [27] A. I. Smirnov, T. A. Soldatov, K. Yu. Povarov, and A. Ya. Shapiro, *Phys. Rev. B*, **91**, 174412 (2015).
- [28] A. I. Smirnov, T. A. Soldatov, K. Yu. Povarov, M. Halg, W. E. A. Lorenz, and A. Zheludev, *Phys. Rev. B*, **92**, 134417 (2015).
- [29] A. Gukasov, V. P. Plakhty, B. Dorner, S. Yu. Kokovin, V. N. Syromyatnikov, O. P. Smirnov and Yu. P. Chernenkov, *J. Phys.: Condens. Matter*, **11**, 2869 (1999).
- [30] Z. A. Kazei, N. P. Kolmakova, M. V. Levanidov, B. V. Mill, and V. I. Sokolov, *Zh. Eksp. Teor. Fiz.*, **92**, 2277 (1987).
- [31] T. V. Valyanskaya, V. P. Plakhtii, and V. I. Sokolov, *Zh. Eksp. Teor. Fiz.*, **70**, 2279 (1976).
- [32] Л. А. Прозорова, В. И. Марченко, Ю. В. Красняк, *Письма в ЖЭТФ*, **41**, 522 (1985).
- [33] W. Prandl, *phys. stat. sol. (b)*, **55**, K159 (1973).
- [34] А. М. Тихонов, Н. Г. Павлов, *Письма в ЖЭТФ*, **99**, 255 (2014).
- [35] А. Ю. Семанин, Г. Д. Соколов, А. М. Тихонов, *Приборы и техника эксперимента*, **1**, 100 (2011).
- [36] Л. А. Прозорова *Экспериментальное исследование спиновых волн в антиферромагнетиках*, диссертация на соискание степени доктора физико-математических наук, (1975).