

Исследование магнитного резонанса в антиферромагнетике RbMnBr_3 под давлением

Л. А. Прозорова, С. С. Сосин¹⁾, С. В. Петров

Институт физических проблем им. П. Л. Капицы РАН, 117334 Москва, Россия

Поступила в редакцию 29 мая 2003 г.

Экспериментально исследована зависимость спектра антиферромагнитного резонанса в неколлинеарном антиферромагнетике RbMnBr_3 от приложенного к образцу механического давления в различных направлениях. Показано, что несоизмерная магнитная фаза, существующая в исходной системе за счет регулярных кристаллографических искажений, оказывается чувствительной к давлению, приложенному вдоль одной из осей образца. Наблюдалось уменьшение критического поля перехода в соизмерную фазу под давлением. Также обнаружено влияние давления на величину одноосной анизотропии, возникающей в базисной плоскости кристалла за счет орторомбических искажений. Произведен анализ перечисленных эффектов с учетом доменной структуры образца.

PACS: 75.50.–y, 76.50+g

Изучение кристаллических и магнитных свойств соединения RbMnBr_3 , интенсивно продолжавшееся в последнее время, представляет интерес в связи с обнаружением в нем при низких температурах упорядоченного геликоидального состояния, несоизмерного периода кристаллической решетки. Происхождение этого состояния связано с периодической модуляцией обменного взаимодействия на треугольной решетке, обусловленной ее малыми искажениями.

Данное соединение, принадлежащее к типу ABX_3 , кристаллизуется в простую гексагональную структуру с пространственной группой $P6_3/mmc$ (с параметрами ячейки a и c). Магнитные ионы, находящиеся внутри объединенных по граням галогенных октаэдров, образуют цепочки вдоль оси шестого порядка C_6 и треугольную решетку в базисной плоскости, перпендикулярной этой оси. При этом обменные взаимодействия между магнитными ионами в плоскости оказываются одинаковыми и много меньшими внутрицепочечного обмена ($J' \ll J$).

При комнатной температуре кристаллическая решетка RbMnBr_3 остается гексагональной с размерами элементарной ячейки, увеличенными в базисной плоскости в $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ раза, пространственная группа $P6_3cm$ [1]. Такая структура возникает в результате фазового перехода II-го рода, связанного с периодическим смещением одной трети магнитных ионов и их галогенного окружения вдоль оси C_6 . Искажения решетки данного типа приводят к возникновению “сотовой” модуляции обменного взаимодействия в гексагональной плоскости, как показано на рис.1а.

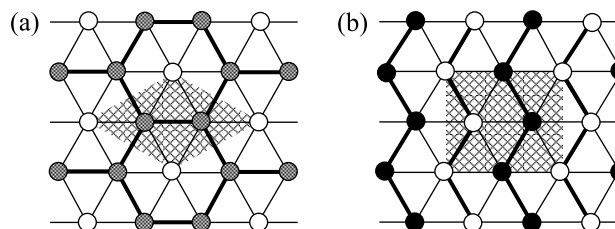


Рис.1. Два типа искажений идеальной гексагональной кристаллической решетки. Магнитные ионы, находящиеся в базисной плоскости или сдвинутые вверх и вниз, показаны соответственно серыми, белыми и черными кружками; сильные обменные взаимодействия между спинами магнитных ионов обозначены жирными линиями

При дальнейшем охлаждении до $T_c = 220$ К в RbMnBr_3 наблюдается еще один кристаллографический фазовый переход (I-го рода). Рентгеновские исследования показывают, что кристаллическая решетка в низкотемпературной фазе является орторомбической, прямоугольная элементарная ячейка увеличена в четыре раза по сравнению с первоначальной и имеет размеры $2a \times \sqrt{3}a \times c$. В работе [2] было высказано предположение о том, что в результате последнего фазового перехода происходит перестройка периодического смещения магнитных ионов, и предложена одна из возможных структур, качественно соответствующая приведенным параметрам.

Однако структурный фактор базиса решетки, предложенной в работе [2], не позволяет объяснить систематическое отсутствие некоторых пиков на полученных рентгенограммах. В недавней работе [3] обсуждается новый вариант периодических смещений (зигзагообразные цепочки ионов, смещенных по

¹⁾e-mail: sosin@kapitza.ras.ru

переменно вверх и вниз, см. рис.1b), полностью удовлетворяющий экспериментальным данным. Обменное взаимодействие между спинами ионов в зигзагах оказывается сильнее, чем между зигзагами.

В RbMnBr_3 ниже $T_N = 8.5$ К в нулевом магнитном поле была обнаружена несоразмерная антиферромагнитная структура, демонстрирующая магнитные брэгговские пики на волновых векторах в единицах исходной обратной решетки $\mathbf{Q} = (h/8 + \xi, h/8 + \xi, l)$, где h и l – целые числа, $\xi = 0.0183 \pm 0.0004$ [4]. В кристалле имеется сильная магнитная анизотропия, удерживающая спины в базисной плоскости. Существование несоразмерности объясняется низкой симметрией искаженной кристаллической структуры, разрешающей инвариант Лифшица (обменной природы). Эту задачу также можно рассматривать в рамках микроскопической модели рядов (“row model”) [5], объясняющей несоразмерность на основе упомянутой выше модуляции обменного взаимодействия. В магнитном поле, направленном в базисной плоскости, несоразмерность магнитной структуры становится невыгодной и в некотором поле $H^* \simeq 29$ кЭ происходит переход I-го рода в неколлинеарную соразмерную фазу ($\xi = 0$). Величина этого поля связана с относительной вариацией обменов в плоскости $\delta = (J'_1/J' - 1)$ соотношением $H^* = H_e \sqrt[3]{\pi|\delta|}$, где $H_e = 4S\sqrt{J(J'_1 + 2J')}$ – поле схлопывания спиновой системы в коллинеарную фазу [6]. Период соразмерной магнитной структуры соответствует учетверенному периоду орторомбической решетки вдоль зиг-зага и удвоенному в перпендикулярном направлении [3]. Это согласуется с результатами эксперимента [7], в котором для неколлинеарной фазы наблюдалось четыре ветви ЯМР на ядрах ^{2+}Mn , что обычно соответствует наличию в спиновой системе восьми подрешеток.

Существование связи между кристаллографическими искажениями и возникновением несоразмерности в RbMnBr_3 можно экспериментально проверить путем исследования магнитных свойств этого соединения в условиях одноосного сжатия образца. Давление на образец будет направленно искажать его кристаллическую структуру, изменяя таким образом соотношения между обменными взаимодействиями в базисной плоскости. Одним из способов наблюдения несоразмерности является исследование антиферромагнитного резонанса (АФМР). Вследствие особенностей спектра АФМР в несоразмерных магнетиках (см. [6]) резонансное поглощение на частотах, соответствующих для низколежащей акустической ветви полям $H \sim H^*$, имеет гистерезис в зависимости от направления развертки поля [8]. В по-

лях $H \gg H^*$ гистерезис пропадает, и спектр АФМР становится обычным. Этот эффект позволяет оценивать поле перехода, сравнивая полевою зависимость поглощения на различных частотах. В настоящей работе исследовано влияние давления величиной до 200 бар на АФМР в нескольких образцах RbMnBr_3 в полях, близких H^* . При сжатии образца в направлении перпендикулярном бинарной плоскости, наблюдалось значительное монотонное изменение интенсивности поглощения, соответствующее уменьшению поля перехода в соразмерную фазу. Наличие кристаллографических доменов внутри больших образцов позволило обнаружить, что данный эффект зависит также от взаимной ориентации направлений сжатия и орторомбического искажения гексагональной решетки.

Экспериментальные результаты. Исследованные образцы выращивались методом Бриджмена из исходных порошкообразных веществ RbBr и MnBr_2 . Они смешивались в заданном стехиометрическом соотношении и помещались в кварцевую ампулу, которая затем откачивалась, отпаивалась и пропускалась через печь при 760°C со скоростью 1 мм/ч. Полученные кристаллы отжигались в течение нескольких дней при температуре около 400°C . Монокристаллы RbMnBr_3 размерами около 1 см³ имели плоские сколы по бинарным плоскостям, что позволяло легко ориентировать их осью C_6 в направлении, перпендикулярном полю с погрешностью не более $\pm 0.5^\circ$.

Для осуществления одноосного сжатия образца, находящегося внутри резонатора, был сконструирован проходной спектрометр специального устройства. Помимо входного и выходного волноводов и поглощающей ячейки (цилиндрического резонатора диаметром 15 мм и высотой 10 мм), спектрометр был оборудован тросом, один конец которого прикреплялся к калиброванной пружине, а другой к рычажному механизму. Пружина находилась внутри сильфонного уплотнения снаружи гелиевого дьюара, а рычажный механизм крепился на стенках волноводов непосредственно вблизи резонатора. Второй конец пружины крепился к поршню, перемещавшемуся с помощью резьбы по направляющим вдоль оси прибора. Внутри пружины помещалась катушка с ферромагнитным сердечником, позволявшая с высокой точностью измерять растяжение пружины по изменению индуктивности. Таким образом исключалась погрешность определения усилия на образце, связанная с атмосферным давлением, жесткостью сильфона и трением. Образец приклеивался на кварцевый цилиндр, поставленный на дно резонатора, и прижи-

мался сверху медным стержнем. Усилие на стержень, передававшееся от рычажного механизма, соответствовало силе растяжения пружины. Внесение кварцевой палочки внутрь резонатора существенно ухудшало его добротность (от 10^4 до $1 \div 2 \cdot 10^3$ в зависимости от резонансной моды), что, однако, не препятствовало осуществлению резонансных измерений. Все устройство, включая резонатор с образцом, находилось в откачанном объеме. Магнитное поле, параллельное оси прибора, создавалось сверхпроводящим соленоидом с плавной двусторонней разверткой до 60 кЭ. Измерения проводились на частотах от 33 и 43 ГГц, в основном при температуре 1.3 К (много ниже T_N RbMnBr₃), достигавшейся откачкой паров ⁴He. Исследуемый образец имел форму пластины площадью около 4 мм² и толщиной около 1 мм.

На рис.2 приведены записи линий поглощения в образце RbMnBr₃ в зависимости от магнитного поля при различных давлениях на образец. Записи сделаны при прямой и обратной развертках поля на двух частотах, $\nu = 33.2$ ГГц (а) и $\nu = 42.6$ ГГц (б). Для первой из них резонансное поле изучаемой релятивистской ветви АФМР (раздвоенная линия в меньших полях) оказывается несколько ниже поля перехода спиновой системы в соразмерную фазу, а для второй приблизительно в области гистерезиса. Как видно из рис.2а, при нулевом давлении на образец данное поглощение полностью отсутствует для прямой развертки поля и появляется только при обратной развертке. С увеличением давления амплитуда поглощения в обоих направлениях развертки плавно возрастает, резонансные линии уширяются, причем положение максимума меньшей амплитуды остается практически неизменным, а большей сдвигается в область малых полей. Соотношение интенсивностей раздвоенных линий при прямой и обратной развертках $\alpha = I_{up}/I_{down}$ монотонно возрастает от 0 до приблизительно 2/3 (см. раздел Обсуждение). Вторая резонансная линия (на рис.2а в области 40 кЭ, на рис.2б отсутствует) соответствует обменной ветви АФМР, которая смягчается при схлопывании спинов в коллинеарную фазу. Она также испытывает влияние давления, уширяясь и смещаясь в малые поля. При максимальном давлении 7.5 кг (см. вставку на рис.2а) становится заметно раздвоение этой линии примерно на 2 кЭ. На более высокой частоте (рис.2б) давление влияет на релятивистскую ветвь аналогичным образом, то есть приводит к монотонному увеличению амплитуды поглощения, ширины линии и параметра α (последний увеличивается практически до 1), а также сдвигу левого максимума поглощения в меньшие поля. Основное отличие состоит в том, что

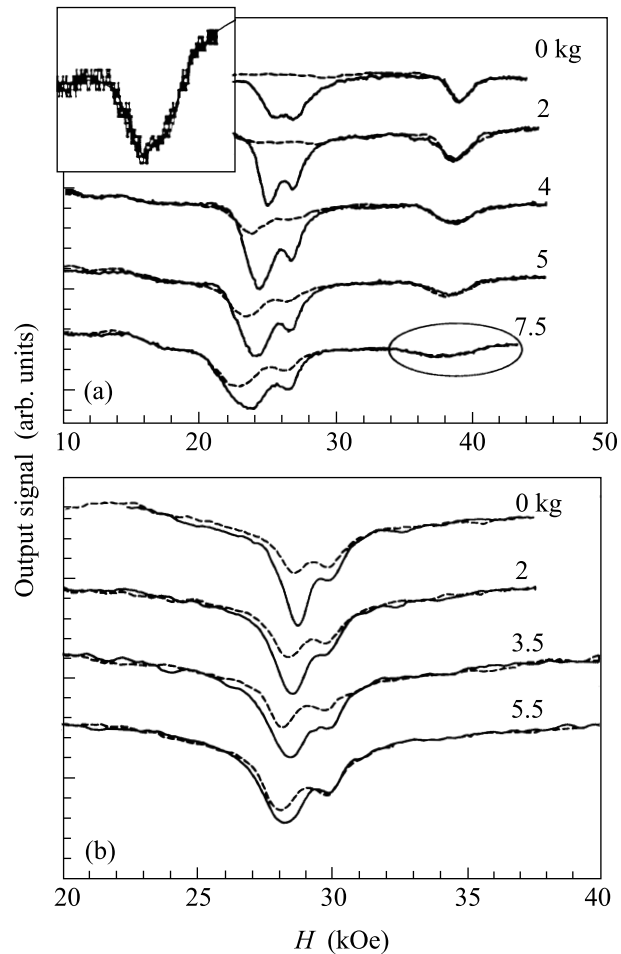


Рис.2. Зависимость резонансного поглощения от магнитного поля на частоте $\nu = 33.2$ ГГц (а) и $\nu = 42.6$ ГГц (б) при различном давлении на образец ($T = 1.3$ К). Пунктирные линии – развертка с увеличением поля, сплошные линии – с уменьшением. На вставке выделенный овалом фрагмент записи

правая линия в этом случае практически не изменяется вплоть до максимального давления, поскольку находится в полях, больших H^* .

Обсуждение и выводы. Как отмечалось выше, основной характеристикой для оценки поля перехода H^* по резонансным измерениям является соотношение интенсивностей линий поглощения релятивистской ветви АФМР при прямой и обратной развертках магнитного поля. Гистерезис перехода I-го рода определяет различие поглощения СВЧ сигнала, относящегося к соразмерной фазе. Наблюдаемое под давлением изменение амплитуды поглощения при прямой развертке поля и сближение интенсивностей I_{up} и I_{down} (см. рис.3а) свидетельствует о том, что одноосное сжатие образца в направлении, перпендикулярном бинарной плоскости, приводит к уменьше-

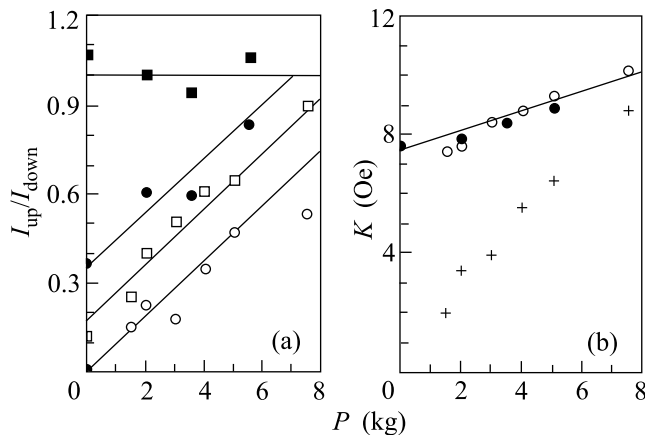


Рис.3. (а) Отношение $I_{\text{up}}/I_{\text{down}}$ для пиков поглощения от домена 1 (квадраты) и доменов 2, 3 (кружки): светлые символы – $\nu = 33.2$ ГГц, черные символы – $\nu = 42.6$ ГГц; (б) – зависимость параметра κ (см. текст) от давления на образец; кружки – релятивистская ветвь, кресты – обменная ветвь; прямые линии проведены для наглядности

нию поля перехода в соразмерную фазу, которое по грубой оценке составляет 2–3 кЭ. Это подтверждает связь между возникновением несообразной магнитной структуры и периодической вариацией обменных взаимодействий в базисной плоскости. Остается проанализировать вопрос о влиянии одноосного сжатия образца на положение резонансных пиков, то есть о сдвиге резонансных частот под давлением.

Прежде всего отметим, что раздвоение резонансной линии, соответствующей однородным колебаниям спиновой плоскости в магнитном поле, связано с наличием в образце трех кристаллических доменов. Они имеют примерно одинаковый объем и различаются по направлению орторомбических искажений в базисной плоскости бывшего гексагонального кристалла. В каждом из доменов искажения приводят к возникновению анизотропии, ось которой направлена перпендикулярно бинарной плоскости. Оси анизотропии разных доменов расположены под углом 120° друг к другу. В данном эксперименте магнитное поле направлено вдоль одной из этих осей, \mathbf{x}_1 , и под углом $\pm 60^\circ$ к двум другим, $\mathbf{x}_{2,3}$. Соотношение интенсивностей приблизительно 2:1 между левым и правым пиками свидетельствует, что рациональному направлению поля соответствует правый из них.

Полевая зависимость релятивистской ветви АФМР в соразмерной фазе при $\mathbf{H} \perp \mathbf{x}$ и $\mathbf{H} \parallel \mathbf{x}$ (в базисной плоскости) представляется в виде $\nu(H) = f(H^2 \pm H_c^2)$, где f – возрастающая функция (при слабых искажениях треугольной спиновой структуры $f(x) \sim x^{\frac{3}{2}}$), H_c – критическое поле,

в котором сравниваются энергия анизотропии и магнитная энергия при $\mathbf{H} \parallel \mathbf{x}$). В соразмерной структуре в этом случае должен происходить поворот спиновой системы в плоскости на угол 90° , однако в несообразной фазе этот переход не наблюдается.

Величину H_c можно оценить из расщепления этой ветви АФМР по магнитному полю на заданной частоте в разных доменах. В домене 1 поле направлено вдоль легкой оси (линия меньшей интенсивности), а в доменах 2,3 под углом 60° к ней. Критическое поле определяется параметром $\kappa = \sqrt{\frac{2}{3}(H_{\text{res1}}^2 - H_{\text{res2}}^2)}$ (множитель $2/3$ вместо $1/2$ дает примерную поправку на ориентацию доменов 2,3 под углом 60° , а не 90°) и при нулевом давлении равно $H_c(P=0) \simeq \kappa_0 \simeq 7.5$ кЭ. На рис.2 видно, что под давлением это поле возрастает, но только в доменах 2,3, так как соответствующая им резонансная линия смещается в меньшие поля, а резонанс домена 1 остается на месте. Простая оценка $H_c(P) \simeq \kappa_0 + 3\Delta\kappa(P)$ дает увеличение поля H_c в доменах 2,3 примерно в два раза при максимальном давлении (см. рис.3б).

Поле схлопывания подрешеток в коллинеарную фазу также зависит от направления поля. В двух крайних ориентациях $\mathbf{H} \parallel \mathbf{x}$ и $\mathbf{H} \perp \mathbf{x}$ оно равно $H_e^2 = H_e^2 \pm H_c^2$. Поэтому расщепление наблюдается и для резонансной линии, которая соответствует обменной ветви АФМР (см. Экспериментальные результаты). На рис.3б приведены соответствующие данные, полученные путем подгонки резонансного поглощения при разных давлениях двумя пиками лоренцевой формы. Большая ширина линий обменной ветви АФМР не позволяет точно разрешить их при малых давлениях, что объясняет отклонение полученных величин H_c от результатов для релятивистской ветви.

В заключение отметим, что поле перехода в измеримую фазу также зависит от H_c , поэтому его изменение в доменах 2,3 (где поле H_c меняется в зависимости от P) является комбинированным. Смещение линий АФМР под давлением также влияет на оценку H^* использованным в работе методом. Поэтому прямым доказательством зависимости H^* от модуляции обменов в базисной плоскости служит только наблюдаемое изменение интенсивности резонансных пиков под давлением в первом домене.

Авторы признательны И. А. Зализняку за идею эксперимента, а также А. И. Смирнову и М. Е. Житомирскому за полезные обсуждения. Работа частично поддержана Российским фондом фундаментальных исследований, гранты # 01-02-17557 и # 03-02-16579.

С.С.С. также благодарит Фонд Содействия отечественной науке за финансовую поддержку.

1. H. von Fink and H.-J. Seifert, *Acta Crystallogr.* **B38**, 912 (1982).
2. O. A. Petrenko, M. A. Lumsden, M. D. Lumsden, and M. F. Collins, *J. Phys.: Condens. Matter* **8**, 10899 (1996).
3. T. Kato, *J. Phys. Soc. Jpn.* **71**, 300 (2002).
4. L. Heller, M. F. Collins, Y. S. Yang, and B. Collier, *Phys. Rev.* **B49**, 1104 (1994).
5. W. Zhang, W. M. Saslow, and M. Gabay, *Phys. Rev.* **B44**, 5129 (1991); W. Zhang, W. M. Saslow, M. Gabay, and M. Benakli, *Phys. Rev.* **B48**, 10204 (1993).
6. M. E. Zhitomirsky, O. A. Petrenko, and L. A. Prozorova, *Phys. Rev.* **B52**, 3511 (1995).
7. A. M. Tikhonov and S. V. Petrov, *Phys. Rev.* **B61**, 9629 (2000).
8. I. M. Vitebskii, O. A. Petrenko, S. V. Petrov, and L. A. Prozorova, *Sov. Phys. JETP* **76**, 178 (1993); A. N. Bazhan, I. A. Zaliznyak, D. V. Nikiforov et al., *ibid* **76**, 342 (1993).