

Московский физико-технический институт
Факультет общей и прикладной физики

Институт физических проблем АН СССР

Антиферромагнитный резонанс в аллюминиевом марганцево-германиевом гранате

Дипломная работа студента IV курса
Красняка Юрия Владимировича
Научный руководитель: д.ф.-м.н Л.А.Прозорова

Москва, 1983

*Копия сделана по экземпляру, хранящемуся в группе спиновой динамики ИФП РАН.
Дата создания копии: июнь 2016.*

МОСКОВСКИЙ ФИЗИКО-ТЕХНИЧЕСКИЙ ИНСТИТУТ
ФАКУЛЬТЕТ ОБЩЕЙ И ПРИКЛАДНОЙ ФИЗИКИ

ИНСТИТУТ ФИЗИЧЕСКИХ ПРОБЛЕМ АН СССР

"АНТИФЕРРОМАГНИТНЫЙ РЕЗОНАНС В АЛЮМИНИЕВОМ
МАРГАНЦЕВО-ГЕРМАНИЕВОМ ГРАНАТЕ"

Дипломная работа
студента УІ курса
Красняка Юрия Владимировича

Научный руководитель
Д.ф.-м.н. Л.А. Прозорова.

Москва 1983.

СОДЕРЖАНИЕ

- 1) Введение и постановка задачи
- 2) Экспериментальная установка
- 3) Образцы
- 4) Анализ эксперимента
- 5) Расчет спектра АФМР для "треугольной" структуры
- 6) Выводы
- 7½) Список литературы

I ВВЕДЕНИЕ И ПОСТАНОВКА ЗАДАЧИ

Явление антиферромагнитного резонанса /АФМР/ было подробно исследовано в большом количестве экспериментальных и теоретических работ. Теоретический подход к описанию АФМР основывается на рассмотрении антиферромагнетика как совокупности вставленных друг в друга ферромагнетиков - т.е. подрешеток с одинаково направленными спинами. Движение каждой из таких подрешеток описывается уравнениями Ландау и Лифшица в которых в эффективное магнитное поле входят параметры связи данной подрешетки с другими магнитными подрешетками.

Данный теоретический подход с успехом применялся для описания макроскопической динамики антиферромагнетиков, в том числе и для описания спектров АФМР в случае простых коллинеарных структур с небольшим количеством подрешеток.

В применении же к более сложным структурам он оказывается неэффективным, так как возникает система уравнений Ландау-Лифшица высокого порядка. По этой же причине затруднен анализ с помощью этого метода макроскопической динамики неколлинеарных антиферромагнетиков.

Кроме этого следует заметить, что описание антиферромагнетика с помощью антиферромагнитно вставленных друг в друга подрешеток является модельным и для

такого описания, вообще говоря, нет оснований.

В последнее время в работах Андреева А.Ф. и Марченко В.И. была разработана феноменологическая теория, основанная лишь на общих соображениях симметрии и не использующая никаких модельных представлений о состоянии магнетика, то есть столь же общая теория как, например, гидродинамика или теория упругости. Она позволяет дать описание структуры магнетика, достаточное для выяснения его макроскопической динамики при любом, даже бесконечно большом количестве подрешеток.

При таком описании каждая структура может быть охарактеризована не более чем тремя, причем взаимно перпендикулярными векторами, задание которых достаточно для написания макроскопических динамических уравнений.

Теория позволяет феноменологически описать спектр АФМР антиферромагнетика, исходя из его симметрии и наоборот, сделать вывод о симметрии магнитной структуры антиферромагнетика исходя из его спектра АФМР. Разумеется, что точная информация о группе магнитной симметрии получена быть не может, однако можно, например, судить о том, коллинерная или неколлинерная структура реализуется в данном антиферромагнетике. При этом порядок системы уравнений, описывающих динамику любого магнетика — не выше третьего.

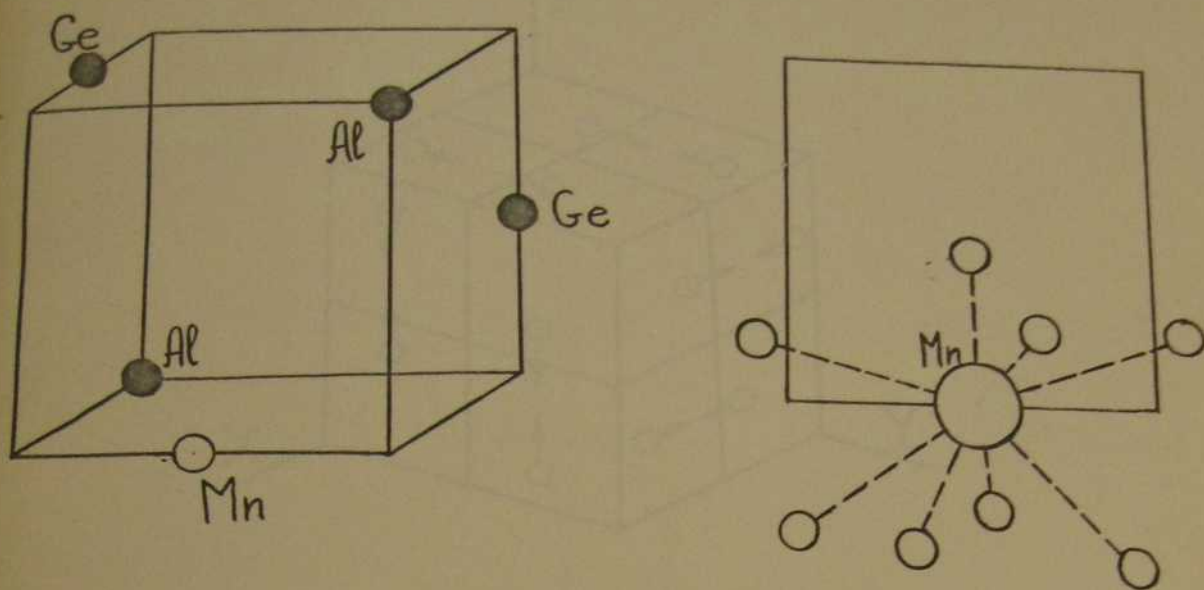


Рис 4 $I/64$ часть проментарной ячейки

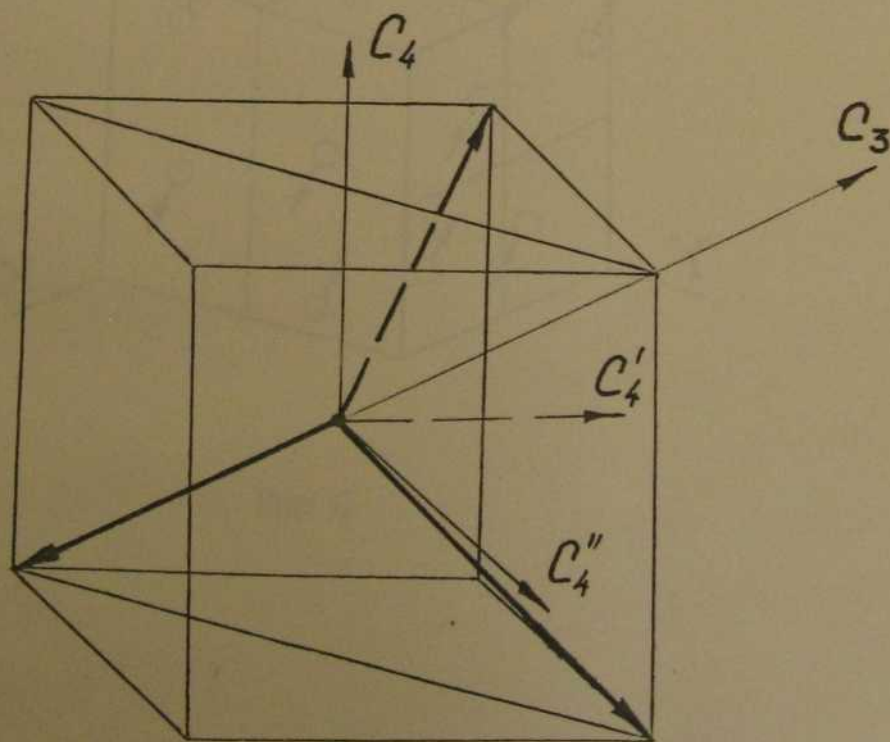


Рис 3 пространственная группа 0

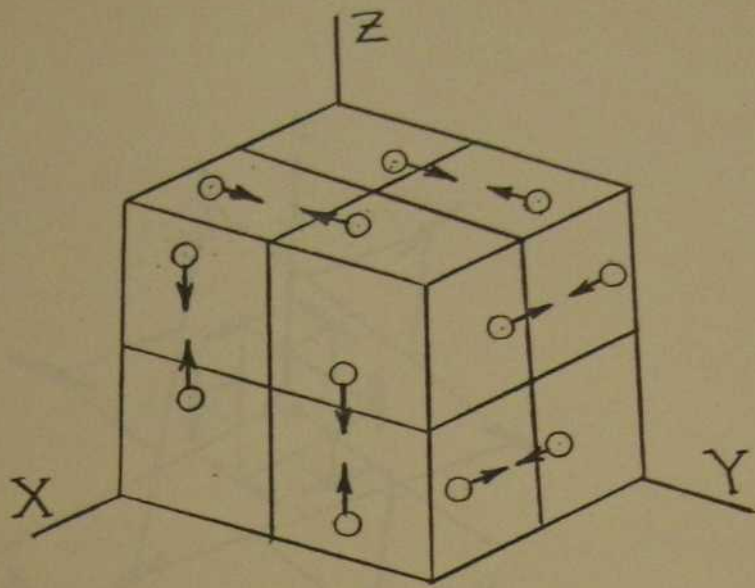


Рис 5

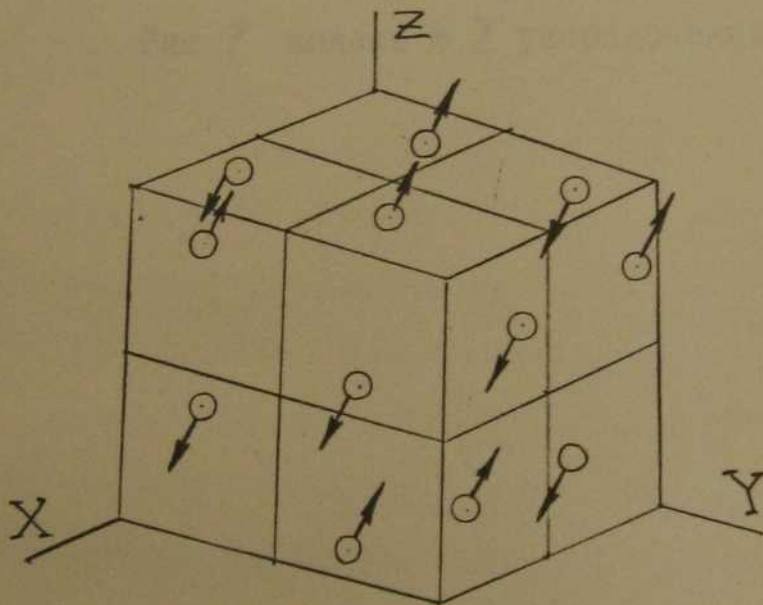


Рис 6

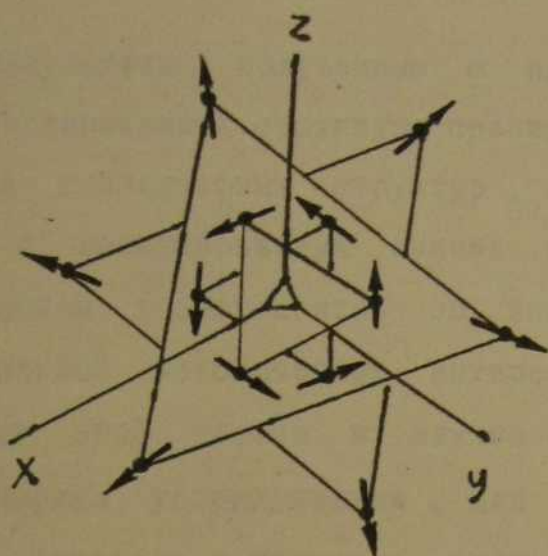


Рис 7 модель № 2 упорядочения в $Mn_3Al_2Ge_3O_{12}$

Результаты, полученные с помощью данной теории для коллинеарных структур совпадают с расчетами для простых коллинеарных структур, использующими представления о локализованных спинах и подтверждены большим количеством экспериментов по измерению спектров АФМР.

Большой методический интерес представляла для нас проверка этой теории в случае антиферромагнетика с неколлинеарным упорядочением, для которого, в частности, теория Андреева и Марченко предсказывала наличие трех ветвей в спектре АФМР.

Кристаллическая структура алюминиевого германиево-марганцевого граната $Mn_3Al_2GeO_{12}$ описывается пространственной группой симметрии O_h^{10} / рис 3 /.

Двухвалентные ионы марганца в S -состоянии занимают додекаэдрические междоузлия кислородной решетки.

Элементарная ячейка содержит восемь формульных единиц.

$1/64$ Часть объема элементарной ячейки изображена на рис. 4. Постоянная решетки равна $a = 11,897 \text{ \AA}$.

Наличие фазового перехода второго рода, в было установлено по аномалии теплоемкости / λ -точка/ при 6,65 градусах. Исследования магнитной восприимчивости в зависимости от температуры позволили сделать вывод об антиферромагнитном упорядочении, наступающем при 6,65 К.

Анализ обменных связей позволил авторам [2] предположить, что для S -ионов марганца в додекаэдрических междоузлиях структуры граната может реализовываться

неколлинеарное упорядочение, при котором спины ионов марганца, связанные осью третьего порядка имеют направления вида $[u u \bar{v}]$, $[u \bar{v} u]$, $[\bar{v} u u]$.

Нейтроннографические исследования указывают на возникновение дополнительных рефлексов при переходе от комнатных температур к гелиевым. Для описания данной системы магнитных рефлексов были предложены три магнитные структуры /рис 5-7/ две из предложенных структур - неколлинеарные:

- 1) спины направлены вдоль направлений типа $[100]$, $[010]$, $[001]$
- 2) все спины лежат в плоскости (111) и имеют направления типа $[11\bar{2}]$, $[1\bar{2}1]$, $[\bar{2}11]$
- 3) спины направлены вдоль $[110]$

Следует отметить, что авторы /2, 3 / отдают предпочтение второй модели, "треугольное" упорядочение.

Задачи, которые поставили мы перед собой, исследуя АФМР в $Mn_3Al_2Ge_3O_{12}$, можно сформулировать следующим образом:

- 1) Обнаружение линии АФМР в $Mn_3Al_2Ge_3O_{12}$
- 2) Исследование зависимости $\nu(H)$
- 3) Исследование угловых зависимостей $H_p(\nu)$ резонансного поля от углов между полем и кристаллографическими направлениями
- 4) На основании полученной информации попытаться сделать вывод о магнитном упорядочении в $Mn_3Al_2Ge_3O_{12}$
- 5) Провести теоретический анализ полученных результатов

МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

АФМР в $Mn_3Al_2Ge_3O_{12}$ изучался на магнитном спектрометре прямого усиления, блок-схема которого приведена на рис. 1. Основными элементами спектрометра являются: генератор СВЧ - мощности, волноводный тракт, сверхпроводящий соленоид, криостат и двухкоординатный самописец ПДС-021.

Основные измерения проводились в диапазоне частот 20 - 80 ГГц. В качестве генератора использовался комплект генераторных ячеек ГЗ - 37, ГЗ - 38 с источником тока ГЗ - 37, 38, а также блоки Г114, Г115

Измерение частоты при работе с блоками Г114, 115 производилось встроенными волномерами, при работе с генераторными ячейками ГЗ - 37, 38 - винтовыми цилиндрическими волномерами типов 42-2, 42-25.

В качестве поглощающей ячейки спектрометра использовался закороченный конец волновода. Выбор ячейки обусловлен достаточной чувствительностью схемы, позволяющей обойтись без резонатора. Кроме того, измерения в волноводе удобны, так как имеется возможность изменять в широких пределах частоту во время эксперимента.

Для создания магнитного поля использовался сверхпроводящий соленоид, изготовленный из сверхпроводящего сплава 65 БТ. Размеры соленоида: внутренний диаметр : 21 мм, Внешний диаметр 67 мм..

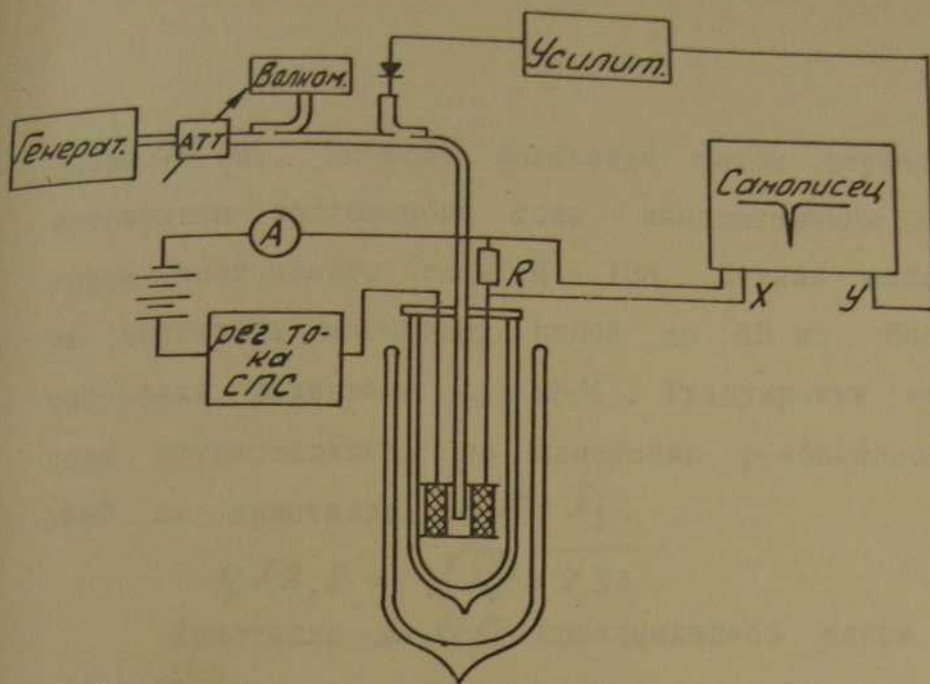


Рис. 1 Блок-схема спектрометра.

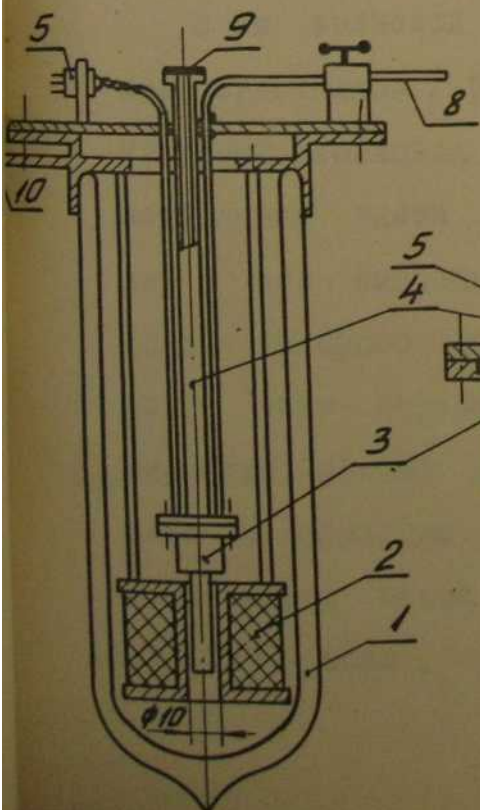


Рис. 2. Криостат.

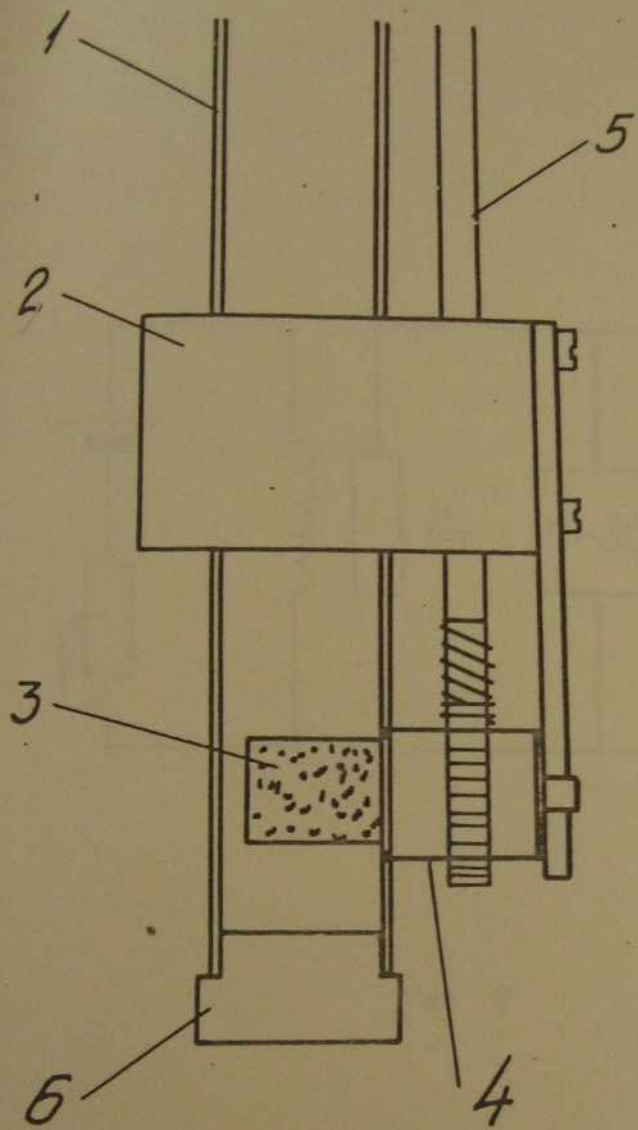
- 1-дюар гелиевый
- 2-с. п. соленоид
- 3-вакуум. рубашка
- 4-волновод мелхюр.
- 5-вывод термометра и нагревателя.
- 6-термометр
- 7-нагреватель
- 8,10-трубы откачки
- 9-слюдяное окно
- 11-поглощающая ячейка (закороченный волновод)

длина 110 мм.. Питание соленоида током осуществлялось источником постоянного тока - измерительным стабилизатором постоянного тока П - 138. Данная схема позволяла достигать магнитных полей до 45 кЭ. Постоянная соленоида равнялась 1,5 кЭ/А. Градуировка магнитного поля осуществлялась по измерению резонансного поля АФМР на кристалле $CsMnF_3$:

$$\nu_p / 2,8 = \sqrt{H_p^2 + 2,32}$$

Кристаллы $InAlGe$ приклеивались клеем БФ2 на заглушку или стенку волновода, в пучность переменного магнитного поля, в зависимости от диапазона частот в котором производились измерения, применялся прибор с соответствующим сечением волновода: на низких частотах - 1,5 см волновод, наиболее высоких частотах - 8 мм и 6 мм волноводы.

8 мм волновод был снабжен устройством для вращения кристаллов / рис 6 / Образец 3, помещенный в прямоугольный волновод I, приклеивался к торцу вала 4. Вал 4 вставлялся одним своим концом в отверстие в волноводе и мог свободно вращаться при помощи штока 5, верхний конец которого выходил из криостата. Вращение от штока к валу передавалось посредством червячной передачи. Один полный поворот штока соответствовал повороту вала с образцом на угол 12 градусов. Заглушка 6 подбиралась такой, чтобы образец находился в пучности СВЧ - поля.



8 Механизм вращения образца в волноводе.

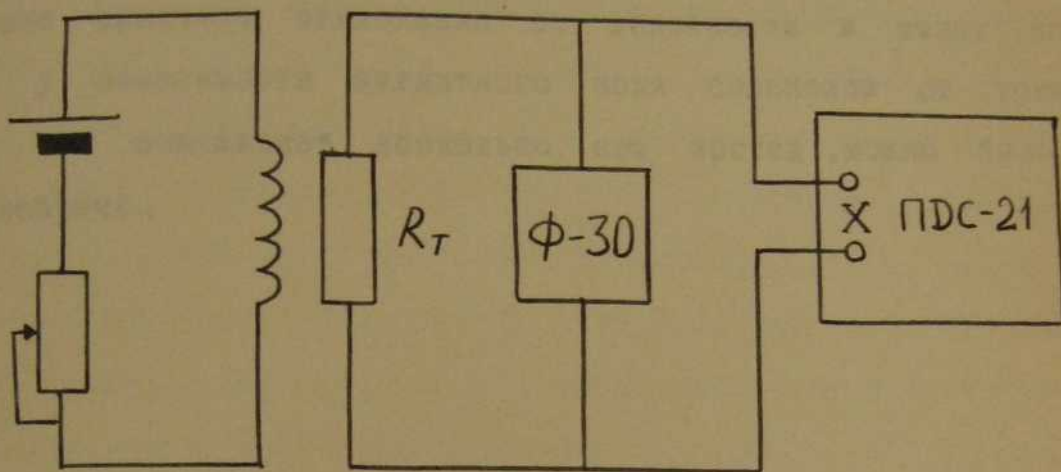


Рис 9

Измерение резонансного поля производилось на самопишущем вольтметре ПДС - 21. Из-за чрезвычайно большой ширины резонанса в Mn, Al_2, Ge, O_2 ошибками в измерении поля, связанными с неточностью самописца $1 \sim 200 \text{ Э/}$, а также наличием отклонения от линейности в малых полях у зависимости магнитного поля соленоида от тока, а оно составляет несколько сот эрстед, можно было пренебречь.

ОБРАЗЦЫ .

Опытные образцы были получены нами в Проблемной Лаборатории Магнетизма МГУ .

Они представляли собой два непрозрачных кристалла красновато - коричневого оттенка . Размеры более крупного кристалла были $5 \times 3 \times 2$ мм , менее крупного $2,5 \times 2 \times 1$ мм

Кристаллы были сориентированы в Проблемной Лаборатории Магнетизма на рентгеновской установке .

Перпендикулярно выставленным направлениям были отшлифованы грани . На большем из кристаллов были найдены направления $[100]$ и $[111]$, на меньшем $[110]$ и $[111]$.

Точность ориентации кристаллов проверялась рентгенографически и была не хуже 5 градусов для всех направлений . Блочности на рентгене обнаружено не было .

ОБСУЖДЕНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТА

Основной экспериментальной трудностью, встретившейся при изучении спектра АФМР в $Mn_3Al_2Ge_3O_{12}$, явилась большая ширина резонансной кривой и большая интенсивность поглощения при резонансе, что было обусловлено большим размером образцов.

В этих условиях мы стремились получать на самописце линии поглощения, имеющие симметричную, правильную форму. Это достигалось путем варьирования аттенюатором амплитуды СВЧ-колебаний в поглощающей ячейке, изменением его частоты, а также коэффициентов усиления усилителя и самописца.

Ошибка в измерении поля при правильной форме резонансной кривой оценивалась нами в 20% от ее ширины и составляла около 1 кЭ при температуре 4,2 К и около 0,5 кЭ при температуре 1,2 К, что соответствовало самой низкой доступной нам температуре. Разброс же точек, полученных для несимметричных линий поглощения / например, по минимуму сигнала на самописце был так велик / около 10 кЭ /, что затруднительно было определить общий ход зависимости резонансной частоты от поля.

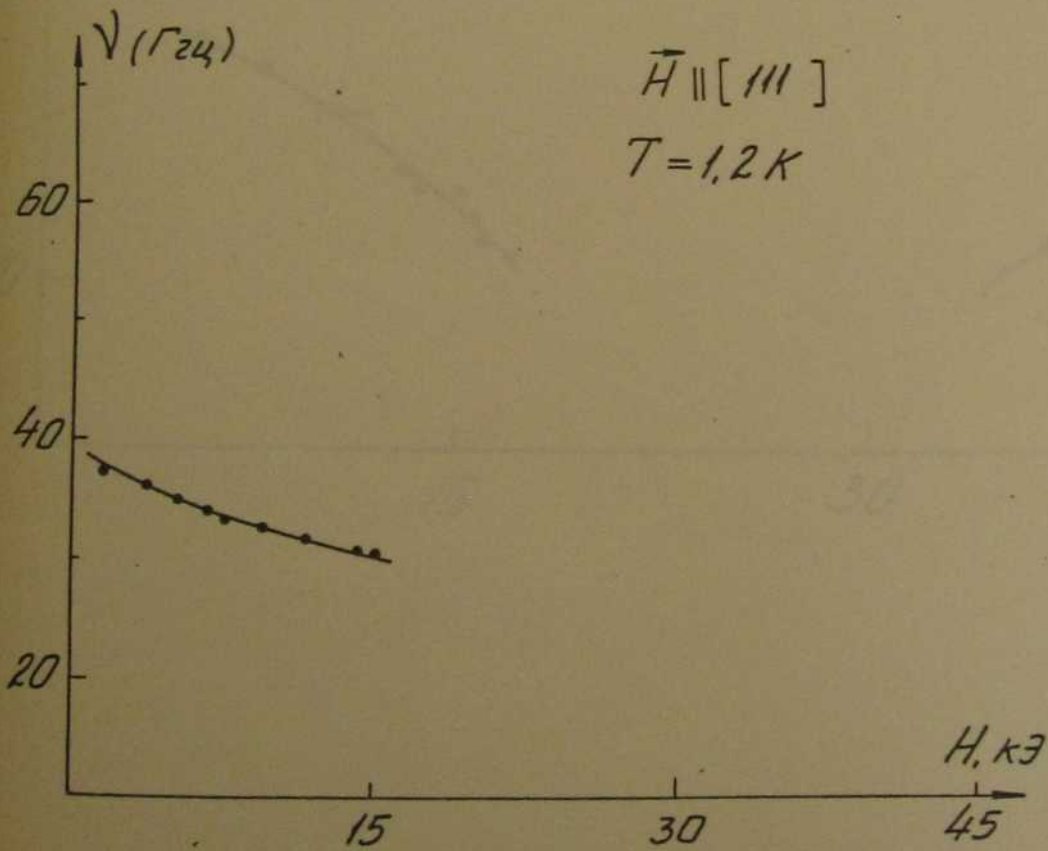
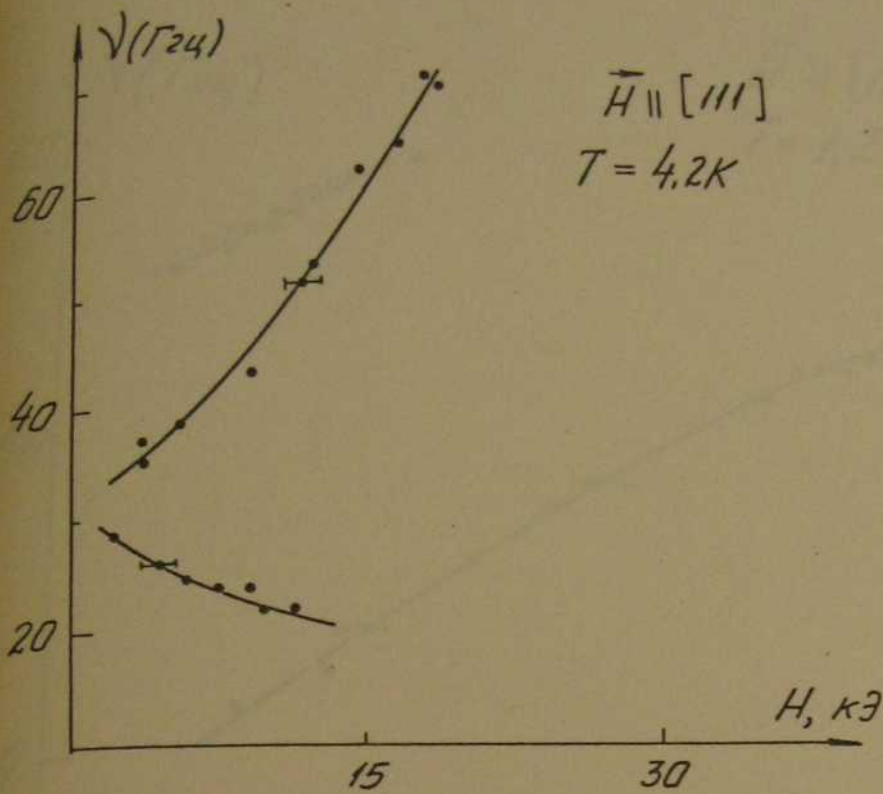
Спектр АФМР для случая когда магнитное поле прилагалось параллельно оси третьего порядка, изображен на рис. 9. Следует отметить, что в диапазоне частот 60-65 Гц линия АФМР уширялась и искажалась.

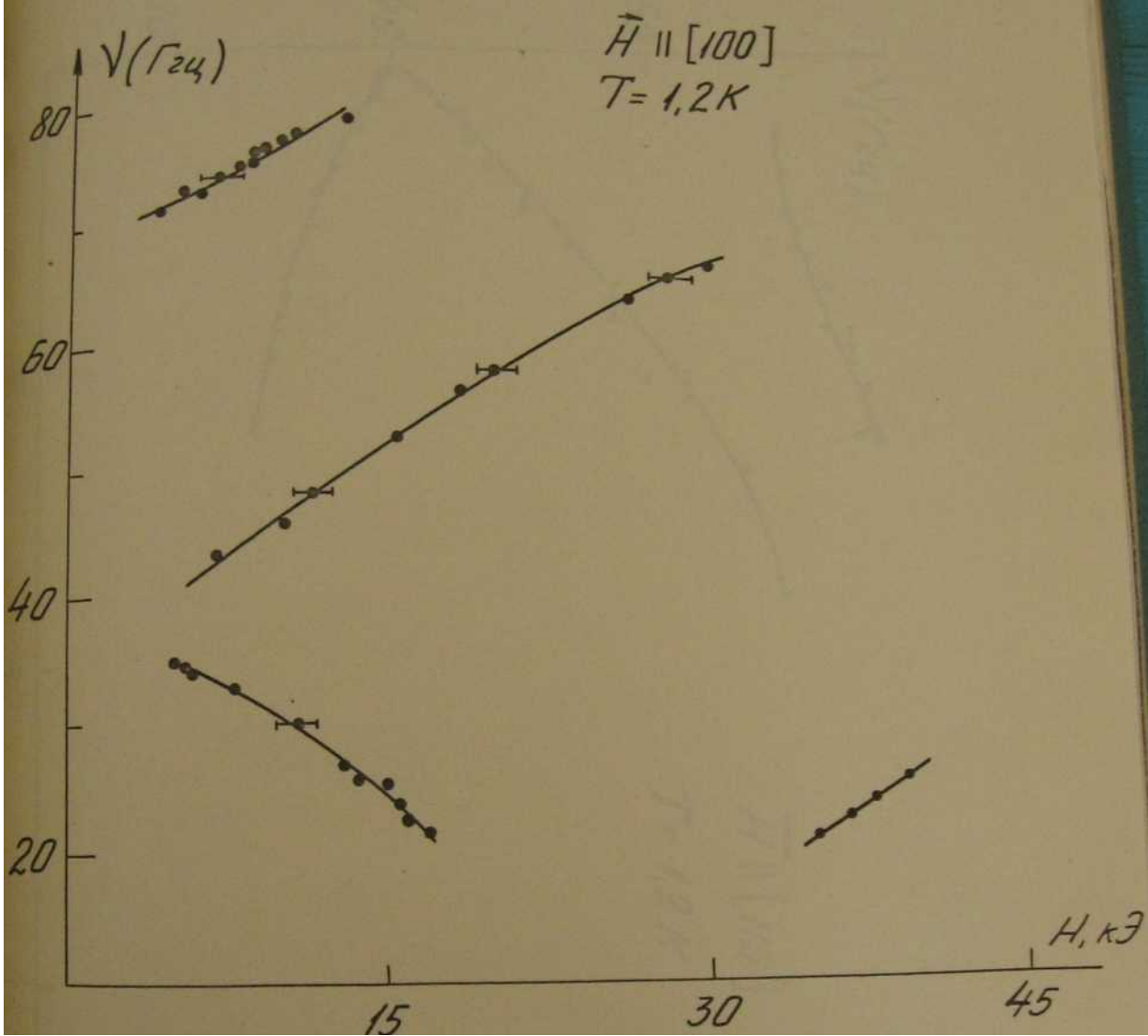
Это могло быть вызвано наличием в спектре АФМР ветви, для которой частота резонанса слабо или вообще не зависит от магнитного поля, и которая по той причине не могла быть разрешена нашим спектрометром. Для проверки этого предположения был произведен следующий эксперимент: в нулевом магнитном поле при фиксированной частоте клицрона и по возможности стабильном режиме генерации с помощью прибора, изображенного на рис. 2 производилось изменение температуры кристалла от 4,2 К до ~ 10 К. На координату самописца подавался сигнал с автоматического вольтамперометра Ф-30 рис. Полученные линии "температурного резонанса" имели минимум когда частота генерации не превышала 60 ГГц.

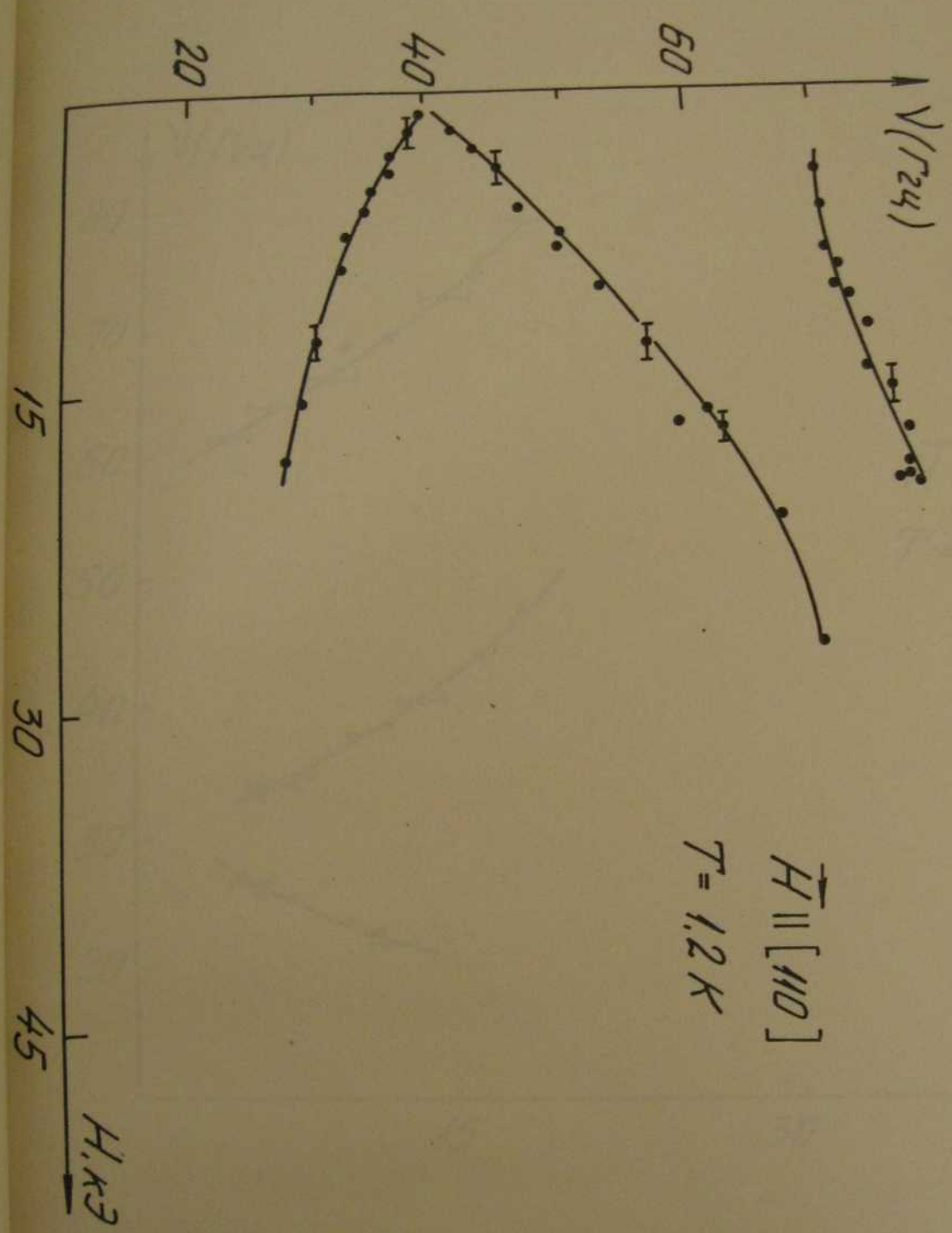
Если предположить, что температурная зависимость величины предполагавшейся верхней щели описывается как обычно, функцией Бриллюэна $V\left(\frac{\xi}{2}\right)$, то можно было экстраполировать величину щели от данной температуры, соответствующей минимуму сигнала СВЧ к 4,2 К, учитывая, что при 6,65 К щель обращается в ноль.

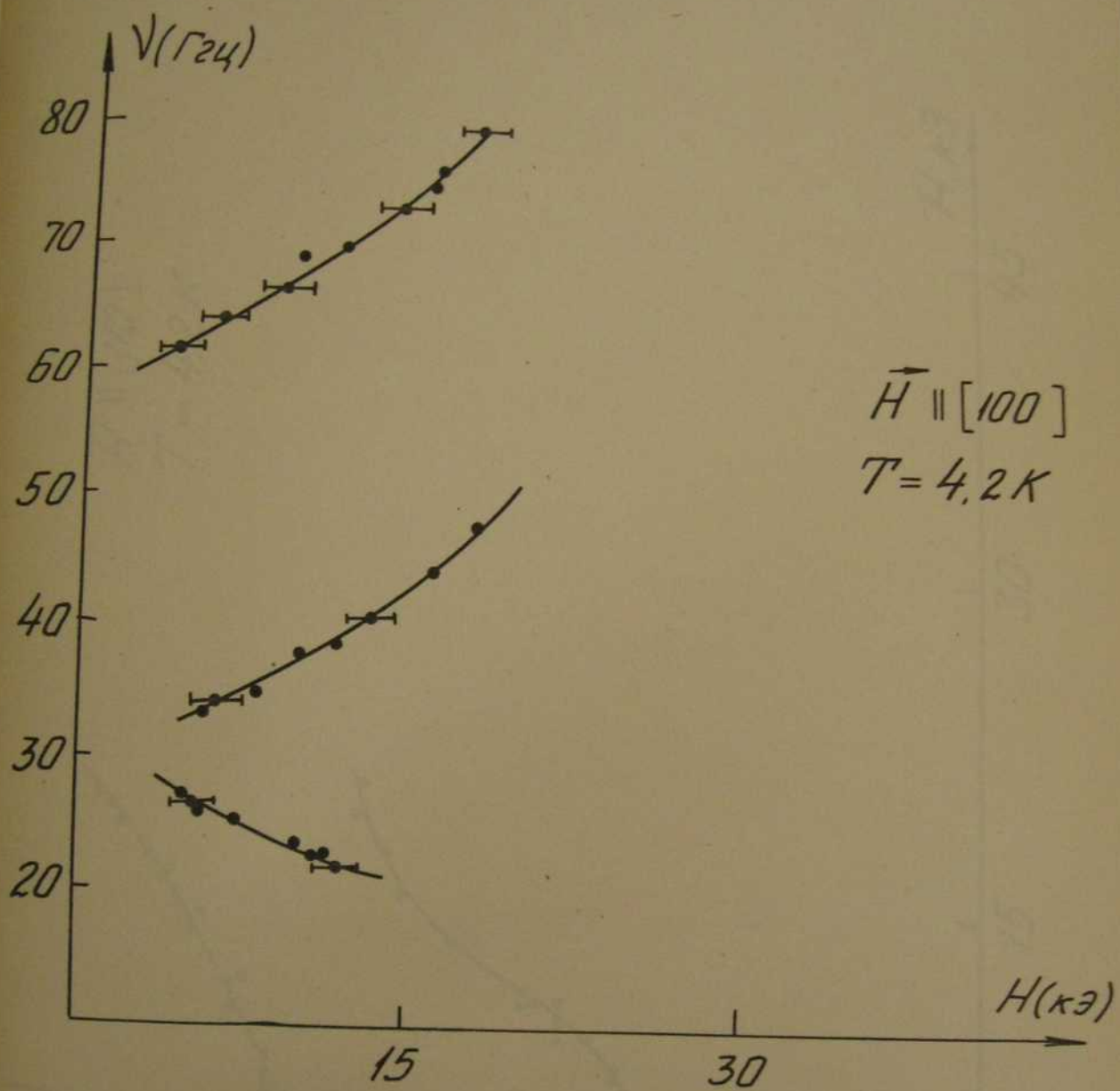
Такие оценки дали значения верхней щели около 60 ГГц. На этих частотах мы пытались обнаружить третью ветвь в спектре АФМР при других ориентациях кристалла в магнитном поле.

Спектры АФМР при температурах 4,2 К и 1,2 К для случая, когда магнитное поле параллельно оси [100] изображены на рис. 10, 11, когда поле было приложено

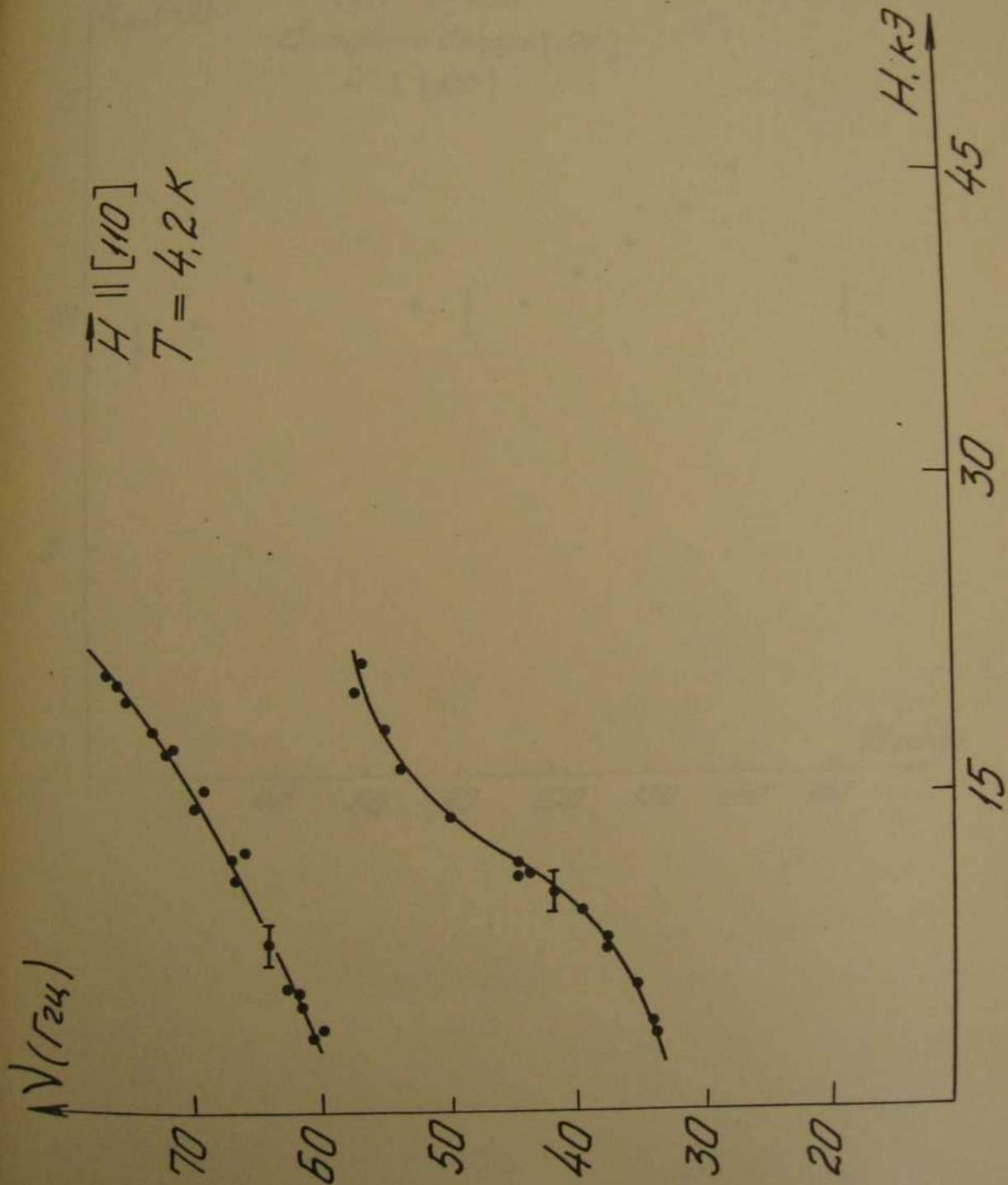


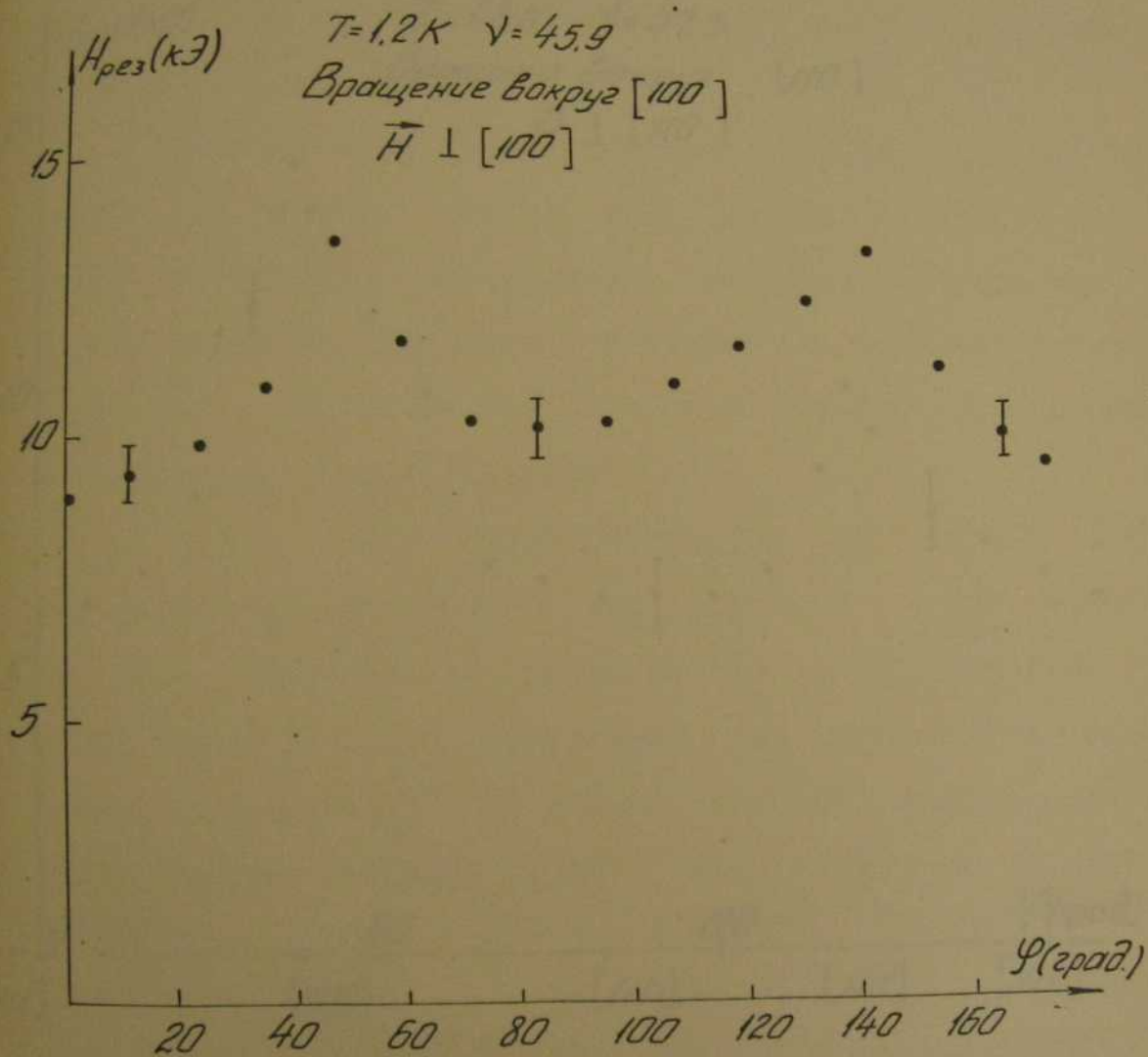


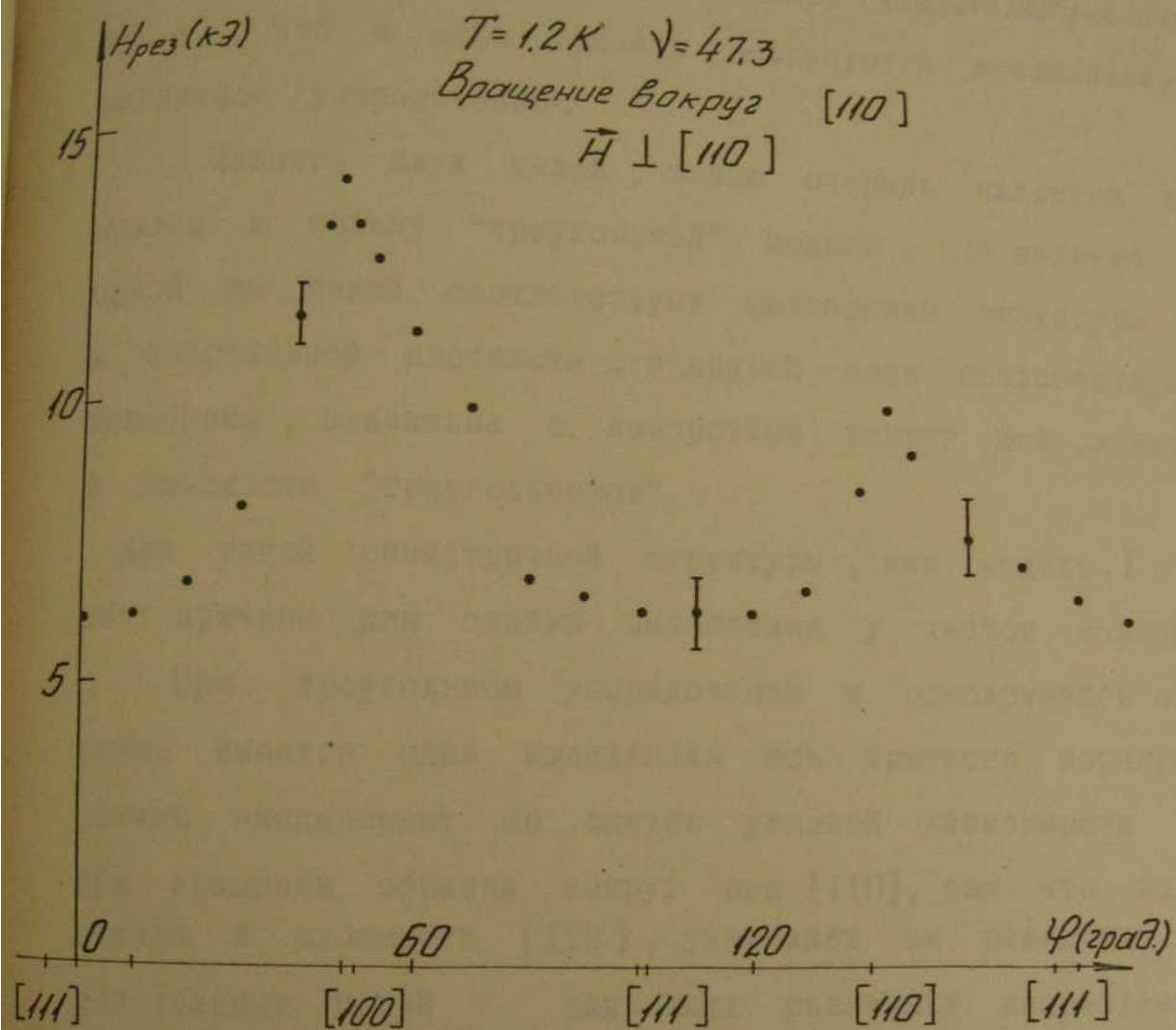




$H \parallel [110]$
 $T = 4,2 K$







вдоль оси $[110]$ на рис. 12, 13.

Наличие трех ветвей в спектре АФМР $MnAlGe$ указывает на то, что в этом гранате реализуется неколлинеарное магнитное упорядочение.

Наличие двух щелей, в свою очередь является аргументом в пользу "треугольной" модели, где наличие одной из щелей соответствует колебаниям структуры в собственной плоскости, а другой щели соответствуют колебания, связанные с поворотами вокруг оси, лежащей в плоскости "треугольников".

Для такой симметричной структуры, как модель I нет причины для снятия вырождения у частот колебаний.

При треугольном упорядочении в однодоменном образце имеется одна выделенная ось третьего порядка, однако эксперимент по снятию угловой зависимости при вращении образца вокруг оси $[110]$, так что поле лежало в плоскости (110) , указывает на равенство резонансных полей для двух различных направлений типа $[111]$, лежащих в плоскости (110) .

Вращение вокруг оси $[100]$, $\vec{H} \perp (100)$, дает 90-градусную анизотропию резонансного поля. Следует отметить, что следов наличия векторного резонанса, что указывало бы на наличие структурных доменов, не было. Приведенные факты можно интерпретировать либо как аргумент против такой модели упорядочения с выделенной осью третьего порядка, либо как свидетельство того, что в $Mn_3Al_2Ge_3O_{12}$ уже в малых

магнитных полях порядка килоэрстеда происходит согласованное по всему образцу упорядочение, при котором угол между магнитным полем и осью третьего порядка вокруг которой выстроена треугольная структура, становится минимальным.

РАСЧЕТ СПЕКТРА АФМР ДЛЯ НЕКОЛЛИНЕАРНОГО
АНТИФЕРРОМАГНЕТИКА

Для расчета спектра АФМР в $Mn_3Al_2Ge_3O_{12}$ для структуры треугольного вида / модель 2 /, в соответствии с работой [1] может быть использован лагранжев формализм. Кинетическая энергия есть квадратичная форма по временным производным углов поворота $\vec{\theta}$ системы спинов:

$$T = \int dV \frac{1}{2\gamma^2} \chi_{\alpha\beta} \frac{\partial \theta_\alpha}{\partial t} \frac{\partial \theta_\beta}{\partial t}$$

Как будет показано ниже, $\chi_{\alpha\beta}$ есть компоненты тензора магнитной восприимчивости, который для треугольной структуры типа 2 содержит две независимые компоненты: восприимчивость $\chi_{||}$ в плоскости "треугольника" и восприимчивость χ_{\perp} в перпендикулярном направлении:

$$\chi_{\alpha\beta} = \chi_{\perp} (\delta_{\alpha\beta} + (\chi_{||} - \chi_{\perp}) n_\alpha n_\beta)$$

где \vec{n} - вектор единичной нормали к "треугольнику",

γ - гиромагнитное отношение для ионов марганца в

$Mn_3Al_2Ge_3O_{12}$ и равна 28 гГц/кЭ.

Потенциальная энергия содержит квадратичную форму от пространственных градиентов углов поворота в спиновом пространстве / обменный член /, который очевидно, при АФМР равен нулю из-за синфазности колебаний спинов, а также энергию анизотропии.

В соответствии с работой [1], описание "треугольной" спиновой системы ^{осуществляется} с помощью двух единичных магнитных векторов \vec{e}_1 и \vec{e}_2 ; $\vec{n} = [\vec{e}_1, \vec{e}_2]$

Количество векторов, необходимых для описания магнитной структуры при таком подходе определяется "размерностью" данной системы: для коллинеарного антиферро-

магнетика описание осуществляет один вектор, эквивалентный при обычном рассмотрении антиферромагнитному вектору для двухподрешеточного антиферромагнетика.

Плоская неколлинеарная структура, например, треугольная, описывается двумя векторами, а неколлинеарная система самого общего вида, например, соответствующая модели I упорядочения в $Mn_2Al_2Ge_3O_{12}$ описывается тремя магнитными векторами.

Энергия анизотропии является линейной комбинацией независимых релятивистских инвариантов; они составляются из компонент векторов, описывающих антиферромагнетик.

Вариация действия, рассматриваемого как функция координат, определяется формулами:

$$\delta W = \int dV \frac{1}{2\gamma} \chi_{\alpha\beta} \frac{\partial \theta_\alpha}{\partial t} \delta \theta_\beta$$

Но есть механический момент системы, поэтому, умножая на гиромагнитное отношение, находим магнитный момент единицы объема:

$$M_\beta = \frac{1}{\gamma} \chi_{\alpha\beta} \frac{\partial \theta_\alpha}{\partial t}$$

В магнитном поле момент будет равен:

$$M_\beta = \frac{1}{\gamma} \chi_{\alpha\beta} \frac{\partial \theta_\alpha}{\partial t} + \eta_{\alpha\beta} H_\alpha$$

Здесь $\eta_{\alpha\beta}$ - тензор магнитной восприимчивости. Соответствующее слагаемое в функции Лагранжа легко выделить пользуясь тем, что $\frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \vec{H}} = \vec{M}$ В вариацию действия,

как нетрудно видеть, этот член дает вклад $\int dV \frac{1}{\gamma} \chi_{\alpha\beta} H_\alpha \delta\theta_\beta$
откуда магнитный момент в поле будет равен

$M_\beta = \frac{1}{\gamma} \chi_{\alpha\beta} \frac{\partial \theta_\alpha}{\partial t} + \chi_{\alpha\beta} H_\alpha$, т. е. $\chi_{\alpha\beta} = \eta_{\alpha\beta}$
что и означает, что $\chi_{\alpha\beta}$ есть тензор магнитной восприимчивости, а γ - гиромагнитное отношение.

Положим $\vec{\psi} = \vec{m} \varphi$, где \vec{m} - единичный вектор вдоль оси вращения и $\varphi = \text{tg}(\theta/2)$, θ - угол поворота вокруг \vec{m}

В равновесии состоянии $M_{n_3}, M_{2,3}, M_{3,2}$ отличные от нуля компоненты магнитных векторов равны $e_{1x}^0 = -e_{2y}^0 = 1$. Потенциальная энергия запишется в координатах с учетом членов до второго порядка малости, которые следует учитывать в уравнениях Лагранжа:

$$U = -8B\varphi_z^2 + 2C(2\varphi_z^2 + \varphi_y^2 + \varphi_x^2);$$

$$L = \frac{\chi_\perp}{2\gamma^2} (\dot{\vec{\theta}} + \gamma \vec{H})^2 + \frac{\chi_{\parallel} - \chi_\perp}{2\gamma^2} (\dot{\vec{\theta}} + \gamma \vec{H}, \vec{n})^2 + 8B\varphi_z^2 -$$

$$- 2C(2\varphi_z^2 + \varphi_y^2 + \varphi_x^2);$$

$$\text{где } \dot{\vec{\theta}} = \left(2 \frac{\partial \vec{\psi}}{\partial t} + 2 \left[\vec{\psi}, \frac{\partial \vec{\psi}}{\partial t} \right] \right) / (1 + \varphi^2)$$

Решение уравнений Лагранжа для произвольной ориентации поля может быть получено только численным методом, в явном же виде зависимость $\nu(H)$ может быть получена для

двух случаев: когда и

1) $\vec{H} \parallel \vec{n}$ - то есть $\vec{H} \parallel [111]$

$$\nu_1 = 2\gamma \sqrt{\frac{B-C}{\chi_{\parallel}}} = \omega_1; \nu_{2,3} = \sqrt{\frac{2\gamma^2 C + \frac{(1+\eta)^2}{4} (\gamma H)^2 \pm$$

$$\pm \frac{1-\eta}{2} \gamma H, \eta = \frac{\chi_{\parallel} - \chi_\perp}{\chi_{\parallel}}, \nu_{2,3}(0) = \omega_2$$

2) $\vec{H} \perp \vec{n}$ - то есть лежит в плоскости (111)

$$\nu_{1,2}^2 = \frac{1}{2} (\omega_1^2 + \omega_2^2 + (\gamma H)^2) \pm \sqrt{(\omega_1^2 + \omega_2^2 + \gamma^2 H^2)^2 - 4\omega_1^2 (\omega_2^2 - \eta \gamma^2 H^2)}, \nu_3 = \omega_2$$

Из анализа соотношения для спектра АФМР для случая $\vec{H} \parallel (111)$ следует, что $\nu_1 - \nu_2 = (1 - \eta) \gamma H$.

Зависимость $(\nu_1 - \nu_2)(H)$ дает значение константы $\eta = 0,15 \pm 0,01$

Соотношение для спектра АФМР с таким значением параметра описывает экспериментальную кривую с удовлетворительной точностью.

Зависимость $(\nu_1 - \nu_2)(H)$ приведена на рис. 16.

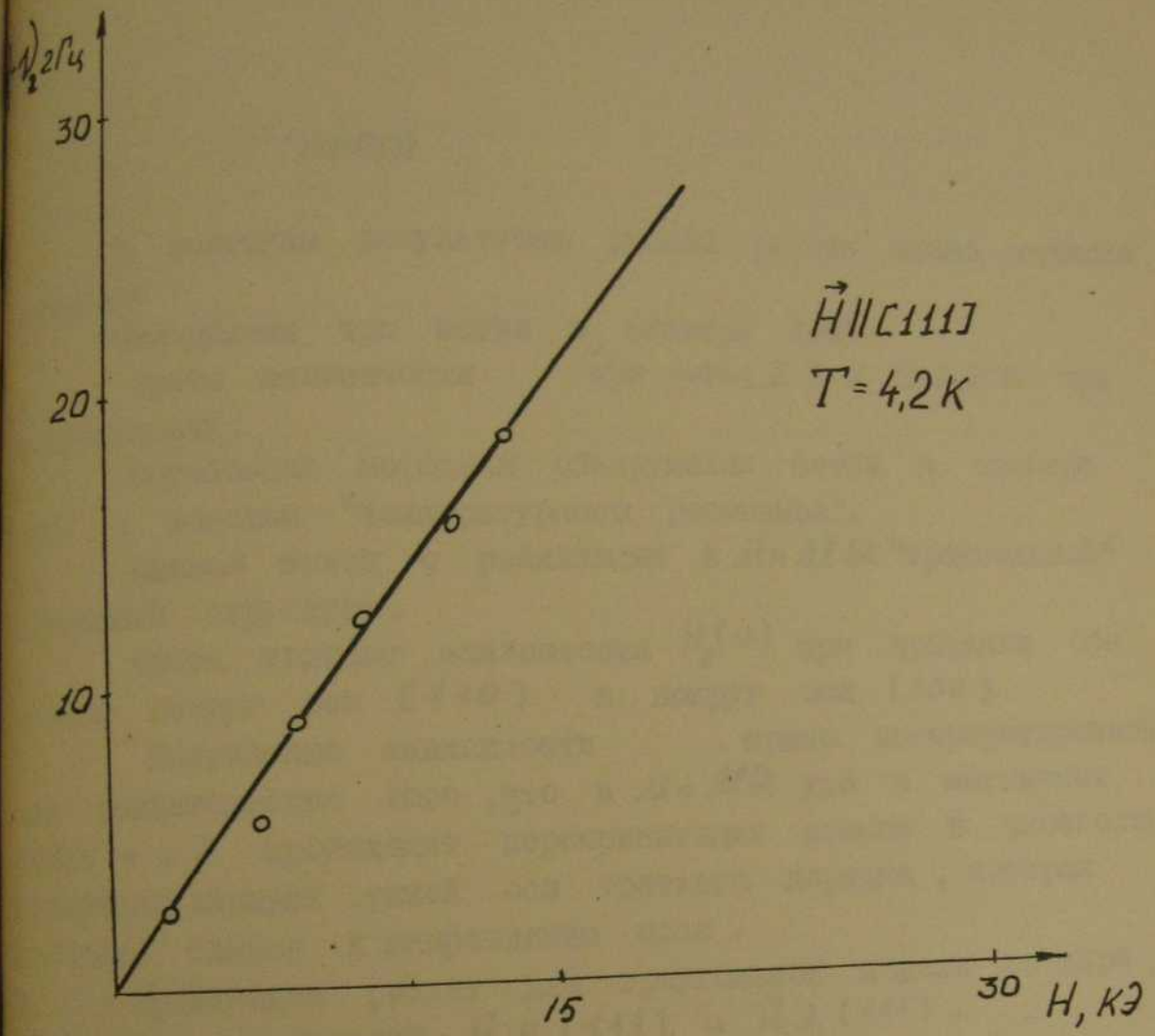


Рис 16 зависимость $(\nu_1 - \nu_2)(H)$, $\vec{H} \parallel [111]$

ВЫВОДЫ

К основным результатам данной работы можно отнести следующее :

1. Обнаружены три ветви в спектре АФМР
2. Сняты зависимости при $T=4,2$ К и $T=1,2$ К при направлениях.
3. Спробована методика обнаружения ветви в спектре АФМР с помощью "температурного резонанса".
4. Сделан вывод о реализации в $MnAlGe$ "треугольной" магнитной структуры.
5. Сняты угловые зависимости $H_p(\nu)$ при вращении образцов вокруг оси $[110]$ и вокруг оси $[100]$.
6. Полученные зависимости можно интерпретировать как свидетельство того, что в $MnAlGe$ уже в магнитных полях $\sim kЭ$ происходят переориентации спинов в плоскость, перпендикулярную такой оси третьего порядка, которая наиболее близка к направлению поля.
7. Произведен расчет для треугольной модели спектра АФМР для направлений $\vec{H} \parallel [111]$ и $\vec{H} \perp [111]$.

В заключение считаю своим долгом выразить глубокую благодарность академику П. Л. Капице за полученную мной возможность работать в Институте Физических Проблем, моему научному руководителю Л. А. Прозоровой за чуткое и терпеливое каждодневное руководство, а также всем принимавшим участие в обсуждении и выполнении данной работы

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. А.Ф. Андреев, В И Марченко УФН, т.130, вып I, 1980г.
2. Т В Валянская, В П Плахтий, В И Соколов, ЖЭТФ 70, 2279 /1976/.
3. И.В. Голосовский, В П Плахтий, ФТТ 19 №4.
4. R. Plumier, Sol. State Comm., 9, 1723 (1972).
5. W. Prandl, Sol. State Comm., 10, 529 (1972).