

ЯМР НА ^{55}Mn В АНТИФЕРРОМАГНИТНОМ CsMnBr_3 В ПРОДОЛЬНОМ ПЕРЕМЕННОМ МАГНИТНОМ ПОЛЕ

Б. С. Думеш*

*Институт спектроскопии Российской академии наук
142092, Троицк, Московская обл., Россия*

М. И. Куркин

*Институт физики металлов
Уральского отделения Российской академии наук
620219, Екатеринбург, Россия*

С. В. Петров, А. М. Тихонов

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

Поступила в редакцию 20 января 1999 г.

Экспериментально и теоретически исследованы спектр и интенсивности линий ЯМР при возбуждении переменным магнитным полем h_{\parallel} , параллельным постоянному полю H , в квазиодномерном шестиподрешеточном антиферромагнетике CsMnBr_3 . В соответствии с теорией вблизи фазового перехода от треугольной структуры к коллинеарной ($H = H_c$) обнаружены две новые линии ЯМР, которые не возбуждаются поперечным магнитным полем h_{\perp} [3].

1. ВВЕДЕНИЕ

Применение методов ЯМР для изучения магнитных свойств квазиодномерных многоподрешеточных антиферромагнетиков уже позволило получить такие нетривиальные результаты, как эффект подавления квантовых флуктуаций электронных спинов [1] и новый тип магнитной структуры в легкоосном треугольном антиферромагнетике CsMnI_3 [2]. Тем не менее возможности ЯМР для проведения таких исследований, как оказалось, еще не исчерпаны. В данной работе излагаются результаты, полученные при возбуждении ЯМР продольным переменным магнитным полем h_{\parallel} , параллельным постоянному магнитному полю H . Этим методом удалось обнаружить две дополнительные линии ЯМР, не возбуждаемые поперечным магнитным ВЧ полем h_{\perp} . Эти линии интересны тем, что они имеют динамический сдвиг частоты вблизи фазового перехода из треугольной структуры в коллинеарную.

В разд. 2 и 3 статьи описаны магнитные свойства CsMnBr_3 и эксперименты по наблюдению ЯМР на ^{55}Mn при h_{\parallel} . В разд. 4 приведены результаты расчетов спектра и интенсивностей линий ЯМР при различных способах возбуждения. В Заключении

*E-mail: dumesh@isan.troitsk.ru

обсуждаются эффект подавления стационарных сигналов ЯМР при больших динамических сдвигах частоты и возможности параметрического возбуждения ядерных спинов.

2. МАГНИТНЫЕ СВОЙСТВА CsMnBr_3

CsMnBr_3 относится к семейству галогенидов типа ABX_3 , где А — щелочной металл, В — 3d-металл, Х — галоген. Кристаллическая структура CsMnBr_3 описывается пространственной группой симметрии D_{6h}^4 , причем ионы Mn^{2+} образуют гексагональную сетку в базисной плоскости (перпендикулярной оси C_6) [4]. Кристаллическая решетка определяет специфическую магнитную структуру этого соединения [5–9]. Основная особенность решетки состоит в том, что расстояние между соседними плоскостями магнитных ионов вдвое меньше, чем расстояние между ближайшими такими ионами в одной плоскости. В результате антиферромагнитное обменное взаимодействие магнитных моментов внутри цепочек, вытянутых вдоль оси C_6 , оказывается в 10^3 раз больше межцепочечного антиферромагнитного обмена. Эта квазиодномерность существенно влияет на магнитные свойства, чем и обусловлен повышенный интерес к изучению такого класса веществ.

Легкоплоскостный характер магнитной анизотропии совместно с антиферромагнитным межцепочечным обменом приводит к формированию неколлинеарной шестиподрешеточной магнитной структуры (рис. 1а). Внутрицепочечный обмен обеспечивает антиферромагнитное упорядочение магнитных моментов M_j ($j = 1-6$) трех пар электронных подрешеток, которое описывается векторами антиферромагнетизма

$$L_1 = M_1 - M_4, \quad L_2 = M_2 - M_6, \quad L_3 = M_3 - M_5.$$

Из-за исчезающе слабой магнитной анизотропии в базисной плоскости подрешетки в

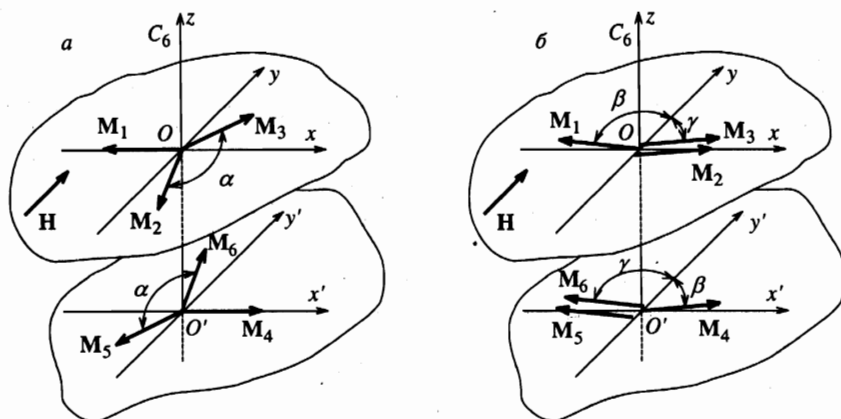


Рис. 1. Схематическое изображение магнитной структуры CsMnBr_3 : а — $H \ll H_c$; б — $H > H_c$ ($\beta \approx \gamma$)

слабом магнитном поле $\mathbf{H} \perp \mathbf{C}_6$ ориентируются так, чтобы один из указанных векторов \mathbf{L}_i , например \mathbf{L}_1 , был перпендикулярен \mathbf{H} (рис. 1а). При этом два других вектора, \mathbf{L}_2 и \mathbf{L}_3 , образуют с \mathbf{H} углы близкие к 30° и 150° .

С увеличением \mathbf{H} угол α между \mathbf{L}_2 и \mathbf{L}_3 изменяется по закону [10]

$$\cos \frac{\alpha}{2} = \frac{1}{2-z}, \quad z = \frac{H^2}{H_c^2}, \quad (1)$$

где $H_c = \sqrt{H_E H_{E'}} \approx 61$ кЭ (при $T = 1.8$ К [9]), $H_E \approx 1500$ кЭ и $H_{E'} \approx 3$ кЭ — эффективные поля соответственно внутрипечечного и межпечечного обменных взаимодействий. В поле $H = H_c$ описанная магнитная структура превращается в коллинеарную ($\alpha = 0$), что соответствует фазовому переходу второго рода (рис. 1б).

Магнитные поля на ядрах подрешеток j определяются суммой внешнего \mathbf{H} и сверхтонких \mathbf{H}_{n_j} полей:

$$H_j = |\mathbf{H}_{n_j} + \mathbf{H}| = H_n \sqrt{1 + \frac{H^2}{H_n^2} - 2 \frac{H}{H_n} \cos \theta_j}, \quad (2)$$

где $H_n = -AM_0$, M_0 — средний магнитный момент подрешетки, A — константа сверхтонкого взаимодействия, θ_j — угол между \mathbf{H} и \mathbf{M}_j :

$$\begin{aligned} \cos \theta_{1,4} &= \frac{H}{H_E}, \\ \cos \theta_{2,5} &= -\sin \frac{\alpha}{2} + \frac{H}{H_E} \cos^2 \frac{\alpha}{2} + o\left(\frac{H}{H_E}\right), \\ \cos \theta_{3,6} &= \sin \frac{\alpha}{2} + \frac{H}{H_E} \cos^2 \frac{\alpha}{2} + o\left(\frac{H}{H_E}\right). \end{aligned} \quad (3)$$

Таким образом, при $H < H_c$ должны существовать три дважды вырожденные ветви ЯМР $\omega_{n_j} = \gamma_n H_j$.

При малых H взаимодействие с голдстоуновской модой антиферромагнитного резонанса (АФМР) снимает вырождение. Частоты трех ветвей ЯМР ($\Omega_4, \Omega_5, \Omega_6$) уменьшаются (так называемый динамический сдвиг частоты). Экспериментально и теоретически их спектр исследован в [1, 3]. В этих работах также обнаружена различная для спинов в позициях 1, 4 и 2, 3, 5, 6 зависимость $H_n(H)$, связанная с подавлением квантовых флуктуаций магнитным полем и соответствующим ростом $M_j(H)$. Спектр остальных ветвей описывается уравнениями (2), (3) с учетом зависимости $H_{n_j}(H)$, однако для них в малых полях отсутствует эффект усиления сигнала ЯМР, и экспериментально они не наблюдались.

При $H \rightarrow H_c$ две из этих ветвей начинают взаимодействовать с модой ω_5 АФМР (в обозначениях из [8]), частота которой стремится к нулю при приближении к фазовому переходу. При этом спектр этих ветвей деформируется, а сами они становятся наблюдаемыми при возбуждении ВЧ полем \mathbf{h}_{\parallel} . Исследованию этих эффектов и посвящена данная работа.

3. МЕТОДИКА ИЗМЕРЕНИЙ И ЭКСПЕРИМЕНТ

В работе использовались монокристаллы CsMnBr_3 , которые выращивались и ориентировались так же, как в работе [3]. Там же описан широкодиапазонный непрерывный ЯМР-спектрометр, на котором проводились измерения. Основное отличие состоит в измененной конструкции резонатора, обеспечивающей нужную поляризацию ВЧ поля h_{\parallel} . Схематическое изображение резонансного контура приведено на рис. 2. Подвижная медная пластина (2) с диэлектрическим покрытием (3) образует с корпусом дополнительную переменную емкость, используемую для перестройки частоты резонатора. Узкая щель (7) является конструктивной емкостью контура. Двусторонней стрелкой показаны направления движения пластины. Эта конструкция размещается в сверхпроводящем соленоиде с внутренним диаметром 25 мм, при этом ВЧ поле с хорошей точностью параллельно полю соленоида H .

Мы использовали два резонатора, добротность которых при 4.2 К составляла $Q \approx 400$. Диапазон перестройки частоты одного из них — от 390 до 470 МГц, другого — от 310 до 380 МГц. Резонатор с исследовавшимся монокристаллическим образцом размещался непосредственно в гелиевой ванне. Внешнее магнитное поле прикладывалось перпендикулярно гексагональной оси кристалла C_6 . В остальном спектрометр и методика измерений не отличались от описанных в [3].

На рис. 3 представлены записи сигнала поглощения в CsMnBr_3 при $T = 1.3$ К на частоте 349.6 МГц при h_{\parallel} (кривая 1) и h_{\perp} (кривая 2). Видно, что в этих двух случаях возбуждаются разные ветви ЯМР. Спектр ЯМР в CsMnBr_3 при $h_{\parallel} \perp C_6$ при $T = 1.3$ К приведен на рис. 4 светлыми кружками. ЯМР наблюдается вблизи H_c в широкой области частот, что демонстрирует большой динамический сдвиг частоты ЯМР. При увеличении $|H - H_c|$ сигнал убывает по интенсивности и его положение приближается к несмещенному спектру ЯМР, который изображен штриховыми линиями. Сплошными кривыми приведен спектр ЯМР, рассчитанный по ниже приведенным формулам (20),

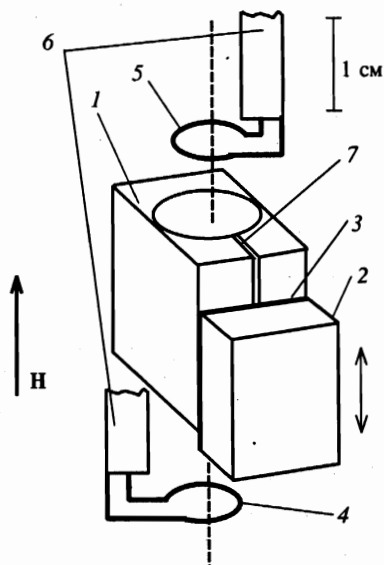


Рис. 2. Схематическое изображение резонансного контура: 1 — резонатор; 2 — подвижная медная пластина; 3 — тонкая изолирующая пленка; 4, 5 — витки связи; 6 — подводящие коаксиальные линии; 7 — узкая щель

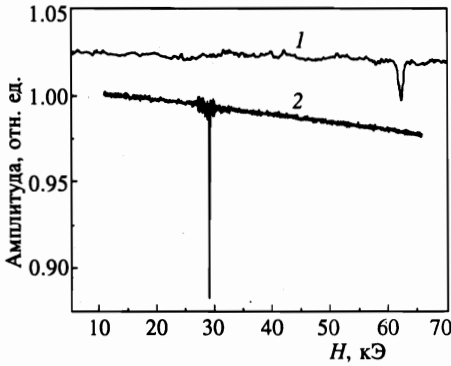


Рис. 3

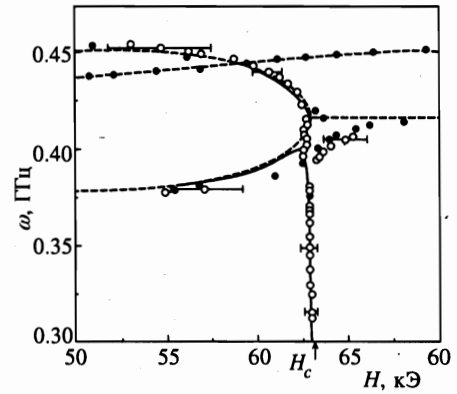


Рис. 4

Рис. 3. Экспериментальные записи сигнала поглощения в CsMnBr₃ ($H \perp C_6$) при $T = 1.3$ К на частоте 349.6 МГц при возбуждении переменными магнитными полями h_{\parallel} (кривая 1) и h_{\perp} (кривая 2)

Рис. 4. Спектр ЯМР в CsMnBr₃ при $H \perp C_6$ и $T = 1.3$ К при возбуждении переменными магнитными полями h_{\parallel} (светлые кружки) и h_{\perp} (темные точки из работы [3])

(21). При этом мы не использовали никаких подгоночных констант. Видно удовлетворительное согласие между экспериментальными и расчетными спектрами. Наблюдаемые различия обусловлены большой шириной линии АФМР вблизи фазового перехода.

Надо отметить, что до сих пор ЯМР в параллельных полях наблюдался только в сверхтекучем гелии ³He и доменных стенках ферромагнетиков. В нашем случае ЯМР возбуждается в однородном образце, так как сигнал наблюдается на достаточно большом удалении от поля фазового перехода.

Таким образом, в CsMnBr₃ наблюдаются пять мод ЯМР. Три из них возбуждаются при h_{\perp} , взаимодействуют с голдстоуновской модой АФМР и наблюдаются в диапазоне полей 20–80 кЭ [3]. Две моды возбуждаются при h_{\parallel} , взаимодействуют с модой ω_5 АФМР и наблюдаются в полях 50–65 кЭ.

4. ТЕОРИЯ

Анализ интенсивностей линий ЯМР при различных способах их возбуждения проведем с помощью тех же уравнений для намагниченностей m_j ($j = 1, \dots, 6$) ядерных подрешеток, которые использовались в [3]. Но для этого в них необходимо учесть, во-первых, взаимодействие с переменными полями h различной поляризации, во-вторых, ядерную магнитную релаксацию, обеспечивающую выход колебаний m_j на стационарный режим. Релаксационные процессы рассматривались в приближении времен релаксации, которому соответствуют уравнения Блоха [11] (см. Приложение).

На рис. 5 показано влияние поперечного поля h_{\perp} на ориентацию вектора M_1 , если

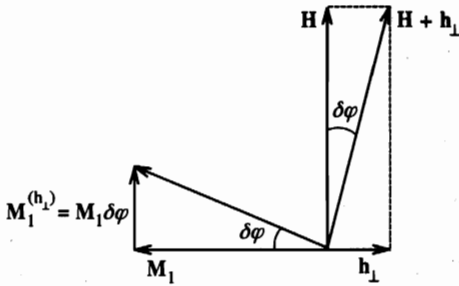


Рис. 5. Влияние h_{\perp} на ориентацию M

частота переменного поля значительно меньше частот АФМР (для частот ЯМР это условие хорошо выполняется при любых H благодаря сверхтонкой щели в спектре АФМР [12, 13]). Видно, что при $h_{\perp} \ll H$ все сводится к повороту на угол $\delta\varphi = h_{\perp}/H$. На такой же угол поворачиваются и все остальные векторы M_j , поэтому их изменения описываются выражениями

$$M_j^{(h_{\perp})}(t) = M_j \delta\varphi = \chi_{\perp} h_{\perp}(t), \tag{4}$$

где

$$\chi_{\perp} = M_j/H \tag{5}$$

— магнитная восприимчивость в поле h_{\perp} . Из рис. 1 следует, что продольное поле h_{\parallel} практически не влияет на ориентацию векторов M_1 и M_4 , но изменяет угол α на величину

$$\delta\alpha = \begin{cases} 4Hh_{\parallel}/\sqrt{(3H_c^2 - H^2)(H_c^2 - H^2)}, & H \leq H_c, \\ 0, & H > H_c. \end{cases} \tag{6}$$

Выражения (6) получаются из формулы (1), если ее записать для поля $H + h_{\parallel}$ и разложить по степеням h_{\parallel} . Вычисление изменений векторов M_j при таком изменении угла α приводит к выражениям

$$M_j^{(h_{\parallel})}(t) = \chi_{\parallel j} h_{\parallel}(t), \tag{7}$$

где

$$\chi_{\parallel 1} = \chi_{\parallel 4} = 0, \quad \chi_{\parallel 2} = \chi_{\parallel 6} = -\chi_{\parallel 3} = -\chi_{\parallel 5} = \chi_{\parallel}, \tag{8}$$

$$\chi_{\parallel}(H) = \begin{cases} M_0 \delta\alpha / 2h_{\parallel}, & H \leq H_c, \\ 0, & H > H_c. \end{cases} \tag{9}$$

Тем самым мы рассчитали коэффициенты усиления ЯМР:

$$\eta_{\perp} = A\chi_{\perp} = H_n/H, \tag{10}$$

$$\eta_{\parallel j} = A\chi_{\parallel j}.$$

В Приложении показано, что использование формул (6)–(9) в уравнениях для m_j позволяет записать их в виде (П.12)

$$\left[\left(\omega + \frac{i}{T_2} \right)^2 - \omega_{nj}^2 \right] m_{x_j}(\omega) + \gamma_n \omega_{nj} A m_{z_j} \frac{H_n}{H'_E} \sum_j \lambda_{jj'} m_{x_{j'}}(\omega) + \gamma_n \omega_{nj} m_{z_j} \eta_{\perp} h_{\perp}(\omega) + \gamma_n \omega_{nj} m_{z_j} \eta_{\parallel j} h_{\parallel}(\omega) = 0. \tag{11}$$

Там же приведены выражения для величин $\lambda_{jj'}$ (П.7) и ω_{nj} (П.13). Выражения для $m_{x_j}(\omega)$, $h_{\perp}(\omega)$, $h_{\parallel}(\omega)$ связаны с $m_{x_j}(t)$, $h_{\perp}(t)$, $h_{\parallel}(t)$ преобразованием Фурье (П.16).

Детерминант системы уравнений (11) определяет значения шести частот ЯМР. Отметим, что в [3] анализировались только частоты трех из этих линий, которые возбуждаются поперечным полем h_{\perp} . Теперь мы рассмотрим возможности возбуждения всех шести линий.

С учетом эффекта усиления интенсивность $I_n(\omega)$ сигнала поглощения, который измерялся в экспериментах [3], определяется выражением

$$I_n(\omega) = \sum_j \eta_j \text{Im } m_{x_j}(\omega), \tag{12}$$

где $\text{Im } m_{x_j}(\omega)$ — мнимая часть решения системы (11) для частоты ω . Наиболее простой вид эти решения имеют в случаях $H \ll H_c$, $H \approx H_c$ и $H > H_c$. Анализ случаев $H \ll H_c$ и $H > H_c$ дал результаты, которые в пределах экспериментальных погрешностей согласуются с кривыми, приведенными в [1, 3]. По этой причине мы ограничимся только случаем $H \approx H_c$, поскольку он связан с новыми экспериментальными результатами, описанными в предыдущем разделе статьи.

При $H \approx H_c$ для величин $\lambda_{jj'}$ из (П.7) получаются следующие выражения:

$$\lambda_{22} = \lambda_{33} = \lambda_{55} = \lambda_{66} = \lambda_{26} = \lambda_{35} = -\lambda_{23} = -\lambda_{63} = -\lambda_{25} = -\lambda_{56} = 0.5 \{ 2 [1 - (H/H_c)^2] + \epsilon \}^{-1}, \tag{13}$$

где $\epsilon = 2m_0/H'_E \approx 10^{-2}$ (П.5).

Компоненты λ_{1j} и λ_{4j} не имеют особенностей при $H = H_c$, поэтому их влиянием будем пренебрегать. Вторая процедура, позволяющая существенно упростить систему уравнений (11), связана с переходом к новым переменным $m_{k\pm}$ ($k = 1, 2, 3$):

$$m_{1\pm} = m_{x_1} \pm m_{x_4}, \quad m_{2\pm} = m_{x_2} \pm m_{x_3}, \quad m_{3\pm} = m_{x_3} \pm m_{x_6}. \tag{14}$$

В результате система (11) распадается на четыре независимых уравнения:

$$\left[\left(\omega + \frac{i}{T_2} \right)^2 - \omega_{n1}^2 \right] m_{1-} = 0, \tag{15}$$

$$\left[\left(\omega + \frac{i}{T_2} \right)^2 - \omega_{nk}^2 \right] m_{k+} + 2\omega_{nk} m_0 \gamma_n \eta_{\perp} h_{\perp} = 0, \quad k = 1, 2, 3,$$

и систему двух связанных уравнений:

$$\left[\left(\omega + \frac{i}{T_2} \right)^2 - \omega_{n2}^2 \right] m_{2-} + \frac{1}{2} \omega_{n2} \omega_{pc}(H) \frac{m_z}{m_0} (m_{2-} - m_{3-}) + 2\omega_{n2} \gamma_n \eta_{\parallel} h_{\parallel} m_z = 0, \quad (16)$$

$$\left[\left(\omega + \frac{i}{T_2} \right)^2 - \omega_{n3}^2 \right] m_{3-} + \frac{1}{2} \omega_{n3} \omega_{pc}(H) \frac{m_z}{m_0} (m_{3-} - m_{2-}) + 2\omega_{n3} \gamma_n \eta_{\parallel} h_{\parallel} m_z = 0,$$

где обе величины,

$$\omega_{pc}(H) = \omega_{n2}(H_c) \epsilon / \left[\epsilon + 2(1 - (H/H_c)^2) \right] \quad (17)$$

и

$$\eta_{\parallel} = H_n / \sqrt{H_c(H_c - H)}, \quad (18)$$

имеют особенности при $H = H_c$. Согласно (15), компонента в спектре ЯМР, соответствующая m_{1-} , не возбуждается переменным полем, а компоненты m_{k+} возбуждаются поперечным полем h_{\perp} . На рис. 4 спектр этих компонент представлен точками, а их свойства обсуждались в [3]. Новые результаты, которым на рис. 4 соответствуют светлые кружки, описываются решениями уравнений (16). Их вид сильно зависит от соотношения между разностью частот ω_{n2} и ω_{n3} (П.13),

$$\Delta = \omega_{n2} - \omega_{n3} = 2H \sin(\alpha/2), \quad (19)$$

и величиной ω_{pc} (17). При $\Delta \gg \omega_{pc}$ частоты компонент m_{2-} и m_{3-} слабо отличаются от частот компонент m_{2+} и m_{3+} , возбуждаемых полем h_{\perp} , что согласуется с результатами, представленными на рис. 4. При $\Delta \ll \omega_{pc}$ для частот компонент m_{2-} и m_{3-} , которые являются корнями секулярного уравнения для (16), получаются выражения

$$\Omega_2^2 = 0.5 [\omega_{n2}^2(H) + \omega_{n3}^2(H)], \quad \Omega_3^2 = \Omega_2 [\Omega_2 - \omega_{pc}(H)]. \quad (20)$$

При $H \rightarrow H_c$ частота Ω_2 приближается к значению $\omega_{n2}(H_c) = \gamma_n A M_0$ (П.13), а Ω_3 (с учетом (17)) стремится к нулю по закону

$$\Omega_3^2(H) = \Omega_2^2(H_c) \frac{1 - (H/H_c)^2}{\epsilon/2 + 1 - (H/H_c)^2}. \quad (21)$$

Рассчитанные по этим формулам спектры приведены на рис. 4 сплошными линиями.

После подстановки соответствующих решений системы (16) в (12) для интенсивностей $I_n(\omega)$ линий ЯМР на частотах Ω_2 и Ω_3 получаются следующие выражения:

$$I_n(\Omega_3) = 2m_0 \eta_{\parallel}^2 \gamma_n h_{\parallel} T_2, \quad (22)$$

$$I_n(\Omega_2) = 4I_n(\Omega_3) \left[\frac{\gamma_n H}{\omega_{pc}(H)} \right]^2 \sin^2 \frac{\alpha}{2}. \quad (23)$$

Из (18), (21), (22) следует, что интенсивность

$$I_n(\Omega_3) \propto \eta_{\parallel}^2 \propto \frac{1}{H_c - H} \propto \frac{1}{\Omega_3(H)} \quad (24)$$

должна возрастать при уменьшении $\Omega_3(H)$. В эксперименте, как видно из рис. 6, она убывает. Причина этого расхождения в том, что формулы (22) и (23) получены из решения системы (16) в приближении $m_z = m_0$. Если его не делать, то формула (20) будет иметь вид

$$\Omega_3^2 = \Omega_2 [\Omega_2 - \omega_{pc}(H)m_z/m_0]. \tag{25}$$

Поскольку $m_0^2 = m_x^2 + m_y^2 + m_z^2$, то зависимость Ω_3 от m_z означает зависимость Ω_3 от амплитуды колебаний намагниченностей ядерных подрешеток m_j . Другими словами, если при малых амплитудах колебания m_j были в резонансе с переменным полем, то с ростом этой амплитуды условия резонанса начнут нарушаться и тем быстрее, чем больше величина $\omega_{pc}(H)$ и соответственно меньше Ω_3 . Отсюда следует, что при достаточно больших $\omega_{pc}(H)$ интенсивность $I_n(\Omega_3)$ начнет убывать с уменьшением Ω_3 .

Влияние различных нелинейных эффектов на стационарные сигналы ЯМР в условиях динамического сдвига частоты анализировались в работах [11, 13–18]. Если воспользоваться полученными в них формулами, то в исследованном интервале частот 310–380 МГц между $I_n(\Omega_3)$ и Ω_3 получается соотношение

$$I_n(\Omega_3) \propto \Omega_3^{1/3}, \tag{26}$$

которое качественно согласуется с результатами, представленными на рис. 6. Для количественного сравнения в теории необходимо дополнительно учесть влияние неоднородностей образца, поскольку рассматривается окрестность фазового перехода.

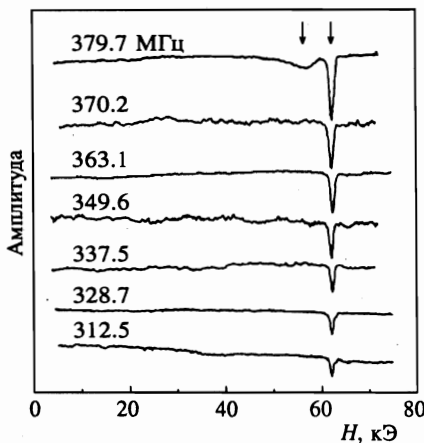


Рис. 6

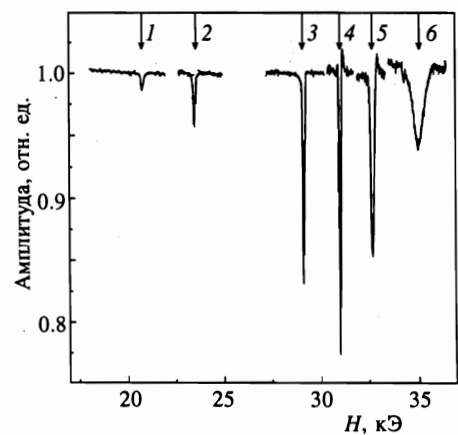


Рис. 7

Рис. 6. Экспериментальные записи низкочастотной ветви ЯМР $\Omega_3(H)$ при $T = 1.3$ К на нескольких частотах. Стрелки показывают положения центров линий ЯМР при 379.7 МГц

Рис. 7. Экспериментальные записи низкочастотной ветви ЯМР $\Omega_4(H)$ при $T = 1.3$ К на частотах 220.1 (1), 273.7 (2), 350.1 (3), 363.0 (4), 370.0 (5) и 375.2 (6) МГц

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Как следует из рис. 6, уменьшение интенсивности стационарных сигналов ЯМР, обусловленное нелинейными эффектами, существенно ограничивает интервал частот, в котором возможно наблюдение таких сигналов вблизи H_c . Аналогичная трудность имеет место и в случае малых полей $H \ll H_c$, исследованном в [1, 3]. В этом случае динамический сдвиг частоты наблюдается в гораздо более широкой области полей H , чем вблизи H_c , поэтому на записях сигналов ЯМР, представленных на рис. 7, указаны не только значения частот Ω , но и полей H . Из рис. 7 видно, что при уменьшении H и Ω (т. е. с ростом динамического сдвига частоты) интенсивность сигнала вначале растет, а затем падает. Если для описания этих сигналов воспользоваться уравнениями (11), в которых не учтены нелинейные эффекты, то для их интенсивностей $I_n(\Omega)$ (12) получается соотношение

$$I_n(\Omega) \propto \eta_{\perp}^2 \propto H^{-2}, \quad (27)$$

где η_{\perp}^2 определяется формулой (10). Как и (24), оно описывает рост $I_n(\Omega)$ при уменьшении Ω . Для более высоких значений динамического сдвига частоты, когда становятся существенными нелинейные эффекты, необходимо использовать те же формулы для I_n , которые приводят к соотношению (26). Тогда вместо (27) получается зависимость вида

$$I_n(\Omega_4) \propto H^{10/3}, \quad (28)$$

которая дает убывание I_n при уменьшении H .

Чтобы перейти к изучению свойств ядерных спинов при более низких частотах (более высоких значениях динамического сдвига частоты), есть три пути. Во-первых, можно увеличить амплитуду возбуждающего поля до значений, когда начнут сказываться гистерезисные явления, обусловленные нелинейностью динамического сдвига частоты [13–16]. На трехмерных антиферромагнетиках (MnCO_3 , CsMnF_3) эти явления экспериментально изучались Тулиным [17]. Но он работал со слабыми полями H порядка 1 кЭ и меньше, когда велик коэффициент усиления η_{\perp} (10). При $H \approx 20$ кЭ величина η_{\perp} значительно меньше, поэтому в случае CsMnBr_3 для изучения гистерезисных явлений потребуются более мощные генераторы высокочастотного поля.

Во-вторых, можно использовать импульсные методики ЯМР, в частности, сигналы эха. Благодаря механизму формирования таких сигналов за счет модуляции частоты ЯМР, имеется резерв для увеличения их амплитуды в условиях большого динамического сдвига частоты. Возможности использования импульсных сигналов ЯМР для изучения свойств ядерных спинов с большим динамическим сдвигом частоты подробно обсуждались в обзоре [18].

Третья возможность изучения сигналов ЯМР при большом динамическом сдвиге частоты связана с параметрическим возбуждением ядерных спинов методом параллельной накачки [19]. Этот метод основан на том, что в условиях динамического сдвига частоты прецессия магнитных моментов ядер, как правило, становится эллиптической с эксцентриситетом, зависящим от магнитного поля. В результате переменное магнитное поле h_{\parallel} на удвоенной частоте ЯМР приводит к параметрической неустойчивости такой прецессии, если амплитуда $h(t)$ превышает пороговое значение h_0 . Использование уравнений (11) приводит к следующему выражению для h_0 :

$$h_0(\omega) = \frac{2}{T_2 |\partial \omega_p / \partial H|}, \quad (29)$$

где ω_p — параметр динамического сдвига частоты. В CsMnBr₃ большой динамический сдвиг частоты имеет место в двух случаях: а) при $H \approx H_c$, когда $\omega_p(H_c) = \omega_{pc}$ (17); б) при $H \ll H_c$, когда $\omega_p(H)$ описывается выражением

$$\omega_p = \frac{12\epsilon\omega_{n1}}{9(H/H_c)^6 + 12\epsilon}. \quad (30)$$

Для этих двух случаев формула (29) принимает следующий вид:

а) при $H \approx H_c$ и $\epsilon \ll |1 - (H/H_c)^2|$

$$h_0 = \frac{H_c |1 - (H/H_c)^2|}{\omega_{pc}(H_c) T_2}; \quad (31)$$

б) при $H \ll H_c$ и $\epsilon \ll H/H_c$

$$h_0 = \frac{H}{3\omega_p(H) T_2}. \quad (32)$$

Формулы (31) и (32) можно использовать и для анализа пороговой амплитуды при параметрической накачке ядерных спиновых волн [20–22]. Для этого достаточно заменить величины T_2 и ω_p на $T_2(q)$ и $\omega_p(q)$, где q — волновой вектор волны.

Из приведенных формул видно, что пороговое значение амплитуды h_0 снижается с увеличением ω_p . Это означает, что условия наблюдения параметрического ЯМР улучшаются с ростом динамического сдвига частоты, а не ухудшаются, как в случае стационарного ЯМР.

В заключение авторы хотят искренне поблагодарить Н. М. Крейнес, Л. А. Прозорову, А. И. Смирнова, И. А. Фомина за плодотворное обсуждение и критические замечания. Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проекты 96-02-16489 и 98-02-16572).

ПРИЛОЖЕНИЕ

Как отмечалось во Введении, для вычисления интенсивностей стационарных сигналов ЯМР можно воспользоваться уравнениями, с помощью которых в [3] анализировался спектр частот ЯМР. Но для этого в них необходимо учесть взаимодействия с внешними переменными магнитными полями и с флуктуирующими полями, ответственными за ядерную магнитную релаксацию. Если пренебречь (из-за эффектов усиления [11]) прямым взаимодействием намагниченностей m_j ядерных подрешеток с переменным полем, а взаимодействие с флуктуирующими полями учесть в приближении времени релаксации, то получится система уравнений, совпадающая с обычными уравнениями Блоха [23] во внешнем H и сверхтонком $H_{nj} = AM_j$ [11] магнитных полях:

$$\begin{aligned} \frac{dm_{xj}}{dt} &= \gamma_n (AM_{zj} + H_{zj}) m_{yj} - \frac{m_{xj}}{T_2}, \\ \frac{dm_{yj}}{dt} &= -\gamma_n (AM_{zj} + H_{zj}) m_{xj} + \gamma_n m_{zj} AM_{xj} - \frac{m_{yj}}{T_2}, \end{aligned} \quad (\text{П.1})$$

где (x_j, y_j, z_j) — системы координат, связанные с равновесными ориентациями векторов $\mathbf{m}_j \parallel \mathbf{H}_{n_j} \parallel \mathbf{M}_j$ (отличим ориентации поля $\mathbf{H}_{n_j} + \mathbf{H}$ от сверхтонкого \mathbf{H}_{n_j} мы пренебрегли, так как $H_{n_j} \gg H$); A — константа сверхтонкого взаимодействия, γ_n — ядерное гиромагнитное отношение, T_2 — время поперечной ядерной магнитной релаксации.

Для малых колебаний m_j почти всегда можно заменить компоненты m_{z_j} на равновесное значение m_0 . Исключение составляют случаи колебаний с большим динамическим сдвигом частоты, когда становятся существенными нелинейные эффекты и приходится учитывать изменение компонент m_{z_j} . Однако в CsMnBr_3 по сравнению с двухподрешеточными трехмерными антиферромагнетиками эти эффекты никакой специфики не имеют, поэтому можно пользоваться формулами, полученными в [13–18].

Компоненты намагниченностей M_{x_j} электронных подрешеток при описании экспериментов по ЯМР всегда можно заменить на равновесные значения M_j (из-за слабого влияния сверхтонкого взаимодействия на колебания M_j).

В уравнениях (П.1) отсутствуют компоненты M_{y_j} . Как и в [3], ими пренебрегаем, поскольку сильная одноосная анизотропия препятствует выходу подрешеток из базисной плоскости ($M_{y_j} \ll M_{x_j}$). Компоненты M_{x_j} в (П.1) можно записать в виде суммы трех слагаемых:

$$M_{x_j} = M_{x_j}^{(h_\perp)} + M_{x_j}^{(h_\parallel)} + M_{x_j}^{(m)}, \quad (\text{П.2})$$

где $M^{(h_\perp)}$ и $M^{(h_\parallel)}$ обусловлены взаимодействием с поперечным \mathbf{h}_\perp и продольным \mathbf{h}_\parallel переменными магнитными полями, а компоненты $M_{x_j}^{(m)}$ — сверхтонким взаимодействием с колебаниями \mathbf{m}_j . Для вычисления $M_{x_j}^{(m)}$ в [3] использовались уравнения, в которых принималась во внимание только одна низкочастотная ветвь АФМР. Здесь мы использовали тот факт, что частоты ЯМР гораздо меньше частот АФМР (с учетом сверхтонкой щели в спектре магнонов [12]), поэтому можно пренебречь кинетической энергией в выражении для функции Лагранжа, описывающей поведение \mathbf{M}_j [24]. В этом приближении уравнения для M_{x_j} могут быть получены из условия минимума потенциальной энергии для M_{x_j} с учетом сверхтонкого взаимодействия. При этом получаются уравнения, которые применимы при любых значениях поля H , хотя мягкие моды при $H = 0$ и $H = H_c$ отличаются по симметрии:

$$\begin{aligned} a_1 M_{x_1}^{(m)} - b_1 (M_{x_2}^{(m)} + M_{x_3}^{(m)}) &= (H_n/H_{E'}) (m_{x_1} + m_{x_4}), \\ -b_1 M_{x_1}^{(m)} + a_2 M_{x_2}^{(m)} + b_2 M_{x_3}^{(m)} &= (H_n/H_{E'}) (m_{x_2} + m_{x_6}), \\ -b_1 M_{x_1}^{(m)} + b_2 M_{x_2}^{(m)} + a_2 M_{x_3}^{(m)} &= (H_n/H_{E'}) (m_{x_3} + m_{x_6}), \end{aligned} \quad (\text{П.3})$$

$$M_{x_1}^{(m)} = M_{x_4}^{(m)}, \quad M_{x_2}^{(m)} = M_{x_6}^{(m)}, \quad M_{x_3}^{(m)} = M_{x_5}^{(m)}, \quad (\text{П.4})$$

где $H_n = AM_0$,

$$\begin{aligned} b_1 &= \cos \frac{\alpha}{2} = \frac{1}{2 - (H/H_c)^2}, \quad b_2 = \cos \alpha = 2b_1^2 - 1, \\ a_1 &= \left(\frac{H}{H_c}\right)^2 + 2b_1 + \epsilon, \quad a_2 = b_1 - \left[1 - \left(\frac{H}{H_c}\right)^2\right] b_2 + \epsilon, \quad \epsilon = \frac{2Am_0}{H_{E'}}, \end{aligned} \quad (\text{П.5})$$

Am_0 — статическое сверхтонкое поле, действующее со стороны ядер на электроны и ответственное за сверхтонкую щель в спектре АФМР [11]; $H_{E'}$ = 3 кЭ — эффективное поле внутриплоскостного обмена, α — угол между векторами M_2 и M_3 (рис. 1); H_c — критическое поле перехода в коллинеарную фазу. При $T > 1$ К

$$\epsilon = \frac{2Am_0}{H_{E'}} = \frac{2H_n}{H_{E'}} \frac{\gamma_n}{\gamma_e} \frac{\hbar\gamma_n H_n}{kT} \leq 10^{-2},$$

поэтому далее учитывались только линейные поправки по ϵ . Решение системы (П.3), (П.4) имеет вид

$$M_{x_j}^{(m)} = \frac{H_n}{H_{E'}} \sum_{j'} \lambda_{jj'} m_{x_{j'}}, \quad (\text{П.6})$$

где

$$\begin{aligned} \lambda_{11} = \lambda_{44} &= (a_2^2 - b_2^2)/\mathcal{D}, & \lambda_{1j} = \lambda_{4j} &= b_1(a_2 - b_2)/\mathcal{D}, \\ \lambda_{22} = \lambda_{33} = \lambda_{55} = \lambda_{66} = \lambda_{26} = \lambda_{35} &= (a_1 a_2 - b_1^2)/\mathcal{D}, & \\ \lambda_{23} = \lambda_{63} = \lambda_{25} = \lambda_{65} &= (b_1^2 - a_1 b_2)/\mathcal{D}, & \lambda_{jj'} &= \lambda_{j'j}; \end{aligned} \quad (\text{П.7})$$

а

$$\mathcal{D} = (a_2 - b_2) [a_1(a_2 + b_2) - 2b_1^2] \quad (\text{П.8})$$

— детерминант системы (П.3). При $H \leq H_c$ из (П.5) и (П.8) имеем

$$\mathcal{D}(H) = [b_1(H) + 1] [1 - (H/H_c)^2 + \epsilon] [3b_1(H)\epsilon + (H/H_c)^6 b_1(H)(b_1(H) + 1)^2], \quad (\text{П.9})$$

а при $H \geq H_c$

$$\mathcal{D} = [(H/H_c)^2 - 1 + \epsilon] (H/H_c)^2 [(H/H_c)^2 + 3]. \quad (\text{П.10})$$

В точках $H = 0$ и $H = H_c$ детерминант $\mathcal{D}(H)$ принимает минимальные значения:

$$\mathcal{D}(0) = 9\epsilon/4, \quad \mathcal{D}(H_c) = 4\epsilon, \quad (\text{П.11})$$

а компоненты $M_{x_j}^{(m)}$ — максимальные значения.

С учетом (П.2), (П.6), (7), (9) и (10) уравнения (П.1) можно записать в виде

$$\begin{aligned} \left[\left(\omega + \frac{i}{T_2} \right)^2 - \omega_{nj}^2 \right] m_{x_j}(\omega) + \gamma_n \omega_{nj} A m_{z_j} \frac{H_n}{H_{E'}} \sum_{j'} \lambda_{jj'} m_{x_{j'}}(\omega) + \\ + \gamma_n \omega_{nj} m_{z_j} \eta_{\perp} h_{\perp}(\omega) + \gamma_n \omega_{nj} m_{z_j} \eta_{\parallel} h_{\parallel}(\omega) = 0, \end{aligned} \quad (\text{П.12})$$

где

$$\begin{aligned} \omega_{n1} = \omega_{n4} &= \gamma_n A M_1, \\ \omega_{n2} = \omega_{n5} &= \gamma_n A M_2 + H \sin(\alpha/2), \\ \omega_{n3} = \omega_{n6} &= \gamma_n A M_2 - H \sin(\alpha/2) \end{aligned} \quad (\text{П.13})$$

— несмещенные (не возмущенные динамическим сдвигом) частоты ЯМР, а

$$\eta_{\perp} = A \chi_{\perp} = H_n/H \quad (\text{П.14})$$

и

$$\eta_{\parallel 2} = \eta_{\parallel 6} = -\eta_{\parallel 3} = -\eta_{\parallel 5} = \eta_{\parallel} = A\chi_{\parallel}, \quad \eta_{\parallel 1} = \eta_{\parallel 4} = 0 \quad (\text{П.15})$$

— коэффициенты усиления для полей h_{\perp} и h_{\parallel} ; переменные $m_{x_j}(\omega)$, $h_{\perp}(\omega)$ и $h_{\parallel}(\omega)$ связаны с $m_{x_j}(t)$, $h_{\perp}(t)$ и $h_{\parallel}(t)$ преобразованием Фурье:

$$m_{x_j}(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} \exp(i\omega t) m_{x_j}(t) dt. \quad (\text{П.16})$$

Для $h_{\perp}(\omega)$ и $h_{\parallel}(\omega)$ имеют место аналогичные соотношения.

Литература

1. А. С. Боровик-Романов, Б. С. Думеш, С. В. Петров, А. М. Тихонов, Письма в ЖЭТФ **66**, 725 (1997).
2. Б. С. Думеш, С. В. Петров, А. М. Тихонов, Письма в ЖЭТФ **67**, 988 (1998).
3. А. С. Боровик-Романов, Б. С. Думеш, С. В. Петров, А. М. Тихонов, ЖЭТФ **113**, 352 (1998).
4. J. Goodyear and D. J. Kennedy, Acta Crystallogr. B **28**, 1640 (1974).
5. M. Eibischutz, R. C. Sherwood, F. S. L. Hsu, and D. E. Cox, in *Proc. of the 18-th Annual Conf. on Magnetism and Magnetic Materials* (Denver, 1972), AIP Conf. Proc. No. 10, AIP, New York (1973), p. 684.
6. B. D. Gaulin, T. E. Mason, M. F. Collins, and J. Z. Larese, Phys. Rev. Lett. **62**, 1380 (1989).
7. B. D. Gaulin, M. F. Collins, and W. J. L. Buyers, J. Appl. Phys. **61**, 3409 (1987).
8. И. А. Зализняк, Л. А. Прозорова, С. В. Петров, ЖЭТФ **97**, 359 (1990).
9. S. I. Abarzhi, A. N. Bazhan, L. A. Prozorova, and I. A. Zaliznyak, J. Phys.: Condens. Matter **4**, 3307 (1992).
10. A. V. Chubukov, J. Phys. C **21**, 441 (1988).
11. М. И. Куркин, Е. А. Туров, ЯМР в магнитоупорядоченных веществах и его применение, Наука, Москва (1990).
12. И. А. Зализняк, Н. Н. Зорин, С. В. Петров, Письма в ЖЭТФ **64**, 433 (1996).
13. P. G. de Gennes, P. Pincus, F. Hartmann-Bourtron, and J. M. Winter, Phys. Rev. **129**, 1105 (1963).
14. М. И. Куркин, Письма в ЖЭТФ **28**, 675 (1978).
15. М. И. Куркин, Ю. Г. Райдугин, В. Н. Седышкин, Ф. П. Танкеев, ФТТ **32**, 1577 (1990).
16. М. И. Куркин, ФТТ **33**, 1805 (1991).
17. В. А. Тулин, ЖЭТФ **55**, 831, (1968); **78**, 149, (1980).
18. А. С. Боровик-Романов, Ю. М. Буньков, Б. С. Думеш и др., УФН **142**, 537 (1984).
19. А. Г. Гуревич, Г. А. Мелков, *Магнитные колебания и волны*, Наука, Москва (1994), с. 285.
20. P. M. Richards and L. M. Hinderks, Phys. Rev. **183**, 575 (1969).
21. B. T. Adams, L. W. Hinderks, and P. M. Richards, J. Appl. Phys. **41**, 931 (1970).
22. V. I. Ozhogin and A. Yu. Yakubovsky, Phys. Lett. **43**, 505 (1973).
23. F. Bloch, Phys. Rev. **40**, 460 (1946).
24. А. Ф. Андреев, В. И. Марченко, УФН **130**, 39 (1980).