

05,02

Ферромагнитный резонанс в геликоидальном магнетике $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$

© Ф.Б. Мушенок

Институт проблем химической физики РАН,
Черноголовка, Московская обл., Россия

E-mail: mushenokf@yandex.ru

(Поступила в Редакцию 14 мая 2013 г.)

В геликоидальном магнетике $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$ методом ферромагнитного резонанса исследованы высокочастотные спиновые возбуждения. Разделены вклады однородной и голдстоуновской мод спиновой прецессии. Показано, что резонансное поле однородной моды определяется одноосной магнитокристаллической анизотропией. Конечные значения энергии и резонансного поля голдстоуновской моды обусловлены магнитокристаллической анизотропией шестого порядка в базальной плоскости.

Работа выполнена при финансовой поддержке гранта РФФИ № 12-02-31372.

1. Введение

Магнитоупорядоченные материалы с модулированной магнитной структурой являются объектом пристального изучения [1]. За время исследования этих соединений было обнаружено множество новых физических явлений, таких как скирмионная решетка [2], топологический эффект Холла [3], нелинейные спиновые возбуждения [4,5] и т.д. Зависимость спектра спиновых возбуждений модулированной магнитной структуры от ее типа и параметров является одним из важнейших вопросов. Ответ на этот вопрос позволит лучше понять статические магнитные и электротранспортные свойства материалов с модулированными магнитными структурами. В настоящее время наиболее изученными являются кубические гелимагнетики MnSi , FeGe , $\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Si}$, $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ [6–8]. Изучение высокочастотных магнитных свойств этих соединений позволило обнаружить новые типы спиновых возбуждений (такие как „дышащие моды“ скирмионов [9]), отсутствующие в соразмерных структурах.

В настоящей работе рассмотрены спиновые возбуждения другого класса модулированных магнитных структур — простой ферромагнитной спирали. Целью работы является исследование высокочастотных спиновых возбуждений в геликоидальном магнетике $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$ и установление роли магнитокристаллической анизотропии в формировании спектра спиновых возбуждений.

Кристаллическая структура $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$ (пространственная группа $R\bar{6}_32'$) образована чередующимися слоями ионов ниобия, которые расположены в плоскости ab и разделены двумя слоями ионов серы [10]. Интеркалированные ионы хрома Cr^{3+} занимают упорядоченные позиции между слоями серы, образуя кристаллическую сверхструктуру $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$. Ниже температуры Кюри $T_c = 128$ К конкуренция симметричного и антисимметричного обменных взаимодействий, а также влияние одноосной магнитной анизотропии типа „легкая плоскость“ приводят к образованию геликоидальной магнитной структуры. В такой структуре магнитные

моменты ионов Cr^{3+} (спин $S = 3/2$), принадлежащих одному слою, упорядочены ферромагнитно и лежат в плоскости ab . При перемещении вдоль кристаллографической оси c ориентация намагниченности отдельных слоев изменяется по закону $\varphi = Q_0 z$, где φ — угол между вектором намагниченности и осью a . Волновой вектор магнитной структуры $Q_0 = 0.013 \text{ \AA}^{-1}$ (при $H = 0$) соответствует ~ 40 периодам кристаллической решетки [11,12]. Приложение магнитного поля перпендикулярно оси c (и вектору \mathbf{Q}) приводит к образованию магнитной солитонной решетки (МСР), состоящей из участков соразмерной фазы ($\varphi = 2\pi n$, где n — целое число), разделенных солитонами — участками скачкообразного изменения угла φ на 2π . Такая структура описывается солитонным решением уравнения синус-Гордона

$$\cos[\varphi(z)/2] = \text{sn}(2Kz/L), \quad (1)$$

где $L = 8KE/\pi Q_0$ — период МСР (расстояние между двумя соседними солитонами), K, E — полные эллиптические интегралы первого и второго рода с эллиптическим модулем $\kappa \in [0; 1]$. Величина эллиптического модуля определяется условием $\sqrt{H/H_c} = \kappa/E(\kappa)$. Период L логарифмически возрастает с увеличением магнитного поля H , и при некотором критическом значении H_c МСР переходит в соразмерную ферромагнитную структуру ($L \rightarrow \infty$). Для монокристаллических образцов $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$ критическое поле H_c составляет ~ 1.3 кОе [10].

2. Методика эксперимента

Поликристаллический образец $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$ был получен путем спекания смеси исходных компонентов в вакууме при 800°C [10]. Непрозрачные монокристаллы $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$ с естественной огранкой были выращены методом химического транспорта в атмосфере йода при градиенте температур $T = 950\text{--}800^\circ\text{C}$. Кристаллическая структура полученных кристаллов определена с помощью монокристаллического рентгеновского дифрактометра P4 BRUKER. Параметры элементарной ячейки

($a = b = 5.73 \text{ \AA}$, $c = 12.05 \text{ \AA}$, $\alpha = \beta = 90^\circ$, $\gamma = 120^\circ$) хорошо согласуются с результатами работ других авторов [10,11].

Для получения температурных и полевых зависимостей магнитного момента образца был использован СКВИД-магнитометр MPMS 5XL с диапазоном изменения магнитного поля $H = 0\text{--}5 \text{ Т}$ и диапазоном изменения температуры $T = 2\text{--}300 \text{ К}$. Температурные и ориентационные зависимости спектров электронного спинового резонанса получены с помощью ЭПР-спектрометра Bruker EMX X-диапазона ($\sim 9.5 \text{ GHz}$) с прямоугольным резонатором TE₁₀₂ и частотой модуляции магнитного поля 100 kHz . Спектры ЭПР записывались в виде зависимости первой производной мнимой части магнитной восприимчивости по магнитному полю $d\chi''/dH$ от величины магнитного поля, варьировавшегося от 0 до 20 кОе. Температура образца поддерживалась с помощью криосистемы Oxford Intelligent 503 в диапазоне $T = 4\text{--}300 \text{ К}$ с точностью $\pm 0.1 \text{ К}$.

3. Экспериментальные результаты и обсуждение

В диапазоне $T = 300\text{--}150 \text{ К}$ температурная зависимость намагниченности описывается законом Кюри–Вейсса. С понижением температуры ниже 130 К происходит резкое возрастание намагниченности, что обусловлено переходом в магнитоупорядоченное состояние. При ориентации магнитного поля перпендикулярно кристаллографической оси c ($\mathbf{H} \perp \mathbf{c}$) намагниченность M достигает значения 23 emu/g при $T = 2 \text{ К}$, что близко к расчетному значению намагниченности насыщения для ионов Cr^{3+} со спином $S = 3/2$ (рис. 1). В области низких температур $T = 2\text{--}40 \text{ К}$ зависимость $M(T)$ хорошо описывается законом Блоха

$$M_s(T) = M_{s0}[1 - BT^{3/2}], \quad (2)$$

где M_s — намагниченность насыщения, M_{s0} — намагниченность насыщения при $T \rightarrow 0$, $B = 0.00047 \text{ K}^{2/3}$ — константа, зависящая от типа кристаллической структуры и обменного взаимодействия. При ориентации $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$ намагниченность M значительно меньше, чем в случае ориентации $\mathbf{H} \perp \mathbf{c}$, и слабо зависит от температуры. Аналогичные зависимости $M(T)$ были получены ранее в работах [10,11]. Это подтверждает, что полученное соединение действительно является гелимагнетиком с анизотропией „легкая плоскость“.

Спектр ферромагнитного резонанса (ФМР) в ориентации $\mathbf{H} \perp \mathbf{c}$, $\mathbf{h} \perp \mathbf{Q}$ (где \mathbf{h} — вектор напряженности микроволнового магнитного поля) при $T = 5 \text{ К}$ состоит из двух линий: интенсивной линии I в области $\sim 500 \text{ Oe}$ и слабой линии II в области $\sim 50 \text{ Oe}$ (рис. 2). Резонансное поле линии I $H_{\text{res,I}}$ практически не зависит от температуры при $T = 5\text{--}50 \text{ К}$ и плавно возрастает до $\sim 3.2 \text{ kOe}$ в диапазоне $T = 50\text{--}130 \text{ К}$ (рис. 3). Выше 150 К линия I не наблюдается.

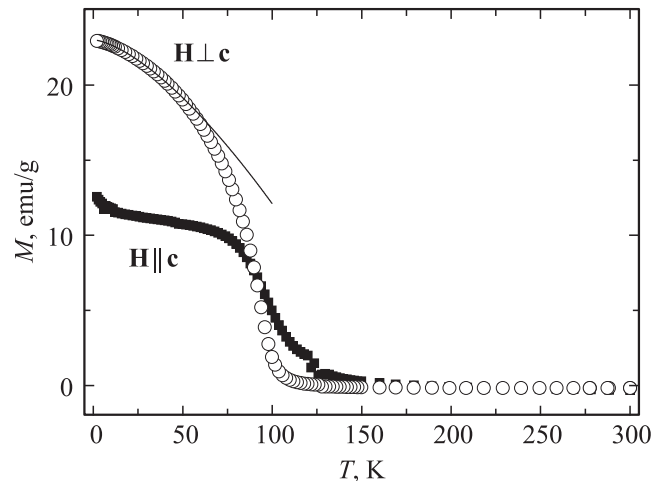


Рис. 1. Температурные зависимости намагниченности монокристалла $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$ в ориентациях $\mathbf{H} \perp \mathbf{c}$ и $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$, $H = 10 \text{ kOe}$.

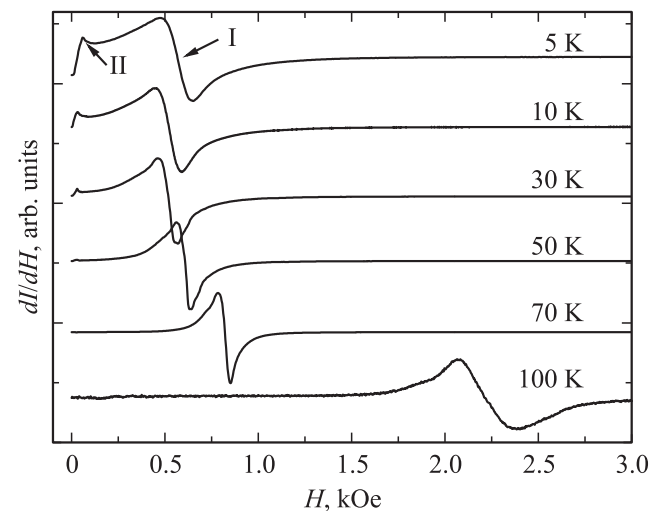


Рис. 2. Спектры ферромагнитного резонанса монокристалла $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$ при различных температурах, $\mathbf{H} \perp \mathbf{c}$, $\mathbf{h} \perp \mathbf{c} \perp \mathbf{Q}$. Спектры эквидистантно сдвинуты вдоль оси ординат.

Линия II с ростом температуры смещается в область меньших магнитных полей, ее амплитуда убывает, и при $T \sim 70 \text{ К}$ эта линия становится неразличимой (рис. 3, за резонансное поле $H_{\text{res,II}}$ принималось положение максимума этой линии). На магнитной фазовой диаграмме монокристаллов $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$ в этом диапазоне полей отсутствуют аномалии или фазовые переходы [13]. Поэтому линия II не может соответствовать нерезонансному изменению поглощаемой мощности в результате фазовых переходов, индуцированных магнитным полем. Следовательно, эта линия является резонансным откликом монокристаллов $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$. Отметим, что нами были получены сходные спектры ФМР на нескольких кристаллах $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$. Это позволяет также исключить соответствие линии II случайным примесям или аппаратным артефактам. В ориентации $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$ при температурах $T = 5\text{--}130 \text{ К}$ в диапазоне $H = 0\text{--}20 \text{ kOe}$

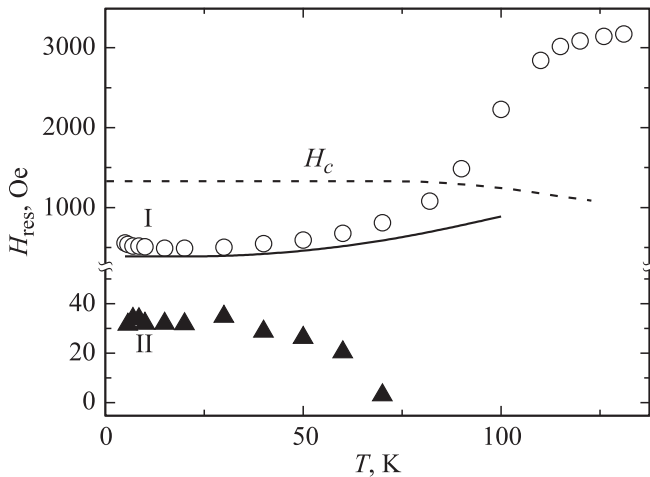


Рис. 3. Температурные зависимости резонансных полей линий I и II. $\mathbf{H} \perp \mathbf{c}$, $\mathbf{h} \perp \mathbf{c} \perp \mathbf{Q}$. Сплошной линией показана расчетная зависимость резонансного поля однородной моды. Штриховой линией показано примерное значение критического поля H_c [11].

спектры ФМР не содержали линий, превосходящих фон спектрометра.

Рассмотрим возможные источники линий I и II. Обе линии наблюдаются в полях, меньших, чем критическое поле $H_c \sim 1.3$ кОе. Следовательно, они соответствуют спиновым возбуждениям на хиральной геликоидальной структуре или магнитной солитонной решетке. Дисперсия спиновых возбуждений в таких структурах описывается выражением [14–16]

$$\hbar\omega_{\mathbf{q}} = 2S \times \sqrt{[J(\mathbf{Q}) - 0.5J(\mathbf{Q}+\mathbf{q}) - 0.5J(\mathbf{Q}-\mathbf{q})][J(\mathbf{Q}) - J(\mathbf{q}) + D]}, \quad (3)$$

где \mathbf{q} — волновой вектор спиновых возбуждений в лабораторной системе координат, \mathbf{Q} — волновой вектор магнитной структуры, $S = 3/2$ — спин ионов Cr^{3+} , $J(x)$ — соответствующие компоненты Фурье-преобразования обменного взаимодействия, D — параметр магнитной анизотропии в базальной плоскости. В общем случае высокочастотное магнитное поле \mathbf{h} может приводить к возбуждению трех различных мод с волновыми векторами $\mathbf{q} = 0, \pm\mathbf{Q}$ [16]. Согласно уравнению (3), энергия $\hbar\omega_0$ однородной моды ($\mathbf{q} = 0$) равна нулю. Конечное значение $\hbar\omega_0$, необходимое для обнаружения этой моды методом ФМР, может быть индуцировано внешним магнитным полем (как и в случае однородного ФМР). Соответственно резонансное поле H_{res} однородной моды в гелимагнетиках определяется выражением [15]

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 = H_{\text{res}} \left(H_{\text{res}} + \frac{2K_1}{M_s} + 4\pi M_s \right), \quad (4)$$

где $\omega = 2\pi\nu$, $\nu = 9.5$ GHz, γ — гиромагнитное отношение, $M_s = 105$ emu/cm³. Константа одноосной магнитокристаллической анизотропии K_1 равна $1.5 \cdot 10^6$ erg/cm³

при $T = 5\text{--}30$ К и линейно убывает с повышением температуры выше 30 К [11]. На основе уравнения (4) и зависимости $K_1(T)$ была рассчитана температурная зависимость резонансного поля однородной моды (сплошная линия на рис. 3), которая в диапазоне $T = 5\text{--}70$ К с хорошей точностью совпадает с экспериментальной зависимостью $H_{\text{res,I}}(T)$. Следовательно, линия I соответствует однородному резонансу ($\mathbf{q} = 0$) на геликоидальной магнитной структуре, а ее резонансное поле определяется одноосной магнитокристаллической анизотропией K_1 . Отметим, что, согласно уравнению (4), с уменьшением магнитокристаллической анизотропии резонансное поле стремится к значению ω/γ (~ 3.5 кОе для X-диапазона).

Теперь рассмотрим линию II. Кардинальное различие зависимостей $H_{\text{res,I}}(T)$ и $H_{\text{res,II}}(T)$ указывает на принадлежность линий I и II различным модам спиновых возбуждений. Если линия I соответствует моде $\mathbf{q} = 0$, то линия II может отвечать моде $\mathbf{q} = \pm\mathbf{Q}$. Резонансное поле линии II при $T = 5$ К равно 35 Ое, что соответствует эллиптическому модулю $\kappa \sim 6 \cdot 10^{-4}$ и изменению периода L модулированной магнитной структуры менее чем на 0.01%. При столь малом изменении периода магнитная структура может быть рассмотрена как коническая с углом раствора конуса $\theta = \pi/2$. При $J(\mathbf{q}) = J(-\mathbf{q})$ и в пределе нулевого магнитного поля энергия возбуждений $\mathbf{q} = \pm\mathbf{Q}$ равна [15,16]

$$\hbar\omega_{\pm\mathbf{Q}} = S\sqrt{2D\{2J(\mathbf{Q}) - J(0) - J(2\mathbf{Q})\}}. \quad (5)$$

В отсутствие анизотропии D вектор локальной намагниченности осциллирует в направлении, перпендикулярном вектору \mathbf{Q} . Эта мода колебаний является голдстоуновской, и ее энергия $\hbar\omega_{\pm\mathbf{Q}}$ равна нулю [17]. Приложение внешнего магнитного поля практически не влияет на энергию $\hbar\omega_{\pm\mathbf{Q}}$ [15] (в отличие от однородной моды, для которой $\hbar\omega_0 \sim H$). Поэтому мода $\mathbf{q} = \pm\mathbf{Q}$ не может быть обнаружена методом ФМР. Одноосная анизотропия типа „легкая плоскость“ также не влияет на энергию $\hbar\omega_{\pm\mathbf{Q}}$ [17]. Ситуация существенно меняется при наличии анизотропии D в базальной плоскости. В этом случае траектория прецессии вектора намагниченности становится эллиптической. Наличие компоненты, параллельной \mathbf{Q} , приводит к конечному значению $\hbar\omega_{\pm\mathbf{Q}}$, что делает возможным обнаружение этой моды методом ФМР. Отметим, что с убыванием анизотропии D резонансное поле стремится не к ω/γ , а к нулю. Это объясняет аномальную зависимость $H_{\text{res,II}}(T)$. Рост температуры приводит к уменьшению магнитокристаллической анизотропии K_6 шестого порядка в базальной плоскости, энергии $\hbar\omega_{\pm\mathbf{Q}}$ и, следовательно, резонансного поля $H_{\text{res,II}}$. Отметим, что линии ФМР с аналогичными зависимостями $H_{\text{res}}(T)$, соответствующие возбуждениям $\mathbf{q} = \pm\mathbf{Q}$, были обнаружены ранее в кубических гелимагнетиках MnSi [18], FeGe [19] и Fe_{0.8}Co_{0.2}Si [20]. Таким образом, наиболее вероятным источником линии II являются спиновые возбуждения с волновым вектором $\mathbf{q} = \pm\mathbf{Q}$.

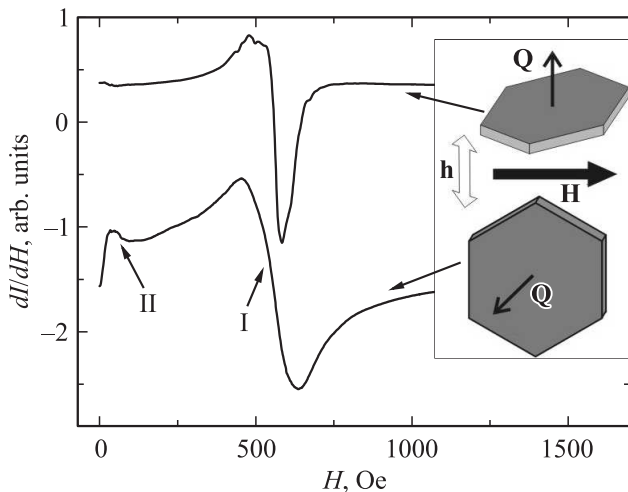


Рис. 4. Спектры ферромагнитного резонанса монокристалла $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$ в ориентациях $\mathbf{h} \perp \mathbf{Q}$ и $\mathbf{h} \parallel \mathbf{Q}$, $T = 5$ К. На вставке показана ориентация кристаллов и вектора модуляции \mathbf{Q} относительно постоянного \mathbf{H} и переменного \mathbf{h} магнитных полей.

Для подтверждения этого предположения был использован следующий факт. Мода $\mathbf{q} = \pm \mathbf{Q}$ возбуждается микроволновым полем \mathbf{h} только в ориентации $\mathbf{h} \perp \mathbf{Q}$ не возбуждаются в ориентации $\mathbf{h} \parallel \mathbf{Q}$ [15,16]. Нами было проведено сравнение спектров ФМР в ориентациях $\mathbf{h} \perp \mathbf{Q}$ (описанных выше) и $\mathbf{h} \parallel \mathbf{Q}$ (рис. 4). При этом постоянное магнитное поле \mathbf{H} всегда было перпендикулярно вектору \mathbf{Q} (см. вставку на рис. 4). Было установлено, что изменение ориентации не влияет на резонансное поле линии I. Этого и следовало ожидать для моды $\mathbf{q} = 0$, резонансное поле которой определяется только параметрами анизотропии и не зависит от взаимной ориентации векторов \mathbf{h} и \mathbf{Q} . В то же время с изменением ориентации происходит увеличение асимметрии линии I и уменьшение ее ширины „от пика до пика“ в ~ 1.5 раза. Это может быть обусловлено анизотропией параметров спиновой релаксации, определяющих форму и ширину линии ФМР. Линия II с изменением взаимной ориентации векторов \mathbf{h} и \mathbf{Q} практически исчезает. Это полностью совпадает с ожидаемой ориентационной зависимостью и подтверждает предположение, что линия II соответствует моде $\mathbf{q} = \pm \mathbf{Q}$. Таким образом, температурная зависимость резонансного поля линии II $H_{\text{res,II}}(T)$, а также зависимость ее интенсивности от взаимной ориентации векторов \mathbf{h} и \mathbf{Q} указывают на то, что эта линия соответствует спиновым возбуждениям с волновыми векторами $\mathbf{q} = \pm \mathbf{Q}$.

4. Заключение

Методом ферромагнитного резонанса исследованы высокочастотные спиновые возбуждения в хиральном гелимагнетике $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$. В геликоидальной фазе обнаружены две линии ФМР с различной температурной зависимостью резонансного поля. Установлено, что ли-

ния I соответствует однородному резонансу на геликоидальной структуре (волновой вектор $\mathbf{q} = 0$). Резонансное поле этой линии определяется одноосной магнитокристаллической анизотропией. Линия II соответствует возбуждению голдстоуновской моды с волновым вектором $\mathbf{q} = \pm \mathbf{Q}$. Конечное значение энергии моды $\mathbf{q} = \pm \mathbf{Q}$ обусловлено магнитокристаллической анизотропией шестого порядка в базальной плоскости. Впервые экспериментально продемонстрировано, что эффективное возбуждение моды $\mathbf{q} = \pm \mathbf{Q}$ происходит только в том случае, когда вектор микроволнового магнитного поля \mathbf{h} перпендикулярен волновому вектору магнитной структуры \mathbf{Q} .

Автор выражает благодарность М. Farle за поддержку и проявленный интерес к работе, Н.С. Ованесяну за плодотворные обсуждения и Г.В. Шилову за проведение рентгеноструктурного анализа.

Список литературы

- [1] Ю.А. Изюмов. УФН **144**, 439 (1984).
- [2] X.Z. Yu, Y. Onose, N. Kanazawa, J.H. Park, J.H. Han, Y. Matsui, N. Nagaosa, Y. Tokura. Nature **465**, 901 (2010).
- [3] M. Lee, W. Kang, Y. Onose, Y. Tokura, N.P. Ong. Phys. Rev. Lett. **102**, 186 601 (2009).
- [4] Ф.Б. Мушенок, М.В. Кирман, О.В. Коплак, Р.Б. Моргунов. ФТТ **54**, 1281 (2012).
- [5] R.B. Morgunov, F.B. Mushenok, O. Kazakova. Phys. Rev. B **82**, 134 439 (2010).
- [6] U. Rößler, A.A. Leonov, A.N. Bogdanov. J. Phys.: Conf. Ser. **303**, 012 105 (2011).
- [7] С.М. Стишов, А.Е. Петрова. УФН **181**, 1157 (2011).
- [8] H. Wilhelm, M. Baenitz, M. Schmidt, U.K. Rößler, A.A. Leonov, A.N. Bogdanov. Phys. Rev. Lett. **107**, 127 203 (2011).
- [9] Y. Onose, Y. Okamura, S. Seki, S. Ishiwata, Y. Tokura. Phys. Rev. Lett. **109**, 037 603 (2012).
- [10] S.S.P. Parkin, R.H. Friend. Phil. Mag. B **41**, 65 (1980).
- [11] T. Miyadai, K. Kikuchi, H. Kondo, S. Sakka, M. Arai, Y. Ishikawa. J. Phys. Soc. Jpn. **52**, 1394 (1983).
- [12] Y. Togawa, T. Koyama, K. Takayanagi, S. Mori, Y. Kousaka, J. Akimitsu, S. Nishihara, K. Inoue, A.S. Ovchinnikov, J. Kishine. Phys. Rev. Lett. **108**, 107 202 (2012).
- [13] N.J. Ghimire, M.A. McGuire, D.S. Parker, B. Sipo, S. Tang, J.-Q. Yan, B.C. Sales, D. Mandrus. Phys. Rev. B **87**, 104 403 (2013).
- [14] Ю.А. Изюмов. Дифракция нейтронов на длиннопериодических структурах. Энергоатомиздат, М. (1987). 200 с.
- [15] B.R. Cooper, R.J. Elliot. Phys. Rev. **131**, 1043 (1963).
- [16] T. Nagamiya. Solid state physics / Eds F. Seitz, D. Turnbull, H. Ehrenreich. Academic Press, N. Y. (1967). V. 20. P. 30.
- [17] В.Г. Барьяхтар, А.И. Жуков, Д.А. Яблонский. ФТТ **21**, 776 (1979).
- [18] M. Date, K. Okuda, K. Kadowaki. J. Phys. Soc. Jpn. **42**, 1555 (1977).
- [19] U. Smith, S. Haraldson. J. Magn. Res. **16**, 390 (1974).
- [20] H. Watanabe. J. Phys. Soc. Jap. **58**, 1035 (1989).