1989 ФИЗИКА ТВЕРДОГО ТЕЛА Том 31, в. 6
1989 SOLID STATE PHYSICS Vol. 31, N 6

УДК 538.115

СПЕКТР СПИНОВЫХ ВОЗБУЖДЕНИЙ В КУБИЧЕСКИХ МАГНЕТИКАХ С КОНКУРИРУЮЩЕЙ АНИЗОТРОПИЕЙ, ОБУСЛОВЛЕННОЙ ЯН-ТЕЛЛЕРОВСКИМИ ПРИМЕСНЫМИ ЦЕНТРАМИ

М. А. Иванов, Л. Д. Фальковская, А. Я. Фишман

Исследован спектр низкочастотных возбуждений магнетика с конкурирующей примесной анизотропией. Найдены закон дисперсии спиновых волн, концентрационная и температурная зависимости предельной частоты в различных областях фазовой диаграммы. Показано, что в угловой фазе возникает бесщелевая мода, а закон дисперсии магнонов характеризуется акустической зависимостью от волнового вектора.

1. Известно, что примесные центры с орбитально вырожденным основным состоянием существенно влияют на магнитную анизотропию и магнитоупругие свойства магнетиков, так как для ян-теллеровских (ЯТ) ионов спин-орбитальное взаимодействие проявляется в более низких порядках теории возмущений по отношению к кристаллическому полю, чем для чисто спиновых центров. В результате, если типы легких осей для спинов матрицы и ЯТ ионов (или для двух классов ЯТ примесей) различаются, то в системе при сравнительно низких концентрациях примесей могут иметь место спин-переориентационные фазовые переходы с образованием, в частности, промежуточной угловой фазы [1–4].

К настоящему времени накоплен сравнительно большой экспериментальный материал по ФМР исследованиям кубических магнетиков с ЯТ ионами [5], в том числе для систем с конкурирующей анизотропией. Для ряда таких магнетиков (со структурой шпинели, граната и ЯТ ионами группы железа) исследованы особенности спектра ФМР в насыщающих магнитных полях. Например, для халькогенидных хромовых шпинелей установлена связь между типом ЯТ ионов и характером угловых зависимостей резонансного поля и ширины линии ФМР, показана перестройка спектра ФМР с изменением концентрации и типа ЯТ центров [6, 7].

Настоящая работа посвящена анализу особенностей спектра спиновых возбуждений магнетика с конкурирующей анизотропией в слабых магнитных полях или в их отсутствие. Рассматриваются магнетики с ЯТ ионами группы железа, основное состояние которых в кубическом кристаллическом поле двукратно вырождено (Е-терм).[1] Найден закон дисперсии спиновых волн, в том числе концентрационная и температурная зависимости предельной частоты. Так, в динамическом пределе эффекта ЯТ в угловой фазе (УФ) возникает бесщелевая мода (в пренебрежении второй константой анизотропии матрицы). При этом в спектре спиновых волн имеется область с акустическим законом дисперсии, которая и стабилизирует состояние УФ.

[1] Фазовые состояния указанных систем были исследованы авторами ранее в работах [3, 4].

2. Гамильтониан кубического магнетика с двукратно вырожденными ЯТ центрами может быть представлен в следующем виде (если пренебречь несущественным при анализе низкочастотных состояний различием спинов и обменных параметров на ионах примеси и матрицы):

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_{\text{прим}},$$

$$\hat{H}_0 = \sum_{\mathbf{k}} \{a_{\mathbf{k}}^+ a_{\mathbf{k}} [\varepsilon_{\mathbf{k}} - 4DS^3(1-5f_0)] + 3DS^3 (f_1 a_{\mathbf{k}} a_{-\mathbf{k}} + f_1^* a_{\mathbf{k}}^+ a_{-\mathbf{k}}^+) +$$
$$+ 2^{3/2} N^{1/2} \delta_{\mathbf{k}0} D S^{7/2} \left(f_2 a_{\mathbf{k}} + f_2^* a_{-\mathbf{k}}^+\right)\},$$

$$\hat{H}_{\text{прим}} = \sum_s \tilde{\omega}_0 \hat{\tau}_{sz} + \tilde{D}_0 (2S)^{3/2} \sum_s \sum_{\mathbf{k}} N^{-1/2} \exp\{i\mathbf{k}\mathbf{R}_s\} \left[\hat{\tau}_{sz}\left(\tilde{f}_2 a_{\mathbf{k}} + \tilde{f}_2^* a_{-\mathbf{k}}^+\right) +\right.$$
$$\left. + \hat{\tau}_{sx}(f_5 a_{\mathbf{k}} + f_5^* a_{-\mathbf{k}}^+)\right] + 2\tilde{D}_0 S \sum_s \sum_{\mathbf{k}\mathbf{k}_1} N^{-1} \exp\{i\mathbf{R}_s\} (\mathbf{k} + \mathbf{k}_1) \times$$
$$\times \left[\hat{\tau}_{sz}\left(f_3 a_{\mathbf{k}} a_{\mathbf{k}_1} + f_3^* a_{-\mathbf{k}}^+ a_{-\mathbf{k}_1}^+ - (1-3f_0)^{1/2} a_{-\mathbf{k}}^+ a_{\mathbf{k}_1}\right) + \hat{\tau}_{sx}\left(f_4 a_{\mathbf{k}} a_{\mathbf{k}_1} + f_4^* a_{-\mathbf{k}}^+ a_{-\mathbf{k}_1}^+\right)\right],$$

$$\hat{\tau}_{sz} = \hat{u}_{E\vartheta,\,s} \cos\varphi + \hat{u}_{E\varepsilon,\,s} \sin\varphi, \quad \hat{\tau}_{sx} = -\hat{u}_{E\vartheta,\,s} \sin\varphi + \hat{u}_{E\varepsilon,\,s}\cos\varphi,$$

$$\tilde{\omega}_0 = 2\,|\tilde{D}_0|\, S^2 (1-3f_0)^{1/2}/3, \quad \cos\varphi = (3\gamma_z^2 - 1)(1-3f_0)^{-1/2}/2,$$

$$f_0 = \sum_{i<j} \gamma_i^2 \gamma_j^2, \quad \tilde{f}_2 = f_2 (1-3f_0)^{-1/2}/2, \quad \hbar = k_{\text{Б}} = 1. \tag{1}$$

Здесь $a_{\mathbf{k}}^+$, $a_{\mathbf{k}}$ — операторы рождения и уничтожения магнонов с волновым вектором $\mathbf{k}$; D, D_0 — параметры одноионной анизотропии для спинов матрицы и примеси; $\hat{u}_{E\mu}$ ($\mu = \vartheta$, ε) — электронные орбитальные операторы; индекс «s» нумерует ЯТ центры; γ_i — направляющие косинусы намагниченности; N — число магнитных атомов в кристалле; функции $f_i \equiv f_i(\gamma)$ с $i = 1-4$ будут приведены позднее.

Рассмотрим случай динамического эффекта ЯТ, когда переход от электронных операторов к вибронным совершается простым домножением параметров перед операторами $\hat{u}_{E\mu}$ на фактор вибронной редукции q ($\tilde{D}_0$, $\tilde{\omega}_0 \to q\tilde{D}_0 = D_0$, $q\tilde{\omega}_0 = \omega_0$) [8]. При этом операторы $\hat{u}_{E\mu}$ в базисе двух стандартных вибронных функций нижайшего дублета имеют вид [8]

$$\hat{u}_{E\vartheta} = \begin{pmatrix} -1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}, \quad \hat{u}_{E\varepsilon} = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}. \tag{2}$$

Аналогичный вид имеют и операторы $\hat{\tau}_z$, $\hat{\tau}_x$, если для базисных функций использовать преобразование поворота на угол $\varphi/2$. Равновесное направление намагниченности системы определяется, как обычно, из условия зануления линейных по магнонным операторам слагаемых в гамильтониане (1)

$$[DS^2 + xD_0 \langle\hat{\tau}_z\rangle (1-3f_0)^{-1/2}/2]\, f_2 = 0,$$
$$\langle\hat{\tau}_z\rangle = -\operatorname{th}(\omega_0/T), \quad f_2 = \sum_i \gamma_i^3 A_i, \tag{3}$$

где $\langle\ldots\rangle$ означает квантовостатистическое среднее, а величины A_i описывают переход от спиновых операторов S_i, определенных в кубическом базисе, к операторам S_ζ, S^+, S^-, связанным с равновесным направлением намагниченности $S_i = \gamma_i S_\zeta + A_i S^+ + A_i^* S^-$ [9]; x — концентрация ЯТ примесей.

Видно, что условие (3) автоматически выполняется для симметричных направлений намагниченности [111], [001] и [110] типа из-за обращения функции f_2 в нуль. Для промежуточных направлений намагниченности в системах с конкурирующей анизотропией выражение (3) представляет уравнение угловой фазы [3]. Поскольку примесная подсистема характеризуется легкими осями (ЛО) [001] типа (расщепление вибронного дублета для этих направлений намагниченности максимально), конкуренция анизотропий имеет место в магнетике с параметром анизотропии $D > 0$, когда первая константа анизотропии матрицы отрицательна ($K_1 =$

$=-2NDS^4<0$) и ЛО матрицы отвечает направлениям [111] типа. С ростом концентрации в УФ происходит поворот вектора намагниченности от тригональной к тетрагональной оси. При этом в случае примесей с динамическим эффектом ЯТ УФ характеризуется единственным параметром $\eta=(1-3f_0)^{1/2}$. Тогда при заданном значении η (или определенных величинах концентрации ЯТ примесей и температуры) имеет место вырождение свободной энергии по направлениям намагниченности с направляющими косинусами γ (γ_x, γ_y, γ_z), при которых $\eta(\gamma)=\eta$. Как следствие этого вырождения в спектре магнонных возбуждений должна наблюдаться бесщелевая мода, а закон дисперсии магнонов должен иметь участок с акустической зависимостью от волнового вектора.

Преобразуем гамильтониан (1), сохраняя в нем слагаемые, описывающие резонансное взаимодействие спиновых волн с двухуровневой системой, и отбрасывая ангармонические члены, пропорциональные $(\hat{\tau}_z-\langle\hat{\tau}_z\rangle)\,a$, $(\hat{\tau}_z-\langle\hat{\tau}_z\rangle)\,aa$ и $\hat{\tau}_x aa$

$$\hat{H}=\sum_{\mathbf{k}}\tilde{\varepsilon}_{\mathbf{k}}a_{\mathbf{k}}^{+}a_{\mathbf{k}}+\sum_{s}\omega_0\hat{\tau}_{sz}+\sum_{\mathbf{k}}\left\{\Delta_1 a_{\mathbf{k}}a_{-\mathbf{k}}/2+N^{-1/2}\sum_{s}\exp\{i\mathbf{k}\mathbf{R}_s\}\,\Delta_2\hat{\tau}_{sx}a_{\mathbf{k}}+\text{э. с.}\right\},\tag{4}$$

$$\tilde{\varepsilon}_{\mathbf{k}}=\varepsilon_{\mathbf{k}}+\varepsilon_0,\quad \varepsilon_0=-4DS^3(1-5f_0)-2xD_0S\langle\hat{\tau}_z\rangle(1-3f_0)^{1/2},$$

$$\Delta_1/2=f_1\left[3DS^3+xD_0S(1-3f_0)^{-1/2}\langle\hat{\tau}_z\rangle/2\right],\quad \Delta_2=D_0(2S)^{3/2}f_5,$$

$$f_1=4\sum_i\gamma_i^2A_i^2,\quad f_5=-A_z\gamma_z\cos\varphi+(A_x\gamma_x-A_y\gamma_y)\sin\varphi/\sqrt{3}.$$

Гамильтониан (4) в каждой из трех областей фазовой диаграммы [3] может быть упрощен благодаря симметрии угловых зависимостей $f_i(\gamma)$. Так, в фазе с ЛО [111] типа тождественно обращаются в нуль параметры η (ω_0, $\langle\hat{\tau}_z\rangle$) и f_1 (Δ_1). В условиях УФ (3) для величины ε_0 и Δ_1 имеем

$$\Delta_1=4DS^3f_1,\quad \varepsilon_0=8DS^3f_0.\tag{5}$$

В фазе с тетрагональными осями легкого намагничивания [001] типа, когда $f_1=f_5=0$ ($\Delta_1=\Delta_2=0$), в гамильтониане (4) остаются лишь два первых слагаемых.

Рассмотрим спектр элементарных возбуждений системы с гамильтонианом (4). Из уравнения движения для Фурье-образа магнонной функции Грина $\langle\langle a_{\mathbf{k}}\mid a_{\mathbf{k}}^{+}\rangle\rangle_\omega$ можно получить

$$\langle\langle a_{\mathbf{k}}\mid a_{\mathbf{k}}^{+}\rangle\rangle_\omega=\left\{\omega^2-\tilde{\varepsilon}_{\mathbf{k}}^2+|\Delta_1|^2-R\left[(\Delta_2^*)^2\Delta_1+\Delta_2^2\Delta_1^*-2\tilde{\varepsilon}_{\mathbf{k}}|\Delta_2|^2\right]\right\}^{-1}(\omega+\tilde{\varepsilon}_{\mathbf{k}}-R|\Delta_2|^2),$$
$$R=4x\langle\hat{\tau}_z\rangle\omega_0(\omega^2-\omega_0^2)^{-1}.\tag{6}$$

При концентрациях x, меньших критической концентрации $x_1(T)=3TDD_0^{-2}$ перехода в УФ, для полюсов гриновской функции (6) имеем

$$\omega_{\mathrm{I}}=\varepsilon_{\mathbf{k}}+{}^8/_3DS^3,\quad \omega_{\mathrm{II}}=\omega_0=0.\tag{7}$$

Таким образом, в фазе с ЛО [111] типа спектр спиновых волн остается неперенормированным, а примесная частота $\omega_0=0$.

В области концентраций, отвечающих УФ

$$x_1(T)\leqslant x\leqslant x_2(T)=2DS^2D_0^{-1}\,\mathrm{cth}\left[2D_0S^2(3T)^{-1}\right],$$

спектр системы определяется следующим уравнением:

$$\omega^2-\varepsilon_{\mathbf{k}}^2-16DS^3f_0\varepsilon_{\mathbf{k}}\left[1+\omega_0^2(\omega^2-4\omega_0^2)^{-1}f_0^{-1}(f_0-9\Phi)(1-3f_0)^{-1}\right]-$$
$$-3(8DS^3)^2\Phi\omega^2(\omega^2-4\omega_0^2)^{-1}=0,\tag{8}$$

где $\Phi\equiv\Phi(\gamma)=\gamma_x^2\gamma_y^2\gamma_z^2$, а функция $f_0(\gamma)=(1-\eta^2)/3$ при заданной температуре однозначно связана с концентрацией ЯТ ионов. В частности, при $T\to 0$ К из (3) имеем $\eta=xD_0(2DS^2)^{-1}$. Область возможных изменений функции $\Phi(\gamma)$ при фиксированной величине параметра УФ лежит в интервалах

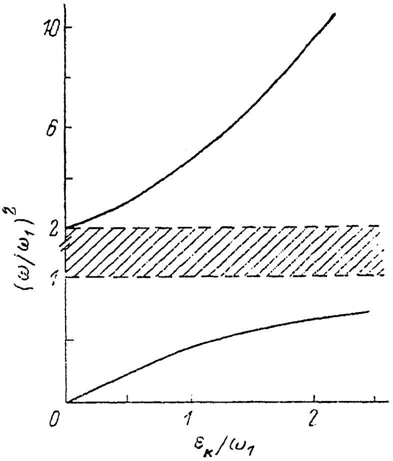
$1-3\eta^2-2\eta^3 \leqslant 27\Phi \leqslant 1-3\eta^2+2\eta^3$ при $0 \leqslant \eta \leqslant 1/2$ и $0 \leqslant 27\Phi \leqslant 1-$ $-3\eta^2+2\eta^3$ при $1/2 \leqslant \eta \leqslant 1$.

В общем случае энергии двух ветвей спектра (магнонов и примесных возбуждений), связанных резонансным взаимодействием, определяются корнями биквадратного уравнения (8)

$$\omega_\pm^2(\mathbf{k}) = [-b \pm (b^2-4c)^{1/2}]/2 = -2c\,[b \pm (b^2-4c)^{1/2}]^{-1},$$
$$-b = 4\omega_0^2 + 27\omega_1^2\Phi + \varepsilon_{\mathbf{k}}^2 + 6\varepsilon_{\mathbf{k}}\omega_1 f_0, \quad c = 4\omega_0^2\varepsilon_{\mathbf{k}}\,[\varepsilon_{\mathbf{k}} + \omega_1 G(\gamma)],$$
$$G(\gamma) = 9\,(f_0 - 4f_0^2 + 3\Phi)\,(1-3f_0)^{-1}/2, \quad \omega_1 = 8DS^3/3, \tag{9}$$

где ω_1 — энергия щели в затравочном спектре магнонов. Видно, что при $\mathbf{k}=0$ решениям (9) отвечают бесщелевая мода для магнонов с $\omega_-(\mathbf{k}=0)=0$ и перенормированная энергия примесных возбуждений $\omega_+(\mathbf{k}=0)=(4\omega_0^2+$ $+27\omega_1^2\Phi)^{1/2}$. При этом последняя зависит через функцию $\Phi(\gamma)$ от направления намагниченности на гиперповерхности, отвечающей заданному значению параметра УФ (т. е. фиксированным величинам x и T).

При $\mathbf{k}\neq 0$ низкочастотная магнонная ветвь $\omega_-(\mathbf{k})$ характеризуется наличием области с акустическим законом диспер-



Дисперсионные зависимости спектра элементарных возбуждений в УФ.

Заштрихованная область отвечает запрещенной зоне. Параметр $2\omega_0/\omega_1=1$.

сии. Так, вдали от границы УФ с фазой, отвечающей тригональным ЛО, для энергий указанных возбуждений, полагая $\omega_0 \gg \omega_1$, получаем

$$\omega_-^2(\mathbf{k}) = \varepsilon_{\mathbf{k}}\,(\varepsilon_{\mathbf{k}} + \omega_1 G(\gamma)), \quad \omega_0 > \varepsilon_{\mathbf{k}},$$
$$\omega_-^2(\mathbf{k}) = 4\omega_0^2, \quad \omega_0 < \varepsilon_{\mathbf{k}}. \tag{10}$$

Видно, что ширина области с линейной зависимостью ω от $\mathbf{k}$ (ω^2 от $\varepsilon_{\mathbf{k}}$) оказывается порядка затравочной щели ω_1 в спектре магнонов в широком диапазоне концентраций и температур УФ. При стремлении x и T к границам УФ с фазой, отвечающей тетрагональной ЛО, ширина указанной области стремится к нулю ($G(\gamma) \to 0$, так как $f_0 \to 0$ и $\Phi \to 0$). Характер зависимости скорости звука (пропорциональной $G^{1/2}(\gamma)$) от направления намагниченности в УФ связан с видом изоэнергетических поверхностей в угловом пространстве ($\gamma_x, \gamma_y, \gamma_z$) и определяется величиной соответствующего градиента свободной энергии $F \equiv F(\eta)$. В этом нетрудно убедиться, если преобразовать функцию $G(\gamma)$ к виду $G(\gamma)=(\nabla\eta)^2/2$.

Вблизи границы УФ с фазой, отвечающей тригональным ЛО, где $\omega_0 < \omega_1$, решения (9) могут быть представлены в виде

$$\omega_-^2(\mathbf{k}) = 4\omega_0^2\,(\varepsilon_{\mathbf{k}}^2 + \varepsilon_{\mathbf{k}}\omega_1 G(\gamma))\,(\varepsilon_{\mathbf{k}}^2 + 6\varepsilon_{\mathbf{k}}\omega_1 f_0 + 27\omega_1^2\Phi)^{-1} \approx 4\omega_0^2\varepsilon_{\mathbf{k}}\,(\varepsilon_{\mathbf{k}} + \omega_1)^{-1},$$
$$\omega_+^2(\mathbf{k}) = (\omega_1 + \varepsilon_{\mathbf{k}})^2 + 4\omega_0^2 - \omega_-^2(\mathbf{k}). \tag{11}$$

Видно, что по мере приближения $x \to x_1(T)$ характерный диапазон энергий, где имеет место линейный закон дисперсии, стремится к нулю вместе с ω_0. Однако в отличие от границы с [100] фазой область волновых векторов, для которых имеет место акустический закон дисперсии, определяется значениями $\varepsilon_{\mathbf{k}} \sim \omega_1$, как и внутри области УФ, т. е. не меняется с концентрацией при уменьшении x.

Поведение низкочастотной ветви спектра в области величин $\varepsilon_{\mathbf{k}} > \omega_0$, ω_1 характеризуется асимптотическим приближением энергии возбуждений

$\omega_-(\mathbf{k})$ с ростом $\varepsilon_\mathbf{k}$ к граничному значению $2\omega_0$. Между энергиями $\omega_+(\mathbf{k}=0)=(4\omega_0^2+27\omega_1^2\Phi)^{1/2}$ и $2\omega_0$ в спектре УФ находится запрещенная зона, ширина которой δ падает по мере поворота намагниченности в УФ от тригональной оси (где $\delta=\omega_1-2\omega_0$) к тетрагональной (где $\delta=27\omega_1^2\Phi(4\omega_0)^{-1}\to 0$). Типичные дисперсионные зависимости приведены на рисунке.

Рассмотрим теперь выражения для энергий элементарных возбуждений (магнонов и примесных ЯТ переходов) в фазе с тетрагональной ЛО, реализующейся при концентрациях ЯТ ионов $x>x_2(T)$

$$\omega_\mathrm{I}=\varepsilon_\mathbf{k}+\varepsilon_0,\quad \varepsilon_0=3\omega_1[xx_2^{-1}(T)-1]/2,$$
$$\omega_\mathrm{II}=2D_0S^2/3. \tag{12}$$

Ширина щели в указанной фазе линейно растет с концентрацией примесных центров.

В заключение отметим, что в случае примесей со статическим эффектом ЯТ спектр магнонов характеризуется конечной величиной щели, за исключением окрестностей точек фазового перехода второго рода из УФ в фазу с ЛО [001] или [110] типа.

Список литературы

[1] Белов К. П., Звездин А. К., Кадомцева А. М., Левитин Р. З. Ориентационные переходы в редкоземельных магнетиках. М.: Наука, 1979. 320 с.
[2] Иванов М. А., Локтев В. М., Погорелов Ю. Г. // ФНТ. 1985. Т. 11. № 6. С. 620—630.
[3] Иванов М. А., Фишман А. Я. // ФНТ. 1988. Т. 14. № 3. С. 278—288.
[4] Иванов М. А., Фишман А. Я. // ФТТ. 1988. Т. 30. № 9. С. 2761—2763.
[5] Крупичка С. Физика ферритов и родственных им окислов. М.: Мир, 1976. Т. 2. 504 с.
[6] Никифоров К. Г., Пасенко Л. Я., Эмирян Л. М., Гуревич А. Г., Радауцан С. И., Тэзлэван В. Е. // ФТТ. 1985. Т. 27. № 1. С. 229—230.
[7] Nikiforov K. G., Gurevich A. G., Radautsan S. I., Emiryan L. M., Tezlevan V. E. // Phys. St. Sol. (a). 1982. V. 72. N 1. P. K37—K39.
[8] Ham F. S. Electron Paramagnetic Resonance. N. Y., Plenum Press, 1972. P. 1—119.
[9] Тябликов С. В. Методы квантовой теории магнетизма. М.: Наука, 1975. 528 с.

Институт металлургии УрО АН СССР
Свердловск

Поступило в Редакцию
15 ноября 1988 г.