

УЧРЕЖДЕНИЕ РОССИЙСКОЙ АКАДЕМИИ НАУК
ИНСТИТУТ ФИЗИЧЕСКИХ ПРОБЛЕМ
имени П.Л. КАПИЦЫ РАН

Семанин Александр Юрьевич

**ЯМР исследование неколлинеарного
антиферромагнетика $Mn_3Al_2Ge_3O_{12}$**

научный руководитель:
д. ф.-м. н. А.М.Тихонов

МОСКВА 2011

Содержание

Введение	2
1. Теория ЯМР на Mn в антиферромагнетиках.....	4
2. Спектрометр ЯМР	9
3. Исследование спектров ЯМР в антиферромагнетике	
Mn ₃ Al ₂ Ge ₃ O ₁₂	20
Заключение.....	28
Литература.....	30

Введение.

При исследовании свойств магнитоупорядоченных веществ часто возникает вопрос о локальном пространственном распределении электронной и спиновой плотностей в твердом теле. Такие локальные характеристики, например, можно извлечь путем изучения ядерного магнитного резонанса (ЯМР). Дело в том, что ядра, обладающие магнитным моментом, представляют собой тончайший естественный зонд, помещенный в электронную систему кристалла, с помощью которого методом ядерного резонанса можно получить важные сведения о свойствах этой системы. В первую очередь это, конечно, измерение локальных магнитных полей, создаваемых на ядрах электронами.

ЯМР на ядрах двухвалентного иона ^{55}Mn (100% изотопный состав) является одним из традиционных методов изучения марганцевых антиферромагнетиков. Этот 3d магнитный ион находится в чисто спиновом состоянии (терм $^6S_{5/2}$), поэтому эффекты, связанные со спин-орбитальным взаимодействием с хорошей точностью отсутствуют.

Неколлинеарная магнитная структура некоторых АФ, а также конкуренция между полем кристаллической анизотропии и межцепочечным обменным взаимодействием порождают интересные трансформации в спиновых решетках этих магнетиков при приложении магнитного поля. ЯМР на ядрах ^{55}Mn является мощным методом изучения этих переориентационных явлений, так как спектр ЯМР очень чувствителен к симметрии упорядочения магнетика. Так по полювому расщеплению спектра ЯМР можно определить углы между магнитным полем и направлениями спинов, то есть получить важную микроскопическую информацию о строении магнетика.

Еще одна особенность резонансных свойств антиферромагнетиков с магнитными ионами Mn^{2+} при температурах $\sim 1\text{К}$ связана с корреляцией колебаний ядер с колебаниями электронной системы, приводящей к сильной деформации (пуллинг или ДСЧ ЯМР) спектра ядерного резонанса. В легкоплоскостных антиферромагнетиках с линейной по полю модой антиферромагнитного резонанса (например MnCO_3) ДСЧ ЯМР наблюдается в магнитных полях H до 0.5 Тл. В неколлинеарных антиферромагнетиках (например CsMnBr_3) взаимодействие электронных и ядерных колебаний происходит в более широком интервале магнитных полей ~ 4 Тл. Изучение и описание искаженного спектра

ЯМР, его температурной зависимости представляет интерес для теории динамики неколлинеарных спиновых структур.

Наконец, метод ЯМР позволяет изучать основное состояние антиферромагнетика. В частности, из частоты ЯМР ^{55}Mn в нулевом поле может быть установлена величина редукции средних спинов ионов марганца, возникающей из-за наличия нулевых колебаний в спиновой решетке.

Диапазон частот, в котором обычно регистрируется ЯМР, составляет от 200 МГц до 700 МГц. Большая частота резонанса на ионах $\text{Mn}^{2+} \sim 600 - 700$ МГц обусловлена огромным значением среднего локального поля на ядре $H \sim 60$ Тл, которое определяется в основном сверхтонким взаимодействием спинов ядра и иона (гиромагнитное отношение для ^{55}Mn $\gamma_n \approx 10.6$ МГц/Тл). Интенсивность сигналов ЯМР определяется, главным образом, эффектом усиления на ядре радиочастотного магнитного поля \mathbf{h} , поперечной составляющей сверхтонкого поля, что делает возможным наблюдение сигналов ЯМР при $\mathbf{H} \parallel \mathbf{h}$. Особенности ЯМР на ядрах марганца рассмотрены в главе 1.

Данная работа по большей части посвящена разработке методики изучения ЯМР на ядрах ^{55}Mn , а также изучению неколлинеарного двенадцатиподрешеточного антиферромагнетика $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$. Спектрометр, описанный в главе 2, является глубокой модернизацией прибора, описанного в [1]. Его параметры обусловлены перечисленными особенностями ЯМР на ядрах марганца. В качестве образца был выбран марганцевый гранат $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$. Этот антиферромагнетик обладает сложной магнитной структурой (12 подрешеток). Согласно теоретическому рассмотрению, в нем может наблюдаться слабый антиферромагнетизм, обусловленный деформацией магнитной структуры. Теоретическому исследованию этого антиферромагнетика посвящена недавняя работа О.Г.Удалова [12]. В главе 3 описана структура и полученный спектр этого магнетика.

1. Теория ЯМР на ядрах ^{55}Mn в антиферромагнетиках.

Спектр ЯМР легко интерпретировать для соединений, в которых магнитным ионом является Mn^{2+} . Это ион с не до конца заполненной $3d$ оболочкой и основным термом $^6S_{5/2}$. Гамильтониан взаимодействия электронов нескомпенсированной оболочки, со спином ядра представляется в следующем виде:

$$\mathcal{H}_{hf} = A_0 (\langle \mathbf{I} \rangle, \langle \mathbf{S} \rangle), \quad (1)$$

где $\langle \mathbf{I} \rangle$ - среднее значение спина иона Mn^{2+} , $\langle \mathbf{S} \rangle$ - среднее значение спина электрона, A_0 - константа сверхтонкого взаимодействия.

Результирующее локальное поле на ядрах зависит от внешнего магнитного поля \mathbf{H} , от поля сверхтонкого взаимодействия \mathbf{H}_{hf} , а также от поля создаваемого магнитными моментами соседних ионов \mathbf{H}_{dip} :

$$\mathbf{H} = |\mathbf{H} + \mathbf{H}_{hf} + \mathbf{H}_{dip}|, \quad (2)$$

Здесь

$$\mathbf{H}_{dip} = \sum_j \left\{ \frac{\langle \boldsymbol{\mu}_j \rangle}{R_j^3} - 3 \frac{\mathbf{R}_j \langle \boldsymbol{\mu}_j \rangle \mathbf{R}_j}{R_j^5} \right\}, \quad (3)$$

где $\langle \boldsymbol{\mu}_j \rangle$ - магнитный момент иона, находящегося в точке с радиус-вектором \mathbf{R}_j (за начало координат принято рассматриваемое ядро), а \mathbf{H}_{hf} можно переписать в виде:

$$\mathbf{H}_{hf} = -A_0 \langle \mathbf{M} \rangle \equiv -\frac{A \langle \mathbf{S} \rangle}{\gamma_n \hbar}, \quad (4)$$

где γ_n - ядерное гиромагнитное отношение (для ^{55}Mn $\gamma_n / 2\pi = 10.6$ МГц/Тл). Отметим, что величина \mathbf{H}_{hf} может достигать огромной величины ~ 60 Тл, тогда как $H \sim 10$ Тл, $H_{dip} \sim 0.1$ Тл. Таким образом, имеющиеся в системе внешние поля малы по сравнению с локальными полями на ядрах. Поэтому резонансные частоты, пропорциональные магнитному полю на ядре, достигают огромных значений в сотни мегагерц.

Приведенное выражение для \mathbf{H}_{hf} не учитывает корреляции между спинами ядер и электронов, и верно только в первом порядке разложения по A_0 . Так отклонение спина

какого-либо ядра на небольшой угол по отношению к электронной намагниченности будет приводить к возмущению в системе электронных спинов. И хотя это возмущение не значительно по величине, но имеет большой радиус действия, поэтому окажет влияние на большое число ядерных спинов. Этот эффект приводит к сдвигу частоты ЯМР относительно ω_{n0} , и называется динамическим сдвигом частоты ЯМР (ДСЧ ЯМР или пуллинг), где $\omega_{n0} = \gamma_n H$ - несмещенная частота резонанса. Отметим, что в отличие от частоты ω_{n0} , реальная частота ЯМР зависит от температуры ядерных спинов.

Для статического локального поля H_{ni0} , действующего на ядра магнитных ионов i -й подрешетки, согласно (3), (4) имеем:

$$H_{ni0} = H_{hf} \left(1 + \frac{H^2}{H_{hf}^2} - 2 \frac{H}{H_{hf}} \cos(\theta_j) \right), \quad (5)$$

где θ_j - угол между внешним магнитным полем и намагниченностью подрешетки. Таким образом, несмещенный спектр ЯМР расщепляется, в соответствии с числом неколлинеарных подрешеток $\omega_{ni0} = \gamma_n H_{ni0}$, что позволяет наблюдать переориентационные фазовые переходы в антиферромагнетиках.

Совместные однородные колебания ядерных и электронных моментов в одноосном АФ были описаны Е.А.Туровым и В.Г.Кулеевым в 1965 году на основе двухподрешеточной модели [2]. Известно, что в одноосных кристаллах могут реализовываться два антиферромагнитных состояния: с вектором антиферромагнетизма вдоль оси симметрии кристалла \mathbf{Z} и перпендикулярно ей. Первое состояние принято называть: легкая ось, второе: легкая плоскость. В случае АФ типа легкая плоскость спектр АФМР-ЯМР описывается уравнением [4]:

$$(\omega^2 - \omega_e^2)(\omega^2 - \omega_{n0}^2) - \omega^2 \omega_T^2 = 0, \quad (6)$$

где ω_e - невозмущенная (взаимодействием с ядрами) частота антиферромагнитного резонанса: $\omega_e = \omega_{e1} = |\gamma_e| H$, $\omega_T = |\gamma_e| \sqrt{H_E H_{hf}^{ion}}$ - константа связи, где H_{hf}^{ion} - статистическое сверхтонкое поле, действующее на ионы со стороны ядер, ω_{n0} - несмещенная частота ЯМР. Заметим, что между решениями уравнения (6) Ω_1 и Ω_2 имеет место простое соотношение: $\Omega_1 \Omega_2 = \omega_e \omega_{n0}$. Таким образом, своеобразный «закон сохранения»: связь колебаний электронной и ядерной систем, изменяет собственные частоты их колебаний так, что произведение этих частот остается неизменным. Перейдем

теперь к рассмотрению приближенных решений уравнения (6). Его точные решения имеют вид:

$$\Omega_{1,2}^2 = \frac{1}{2}(\omega_e^2 + \omega_T^2 + \omega_{n0}^2) \pm \frac{1}{2} \left[(\omega_e^2 + \omega_T^2 + \omega_{n0}^2)^2 - 4\omega_e^2\omega_{n0}^2 \right]^{\frac{1}{2}}, \quad (7)$$

Характер приближений зависит от соотношений между $\omega_e, \omega_T, \omega_{n0}$. В случае антиферромагнетика типа легкая плоскость, при $\mathbf{H} \parallel \mathbf{z}$ низкочастотная ветвь АФМР $\omega_{e1} = \gamma_e H$, в малых полях сравнивается с частотой ЯМР. Это приводит к расталкиванию мод или пуллингу.

Если положить, что $\frac{\omega_{n0}^2}{\omega_{e1}^2 + \omega_T^2} \ll 1$, то разлагая корень в (7) по этой величине, получим

$$\Omega_1^2 \approx \omega_{e1}^2 + \omega_T^2 \equiv \Omega_{e1}^2$$

- одно из решений будет высокочастотным - электронно-подобная ветвь. В спектре АФМР появится щель $\omega_T \propto 1/\sqrt{T}$ - которая для марганцевых антиферромагнетиков при $T \sim 1$ К может достигать величины порядка 10 ГГц.

$$\Omega_2^2 \approx \omega_{n0}^2 \frac{\omega_{e1}^2}{\omega_{e1}^2 + \omega_T^2} \equiv \Omega_{n2}^2$$

- другое низкочастотное - ядерно-подобная ветвь, с понижением температуры эта ветвь уходит в большие поля, в пределе, при $\omega_{e1} \gg \omega_T$, имеем:

$$\Omega_n^2 \approx \omega_{n0}^2 \left(1 - \frac{\omega_T^2}{2\omega_{e1}^2} \right).$$

Качественно спектр совместных колебаний представлен на рис. 1.1. Подробнее о ДСЧ ЯМР можно узнать из [3], [4]. Экспериментально это явление наблюдалось, например, В.А.Тулиным [6].

Важную роль в ЯМР исследованиях играет следующий эффект, связанный с поперечной составляющей \mathbf{H}_{hf} . А именно, наблюдение ЯМР в веществах с магнитным порядком часто облегчается благодаря значительному усилению поперечного РЧ-поля, обусловленному большим значением $\langle \mathbf{S} \rangle$. Дело в том, что квантовые резонансные переходы индуцируются не непосредственно поперечным РЧ-полем, а переменной составляющей \mathbf{H}_{hf} . Проще всего эффект усиления объяснить на примере однодоменного ферромагнетика (рис 1.2). Пусть ось квантования ядерного спина направлена вдоль оси \mathbf{Z} , совпадающей с направлением электронной намагниченности \mathbf{M} . Будем считать, что эта ось совпадает с направлением эффективного поля, определяемого внешним полем и полем

анизотропии $\mathbf{H}_0 = \mathbf{H} + \mathbf{H}_a$. Также предположим, что электронная частота гораздо больше ядерной. Тогда действие слабого РЧ-поля h_x , резонансной частоты будет квазистатическим. Оно будет вызывать отклонение намагниченности на угол O :

$$O \approx \frac{h_x}{H_0}$$

На такой же угол повернется сверхтонкое поле H_{hf} . Таким образом, изменение поперечного поля:

$$\Delta H^\perp \approx H_{hf} O \approx \frac{H_{hf}}{H_0} h_x \approx \kappa h_x$$

Величина κ называется коэффициентом усиления ЯМР. Как правило $H_a \ll H_{hf}$, поэтому усиление РЧ-поля бывает очень большим ($\kappa \sim 10^2 - 10^3$). Коэффициент усиления прямо пропорционален углу отклонения $\langle S \rangle$ под действием поперечного h_x , таким образом, он зависит от детальных свойств системы электронных спинов, связанных обменным взаимодействием. В большинстве АФ слабые внешние магнитные поля лишь незначительно изменяют направления магнитных подрешеток, поскольку такие изменения связаны с увеличением обменной энергии. Исключения составляют лишь случаи, когда анизотропия или обменная энергия относительно слабы. Более подробно об усилении ЯМР в магнитоупорядоченных веществах можно ознакомиться, например, в книге М.И.Куркина и Е.А.Турова [2].

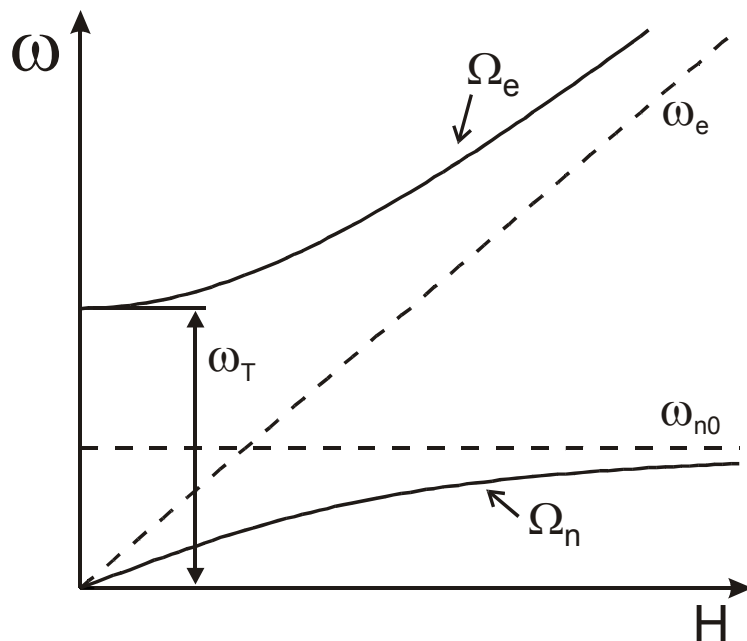


Рис.1.1. Спектр совместных колебаний электронной и ядерной подсистем двухподрешеточного АФ. Ω_e - электронно-подобная ветвь, Ω_n - ядерно-подобная ветвь, ω_{n0} - несмещенная частота ЯМР, ω_e - невозмущенная ветвь АФМР, ω_T - щель в спектре

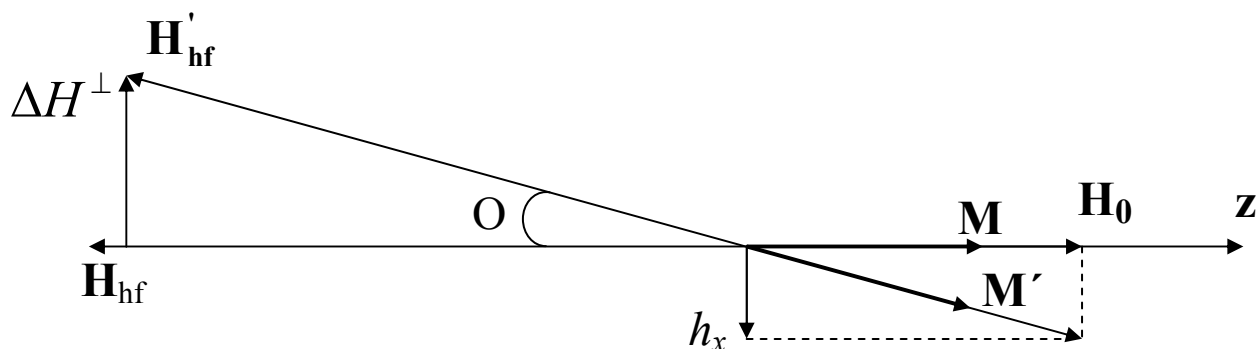


Рис. 1.2. Изменение сверхтонкого поля на ядре, вызванное отклонением намагниченности M под действием радиочастотного поля h_x

2. Спектрометр ЯМР.

Для изучения ядерного резонанса в неколлинеарных АФ был построен широкополосный спектрометр непрерывного действия дециметрового диапазона длин волн λ (30–100 см). Он является глубокой модернизацией прибора, описанного ранее в [1,5]. В частности, в нем аналоговая система автоподстройки частоты заменена цифровой, а также использован принципиально новый резонатор. Широкополосность прибора обеспечивается двумя высокодобротными резонаторами разного типа.

Эскиз конструкции резонансного контура первого типа представлен на рис. 2.1. Резонатором служит, модификация перестраиваемого резонатора типа split-ring [6]. Его корпус 3 (рис. 2.1а) представляет собой параллелепипед шириной 10 мм, высотой 30 мм и глубиной 8 мм, который изготавливается из бескислородной меди. На рис. 2.1b ширина параллелепипеда 8 мм, высота 20 мм и глубина 11 мм. Индуктивностью в "разорванном кольце" служит сквозное отверстие (диаметром 8 мм на рис.2.1а и 6 мм на рис. 2.1b), а ёмкостью – узкая щель в корпусе резонатора 1 (величина зазора ~ 0.1 мм). Длина щели L_0 задаёт собственную частоту резонатора $\nu_0 \sim 1/\sqrt{L_0}$. Для перекрытия диапазона от ~ 200 до ~ 900 МГц в спектрометре используются три сменных резонатора с различной геометрией щели (величина зазора щели ~ 0.1 мм), в которую для тонкой настройки собственной частоты помещались пластинки слюды толщиной $\sim 50-100$ мкм (рис. 2.2).

При перемещении медной пластины 2, изменяется емкость, образованная пластиной 2 и резонатором 3 (изолятор 4 – полиэтилентерефталатная пленка толщиной 5-10 мкм). Это обстоятельство используется для перестройки собственной частоты резонансной системы. СВЧ мощность подводится коаксиальной линией 5. Индуктивная связь с резонатором осуществляется с помощью петель связи, одна из которых передающая 6, а другая приемная 7. Диаметр витков связи составляет ~ 5 мм и располагаются они на расстоянии ~ 5 мм от граней резонатора (слабая связь). Нагруженная добротность резонансной системы зависит от частоты и при температуре жидкого гелия варьируется от 200 до 400. В зависимости от конструкции резонатора есть две возможные ориентации внешнего магнитного поля \mathbf{H} , создаваемого сверхпроводящим

соленоидом, относительно его оси (рис. 2.1). Таким образом, можно осуществлять эксперименты при двух поляризациях радиочастотного поля $\mathbf{h} \parallel \mathbf{H}$ и $\mathbf{h} \perp \mathbf{H}$. Образец крепится на специальной подложке, изготовленной из полиамидного пластика. Вся конструкция находится в гелиевой ванне (стеклянный сосуд Дьюара с внутренним диаметром 90 мм).

Резонансная система второго типа отличается от первой значительно большей добротностью ~ 3000 (рис. 2.3). Она сконструирована на основе закрытого резонатора, представляющего собой закороченную коаксиальную линию длиной 100 мм ($\sim \lambda/4$). Коаксиальный резонатор состоит из медного цилиндра 1 с внутренним диаметром 20 мм, медного сердечника 2 диаметром 8 мм и бронзовой мембраны 3 толщиной 0.2 мм. Между сердечником и мембраной имеется узкий зазор (0.2 мм - 0.5 мм), величину которого можно менять, оказывая давление на мембрану, при помощи штока 4. Связь с резонатором осуществляется с помощью коаксиальных линий 5 через отверстия диаметром 2 мм в стенке цилиндра. Внешнее магнитное поле прикладывается вдоль оси резонатора. Кристаллический образец 7 помещается на дно резонатора в максимуме радиочастотного и постоянного магнитного поля ($\mathbf{h} \perp \mathbf{H}$), которое создается с помощью сверхпроводящего соленоида 8. Экспериментально выяснилось, что этот диапазон гораздо шире и составляет 200–700 МГц. При увеличении магнитного поля в область максимальных значений стабильность частоты такой резонансной системы ~ 10 кГц, тогда как у «разорванного кольца» ~ 0.1 МГц, что, по-видимому, связано с большей механической жесткостью коаксиального резонатора.

Блок-схема спектрометра изображена на рис. 2.4. Частота генератора СВЧ G модулируется низкой частотой ($f = 25$ кГц), источником которой является внутренний генератор фазочувствительного вольтметра L1 (lock-in SR 830). Для стабилизации частоты генератора на вершине резонансного пика используется система автоматической подстройки частоты (АПЧ), настроенная на ноль амплитуды первой гармоники модуляции. Система АПЧ включает в себя: синхронный детектор и цифровую систему слежения, работающую в среде LabView (National Instruments). При расстройке $\Delta\Omega$ частоты генератора от собственной частоты резонансного контура RS на детекторе D (планарный диод) появляется сигнал U_f на частоте модуляции (первая гармоника). Этот сигнал регистрируется фазочувствительным вольтметром L1. В первом приближении его амплитуда пропорциональна величине и знаку расстройки частоты ($U_f \propto \Delta\Omega$). Используя U_f , цифровая система слежения вычисляет поправку $d\Omega$ к несущей частоте генератора СВЧ:

$$d\Omega = \alpha P \left(U_f + I \int_0^t U_f dt + D \frac{dU_f}{dt} \right),$$

где P, I, D - параметры обратной связи, зависящие от температуры, добротности и других факторов. Их значения подбираются вручную и обычно $P \gg I, D$. Константа α определяется значением второй производной амплитудно-частотной характеристики системы в вершине резонансного пика на частоте модуляции. Реализация этого алгоритма в среде LabView представлена на рис. 2.5.

Важную роль для работы АПЧ играет такой параметр генератора, как его быстродействие. На рис. 2.6. приведены примеры сканов, полученных при использовании генераторов Agilent N9310A и Agilent N5181A. Время переключения первого составляет более 10 мс, а второго порядка 1 мс. Благодаря этому, при использовании генератора Agilent N5181A отсутствует шум, обусловленный переходными процессами, возникающими при переключении частоты. При работе с Agilent N9310A приходится использовать более сложный алгоритм АПЧ, что не желательно, так как ведет к уменьшению быстродействия спектрометра.

Для сглаживания амплитудно-частотной характеристики подводящего высокочастотного тракта на входе и выходе низкотемпературной части спектрометра устанавливаются развязывающие аттенюаторы At1 (10 dB) и At2 (3 dB). Выходная мощность генератора СВЧ составляет порядка 50 мВт. Регистрация поглощения в резонансном тракте производится по изменению амплитуды сигнала второй гармоники U_{2f} при помощи второго фазочувствительного вольтметра L2 (lock-in SR 830). Глубина частотной модуляции является важным параметром спектрометра, который сильно влияет на его чувствительность. Её оптимальная величина составляет $\sim \frac{1}{2} \Delta\Omega_0$, где $\Delta\Omega_0$ - ширина резонансного пика (~ 2 МГц). Таким образом, оптимальная девиация составляет ~ 1 МГц. С этой точки зрения, генератор Agilent N5181A (максимальная девиация ~ 10 MHz) также является более предпочтительным, чем Agilent N9310A (максимальная девиация ~ 100 kHz) и позволяет сильно увеличить чувствительность прибора. Дальнейшее увеличение девиации приводит к незначительному увеличению сигнала, но влечет за собой уширение резонансных линий, поэтому является не целесообразным.

Температура контролируется по сопротивлению пленочного резистора (Lakeshore) и по давлению равновесного насыщенного пара ^4He с точностью не хуже чем ± 0.05 К.

В приборе используется источник тока (Criomagetics-4G-100), который позволяет контролировать величину тока с точностью $\pm 10^{-4}$ А. Магнитное поле, необходимое в

эксперименте, обеспечивается сверхпроводящим соленоидом с внешним диаметром 80 мм, а внутренним 25 мм. Величина напряженности магнитного поля измеряется датчиком Холла, который вместе с образцом находится в соленоиде, а так же по величине тока через соленоид. Калибровка соленоида по току и определение его критических параметров были произведены с помощью датчика Холла (НФП «Сенсор») (рис. 2.7), а также независимо по положению линии ЯМР на ядрах ^{19}F на частоте ~ 200 МГц. Критический ток соленоида составляет ~ 69 А при максимальной индукции ~ 10 Тл (отношение $B/I = 0.145$). Расчетная неоднородность поля в центре соленоида составляет $\pm 0.1\%$ в 1см^3 .

Спектрометр позволяет производить измерения в диапазоне температур 1.2 - 4.2 К в двух режимах: 1 -- сканированием величины магнитного поля при фиксированной частоте генератора; 2 -- сканированием частоты при фиксированном магнитном. Резонансная система типа «разорванное кольцо» ориентирована по большей части на первый режим работы прибора. Так как из-за невысокой жесткости конструкции её АЧХ не достаточно хорошо повторяется. Характеристики второй резонансной системы на данный момент еще не изучены в полной мере. Мы надеемся, что она позволит в полной мере задействовать второй режим работы спектрометра.

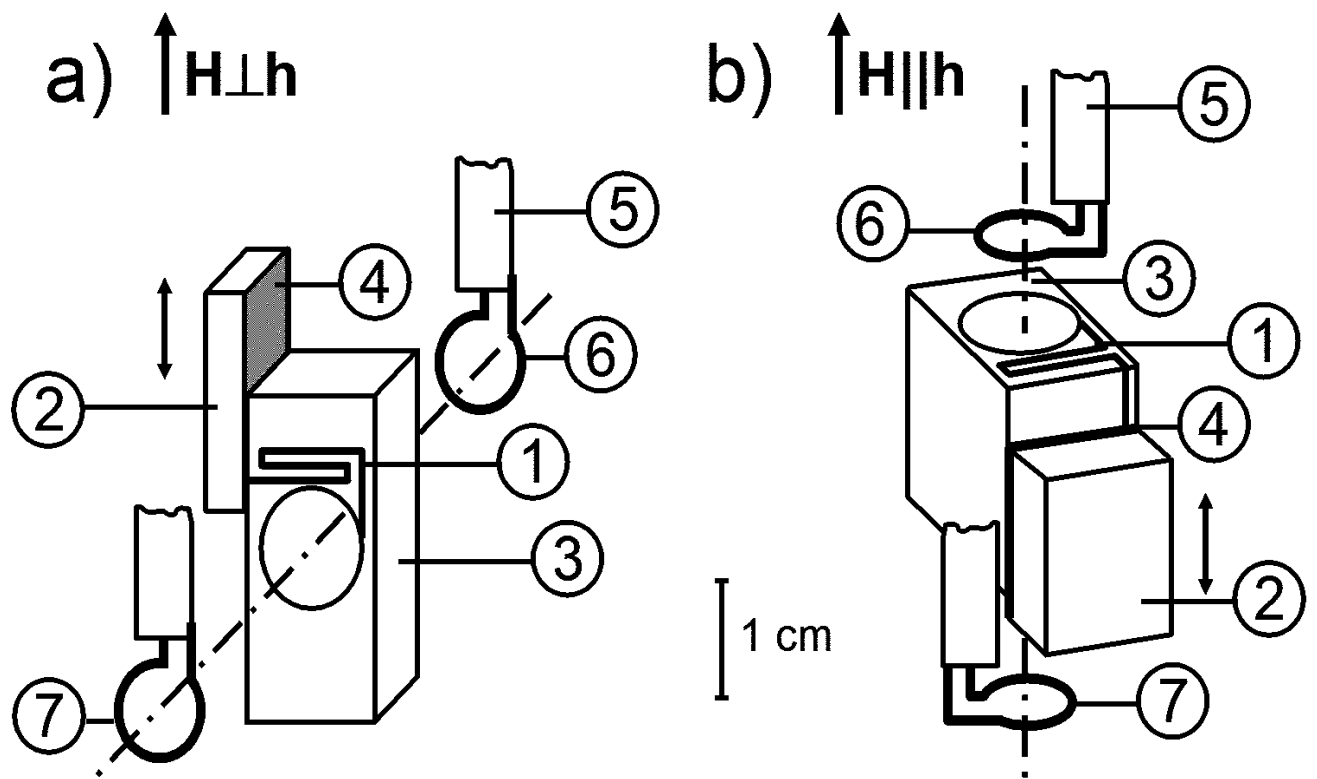


Рис.2.1 Резонансный контур. 1 - узкая щель, 2 - медная пластина, 3 – корпус резонатора, 4 – тонкая полиэтилентерефталатная пленка, 5 – подводящие коаксиальные линии, 6,7 – 4,5 – витки связи.

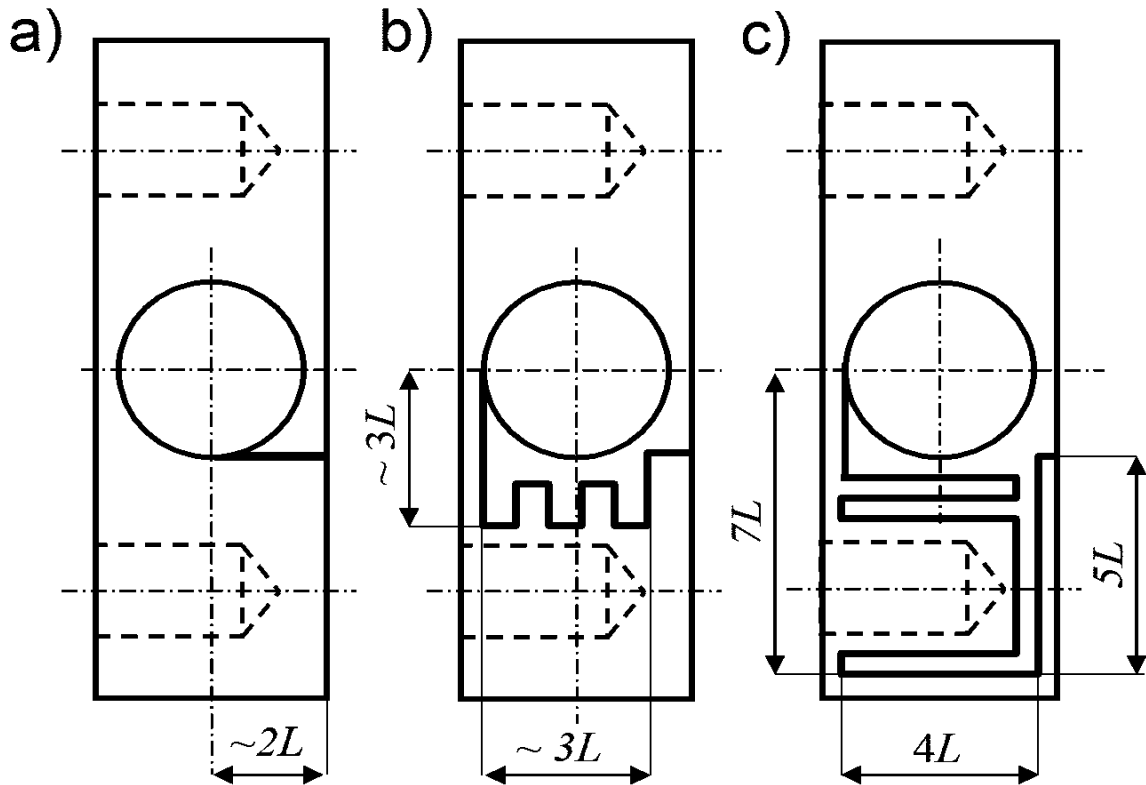


Рис.2.2. Геометрические параметры щелей в резонаторах "разорванное кольцо" (поляризация $\mathbf{h} \perp \mathbf{H}$) с собственной частотой ν_0 : а) ~ 900 МГц; б) ~ 450 МГц; в) ~ 250 МГц. Диаметр сквозного отверстия составляет 8 мм, а $L=2$ мм.

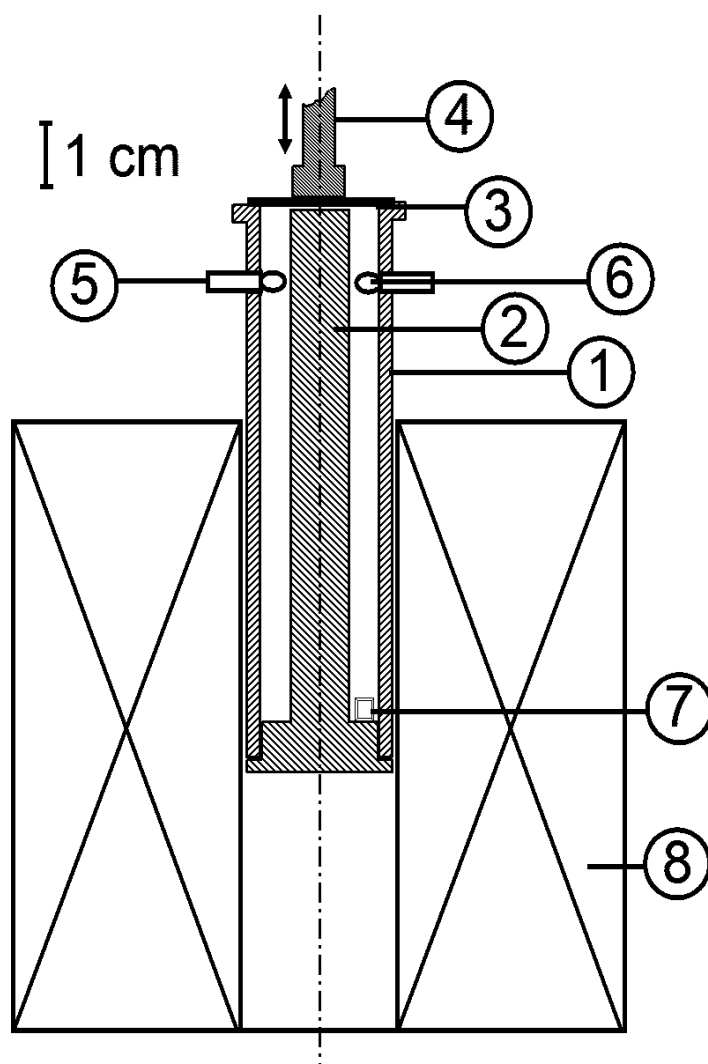


Рис. 2.3. Низкотемпературная часть ЯМР спектрометра с коаксиальным резонатором. 1 – стенки резонатора, 2 – сердечник, 3 – мембрана, 4 – шток, 5 – коаксиальная линия, 6 – виток связи, 7 – образец, 8 – соленоид.

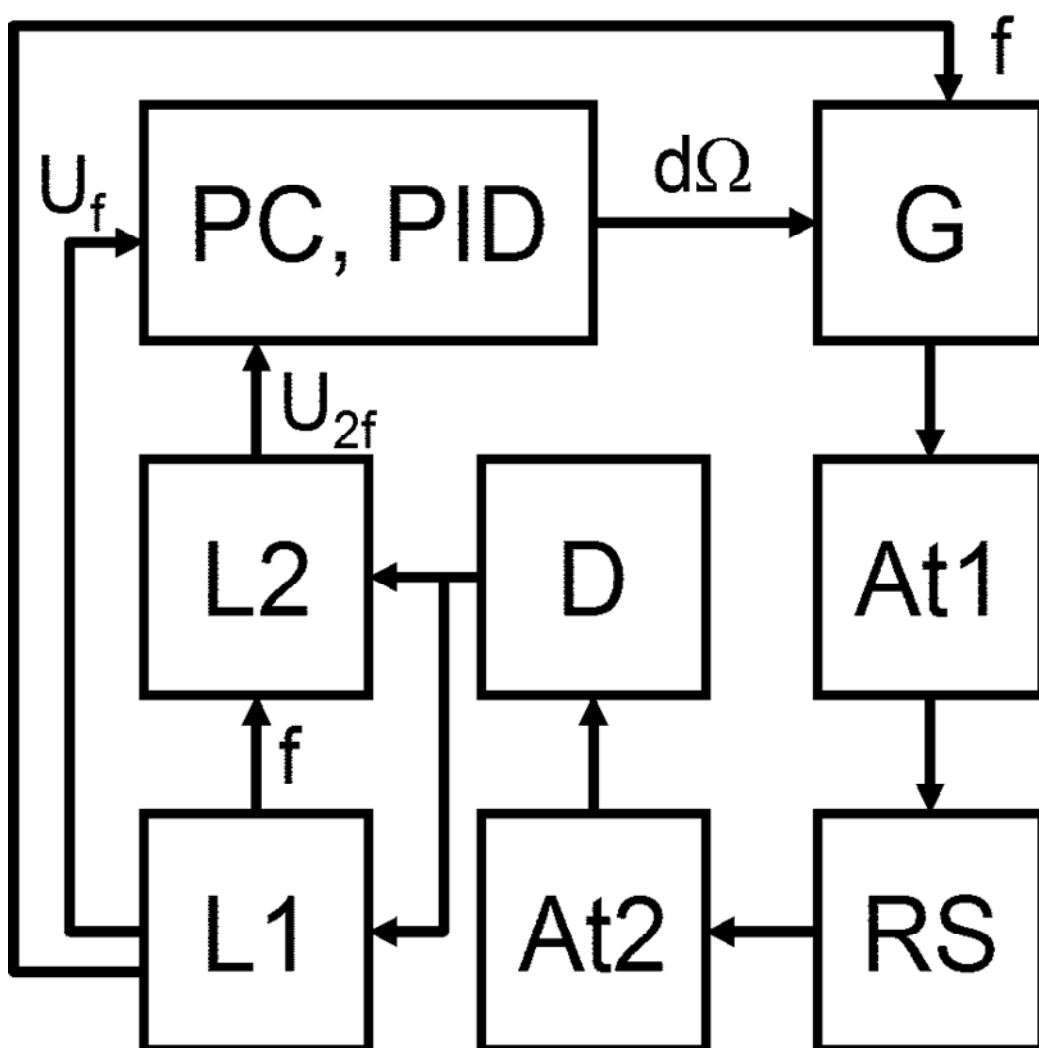


Рис. 2.4. Блок схема спектрометра. Все приборы интегрированы в единый контрольно-измерительный комплекс в среде графического программирования LabVIEW (National Instruments). RS – резонансная система, G – генератор СВЧ, D – квадратичный детектор, L1, L2 – фазочувствительные вольтметры, At1, At2 – аттенюаторы, PC – компьютер, PID – регулятор обратной связи, вычисляющий поправку $d\Omega$ к несущей частоте генератора, f_m – сигнал модуляции, U_f – сигнал 1-ой гармоники, U_{2f} – сигнал 2-ой гармоники

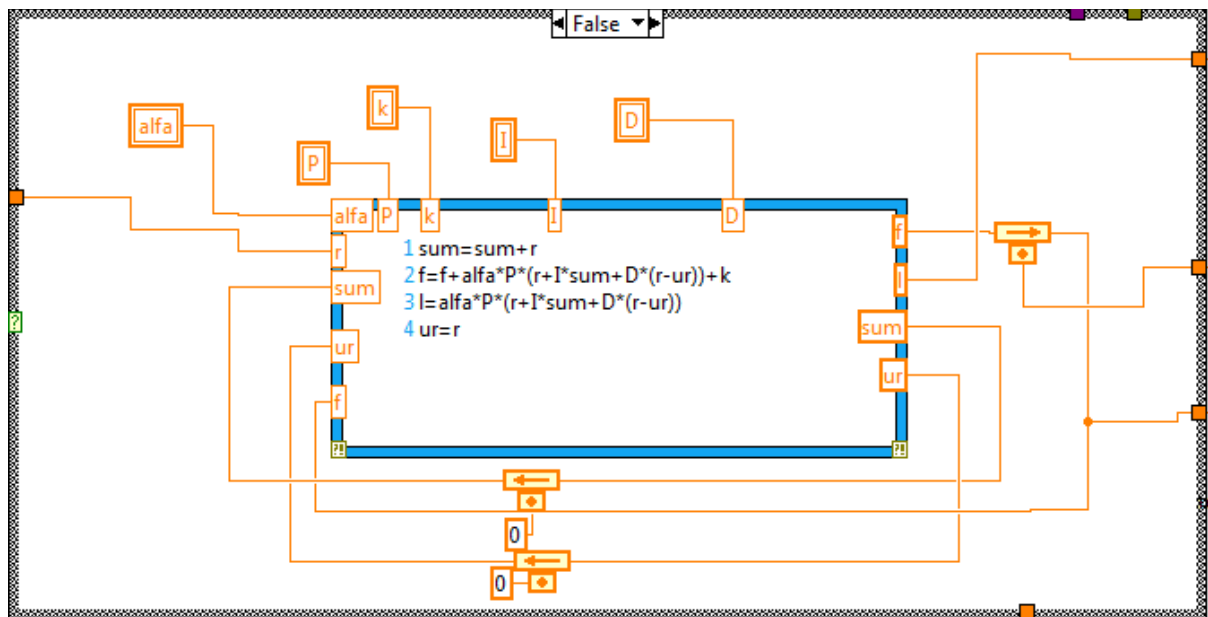


Рис. 2.5. Алгоритм АПЧ выполненный в среде LabView

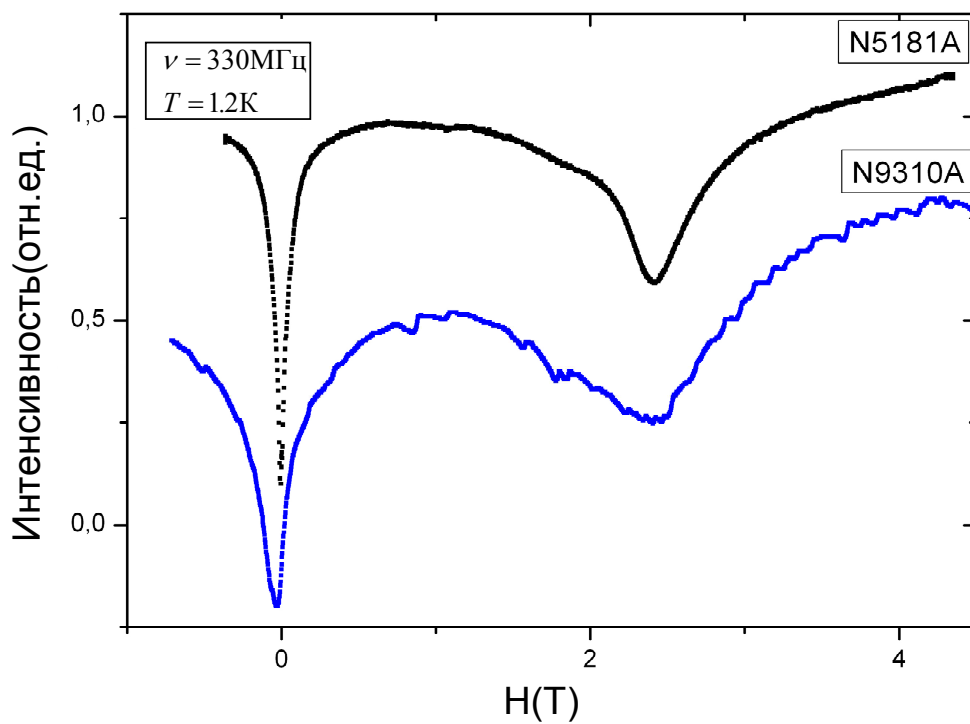


Рис 2.6. Пример сканов сделанных с помощью генераторов N9310A и N5181A на частоте $\nu = 330$ МГц при температуре $T=1.2$ К в антиферромагнетике $Mn_3Al_2Ge_3O_{12}$.

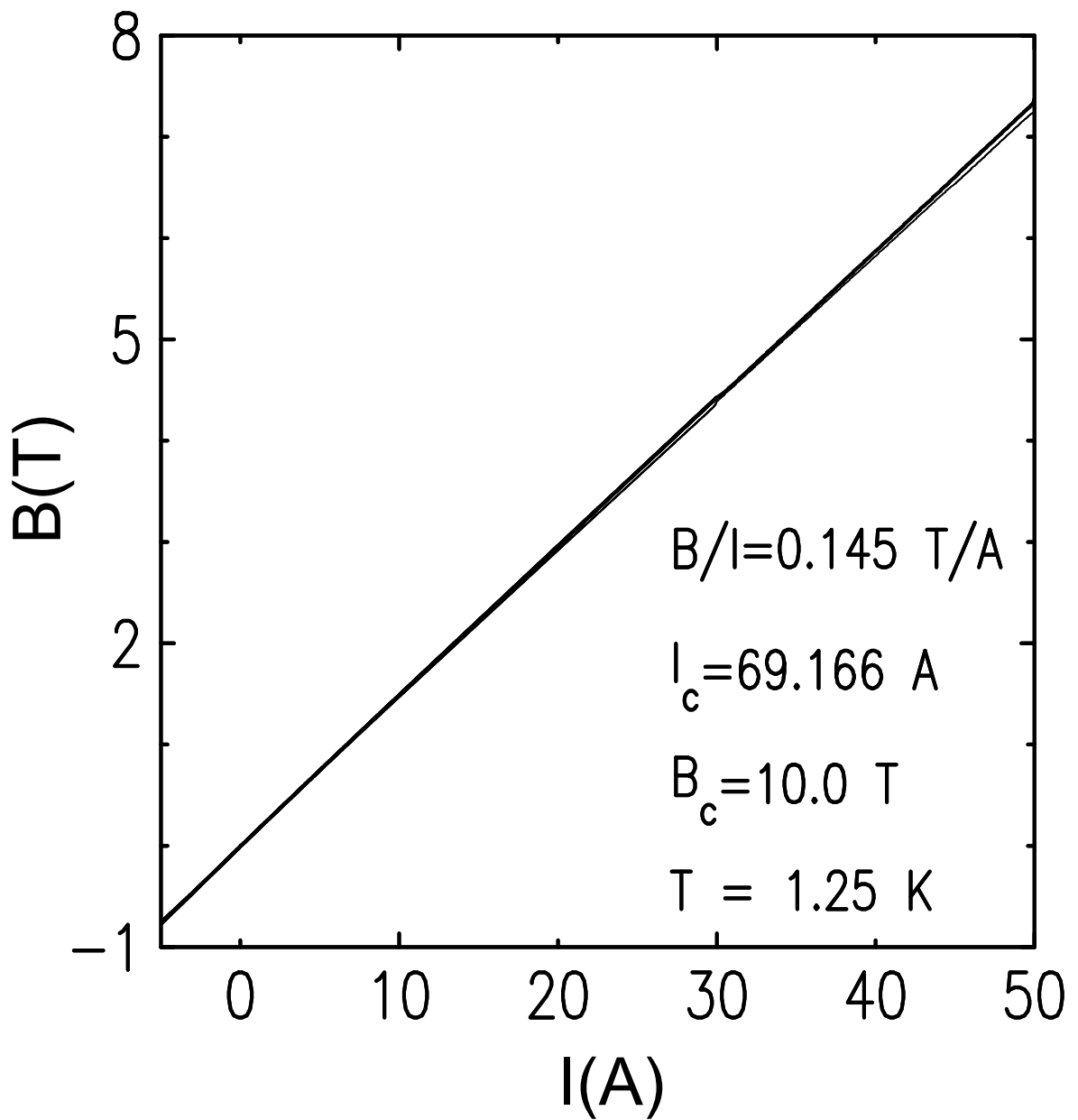


Рис.2.7. Калибровка соленоида по току с помощью датчика Холла. Критический ток соленоида $I_c = 69.166 \text{ A}$, критическое поле соленоида $B_c = 10 \text{ T}$, отношение $\frac{B}{I} = 0.145 \text{ T/A}$

3. Исследование спектров ЯМР в антиферромагнетике $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$

Неколлинеарные антиферромагнетики являются популярным объектом исследований в области магнетизма. Одним из первых обнаруженных неколлинеарных антиферромагнетиков является марганцевый гранат $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, группа симметрии O_h^{10} . Впервые его магнитная структура была предложена г-н Пранделем [9] на основании данных нейтронных экспериментов (рис. 3.1), а в дальнейшем подтвердилась и другими исследованиями [10]. Итак, это антиферромагнетик типа легкая плоскость с температурой Нееля $T_N = 6.8$ К, спины которого коллинеарны плоскости (111), и лежат вдоль прямых [211], [112], [121]. Таким образом, $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ представляет собой двенадцатиподрешеточный антиферромагнетик с «треугольным» упорядочением. В магнитном поле, направленном вдоль [001], происходит поворот спиновой плоскости, так что в полях больших критического H_c она ориентируется перпендикулярно полю. Л.А.Прозоровой и др. в 1985 году [11], обнаружили три ветви антиферромагнитного резонанса при $\mathbf{H} \parallel [100]$, частота одной из которых понижается при приближении к H_c (рис.3.2). Так как все исследования магнитного резонанса проводились на частотах более 20 ГГц, то при интерпретации экспериментальных данных эффектами, связанными со сверхтонким взаимодействием в ионе Mn^{2+} пренебрегали.

В работе [12], которая на данный момент находится в печати, О.Г.Удалов теоретически рассмотрел низкочастотную часть спектра магнитного резонанса в $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, с учетом сверхтонкого взаимодействия, а также проанализировал возможные эффекты, связанные с небольшими искажениями обменной структуры. На рис. 3.3 представлен посчитанный им спектр ЯМР $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, для случая, когда внешнее магнитное поле $\mathbf{H} \parallel (001)$ без учета искажений обменной структуры. Видно, что в нулевом поле имеется три частоты ЯМР. В магнитном поле ($< H_c$) в спектре имеется шесть ветвей. У одной из них частота стремится к нулю при приближении к H_c .

С помощью спектрометра, описанного в главе 2, а именно, используя резонансную схему типа «разорванное кольцо» и режим работы сканирования по полю, мы исследовали спектр ЯМР ^{55}Mn в двух монокристаллах $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ (вес первого составляет ~200 мг,

второго ~ 70 мГ). На рис.3.4 приведены примеры записей линий поглощения в них на близких частотах ~ 400 МГц, при $T = 1.2$ К. В общей сложности, мы изучили магнитный резонанс в $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ в широком диапазоне частот от ~ 200 МГц до ~ 1 ГГц (рис. 3.5). Отдельно отметим, что ширина резонансного пика у первого образца оказалась более чем в два раза больше, чем во втором, что, по-видимому, связано с качеством образцов.

При внешнем магнитном поле, направленном вдоль $[001]$, в окрестности H_c наблюдается линия поглощения. Этот резонанс сильно выражен в интервале частот от 200 до 610 МГц. Форма и интенсивность линии в этом диапазоне зависит от частоты, а максимум интенсивности приходится на ~ 608 МГц. При дальнейшем увеличении частоты интенсивность линии резко падает (рис.3.6). Возникновение такой широкой по частоте линии поглощения, обязано взаимодействию с низкочастотной ветвью антиферромагнитного резонанса [10]. Согласно нашим данным $H_c = 2.5 \pm 0.3$ Тл.

Измерения проводились при разных ориентациях образца относительно внешнего магнитного поля: во-первых, при $\mathbf{H} \parallel [001]$ и во-вторых при отклонении оси C_4 кристалла от направления внешнего магнитного поля \mathbf{H} (угол между ними составлял $\alpha \sim 6^\circ$). Такое изменение ориентации приводило к уширению линии, а также на частотах $\sim 200 - 550$ МГц при $T = 1.8$ К мы наблюдали расщепление резонансного пика, обладающее необычной температурной зависимостью (рис. 3.7). Так интенсивность одной из линий при понижении температуры заметно падает, а её положение смещается в область более высоких полей. В тоже время, положение и интенсивность другой линии остаются неизменными. Возникновение второго резонанса, по-видимому, вызвано возбуждением парамагнитных примесей радиочастотным полем.

Во всех экспериментах мы использовали резонансную систему типа разорванное кольцо и осуществляли сканирование магнитного поля при фиксированной частоте. По-видимому, эта методика в экспериментах с $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ исчерпала себя. С её помощью мы получили интересные экспериментальные данные, однако, пока не смогли подтвердить теоретически посчитанного спектра. Возможно, в виду его особенностей, более информативными окажутся эксперименты другого типа – сканирование не по полю, а по частоте, с коаксиальной резонансной системой. Мы надеемся, что эта схема окажется достаточно чувствительной для того, чтобы регистрировать слабые сигналы ЯМР в монокристаллах марганцевого граната.

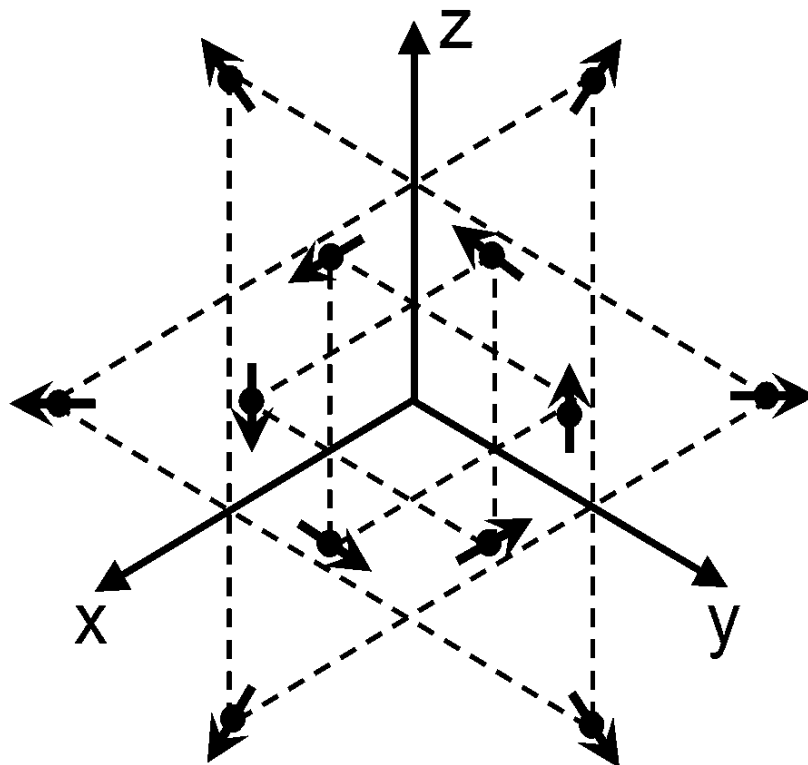


Рис. 3.1. Магнитная структура $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$

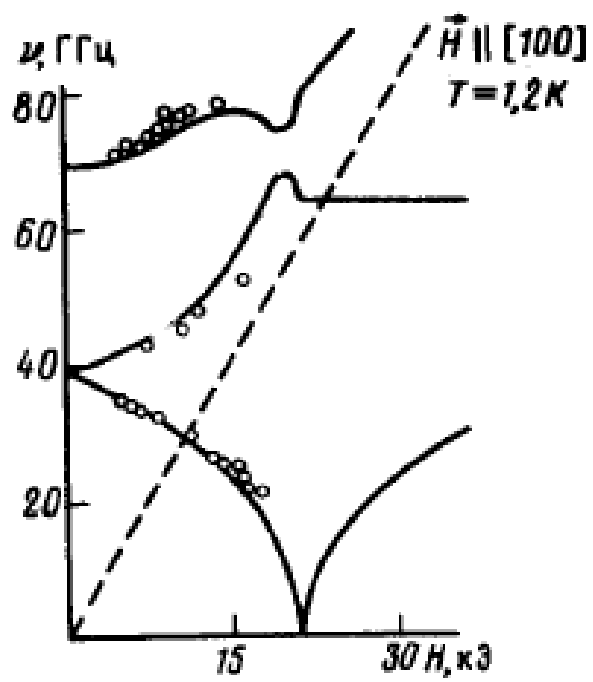


Рис. 3.2. Спектр АФМР $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ при $\mathbf{H} \parallel [100]$, $T = 1.2 \text{ K}$ (из работы [11])

ω , (МГц)

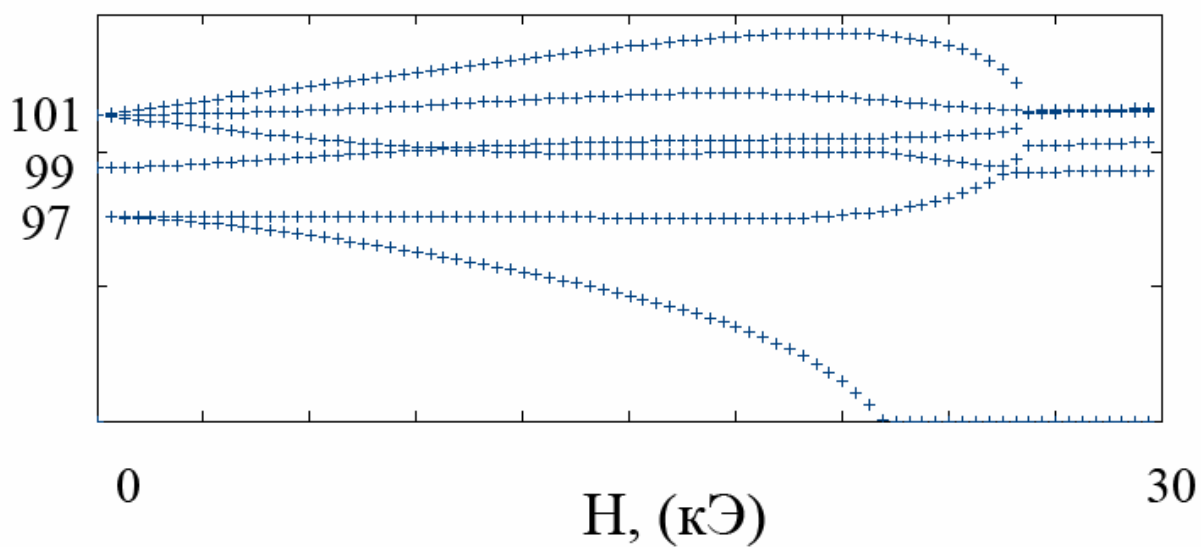


Рис.3.3. Расчетный спектр ЯМР $Mn_3Al_2Ge_3O_{12}$ (из работы [12])

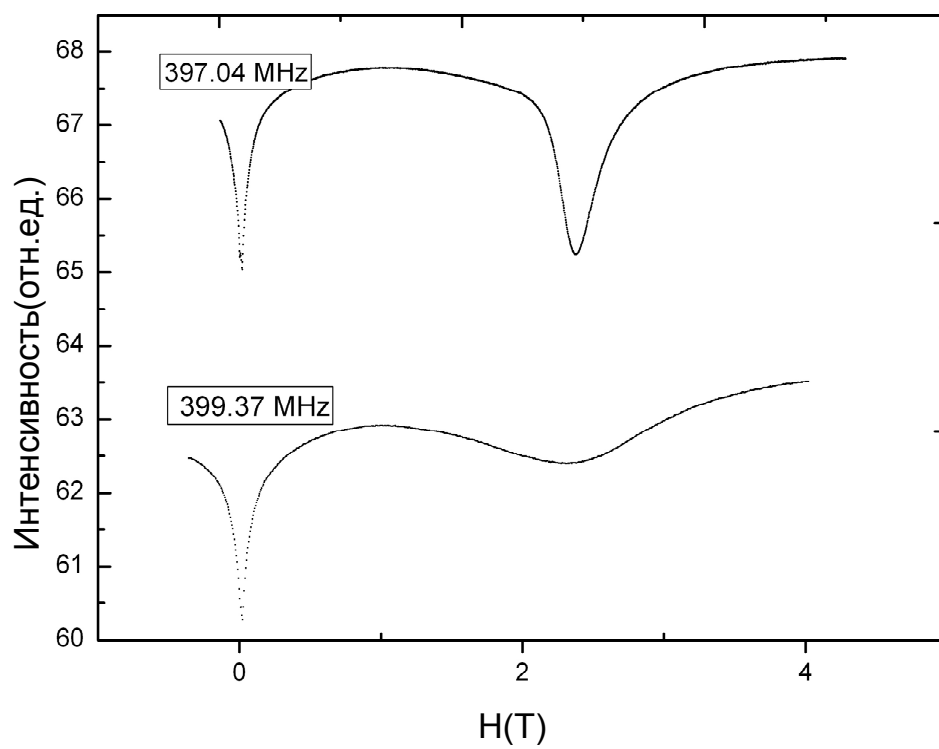


Рис.3.4. Линии поглощения для двух различных образцов $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ на частоте $\nu \sim 400$ МГц при $T \sim 1.2$ К

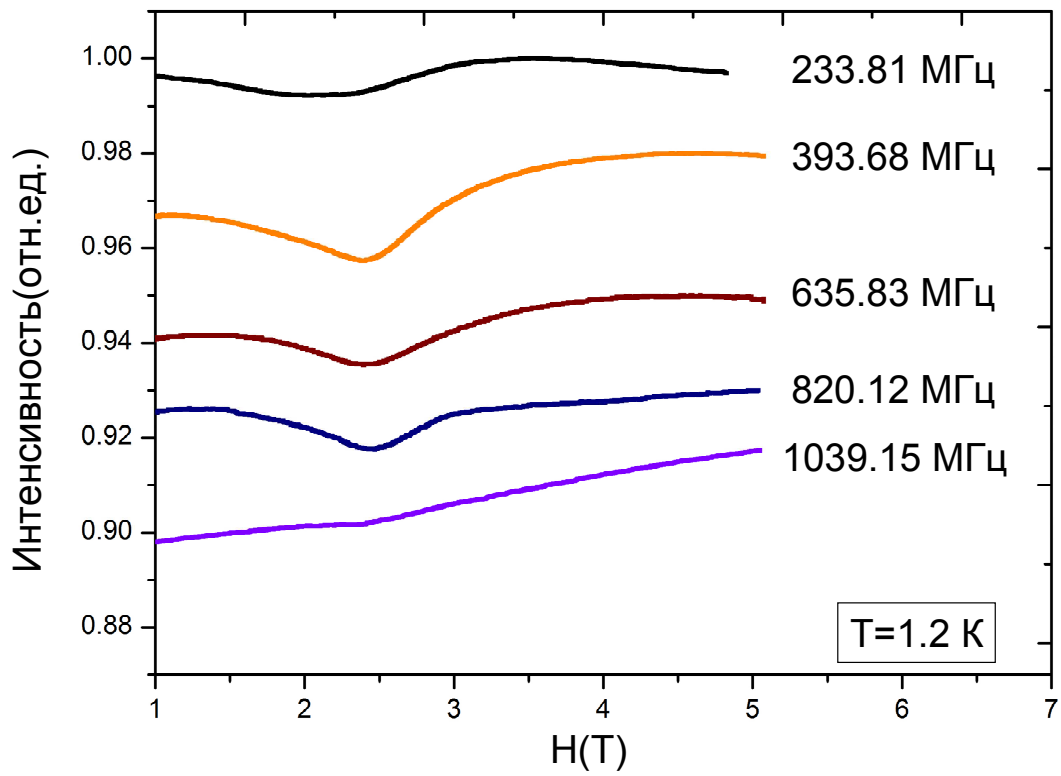


Рис.3.5. Примеры сканов по полю в антиферромагнетике $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ в диапазоне частот от 200 до 1000 МГц ($T=1.2 \text{ K}$, при $\mathbf{H} \parallel [001]$)

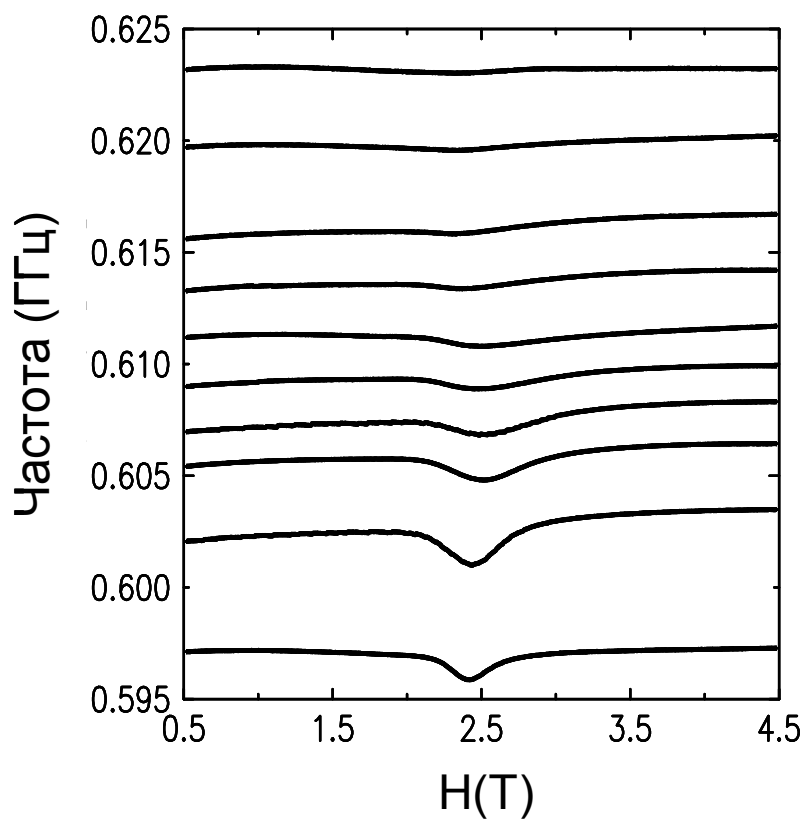


Рис. 3.6. Падение интенсивности сигнала ЯМР в $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ при $\mathbf{H} \parallel [001]$, на частотах ~ 600 МГц, при $T = 1.6$ К, $H_c = 2.5 \pm 0.3$ Тл

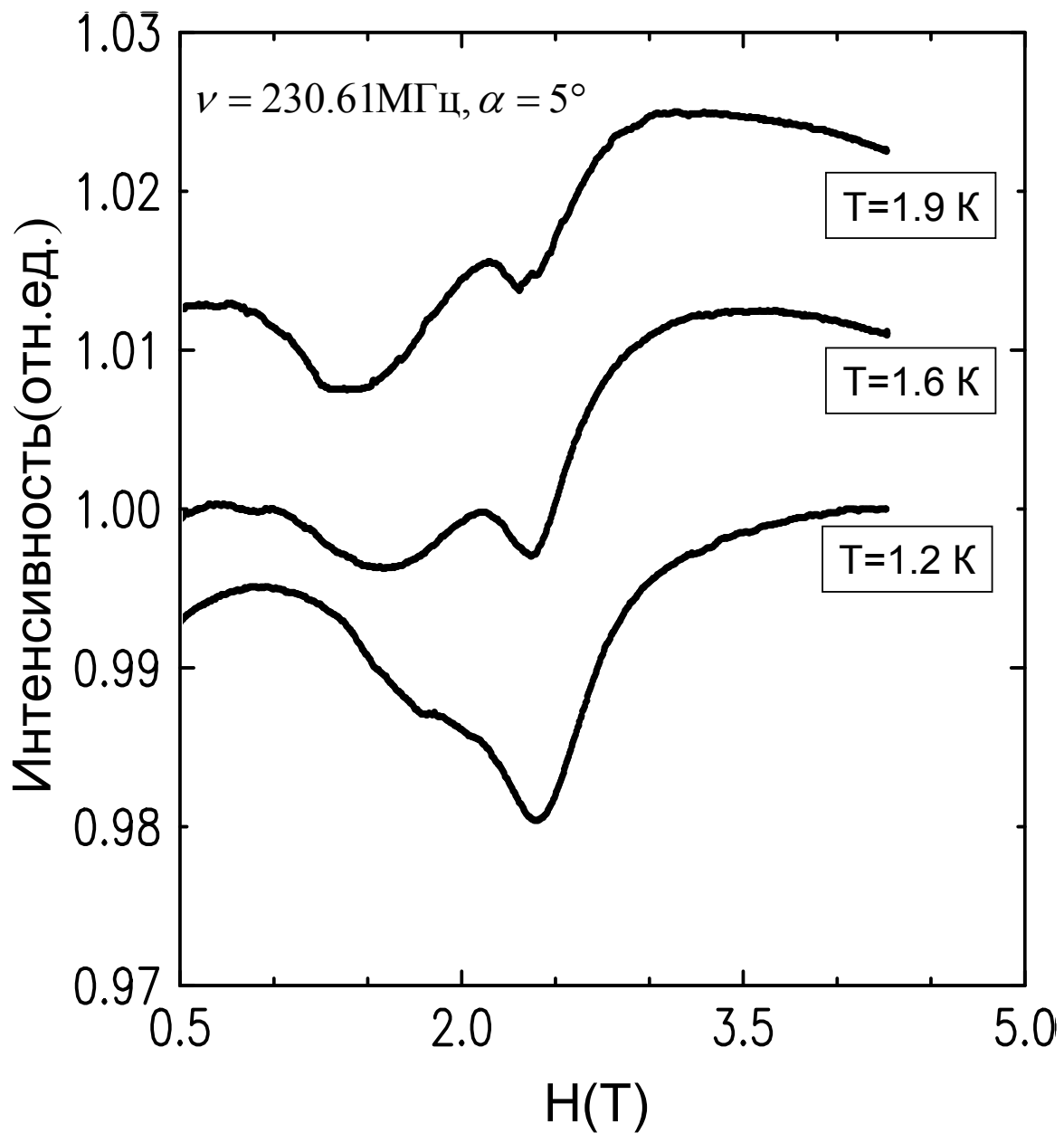


Рис. 3.7. Температурная зависимость расщепления линии поглощения в $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ на частоте $\nu = 230.6 \text{ МГц}$. Угол α между \mathbf{H} и направлением $[001]$ составляет 5°

Заключение.

Таким образом, получены следующие результаты

1. Построен широкополосный спектрометр дециметрового диапазона длин волн, отлажена схема АПЧ в различных режимах её работы, для двух резонансных систем. Спектрометр позволяет проводить эксперименты в диапазоне частот от 200 МГц до 1000 МГц в магнитных полях до 10 Тл и при температурах 1.2 – 4.2 К.
2. Исследован спектр неколлинеарного антиферромагнетика $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$. В диапазоне частот от ~200 МГц до ~1000 МГц. Уточнено поле фазового перехода $H_c=2.5 \pm 0.3$ Тл, соответствующего повороту спиновой плоскости перпендикулярно внешнему полю. Получена зависимость формы, интенсивности и положения линии поглощения в окрестности H_c . В диапазоне частот от 200 до 550 МГц обнаружено расщепление резонансного пика, при этом положение и интенсивность одной из линий зависит от температуры.

В заключении мне бы хотелось в первую очередь поблагодарить моего научного руководителя Алексея Михайловича Тихонова, без которого эта работа не была бы проделана и который своей целеустремленностью, терпением, а также постоянной готовностью дать необходимый совет, очень помогал мне на протяжении всего времени нашей совместной работы.

Я благодарю Александра Федоровича Андреева, давшего мне возможность учиться и сделать эту работу в Институте физических проблем.

Я благодарен Александру Ивановичу Смирнову, который не только прочитал нам несколько интересных курсов лекций, но и в целом курировал учебу на кафедре в эти годы.

Я признателен Владимиру Ивановичу Марченко, который помогал нам в анализе экспериментальных данных и проявлял интерес к ходу нашей экспериментальной работы.

Я благодарю также Константина Одисеевича Кешишева, Александра Яковлевича Паршина, Генриха Дмитриевича Богомолова, Виталия Вадимовича Завьялова, Игоря Акиндиновича Фомина прочитавших интересные курсы лекций в этом институте.

Наконец, я признателен Льву Александровичу Мельниковскому, привившему мне еще со школьной скамьи интерес к физике и здесь в ИФП также принимал участие в нашем обучении. Я благодарю и прочих сотрудников института, с которыми мне довелось общаться за время учебы, а также коллектив механической и стеклодувной мастерских, а также гелиевой станции.

Литература.

- [1] А.М. Тихонов, *ЯМР на ^{55}Mn в квазиодномерных антиферромагнетиках*, канд. диссерт. Москва, 1998.
- [2] Е.А. Туров, В.Г. Кулеев, *ЖЭТФ* 49, 248 (1965).
- [3] М.И. Куркин, Е.А. Туров, *ЯМР в магнитоупорядоченных веществах и его применения*, М.: Наука, 1990.
- [4] Е.А. Туров, М.П. Петров, *ЯМР в ферро- и антиферромагнетиках*. М.: Наука, 1969
- [5] А.Ф. Андреев, В.И. Марченко, *УФН* 130, 39 (1980).
- [6] А.С. Боровик-Романов, В.А. Тулин, *Письма в ЖЭТФ* 1/5, 18 (1965).
- [7] W.N. Hardy, L.N. Whitehead, *Rev. Scient. Instrum.* 52, 213 (1981).
- [8] А.С. Боровик-Романов, Б.С. Петров, А.М. Тихонов, Б.С. Думеш, *ЖЭТФ* 113, 352 (1998).
- [9] Prandl, *Phys. Stat. Sol.* B55, K159 (1973); *Kristall.* 144, 198 (1976).
- [10] Т.В. Валянская, В.П. Плахтий, В.И. Соколов, *ЖЭТФ* 70, 2279 (1976).
- [11] Л.А. Прозорова, В.И. Марченко, Ю.В. Красняк, *Письма в ЖЭТФ* 41, 522 (1985).
- [12] О.Г. Удалов, *ЖЭТФ*, в печати (2011).