

О СПЕКТРЕ ЯМР В АНТИФЕРРОМАГНИТНОМ CsMnI_3

В.И.Марченко, А.М.Тихонов

Институт физических проблем им.П.Л.Капицы РАН

117334 Москва, Россия

Поступила в редакцию 1 декабря 1998г.

Предложено объяснение эффекта анизотропии редукции спина, обнаруженного при исследовании ЯМР в неколлинеарном шестиподрешеточном антиферромагнетике CsMnI_3 .

PACS: 75.55.Ee, 76.60.-k

В магнетиках, которые сформированы под действием обменных взаимодействий, релятивистские эффекты приводят к определенной ориентации спиновой структуры по отношению к кристаллическим осям, к слабым искажениям взаимной ориентации подрешеток – слабый ферромагнетизм [1–3] или слабый (дополнительный) антиферромагнетизм [2] (см. случай Cr_2O_3). В работе [4] обнаружен новый тип релятивистских искажений в неколлинеарном антиферромагнетике CsMnI_3 , названный авторами анизотропией редукции спина. В настоящей работе в рамках теории обменной симметрии [5] дано описание этого явления.

Взаимная ориентация подрешеток в CsMnI_3 представлена на рис.1. Следуя Дзялошинскому [2], введем вместо шести подрешеток их линейные комбинации:

$$\mathbf{M} = \mathbf{M}_1 + \mathbf{M}_2 + \mathbf{M}_3 + \mathbf{M}_4 + \mathbf{M}_5 + \mathbf{M}_6,$$

$$\mathbf{L} = \mathbf{M}_1 + \mathbf{M}_2 + \mathbf{M}_3 - \mathbf{M}_4 - \mathbf{M}_5 - \mathbf{M}_6,$$

$$\mathbf{L}_1 = \mathbf{M}_1 - \frac{1}{2}(\mathbf{M}_2 + \mathbf{M}_3) - \mathbf{M}_4 + \frac{1}{2}(\mathbf{M}_5 + \mathbf{M}_6),$$

$$\mathbf{L}_2 = \frac{\sqrt{3}}{2}(\mathbf{M}_2 - \mathbf{M}_3) - \frac{\sqrt{3}}{2}(\mathbf{M}_5 - \mathbf{M}_6), \quad (1)$$

$$\mathbf{L}_3 = \mathbf{M}_1 - \frac{1}{2}(\mathbf{M}_2 + \mathbf{M}_3) + \mathbf{M}_4 - \frac{1}{2}(\mathbf{M}_5 + \mathbf{M}_6),$$

$$\mathbf{L}_4 = \frac{\sqrt{3}}{2}(\mathbf{M}_2 - \mathbf{M}_3) + \frac{\sqrt{3}}{2}(\mathbf{M}_5 - \mathbf{M}_6),$$

преобразующиеся по одномерным – \mathbf{M} , \mathbf{L} , и двумерным – $(\mathbf{L}_1, \mathbf{L}_2)$, $(\mathbf{L}_3, \mathbf{L}_4)$ представлениям группы перестановок подрешеток, осуществляемых кристаллическими преобразованиями группы симметрии кристалла D_{6h}^4 . В обменном приближении в CsMnI_3 отличны от нуля антиферромагнитные векторы $(\mathbf{L}_1, \mathbf{L}_2)$, причем они равны по модулю и взаимноперпендикулярны в согласии с общими требованиями обменной симметрии [5]. Анализ квадратичных релятивистских инвариантов показывает, что ни один из оставшихся спиновых векторов не возникает в структуре как эффект

слабого ферромагнетизма – M или слабого антиферромагнетизма – L , (L_3, L_4). Оказывается, что обнаруженные в работе [4] искажения спиновой структуры сводятся к нарушению обменного условия – равенства модулей векторов (L_1, L_2). Этот эффект возникает по следующим причинам.

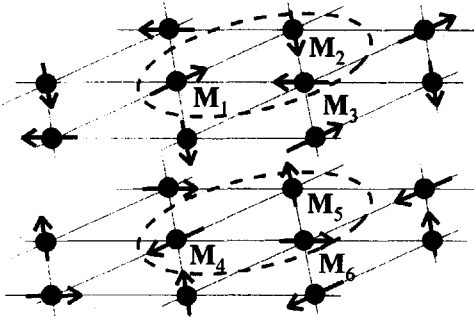


Рис.1.

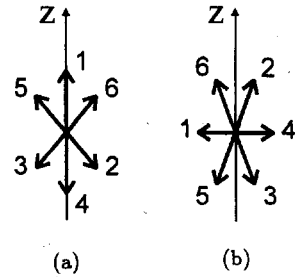


Рис.2. Искажения обменной структуры анизотропией в $CsMnI_3$

Обменная энергия структуры при произвольных величинах и взаимной ориентации спиновых векторов L_1, L_2 является некоторой функцией вида

$$E \{ L_1^2 + L_2^2, 4(L_1 L_2)^2 + (L_1^2 - L_2^2)^2 \}. \quad (2)$$

В качестве переменных, характеризующих величины и взаимную ориентацию векторов L_1, L_2 , введем параметры ξ, ζ, ϕ :

$$L_1 = \xi \cos \zeta, \quad L_2 = \xi \sin \zeta, \quad L_1 L_2 = L_1 L_2 \cos \phi. \quad (3)$$

Минимуму обменной энергии в $CsMnI_3$ соответствуют некоторая величина $\xi = \xi_0$ и

$$\zeta = \pi/4, \quad \phi = \pi/2. \quad (4)$$

Вблизи этого минимума обменная энергия является квадратичной положительно определенной формой по малым отклонениям

$$\text{const} + C_1 [4(\delta\zeta)^2 + (\delta\phi)^2] + C_2 (\delta\xi)^2. \quad (5)$$

Энергия анизотропии первого порядка по $(v/c)^2$ сводится к одному инварианту:

$$-B(L_{1z}^2 + L_{2z}^2)/2. \quad (6)$$

Благодаря этому члену, векторы L_1, L_2 будут отличаться от значений L_1^0, L_2^0 обменного приближения (3), (4) на некоторую величину $\delta L_1, \delta L_2$. Линейный по этим отклонениям член в энергии анизотропии (6) имеет вид

$$-B(L_{1z}^0 \delta L_{1z} + L_{2z}^0 \delta L_{2z}). \quad (7)$$

В $CsMnI_3$ в основном состоянии спиновая плоскость перпендикулярна базисной плоскости кристалла (константа анизотропии B положительна). Ориентация подрешеток в спиновой плоскости и азимутальная ориентация самой спиновой плоскости

фиксируется энергией анизотропии шестого порядка [6]. При наличии магнитного поля, направленного вдоль оси симметрии кристалла, наблюдаются следующие три ориентационные состояния [7, 8]: в полях меньше $H_{c1} = 39$ кЭ – фаза I ($L_{1z}^0 = L_1^0$, $L_{2z}^0 = 0$, рис.2а); в интервале $H_{c1} < H < H_c = 52.5$ кЭ – фаза II ($L_{1z}^0 = 0$, $L_{2z}^0 = L_2^0$, рис.2б); при $H > H_c$ – фаза III ($L_{1z}^0 = L_{2z}^0 = 0$, рис.1).

Из условия минимума суммы выражений (5) и (7) найдем, что в каждой из фаз векторы ($\mathbf{L}_1, \mathbf{L}_2$) остаются ортогональными ($\delta\phi = 0$) и

$$\begin{aligned} \text{фаза I:} \quad \delta\zeta &= -A_1, & \delta\xi &= A_2\xi_0, \\ \text{фаза II:} \quad \delta\zeta &= A_1, & \delta\xi &= A_2\xi_0, \\ \text{фаза III:} \quad \delta\zeta &= 0, & \delta\xi &= 0, \end{aligned} \quad (8)$$

где константы $A_1 = B\xi_0^2/16C_1$ и $A_2 = B/4C_2$ положительны.

Таким образом, легкоосная анизотропия может приводить к тому, что $L_1^2 \neq L_2^2$, а также к увеличению квадрата параметра порядка $L_1^2 + L_2^2$. В общем случае, очевидно, за счет релятивистских эффектов могла бы нарушиться и ортогональность антиферромагнитных векторов. В CsMnI_3 обменное взаимодействие между ближайшими соседями вдоль оси z значительно превосходит обмен в базисной плоскости [9]. Это обстоятельство, как нетрудно убедиться, приводит к неравенству $C_2 \gg C_1/\xi_0^2$, поэтому при сравнении с экспериментом мы пренебрежем вкладом A_2 .

Обращая систему (1) относительно намагниченностей подрешеток с учетом однородной намагниченности во внешнем магнитном поле, получим

$$\mathbf{M}_j = \frac{1}{6}\mathbf{M} + \frac{1}{3}\{\mathbf{L}_1 \cos(\mathbf{Q}\mathbf{r}_j) + \mathbf{L}_2 \sin(\mathbf{Q}\mathbf{r}_j)\}, \quad \mathbf{Q} = \left(\frac{4\pi}{3a}, 0, \frac{\pi}{c}\right), \quad (9)$$

где a и c – периоды кристаллической решетки. С точностью до линейных членов по магнитному полю в фазе I получаем:

$$\begin{aligned} M_1 &= M_0 \left(1 + A_1 + \frac{H}{H'_E}\right), & \cos \alpha_1 &= 1, \\ M_{2,3} &= M_0 \left(1 - \frac{1}{2}A_1 - \frac{1}{2}\frac{H}{H'_E}\right), & \cos \alpha_{2,3} &= -\frac{1}{2} - \frac{3}{4}A_1 + \frac{3}{4}\frac{H}{H'_E}, \\ M_4 &= M_0 \left(1 + A_1 - \frac{H}{H'_E}\right), & \cos \alpha_4 &= -1, \\ M_{5,6} &= M_0 \left(1 - \frac{1}{2}A_1 + \frac{1}{2}\frac{H}{H'_E}\right), & \cos \alpha_{5,6} &= \frac{1}{2} + \frac{3}{4}A_1 + \frac{3}{4}\frac{H}{H'_E}, \end{aligned} \quad (10)$$

где $H'_E = M_0(N_A/\chi_{\perp}) \approx 4 \cdot 10^3$ кЭ, N_A – число Авогадро, χ_{\perp} – магнитная восприимчивость в спиновой плоскости; мы использовали значение $\chi_{\perp} = 0.75 \cdot 10^{-2}$ ед.СГС/моль из работы [9]; α_j – угол между намагниченностью j -ой подрешетки и

осью z . В фазе II

$$\begin{aligned}
 M_{1,4} &= M_0 (1 - A_1), & \cos \alpha_{1,4} &= \frac{H}{H'_E} \\
 M_{2,6} &= M_0 \left(1 + \frac{1}{2} A_1 + \frac{\sqrt{3}}{2} \frac{H}{H'_E} \right), & \cos \alpha_{2,6} &= \frac{\sqrt{3}}{2} + \frac{\sqrt{3}}{4} A_1 + \frac{1}{4} \frac{H}{H'_E}, \\
 M_{3,5} &= M_0 \left(1 + \frac{1}{2} A_1 - \frac{\sqrt{3}}{2} \frac{H}{H'_E} \right), & \cos \alpha_{3,5} &= -\frac{\sqrt{3}}{2} - \frac{\sqrt{3}}{4} A_1 + \frac{1}{4} \frac{H}{H'_E}.
 \end{aligned} \tag{11}$$

Обсуждаемые искажения структур представлены схематически на рис.2. В фазе III намагниченности всех подрешеток равны M_0 и $\cos \alpha_j = H/H'_E$, где $H'_E = M_0(N_A/\chi_{||}) \approx 2 \cdot 10^3$ кЭ, $\chi_{||}$ – электронная магнитная восприимчивость вдоль нормали \mathbf{n} к спиновой плоскости.

В пренебрежении релаксацией динамика ядерной подрешетки сводится [10, 11] к динамике ферромагнетика в эффективном поле. Таким образом, функция Лагранжа низкочастотной спиновой динамики антиферромагнетика CsMnI_3 будет суммой лагранжиана неколлинеарного антиферромагнетика [5] и 6 лагранжианов ядерных подрешеток, связанных сверхтонким взаимодействием:

$$\frac{\chi_{\perp}}{2\gamma^2} (\boldsymbol{\Omega} + \gamma \mathbf{H})^2 + \frac{\chi_{||} - \chi_{\perp}}{2\gamma^2} (\mathbf{n}, \boldsymbol{\Omega} + \gamma \mathbf{H})^2 - \mathcal{U}_a + \frac{1}{6} \sum_{j=1}^6 \left(\mathbf{m}_j, \frac{\boldsymbol{\Omega}_{nj}}{\gamma_n} - A \mathbf{M}_j + \mathbf{H} \right), \tag{12}$$

где $\boldsymbol{\Omega}$ – угловая скорость электронных спиновых вращений; $\boldsymbol{\Omega}_{nj}$ – угловая скорость спиновых вращений ядер j -ой подрешетки; χ_n – восприимчивость ядер; γ, γ_n – электронное и ядерное гиромагнитные отношения; A – константа сверхтонкого взаимодействия; \mathbf{m}_j – намагниченность j -ой ядерной подрешетки, ее равновесное значение равно $\chi_n(-A \mathbf{M}_j + \mathbf{H})$.

Когда спиновая плоскость нормальна к базисной плоскости кристалла, энергия \mathcal{U}_a сводится к выражению $f(H) \cos 6\varphi$, $f(H) = b_1 + b_3 H^2 + b_4 H^4 + b_5 H^6$, где φ – угол между вектором \mathbf{L}_1 и осью z . Поскольку функция $f(H)$ меняет знак в поле H_{c1} [8], удобно ввести иное ее представление:

$$f(H) = b_1 \left[1 - \left(\frac{H}{H_{c1}} \right)^2 \right] \left[1 + k_1 \left(\frac{H}{H_c} \right)^2 + k_2 \left(\frac{H}{H_c} \right)^4 \right]. \tag{13}$$

Эта функция определяет полевое поведение частоты АФМР, связанной с колебаниями угла φ . Из экспериментальных данных [6] можно установить значение константы b_1 (связана с частотой в нулевом поле) и $k_1 = -1.7$, вклад же члена $\propto k_2$ мал в исследованном в работе [6] диапазоне частот. Константа A_1 определяет расщепление частот ЯМР в нулевом магнитном поле:

$$\frac{\omega_1 - \omega_2}{\omega_1} = \frac{M_1 - M_2}{M_1} \approx \frac{3}{2} A_1. \tag{14}$$

Согласно экспериментальным данным [4], $\omega_1/2\pi = 417$ МГц, $\omega_2/2\pi = 390$ МГц, откуда $A_1 = 0.045$.

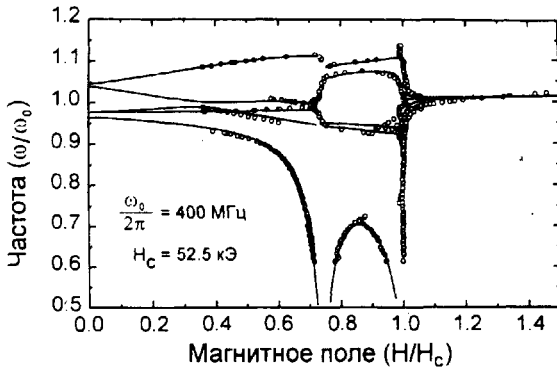


Рис.3. Спектр ЯМР в CsMnI₃. Экспериментальные данные из работы [7] при температуре 1.3 К

Спектр магнитного резонанса описываемого лагранжианом (12), состоит из 3 ветвей АФМР (см. [6], [10]) и 6 ветвей ЯМР. Пять ветвей ЯМР при указанных выше значениях параметров теории и при двух оставшихся подгоночных параметрах $\gamma_n AM_0/2\pi = \omega_0/2\pi = 400$ МГц, $k_2 = 0.71$ представлен на рис.3. Частота шестой ветви при пренебрежении анизотропией в плоскости равна нулю.

Заметим, что функция $f(H)$ при указанных параметрах k_1, k_2 обращается в нуль в поле, слегка превосходящем H_c , то есть система по случайным причинам оказывается близкой к переходу опрокидывания из фазы II в фазу I при подходе к H_c .

Работа была частично поддержана грантом Российского фонда фундаментальных исследований #98-02-16572.

1. А.С.Боровик-Романов, М.П. Орлова, ЖЭТФ **31**, 579 (1956).
2. И.Е.Дзялошинский, ЖЭТФ **32**, 1547 (1957).
3. А.С.Боровик-Романов, ЖЭТФ **36**, 766 (1959).
4. Б.С.Думеш, С.В.Петров, А.М.Тихонов, Письма в ЖЭТФ **67**, 661 (1998).
5. А.Ф.Андреев, В.И.Марченко, УФН **130**, 39 (1980).
6. С.И.Абаржи, М.Е.Житомирский, О.А.Петренко и др., ЖЭТФ **104**, 3232 (1993).
7. Б.С.Думеш, С.В.Петров, А.М.Тихонов, Письма в ЖЭТФ **67**, 988 (1998).
8. В.И.Марченко, А.М.Тихонов, Письма в ЖЭТФ **68**, 844 (1998).
9. H.W.Zandbergen, J. Sol. St. Chem. **35**, 367 (1980).
10. Л.А.Прозорова, С.С.Сосин, Д.В.Ефремов, С.В.Петров, ЖЭТФ **112**, 11 (1997).
11. А.С.Боровик-Романов, Б.С.Думеш, С.В.Петров, А.М.Тихонов, ЖЭТФ **113**, 352 (1998).