

МАГНИТНЫЙ РЕЗОНАНС В РАЗБАВЛЕННОМ КВАЗИОДНОМЕРНОМ АНТИФЕРРОМАГНЕТИКЕ $\text{CsNi}_{1-x}\text{Mg}_x\text{Br}_3$

*Л. А. Прозорова**, *Г. В. Пупков*, *С. С. Сосин*, *С. В. Петров*

*Институт физических проблем им. П. Л. Капицы Российской академии наук
117334, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 5 сентября 2001 г.

Экспериментально исследовано влияние легирования немагнитными ионами Mg^{2+} на низкочастотную ветвь резонанса неколлинеарного квазиодномерного антиферромагнетика CsNiBr_3 . Обнаружено, что слабое разбавление ($x = 2\text{--}4\%$) приводит к существенному понижению (до 15%) резонансной щели и поля спин-флопа. Результаты согласуются с теорией Коренблита и Шендера, в которой показано, что для квазиодномерных разбавленных антиферромагнетиков малым параметром возмущения исходной системы является не концентрация примеси x , а $x\sqrt{J/J'}$, т. е. существует квазиодномерный коэффициент усиления, который в данном случае примерно равен 6.

PACS: 76.50.+g, 75.45.+j

1. ВВЕДЕНИЕ

Введение немагнитных примесей в магнетик приводит к существенному изменению его свойств. Особенно ярко это проявляется в магнитных структурах пониженной размерности, в частности, в квазиодномерных антиферромагнетиках. Теоретически задача о свойствах разбавленных антиферромагнитных цепочек была рассмотрена Булаевским [1]. В этой работе было показано, что при разрыве антиферромагнитных цепочек немагнитными включениями возникают магнитные дефекты (дополнительные степени свободы), связанные с тем, что у половины отрезков цепочек будет нескомпенсированный спин. Возникшие дефекты ведут себя как парамагнитная примесь.

В реальных квазиодномерных антиферромагнетиках при $T < T_N \sim \sqrt{JJ'}$ (J — константа обменного взаимодействия вдоль цепочки, J' — константа межцепочечного взаимодействия) устанавливается трехмерный магнитный порядок. При низких температурах магнитные дефекты, вызванные легированием, перестают быть независимыми и становятся связанными с другими спинами. Это обстоятельство должно повлиять на процесс упорядочения и на все

магнитные свойства системы. Теоретически влияние примеси на свойства квазиодномерного антиферромагнетика было рассмотрено в рамках классического приближения теории спиновых волн при $T = 0$ в работе Коренблита и Шендера [2]. Вычисленные в первом порядке теории возмущений поправки к величинам восприимчивости χ_{\perp} и щели в спектре спиновых волн $\omega(q = 0)$ в зависимости от концентрации примеси x определяются выражениями

$$\begin{aligned} \chi &= \chi(x = 0) \left(1 + \alpha x \sqrt{\frac{J}{J'}} \right), \\ \omega &= \omega(x = 0) \left(1 - \frac{\alpha x}{2} \sqrt{\frac{J}{J'}} \right), \end{aligned} \quad (1)$$

где α — численный коэффициент порядка единицы, зависящий от конфигурации спинов и числа ближайших соседей. Таким образом, малым параметром возмущения является не концентрация примеси x , а $x\sqrt{J/J'}$, т. е. существует «квазиодномерное усиление» влияния примеси.

Имеется ряд экспериментальных работ, в которых наблюдались существенные изменения температуры упорядочения T_N и магнитной восприимчивости при легировании (см., например, [3–5]). Было установлено также [6], что введение ионов Mg^{2+} в

*E-mail: prozorov@kapitza.ras.ru

квазиодномерный антиферромагнетик с неколлинеарной («треугольной») структурой CsNiCl_3 уменьшает энергетическую щель в спектре $\nu_1(H=0)$ (при $x=0.07$ частота антиферромагнитного резонанса в нулевом поле уменьшалась почти вдвое) в соответствии с теоретическими предсказаниями [2]. Однако введение 2–3% примеси Mg в монокристаллы RbNiCl_3 , которые изоморфны CsNiCl_3 , привело к качественно другим результатам [7]: незначительное увеличение щели $\nu_1(H=0)$ сопровождалось появлением дополнительного резонансного поглощения в диапазоне 3–20 ГГц. Полевая зависимость частоты этой дополнительной линии напоминает акустическую ветвь резонанса $\nu_3(H)$, характерную для треугольных структур с сильной легкоосной анизотропией. Заметим, что для чистого RbNiCl_3 резонансное поглощение в этом диапазоне частот отсутствует, а оценка частоты $\nu_3(H=0)$ составляет всего лишь 0.5 ГГц. Для объяснения этого странного явления было предположено, что введенные в RbNiCl_3 ионы Mg^{2+} не попадают в узлы решетки, что приводит к сильным искажениям и возникновению дополнительной анизотропии, увеличивающей частоты колебаний ν_1 и ν_3 . Это предположение подтверждается тем фактом, что не удается вырастить монокристаллы $\text{RbNi}_{1-x}\text{Mg}_x\text{Cl}_3$ с концентрацией Mg более чем 3%. Поэтому представляло несомненный интерес исследовать влияние примеси замещения на резонансные частоты в других треугольных квазиодномерных антиферромагнетиках, у которых ветвь колебаний ν_3 заведомо лежит в СВЧ-диапазоне, и выяснить, как она изменяется при введении примеси.

В качестве объекта исследований был выбран CsNiBr_3 , изучению магнитных свойств которого посвящен ряд экспериментальных работ (см., например, [8–10]). Согласно этим работам, при $T < T_N \sim 12$ К происходит трехмерное магнитное упорядочение и возникает, как в CsNiCl_3 и RbNiCl_3 , плоская «треугольная» магнитная структура, причем спиновая плоскость перпендикулярна базисной плоскости кристалла. Акустические ветви колебаний при $H \parallel C_6$, $H < H_c$ описываются следующими формулами (см. работы [11, 12]):

$$\begin{aligned} \nu_1^2 &= \gamma^2(\eta H_c^2 + H^2), \\ \nu_2^2 &= 0, \\ \nu_3^2 &= \eta \Delta_3^2 \frac{H_c^2 - H^2}{\eta H_c^2 + H^2} \left[1 - \left(\frac{H}{H_c} \right)^2 \right]^3, \end{aligned} \quad (2)$$

где

$$\eta = (\chi_{\parallel} - \chi_{\perp})/\chi_{\perp}, \quad \Delta_3 \sim \nu_1(H=0) \frac{D}{J},$$

H_c — поле спин-флопа, $H_c^2 = D/(\chi_{\parallel} - \chi_{\perp})$, D — константа легкоосной анизотропии.

При $H \perp C_6$ первые две ветви являются корнями биквадратного уравнения

$$\nu^4 - \nu^2(H^2 + \eta H_c^2 + \eta^2 H^2) + \gamma^2 \eta^2 H^2 (H_c^2 + H^2) = 0, \quad (3)$$

а третья не зависит от поля.

2. МЕТОДИКА И ОБРАЗЦЫ

Исследования антиферромагнитного резонанса проводились на СВЧ-спектрометрах прямого усиления. Измерения проводились при гелиевых температурах в интервале частот 9–36 ГГц и в полях до 65 кЭ.

Монокристаллы CsNiBr_3 выращивались аналогично монокристаллам CsMnBr_3 [13]. Для получения монокристаллов твердых растворов $\text{CsNi}_{1-x}\text{Mg}_x\text{Br}_3$ применялся следующий метод. В кварцевую ампулу помещались монокристаллы CsNiBr_3 и металлический магний 1–2% (по весу) в виде стружки. Ампула откачивалась, запаивалась. Осторожным нагреванием ампулы горелкой инициировалась реакция $\text{CsNiBr}_3 + \text{Mg} = \text{CsMgBr}_3 + \text{Ni}$. Затем содержимое ампулы расплавлялось и перемешивалось. Ампула помещалась в печь для выращивания монокристалла. Согласно нашим наблюдениям, CsMgBr_3 плавится при более низкой температуре, нежели CsNiBr_3 , и потому верхняя часть полученного монокристалла богаче магнием, чем нижняя. Примесь образовавшегося металлического никеля росту кристалла не мешает. Содержание Mg в отобранных для измерений образцах определялось при помощи γ -активационного анализа [6].

3. РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТА

На рис. 1 приведены примеры записей резонансных линий для чистого и легированного CsNiBr_3 при $T = 1.3$ К в поле, направленном параллельно оси C_6 . Отчетливо видно, что при легировании резонансная линия, соответствующая моде ν_3 , в несколько раз уширяется и сдвигается в сторону меньших полей. Поглощение в полях больших H_c в области ветви ν_2 не наблюдалось ни на одной из измерительных частот. Мы не приводим соответствующие записи при $H \perp C_6$, поскольку в этой ориентации ветвь

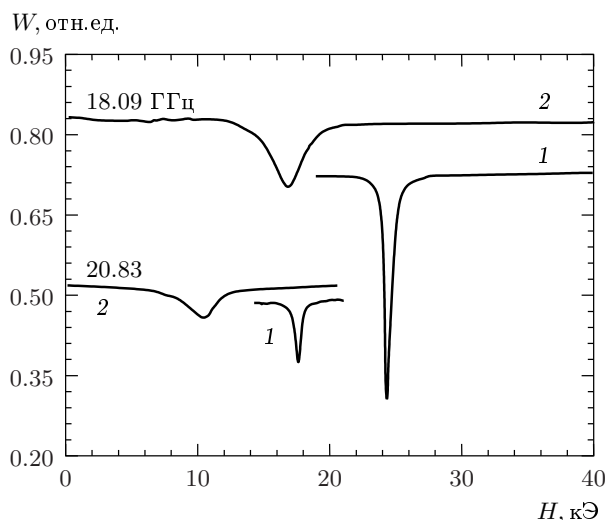


Рис. 1. Линии поглощения СВЧ-сигнала в чистом (1) и разбавленном (2) CsNiBr₃ на различных частотах. Концентрация примеси в разбавленном веществе $x = 0.04$, $T = 1.3$ К

ν_3 наблюдать невозможно из-за отсутствия дисперсии по полю, а влияние примеси на ветвь ν_2 практически отсутствовало. На рис. 2 приведены результаты наших измерений зависимостей $\nu_2(H)$ и $\nu_3(H)$ для чистых монокристаллов и монокристаллов с примесью ионов Mg²⁺ с концентрациями $x = 0.02$ и 0.04 при направлениях поля $H \parallel C_6$ и $H \perp C_6$. Сплошными линиями приведены результаты расчетов по формулам (2), (3) с параметрами $\eta = 0.75$, $H_c = 75.3, 64.0, 53.4$ кЭ, $\Delta_3 = 25.3, 23.9, 22.1$ ГГц соответственно при $x = 0, 0.02, 0.04$. На вставке приведены зависимости относительного изменения Δ_3 и H_c от концентрации примеси, а также их линейные подгонки с коэффициентами 3 и 7, первый из которых определяет согласно формуле (1) величину квазиодномерного усиления влияния примеси. В данном случае этот параметр примерно равен 6:

$$Q = \frac{2}{x} \left(\frac{\Delta_3(0)}{\Delta_3(x)} - 1 \right) = \alpha \sqrt{\frac{J}{J'}} \approx 6. \quad (4)$$

Отметим, что величины H_c , определяемые из наших подгонок для всех образцов, оказываются меньше реального поля опрокидывания спиновой плоскости H_{sf} . Например, поле спин-флопа, определенное по результатам магнитостатических измерений чистого CsNiBr₃ [8] составляет примерно 90 кЭ. Вероятно, это объясняется существованием в них двух последовательных спин-переориентационных переходов, как это наблюдалось в другом квазиодномерном легкоосном треугольном антиферромагне-

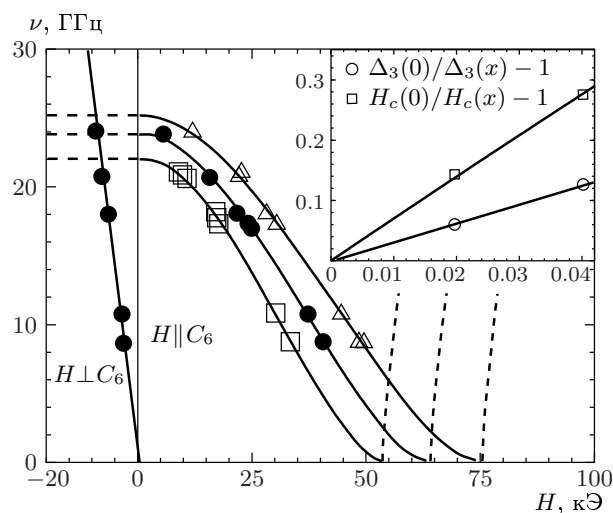


Рис. 2. Зависимость резонансных частот $\nu_{2,3}$ от магнитного поля для CsNi_{1-x}Mg_xBr₃ при $T = 1.3$ К: Δ — $x = 0$; \bullet — $x = 0.02$, \square — $x = 0.04$, линии — расчет по формулам (2), (3) (штрихи — не наблюдается экспериментально). На вставке — относительное изменение параметров Δ_3 и H_c от концентрации примеси с учетом линейных подгонок

тике CsMnJ₃ [14]. Полевая зависимость $\nu_3(H)$ при $H < H_c$ в этом случае довольно слабо отличается от полученной из формулы (2), однако ветвь ν_3 смягчается в обеих точках. При этом в результате подгонки определяется поле первого перехода. На это также указывает отсутствие резонансного поглощения в полях $H > H_c$ в образце с $x = 0.04$, несмотря на то что расчетные значения резонансных полей, соответствующих ветвям ν_1 и ν_2 , лежат внутри доступного нам экспериментального диапазона. Как показывают наши результаты, влияние примеси на поле H_c оказывается в два раза сильнее, чем на величину щели Δ_3 , что, возможно, является следствием расширения промежуточной области $H_c < H < H_{sf}$ за счет легирования. Зависимости $\nu_3(H)$ при отклонении магнитного поля от рациональных направлений также хорошо описываются теоретическими формулами [12]. Таким образом, можно сделать заключение, что при слабом легировании тип магнитного упорядочения сохраняется и наблюдаемое уменьшение резонансной щели и критического поля с увеличением концентрации примеси качественно соответствует теории [2].

Для проведения количественного сравнения необходимо определить отношение J/J' из других экспериментов. Величина J может быть рассчитана из результатов магнитостатических измерений (со-

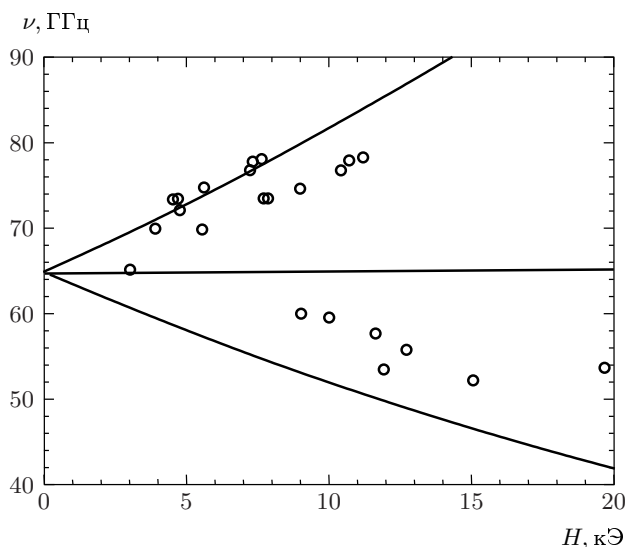


Рис. 3. Зависимость частоты резонансного поглощения от магнитного поля при $T = 1.3$ К для $\text{CsNi}_{0.74}\text{Mg}_{0.26}\text{Br}_3$. Линии — теоретическая зависимость для спинового стекла, вычисленная по формуле (5)

гласно [8] $J = 17$ К) или из спектра возбуждений, полученного с помощью неупругого рассеяния нейтронов (из [9] следует, что $J = 22$ К). Расхождение в величинах J , полученных из разных экспериментов, составляет 20% (при расчетах мы принимали, что $J = 20$ К). Константу J' можно вычислить, используя экспериментальное значение $\nu_3(H)$. Из наших данных с учетом результатов работы [10] следует, что $J' = 1.3$ К.

Таким образом, экспериментально наблюдаемый квазиодномерный коэффициент усиления для CsNiBr_3 близок к оценке, которая может быть получена из приведенных выше данных для J и J' . Имеющееся расхождение может объясняться как за счет отличия коэффициента α от единицы, так и за счет ошибок при определении параметров J и J' , неизбежных при описании квазиодномерных магнитных систем в рамках классического приближения теории спиновых волн. Следует отметить, что учет вклада нулевых колебаний в намагниченность и спектр спиновых волн явился бы превышением точности при сравнении с результатами теории [2].

При сильном разбавлении вид спектра изменяется. На рис. 3 приведены экспериментальные данные для $\text{CsNi}_{0.74}\text{Mg}_{0.26}\text{Br}_3$. Этот спектр близок к характерному для поперечно-поляризованных резонансных мод спинового стекла [15]:

$$\nu_{1,2} = \sqrt{\Delta^2 + \left(\frac{\gamma H}{2}\right)^2} \pm \frac{\gamma H}{2}. \quad (5)$$

Теоретическая зависимость $\nu_{1,2}(H)$ для спинового стекла с $\Delta = 65$ ГГц и $\gamma = 3$ ГГц/кЭ изображена на этом же графике сплошными линиями. Однако для окончательного утверждения, что в данном случае образуется спиновое стекло, требуются дополнительные исследования.

Авторы пользуются случаем выразить благодарность Ю. М. Ципенюку за проведение γ -активационного анализа образцов. Работа выполнена при частичной поддержке РФФИ (проект 00-02-170317), а также INTAS (грант 99-0155) и CRDF (грант RP1-2097).

ЛИТЕРАТУРА

1. Л. Н. Булаевский, ФТТ **11**, 1132 (1969).
2. I. Ya. Korenblit and E. F. Schender, Phys. Rev. **48**, 9478 (1993).
3. C. Dupas and J. P. Renard, Phys. Rev. B **18**, 401 (1978).
4. D. Visser, A. Harrison, and D. J. McIntyre, J. de Phys. **49**, Suppl. an № 121, c8-1255 (1988).
5. J. Chadwick, D. H. Jones, J. A. Johnson et al., J. Phys.: Condens. Matter **1**, 6731 (1989).
6. С. С. Сосин, И. А. Зализняк, Л. А. Прозорова и др., ЖЭТФ **112**, 209 (1997).
7. М. Е. Житомирский, О. А. Петренко, С. В. Петров и др., ЖЭТФ **108**, 343 (1995).
8. R. Brenner, E. Ehrenfreund, H. Shechter et al., J. Phys. Chem. Sol. **38**, 1023 (1977).
9. K. Kakurai, Physica B **180–181**, 153 (1992).
10. T. Kambe, H. Tanaka, Sh. Kimura et al., J. Phys. Soc. Jap. **65**, 1799 (1996).
11. И. А. Зализняк, В. И. Марченко, С. В. Петров и др., Письма в ЖЭТФ **47**, 172 (1998).
12. С. И. Абаржи, М. Е. Житомирский, О. А. Петренко и др., ЖЭТФ **104**, 3232 (1993).
13. И. А. Зализняк, Л. А. Прозорова, С. В. Петров, ЖЭТФ **97**, 359 (1990).
14. В. И. Марченко, А. М. Тихонов, ЖЭТФ **68**, 844 (1998).
15. А. Ф. Андреев, В. И. Марченко, УФН **130**, 39 (1980).