

РОССИЙСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК
ИНСТИТУТ ФИЗИЧЕСКИХ ПРОБЛЕМ имени П.Л.КАПИЦЫ

на правах рукописи

Глазков Василий Николаевич

**ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ
СПИН-ПАЙЕРЛСОВСКОГО МАГНЕТИКА С ДЕФЕКТАМИ**

Специальность 01.04.09 - Физика низких температур

А в т о р е ф е р а т

диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

МОСКВА 2003

Работа выполнена в Институте Физических Проблем РАН
имени П.Л. Капицы

Научный руководитель:

доктор физико-математических наук А.И.Смирнов

Официальные оппоненты:

доктор физико-математических наук В.А.Ацаркин

кандидат физико-математических наук К.И.Кугель

Ведущая организация:

Институт Общей Физики Российской Академии Наук

Защита состоится 14 мая 2003 года в 10 часов на заседании

Специализированного ученого совета Д 002.103.01

при Институте Физических Проблем РАН им. П.Л.Капицы

117334, Москва, ул. Косыгина 2 .

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке

Института Физических Проблем РАН.

Автореферат разослан

2003 года.

Ученый секретарь Совета ,

доктор физико-математических наук, профессор

Л.А. Прозорова

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность темы.

Низкоразмерные спиновые системы демонстрируют ряд квантовых макроскопических эффектов, не имеющих аналогов в классической физике. В магнитных системах с пониженной пространственной размерностью (одно- и двумерных), из-за усиления роли квантовых и тепловых флуктуаций, магнитный порядок неелевского типа невозможен ни при какой конечной температуре, а в одномерном случае и при $T = 0$ К [1]. Понимание и описание этих явлений представляет ярко выраженный фундаментальный интерес. Низкоразмерные магнетики активно изучаются в последние годы. Теоретиков привлекают простота постановки задачи и нетривиальность ее решения и результатов, экспериментаторов — возможность реализации объектов, демонстрирующих новые квантовые явления.

Среди низкоразмерных магнетиков особое место занимают спин-целевые системы, в которых энергия основного состояния отделена от энергии возбужденных состояний щелью обменного происхождения. В таких системах квантово-разупорядоченное состояние оказывается устойчивым относительно слабого взаимодействия между низкоразмерными подсистемами. Для цепочки спинов $S = \frac{1}{2}$ щель в спектре возникает при димеризации цепочек*, которая может существовать в силу структурных причин (в кристаллах TlCuCl_3 [2], например), или возникать в результате фазового перехода, как это происходит в спин-пайерлсовских магнетиках [3]. Существование щели в спектре также может быть связано с величиной спина: если для однородной цепочки спинов спектр магнитных возбуждений бесщелевой [4], то для однородной цепочки спинов $S = 1$ спектр спиновых возбуждений отделен от основного (неупорядоченного и синглетного) состояния щелью обменного происхождения $\Delta \simeq 0.41 J$ [5].

Сохраняющееся до низких температур неупорядоченное состояние спин-

* Гамильтониан *однородной* цепочки спинов записывается в виде $\hat{H} = J \sum_i \hat{\mathbf{S}}_i \cdot \hat{\mathbf{S}}_{i+1}$, гамильтониан *димеризованной* цепочки (цепочки с альтернированным обменным взаимодействием) — $\hat{H} = J \sum_i (1 + (-1)^i \delta) \hat{\mathbf{S}}_i \cdot \hat{\mathbf{S}}_{i+1}$

щелевого магнетика является чисто квантовым эффектом и представляет интерес для исследования. В частности, весьма важной является проблема устойчивости этого состояния к различным внешним воздействиям. Одним из способов воздействия может быть контролируемое введение примесей, замещающих магнитный ион.

Введение примеси в одномерный магнетик приводит к обрыву спиновой цепочки, что локально подавляет спин-щелевое состояние и локально восстанавливает антиферромагнитный порядок. В результате вблизи примеси образуется область антиферромагнитно скоррелированных ненулевых проекций спина [6]. Область локального магнитного порядка в окрестности примеси является магнитным дефектом специального вида, характерным для спин-щелевого магнетика. Перекрывание таких областей и межцепочечное обменное взаимодействие приводит к распространению магнитного порядка по кристаллу [7, 8]. Индуцирование установления дальнего магнитного порядка случайно распределенными примесями представляет собой нетривиальный эффект, наблюдавшийся в различных спин-щелевых магнетиках [9–11].

В данной работе изучается влияние примесей на свойства квазиодномерного магнетика CuGeO_3 , единственного известного неорганического спин-пайерлсовского магнетика. Возможность получения высококачественных монокристаллов этого вещества (в том числе и с различными примесями) делает его удобным объектом для исследования. Используемый в работе метод магнитного резонанса позволяет обнаружить новые магнитные свойства, в особенности при исследовании процессов установления дальнего магнитного порядка, так как он позволяет разрешать и идентифицировать сигналы от различных магнитных фаз.

Цель работы.

Цель данной работы состоит в экспериментальном исследовании влияния магнитных (Ni) и немагнитных (Mg) примесей на резонансные свойства спин-пайерлсовского магнетика CuGeO_3 . В задачи работы входили:

- идентификация магнитных дефектов, образующихся в спин-пайерлсовском магнетике при введении примеси

- исследование взаимодействия магнитных дефектов с возбуждениями спин-пайерлсовского магнетика и друг с другом
- исследование формирования индуцированного примесями магнитного порядка в допированном спин-пайерлсовском магнетике и определение особенностей структуры параметра порядка.

Научная новизна и положения, выносимые на защиту.

В данной работе впервые обнаружены и проанализированы следующие явления:

- Аномальное уменьшение величины эффективного g -фактора в кристаллах $\text{Cu}_{1-x}\text{Ni}_x\text{GeO}_3$.
- Формирование коллективной моды магнитного резонанса спиновых кластеров и триплетных возбуждений спин-пайерлсовского магнетика.
- Возникновение сигнала антиферромагнитного резонанса (АФМР) в индуцированной примесями магнитоупорядоченной фазе кристаллов $\text{Cu}_{1-x}(\text{Ni},\text{Mg})_x\text{GeO}_3$.
- Существования сигналов парамагнитного и антиферромагнитного резонансов в образцах $\text{Cu}_{1-x}\text{Mg}_x\text{GeO}_3$.

Перечисленные выше положения выносятся на защиту.

Апробация работы.

Изложенные в диссертации результаты были представлены на:

1. Всероссийских совещаниях по физике низких температур НТ-XXXII (Казань, 2000 г.) и НТ-XXXI (Москва, 1998 г.)
2. Международной конференции по низким температурам LT23 (Хиросима, Япония, 2002 г.)
3. Общих Конференциях Отделения физики конденсированного состояния Европейского Физического Сообщества: СМД-17 (Гренобль, Франция,

- 1998г.), CMD-18 (Монтре, Швейцария, 2000 г.), CMD-19 (Брайтон, Великобритания, 2002 г.)
4. Международных Семинарах по Спиновым Волнам (Санкт-Петербург, 1998, 2000 и 2002 гг.)
 5. Симпозиуме по дефектам в коррелированных электронных системах DICES (Дрезден, Германия, 2001)
 6. Молодежной Научной Школе "Магнитный резонанс и его применения"(Казань, Россия, 1999 и 2001 гг.)
 7. Семинарах и Ученых Советах в Институте Физических Проблем им. П.Л.Капицы РАН.

Публикации.

1. V.N.Glazkov, A.I.Smirnov, O.A.Petrenko, D.Mck. Paul, A.G.Vetkin, R.M.Eremina, "Electron-spin-resonance in the doped spin-Peierls compound $\text{Cu}_{1-x}\text{Ni}_x\text{GeO}_3$ ", Journal of Physics: Condensed Matter, vol.10(1998), pp.7879-7896
2. В.Н.Глазков, Р.М.Еремина, А.И.Смирнов, Г.Даленн, А.Ревколевчи, "Магнитный резонанс спиновых кластеров и триплетных возбуждений в спин-пайерлсовском магнетике с примесями", ЖЭТФ т.120 стр.164-174
3. V.N.Glazkov, A.I.Smirnov, K.Uchinokura, T.Masuda, "Separation of the magnetic phases at the Neel point in the diluted spin-Peierls magnet CuGeO_3 ", Phys.Rev.B vol.65, 144427 (2002)
4. А.И.Смирнов, В.Н.Глазков, "Дефекты спин-щелевых магнетиков: многоспиновые кластеры.", Успехи Физических Наук т.172, стр.1313-1316 (2002)
5. A.I.Smirnov, V.N.Glazkov, G.Dhalenne, A.Revcolevschi, K.Uchinokura, T.Masuda, L.N.Demianets, A.Ya.Shapiro, "Magnetic Resonance of Defects in Spin-Peierls and Haldane Magnets", Phys.Low-Dim.Struct., 11/12 p.295 (2001)

Структура и объем диссертации.

Диссертация состоит из восьми глав, разбитых на четыре части: вводную часть (три главы), две части с изложением результатов (по две главы каждая), заключительную часть, и приложения*.

Общий объем работы составляет 170 страниц машинописного текста и включает в себя основной текст, список литературы из 86 наименований и 65 рисунков.

СОДЕРЖАНИЕ ДИССЕРТАЦИИ

Часть I. Введение.

Во введении обосновывается актуальность выбранной темы диссертации, формулируются задачи исследования и описывается структура диссертации.

В первой главе произведен обзор свойств одномерных антиферромагнетиков (спиновых цепочек).

Свойства основного состояния и спектра возбуждений одномерного антиферромагнетика спинов $\frac{1}{2}$ существенно зависят от структуры обменного взаимодействия: для однородной спиновой цепочки спектр магнитных возбуждений бесщелевой, а корреляционный радиус бесконечен (корреляции спадают степенным образом) [4, 12], в то время, как для спиновой цепочки с альтернированным обменным взаимодействием синглетное основное состояние оказывается отделено от возбуждений энергетической щелью обменной природы $\Delta \sim \delta J$, а корреляционный радиус оказывается конечным [13, 14].

Возможен фазовый переход (так называемый спин-пайерлсовский переход), при котором система однородных магнитно невзаимодействующих спиновых цепочек в трехмерном кристалле димеризуется, а обменное взаимодействие оказывается альтернированным. Проигрыш в упругой энергии при этом переходе компенсируется выигрышем в обменной энергии [3].

Во второй главе дается обзор известных свойств кристаллов неорга-

* В приложении к диссертации содержатся материалы методического характера, не содержащие представляемых к защите результатов, и касающиеся определения чувствительности ЭПР спектрометра и основных сведений по методам анализа формы линии ЭПР.

нического спин-пайерлсовского магнетика CuGeO_3 . Симметрия кристаллов CuGeO_3 орторомбическая [15], определенные из опытов по неупругому рассеянию нейтронов величины обменных интегралов равны [16] $J_c = 10.4\text{мэВ}$, $J_b = 0.1J_c$ и $J_a = -0.01J_c$. При температуре 14.5 К в чистом веществе происходит спин-пайерлсовский переход, при котором магнитные ионы в цепочках димеризуются, а в спектре магнитных возбуждений открывается энергетическая щель [17–19]. Величина энергетической щели в чистых кристаллах CuGeO_3 при низкой температуре $\Delta(0) \approx 25\text{К}$.

Также в этой главе обсуждаются известные результаты по влиянию дефектов на свойства кристаллов CuGeO_3 . Введение дефектов приводит к локальному подавлению спин-щелевого состояния и восстановлению локального антиферромагнитного порядка [6, 8]. Это приводит к понижению температуры спин-пайерлсовского перехода и установлению дальнего магнитного порядка при достаточно низкой температуре. Установление магнитного порядка в допированных кристаллах CuGeO_3 подтверждается как исследованиями статических магнитных свойств [10], так и в экспериментах по рассеянию нейтронов [20, 21]. Эксперименты показывают, что при низких концентрациях примеси спин-пайерлсовская димеризация и индуцированный примесями магнитный порядок сосуществуют [21].

В третьей главе рассмотрена экспериментальная методика, применявшаяся в данной работе. Для исследования магнитных свойств в данной работе применялся метод электронного спинового резонанса (ЭСР). В этом методе исследуется поглощение микроволнового излучения в образце в зависимости от приложенного магнитного поля, что позволяет измерить мнимую часть высокочастотной восприимчивости $\chi''(H, \omega)$. Интегральная интенсивность сигнала ЭСР в парамагнитной фазе пропорциональна статической восприимчивости. Характерное изменение спектра резонансного поглощения $f(H)$ при переходе в магнитоупорядоченную фазу позволяет разделить и идентифицировать сигналы различных магнитных фаз, а также определить некоторые параметры магнитоупорядоченного состояния.

Для измерений использовался ряд СВЧ-спектрометров проходного типа с резонаторами различного размера, позволявшими проводить измерения в диа-

пазоне частот от 9 до 80 ГГц. Резонатор с образцом помещался в магнитное поле, создаваемое сверхпроводящим соленоидом (до 65 кЭ), и измерялась зависимость сигнала, прошедшего через резонатор от магнитного поля. В некоторых спектрометрах экспериментальная ячейка (резонатор и образец) находилась в вакуумной рубашке, снабженной нагревателем и полупроводниковым термометром, что позволяло производить измерения при температурах от 1.5 К (при откачке паров ^4He) до 40 К. В некоторых приборах также имелось устройство для вращения образца, содержащее червячную передачу.

Некоторые измерения на частоте 9.5 ГГц были выполнены в Университете Аугсбурга на коммерческом ЭПР спектрометре фирмы "Брукер" Bruker ELEXYS E500CW с проточным гелиевым криостатом фирмы "Оксфорд Инструментс". Для измерений при температурах менее 4К использовался спектрометр на базе микроволнового моста фирмы "Брукер" с криостатом с ванной гелия-4.

Также в данной главе описаны исследованные образцы $\text{Cu}_{1-x}(\text{Ni},\text{Mg})_x\text{GeO}_3$. Концентрация неконтролируемых дефектов, оцененная по остаточной восприимчивости номинально чистого кристалла CuGeO_3 из каждой серии образцов, не превышает 0.05%. Используемые в опытах по магнитному резонансу монокристаллы $\text{Cu}_{1-x}\text{Mg}_x\text{GeO}_3$ были теми же или выращенными в той же лаборатории по той же технологии, что и образцы, исследованные в работе [22], где была получена их детальная фазовая диаграмма.

Часть II. Магнитный резонанс спиновых кластеров в спин-пайерлсовском магнетике CuGeO_3 . Взаимодействие кластеров с триплетными возбуждениями спин-пайерлсовского магнетика.

В этой части диссертации изучается магнитный резонанс в образцах $\text{Cu}_{1-x}\text{Ni}_x\text{GeO}_3$ с малой ($x < 1\%$) концентрацией примеси. Малая концентрация магнитных дефектов позволяет считать их удаленными и не взаимодействующими друг с другом, что облегчает анализ экспериментальных данных.

В четвертой главе описаны исследования магнитного резонанса изолированных магнитных дефектов в образце $\text{Cu}_{0.998}\text{Ni}_{0.002}\text{GeO}_3$ при низкой температуре ($T \ll T_{SP}$), когда концентрация триплетных возбуждений мала и все

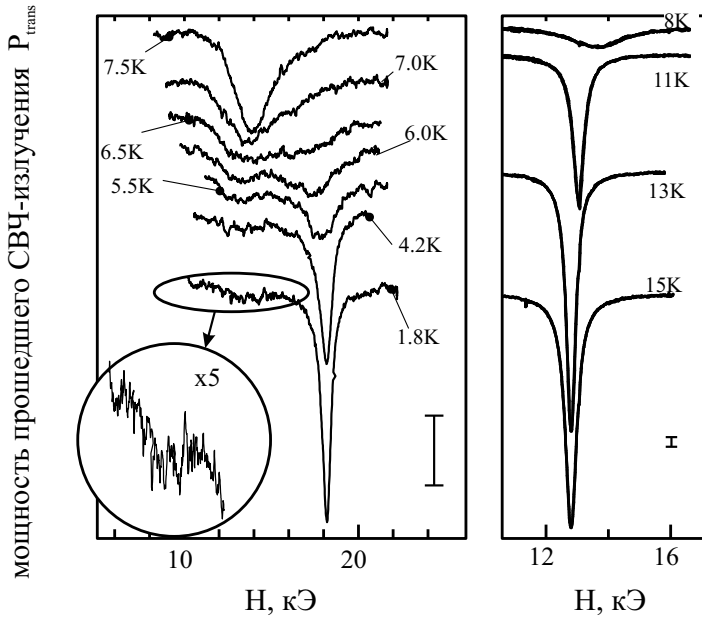


Рис. 1: Эволюция линии ЭПР в образце $\text{Cu}_{0.998}\text{Ni}_{0.002}\text{GeO}_3$ при изменении температуры. $\mathbf{H}||c$, $f=36\text{ГГц}$.

магнитные свойства связаны только с дефектами. Обнаружено, что при низких температурах линия магнитного резонанса смещается в область больших полей (Рис. 1). Наблюдаемое смещение линии соответствует изменению эффективного g -фактора (Рис. 2), который имеет неожиданно малую величину, достигая при $\mathbf{H}||c$ значения ≈ 1.4 . Исследование ориентационных зависимостей обнаруживает сильную анизотропию g -фактора при низкой температуре, и, в том числе, расщепление линии ЭПР на две компоненты при вращении магнитного поля в плоскости (ab) (Рис. 3), отражающее неэквивалентность кислородного окружения ионов меди в кристаллах CuGeO_3 . Получены компоненты g -тензора магнитного дефекта в его локальной системе координат: $g_{||} = 2.29$, $g_{\perp 1} = 1.43$ и $g_{\perp 2} = 1.29$.

Отличие g -фактора магнитных дефектов от g -фактора изолированных ионов никеля и меди и его сильная анизотропия свидетельствует о формировании многоспинового магнитного объекта (кластера) при введении примеси. Аномалия g -фактора связывается с существованием взаимодействия Дзялошинского-Мория в окрестности дефекта и многоспиновой природой кластера, так как в системе, состоящей из более чем 2 спинов, взаимодействие Дзялошинского-Мория приводит к сильной анизотропии эффективного g -фактора и уменьшению его значения [23]. Расчеты, выполненные в модели

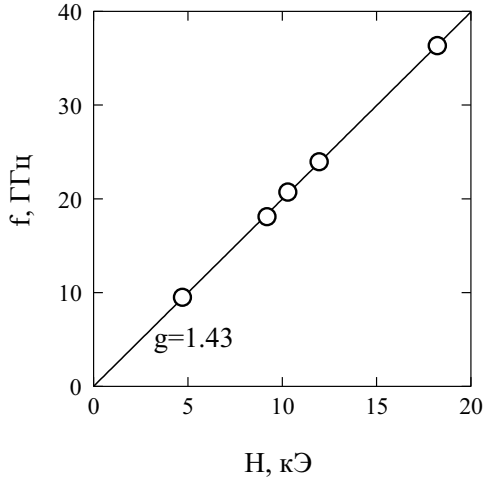


Рис. 2: Спектр парамагнитного резонанса $f(H)$ в образце $\text{Cu}_{0.998}\text{Ni}_{0.002}\text{GeO}_3$. $\mathbf{H} \parallel c$, $T=1.8\text{K}$. Прямая соответствует $g=1.43$.

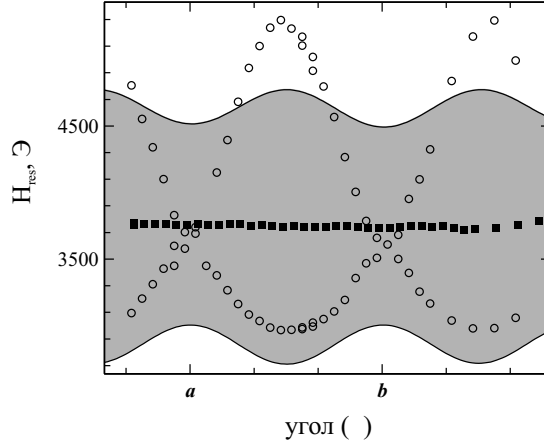


Рис. 3: Ориентационная зависимость полей резонансного поглощения при вращении магнитного поля в плоскости (ab) кристалла $\text{Cu}_{1-x}\text{Ni}_x\text{GeO}_3$: $\circ - x = 0.2\%$, $\blacksquare - x = 0.8\%$. $f=9.5\text{ ГГц}$, $T=1.75\text{ К}$. Серая заливка показывает ширину линии ЭПР в образце с $x = 0.8\%$.

кластера конечной длины [24] (модель включала один ион никеля и 5 ионов меди, расположенных по обе стороны от иона никеля) показывают, что для объяснения наблюдаемого изменения g -фактора необходима величина взаимодействия Дзялошинского-Мория равное 30% от внутрицепочечного обменного взаимодействия.

В пятой главе исследуется эволюция формы линии магнитного резонанса с температурой (Рис. 1). При понижении температуры линия ЭПР плавно смещается в область больших полей. Температура, при которой начинается смещение линии ЭПР совпадает с температурой спин-пайерлсовского перехода. При температуре $\approx 7\text{K}$ в образце $\text{Cu}_{1-x}\text{Ni}_x\text{GeO}_3$ с концентрацией примеси $x = 0.2\%$ наблюдается расщепление линии ЭПР на две компоненты, одна из которых продолжает смещаться в направлении больших полей, а вторая возвращается к положению, соответствующему ЭПР ионов меди.

Положение и ширина линии магнитного резонанса описаны в рамках теории обменного сужения линии ЭПР [25] с зависящей от температуры частотой

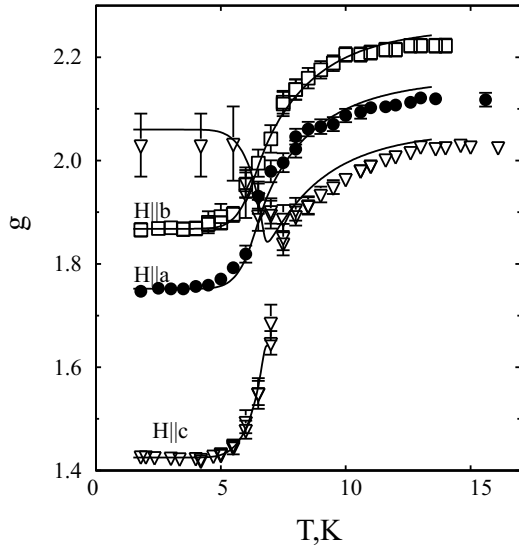


Рис. 4: Зависимость эффективного g -фактора в кристалле $\text{Cu}_{0.998}\text{Ni}_{0.002}\text{GeO}_3$ от температуры, $f=36$ ГГц. Кривые — результаты расчета в модели обменного сужения.

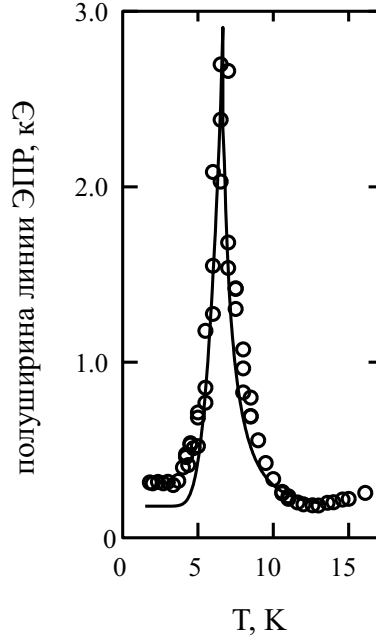


Рис. 5: Зависимость полуширины линии магнитного резонанса в кристалле $\text{Cu}_{0.998}\text{Ni}_{0.002}\text{GeO}_3$ от температуры. $\mathbf{H}||c$, $f=36$ ГГц. Кривая — результат расчета в модели обменного сужения

обменных перескоков. Многоспиновые кластеры, формирующиеся вокруг примесного иона Ni, характеризуются аномальным g -фактором. Триpletные возбуждения димеризованной матрицы — g -фактором ионов меди. Эффективное обменное взаимодействие кластеров и триpletных возбуждений возникает из-за взаимопроникновения волновых функций спиновых кластеров и возбуждений.

Положение центра тяжести спектра ЭПР определяется частотами резонансов в каждой подсистеме, взятыми с весом, пропорциональным восприимчивостям подсистем (восприимчивости берутся с учетом взаимодействия подсистем):

$$\bar{\omega} = \frac{\omega_{cl}\tilde{\chi}_{cl} + \omega_{tr}\tilde{\chi}_{tr}}{\tilde{\chi}_{cl} + \tilde{\chi}_{tr}} \quad (1)$$

Смещения компонент ЭПР относительно центра тяжести спектра и их ширины определяются, соответственно, мнимой и действительной частью выражения

$$\lambda_{1,2} = \frac{1}{2} \{ -[\omega_e - i\delta] \pm \sqrt{\omega_e^2 - \Delta^2 - 2i\omega_e\delta} \}. \quad (2)$$

Здесь ω_e — частота обменных перескоков, $\Delta = \omega_{tr} - \omega_{cl}$, $\delta = \omega_{tr} + \omega_{cl} - 2\bar{\omega}$.

Восприимчивость кластеров без учета взаимодействия с триплетными возбуждениями описывается законом Кюри, на моль вещества приходится xN_A кластеров. Для получения восприимчивости триплетных возбуждений использовались известные для чистого кристалла значения, перенормированные с учетом уменьшения энергетической щели и уменьшения доступной для триплетных возбуждений области кристалла (доступная для них доля объема образца равна $(1 - Lx/c)$, величина L определяется как размером кластера, так и характерной длиной волны возбуждения). Обменная частота ω_e связана с концентрацией триплетных возбуждений и зависит от температуры щелевым образом.

Построенная модель содержит три параметра, которые были определены из подгонки зависимостей $g_a(T)$: эффективный обменный интеграл взаимодействия кластер-триплет $J_{eff} = (13 \pm 1)K$, размер области недоступной триплетам $L = (32 \pm 2)c$, эффективная обменная частота $\Omega_e = (2.2 \pm 0.3) \cdot 10^{12}c^{-1}$. Результаты подгонки изображены на Рис. 4. Вычисленные с помощью этих же параметров значения ширины линии хорошо совпадают с экспериментом (Рис. 5)

Часть III. Взаимодействие кластеров, формирование дальнего порядка.

Эта часть диссертации посвящена исследованию взаимодействия кластеров обменно-связанных спинов и установлению дальнего магнитного порядка.

В шестой главе исследуется взаимодействие спиновых кластеров в кристаллах $Cu_{1-x}Ni_xGeO_3$ при малых концентрациях примеси ($x < 1\%$), когда образцы еще далеки от антиферромагнитного упорядочения. Взаимодействие кластеров проявляется в изменении положения и ширины линии ЭПР при низкой температуре, когда концентрация триплетных возбуждений пренебрежимо мала. При повышении концентрации примеси x от 0.2% до 0.8% расщепление линии ЭПР при приложении магнитного поля в плоскости (ab) пропадает: наблюдается только одна линия резонансного поглощения с зависящей от направления поля шириной, причем максимум ширины наблюдается в ориентации маг-

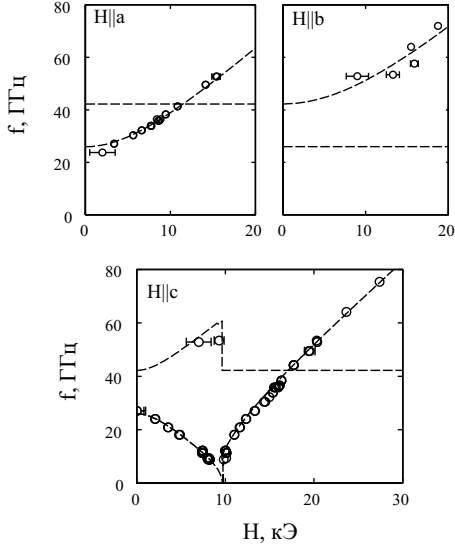


Рис. 6: Спектр АФМР в $\text{Cu}_{1-x}\text{Mg}_x\text{GeO}_3$. $x = 3.20\%$, $T=1.8$ К

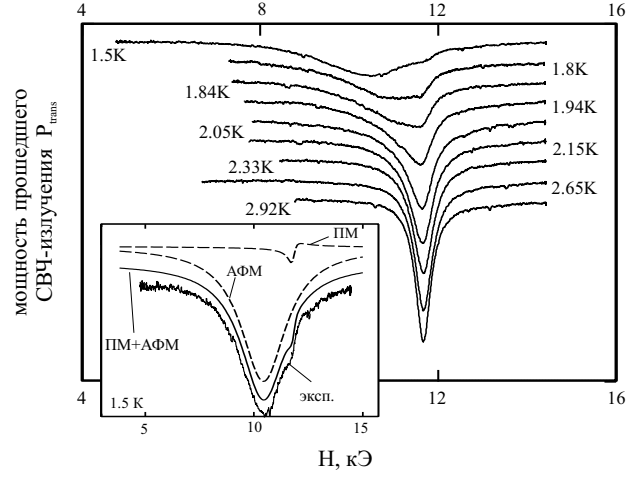


Рис. 7: изменение формы линии магнитного резонанса в окрестности температуры Нееля в монокристалле $\text{Cu}_{1-x}\text{Mg}_x\text{GeO}_3$. $x = 1.71\%$, $\mathbf{H}||b$, $f = 36$ ГГц, $T_N = 2.25$ К.

нитного поля, соответствующей максимальному расщеплению спектральных компонент в образце с $x = 0.2\%$ (Рис. 3). Такое поведение ширины линии типично для обменно-суженной линии ЭПР, и, следовательно, свидетельствует об эффективном обменном взаимодействии магнитных дефектов в $\text{Cu}_{1-x}\text{Ni}_x\text{GeO}_3$.

В точных ориентациях ширина линии ЭПР растет с повышением концентрации примеси, при малых концентрациях зависимость $\Delta H(x)$ оказывается линейной. Такое поведение ширины линии типично для разбавленных парамагнетиков (парамагнитных центров в диамагнитной матрице) [26] и свидетельствует о наличии анизотропного спин-спинового взаимодействия магнитных дефектов. Оценки величины этого взаимодействия показывают, что основной вклад в него связан с анизотропным обменным взаимодействием* ионов меди.

В седьмой главе исследуется формирование дальнего магнитного порядка в кристаллах $\text{Cu}_{1-x}(\text{Ni},\text{Mg})_x\text{GeO}_3$. Установление дальнего магнитного порядка сопровождается преобразованием спектра магнитного резонанса от линейно-

*Гамильтониан анизотропного обменного взаимодействия имеет вид $\hat{H}_{AE} = \sum_{\langle i,j \rangle} \sum_{\alpha,\beta} J_{ij}^{\alpha\beta} \hat{S}_i^\alpha \hat{S}_j^\beta$, где константы $J_{ij}^{\alpha\beta}$ удовлетворяют условию $\sum_{\alpha} J_{ij}^{\alpha\alpha} = 0$

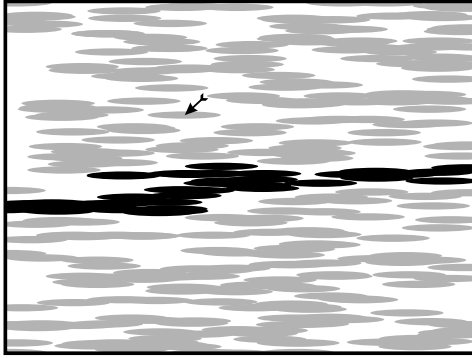


Рис. 8: Результат упрощенного моделирования структуры индуцированной примесями упорядоченной фазы: серым отмечены области локального антиферромагнитного порядка, черным — наибольшая из этих областей, белым — неупорядоченные области, стрелкой отмечен изолированный кластер.

го бесщелевого спектра ЭПР выше T_N к анизотропному нелинейному спектру резонансного поглощения с несколькими ветвями и щелями (Рис. 6). Наблюдаемый спектр описывается стандартной теорией антиферромагнитного резонанса в орторомбическом коллинеарном антиферромагнетике [27] (пунктир на Рис. 6). Направление осей анизотропии зависит от вида примеси: для кристаллов $\text{Cu}_{1-x}\text{Ni}_x\text{GeO}_3$ легкая ось анизотропии направлена вдоль оси a кристалла, для образцов $\text{Cu}_{1-x}\text{Mg}_x\text{GeO}_3$ — вдоль оси c . Изменение направления осей анизотропии при допировании никелем связывается с появлением в окрестности примесного иона дополнительного анизотропного взаимодействия, приводящего также и к аномальному поведению g -фактора. Изучена зависимость параметров спектра АФМР (щелей и поля спин-флопа) от концентрации примеси.

Для изучения процесса формирования магнитоупорядоченного состояния использовалась серия образцов $\text{Cu}_{1-x}\text{Mg}_x\text{GeO}_3$, в которых однородность распределения примеси по образцу и содержание примеси было специально проконтролировано [22]. Эволюция спектра магнитного резонанса при переходе через точку Нееля в образце с содержанием примеси $x = 1.71\%$ представлена на Рис. 7. При понижении температуры линия магнитного резонанса расщепляется на две компоненты. Одна из них соответствует парамагнитному резонансу — значение резонансного поля не зависит от температуры и совпадает с резонансным полем парамагнитной фазы. Поле резонансного поглощения второй компоненты зависит от температуры и ее спектр резонансного поглощения соответствует спектру поглощения коллинеарного двуосного антиферромагнетика.

Падение интенсивности парамагнитной компоненты с температурой позволяет исключить ее связь с неконтролируемыми дефектами, а ее большая интен-

сивность в точке перехода (сравнимая с полной интенсивностью ЭПР) исключают ее связь с триплетными возбуждениями. Однородность распределения примесей по образцу и малый температурный интервал перехода исключают предположение о сосуществовании двух линий магнитного резонанса за счет макроскопической неоднородности образца. В то же время, одновременное наличие двух резонансных мод в образце не может быть истолковано в рамках рассмотрения одной фазы, так как антиферромагнитной фазе соответствуют колебания параметра порядка, исключающие парамагнитную моду резонанса, а парамагнитная фаза тем более не допускает расщепления линии.

Возможным объяснением одновременного существования двух резонансных мод является микроскопическое фазовое расслоение образца на парамагнитные и антиферромагнитные области. Действительно, рассмотрим спиновые кластеры, образующиеся вокруг примесных атомов и будем считать, что когерентный антиферромагнитный порядок существует в области размером L^* , удовлетворяющим соотношению

$$k_B T = JS^2 \exp\{-2L^*/\xi\}. \quad (3)$$

На расстояниях, больших, чем L^* , антиферромагнитные корреляции разрушаются тепловыми флуктуациями. В поперечных направлениях антиферромагнитные корреляции распространяются на расстояния, определяемые обменными интегралами в соответствующих направлениях. Так мы приходим к упрощенной модели, в которой в окрестности каждого примесного центра существует антиферромагнитная область эллиптической формы. Размер эллипса вдоль цепочек определяется уравнением (3), в поперечных направлениях он меньше в соответствии с отношением обменных интегралов. При высокой температуре области локального антиферромагнитного порядка малы и не касаются друг друга, параметры порядка в них некоррелированы и дальний порядок отсутствует, а каждый из кластеров дает вклад в восприимчивость образца и в сигнал магнитного резонанса в соответствии с наличием у кластера полного магнитного момента. Поэтому восприимчивость и спектр магнитного резонанса имеют парамагнитный характер. При понижении температуры размер кластеров растет, некоторые из них начинают соприкасаться, что приводит к возникновению

более протяженных областей с когерентным антиферромагнитным порядком, охватывающих несколько примесных атомов. Наконец, как показано на Рис. 8, возникает область антиферромагнитного порядка, "протекающая" через весь образец. Возникновение такой области соответствует порогу протекания в задаче о перколяции взаимопроникающих сфер. При этом значении L^* , а также в окрестности него, в образце еще имеются (см. Рис. 8) одиночные кластеры, обладающие магнитным моментом и изолированные от больших антиферромагнитных областей слабо возмущенной синглетной матрицей. Свободные спины этих кластеров продолжают давать сигналы парамагнитного резонанса, как и выше точки перехода. Таким образом, ниже точки Нееля в образце имеются три типа областей: 1) области с локальным антиферромагнитным порядком достаточно большого размера, дающие сигналы антиферромагнитного резонанса, 2) области синглетной матрицы, не имеющие магнитного отклика, 3) одиночные кластеры, отделенные от антиферромагнитных областей синглетной матрицей.

Таким образом, наблюдаемые данные свидетельствуют о сильной пространственной неоднородности антиферромагнитного параметра порядка. Этот результат находится в согласии с результатом моделирования методом Монте-Карло [28].

Часть IV. Заключение.

В заключении перечислены основные результаты, полученные в диссертации:

1. Обнаружение низкотемпературной аномалии g -фактора в кристаллах $\text{Cu}_{1-x}\text{Ni}_x\text{GeO}_3$. Объяснение наблюдаемой аномалии на основе кластерной модели.
2. Обнаружение коллективной моды магнитного резонанса спиновых кластеров и триплетных возбуждений в спин-пайерлсовском магнетике. Описание собственной частоты и ширины линии этой моды в модели обменного сужения.
3. Обнаружение сигнала антиферромагнитного резонанса в индуцированной примесями магнитоупорядоченной фазе кристаллов $\text{Cu}_{1-x}(\text{Ni},\text{Mg})_x\text{GeO}_3$. Определение параметров магнитоупорядоченной фазы.

4. Обнаружение сосуществования сигналов парамагнитного и антиферромагнитного резонансов в образцах $\text{Cu}_{1-x}\text{Mg}_x\text{GeO}_3$. Это наблюдение свидетельствует о микроскопическом разделении фаз в точке индуцированного примесями антиферромагнитного перехода. Получена зависимость доли парамагнитной фазы от температуры, концентрации примеси и приложенного магнитного поля.

*

Список литературы

- [1] N.D.Mermin and H.Wagner. Phys. Rev. Lett., **17** (1966), 1133.
- [2] A.Oosawa, T.Kato, H.Tanaka, et al. Phys. Rev. B, **65** (2002), 094426.
- [3] E.Pytte. Phys. Rev. B, **10** (1974), 4637.
- [4] Jacques des Cloiseaux and Pearson J.J. Phys. Rev., **128** (1962), 2131.
- [5] F.D.M.Haldane. Phys. Rev. Lett., **50** (1983), 1153.
- [6] H.Fukuyama, T.Tanimoto, and M.Saito. J. Phys. Soc. Japan, **65** (1996), 1182.
- [7] E.F.Shender and S.A.Kivelson. Phys. Rev. Lett., **66** (1991), 2384.
- [8] D.Khomskii, W.Geertsmaa, and M.Mostovoy. Czech.J.Phys., **46 S6** (1996), 3229.
- [9] Akira Oosawa, Toshio Ono, and Hidakazu Tanaka. arXiv:cond-mat/0202004.
- [10] B.Grenier, J.-P.Renard, P.Veillet, et al. Phys. Rev. B, **58** (1998), 8202.
- [11] A.I.Smirnov, V.N.Glazkov, H.-A.Krug von Nidda, et al. Phys. Rev. B, **65** (2002), 174422.
- [12] Л.Н.Булаевский. ЖЭТФ, **43** (1962), 968.
- [13] Л.Н.Булаевский. ЖЭТФ, **44** (1963), 1008.
- [14] Kiyomi Okamoto. J. Phys. Soc. Japan, **56** (1987), 912.

- [15] M.Braden, G.Wilkendorf, J.Lorenzana, et al. Phys. Rev. B, **54** (1996), 1105.
- [16] M.Nishi, O.Fujita, and J.Akimitsu. Phys. Rev. B, **50** (1994), 6508.
- [17] M.Hase, I.Terasaki, and K.Uchinokura. Phys. Rev. Lett., **70** (1993), 3651.
- [18] K.Hirota, D.E.Cox, J.E.Lorenzo, et al. Phys. Rev. Lett., **73** (1994), 736.
- [19] L.P.Regnault, M. Aïn, B. Hennion, et al. Phys. Rev. B, **53** (1996), 5579.
- [20] S.Coad, O.Petrenko, D.McK.Paul, et al. Physica B, **239** (1997), 350.
- [21] S.Katano, O.Fujita, J.Akimitsu, et al. Phys. Rev. B, **57** (1998), 10280.
- [22] T.Masuda, I.Tsukada, K.Uchinokura, et al. Phys. Rev. B, **61** (2000), 4103.
- [23] М.И.Белинский, Б.С.Цукерблат, А.В.Аблов. ФТТ, **16** (1974), 989.
- [24] V.N.Glazkov, A.I.Smirnov, O.A.Petrenko, et al. J.Phys.: Cond.Matt., **10** (1998), 7879.
- [25] P.W.Anderson. J. Phys. Soc. Japan, **9** (1954), 316.
- [26] С.А.Альтшулер, Б.М.Козырев. Электронный парамагнитный резонанс соединений элементов промежуточных групп. Наука, Москва (1972).
- [27] T.Nagamiya, K.Yosida, and R.Kubo. Adv. Phys., **13** (1955).
- [28] C.Yasuda, S.TODO, M.Matsumoto, et al. Phys. Rev. B, **64** (2001), 092405.