

УДК 537.611.45

## СПЕКТР АФМР И ЭНЕРГЕТИЧЕСКАЯ ЩЕЛЬ РОМБИЧЕСКОГО АНТИФЕРРОМАГНЕТИКА В ОКРЕСТНОСТИ СПИН-ФЛИП ПЕРЕХОДА

*В. Н. Васюков, А. И. Изотов, Ю. Г. Папкевич, В. Т. Телена*

Впервые экспериментально исследована энергетическая щель спектра АФМР в окрестности спин-флип перехода в ромбическом квазидвумерном антиферромагнетике  $(C_2H_5NH_3)_2CuCl_4$ . Получена оценка константы релятивистской магнитострикции.

Экспериментальное исследование спектров магнитного резонанса в области спин-переориентационных фазовых переходов (СПФП) второго рода типа мягкой моды представляет интерес в связи с возможностью обнаружения в точке перехода в спектре колебаний параметра порядка щели, имеющей магнитострикционное происхождение.

Экспериментальные исследования в области СПФП типа поворота магнитной структуры как целого, возникающих при изменении температуры, проводились в работах [1, 2]. В области СПФП типа спин-флип (схлопывание магнитных подрешеток в магнитном поле порядка обменного) такие исследования ранее не проводились.

В настоящей работе экспериментально исследуется энергетическая щель в области спин-флип перехода в ромбическом квазидвумерном антиферромагнетике (АФ)  $(C_2H_5NH_3)_2CuCl_4$ . Теоретически вопрос о существовании стрикционной щели в спектре АФМР в точке спин-флип перехода в антиферромагнетиках различных типов исследовался в работе [3]. Было показано, что если энергетическая щель при спин-флип переходе и возникает, то она в  $\sqrt{H_A/H_B}$  меньше щели, возникающей в области СПФП типа поворота магнитной структуры как целого (например, спин-флип перехода). Здесь  $H_A$ ,  $H_B$  — поля анизотропии и обмена. Тем не менее можно ожидать, что в квазидвумерных антиферромагнетиках с аномальным соотношением между некоторыми константами анизотропии и обмена величина эффекта будет достаточно большой.

Среди низкоразмерных магнетиков кристалл  $(C_2H_5NH_3)_2CuCl_4$  выделяется малой величиной эффективного поля межслоевого обменного взаимодействия и эффективных полей анизотропии.

Подробное исследование частотно-полевой зависимости в поле, параллельном а-оси, являющейся осью легкого намагничивания кристалла, проведено в [4].

Исследование АФМР в окрестности спин-флип перехода при малых частотах, начиная с 0.001 ГГц и выше, проводилось в [5], однако обнаружить область частот, в которой бы отсутствовало поглощение СВЧ мощности, не удалось, что, по-видимому, обусловлено большой крутизной ветви частотно-полевой зависимости спектра АФМР в окрестности поля спин-флип перехода  $H_f$  ( $\partial \nu / \partial H > 14$  ГГц/кЭ). В спин-флип фазе ширина линии магнитного резонанса по полю  $\Delta H$  около 40 Э. Оценка соответствующей ей ширины линии по частоте дает  $\Delta \nu = \Delta H \cdot \partial \nu / \partial H > > 560$  МГц. Если величина магнитоупругой щели  $(C_2H_5NH_3)_2CuCl_4$  по-

рядка сотен мегагерц, то ширина резонансной линии по частоте больше величины магнитоупругой щели и поглощение СВЧ мощности должно наблюдаться во всем частотном диапазоне, вплоть до нулевых частот.

В подобной ситуации одним из возможных путей определения щели в спектре АФМР может быть восстановление аппроксимирующей зависимости частоты АФМР  $\nu(H)$  по экспериментальным значениям резонансных частот и полей (рис. 1). Дело в том, что величина щели определяется значением смягчающихся частот АФМР спин-флор и спин-флип фазы в поле спин-флип перехода  $H_f$ , а формальное обращение в нуль этих частот происходит в полях соответственно выше и ниже поля  $H_f$ . Для решения этой задачи в настоящей работе проведено исследование спектра АФМР  $(C_2H_5NH_3)_2CuCl_4$  вблизи поля спин-флип перехода и в области магнитных полей  $H > H_f$ .

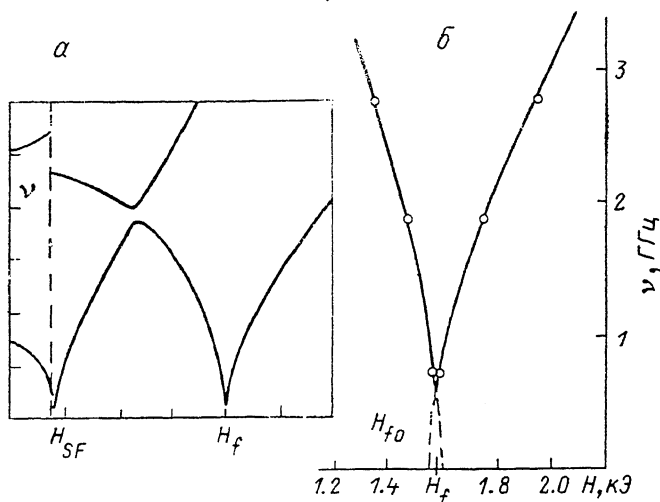


Рис. 1. Частотно-полевая зависимость спектра АФМР  $(C_2H_5NH_3)_2CuCl_4$  в окрестности спин-флип перехода.

Измерение спектра АФМР проведено на спектрометре с коаксиальным резонатором проходного типа со спиральным внутренним проводником, конструкция резонатора аналогична описанной в [6, 7]. Исследование проведено при ориентации постоянного и переменного магнитных полей вдоль осей  $a$  и  $c$  соответственно. Ориентирование направления постоянного магнитного поля относительно кристаллографических осей осуществлялось по спектру АФМР в окрестности поля спин-флор перехода  $H_{SF}$ , где спектр имеет сильную угловую зависимость, что обеспечивало точность ориентации не хуже  $0.5^\circ$ .

В кристалле  $(C_2H_5NH_3)_2CuCl_4$  спин-флор переход является СПФП первого рода, а спин-флип СПФП является фазовым переходом второго рода. Качественное поведение частот АФМР данного кристалла в поле, параллельном легкой оси, отражающее особенности фазовых переходов и соответствующее  $T=0$ , приведено на рис. 1, а. Экспериментальные точки (рис. 1, б) в области поля спин-флип перехода получены линейной экстраполяцией температурных зависимостей резонансных полей АФМР к знанию температуры, равному нулю. Температурные зависимости резонансных полей (рис. 2) изучены в интервале температур  $T=1.4 \div 4.2$  К и имеют линейный характер, что позволяет корректно восстановить частотно-полевую зависимость, соответствующую нулевой температуре.

Точность измерения абсолютного значения резонансного поля составляла  $\pm 3$  Э и определялась значительной шириной линии АФМР  $\Delta H \approx \approx 24$  Э (для ветви спин-флор фазы),  $\Delta H \approx 45$  Э (для антиферромагнитной ветви спин-флип фазы). Точность определения резонансного поля, экстраполированного к нулевой температуре,  $\pm 5$  Э.

Для измерений использовались образцы в форме сжатого сфероида с размерами 3 и 0.5 мм. Меньший размер соответствовал оси с кристалла, ортогональной слоям ферромагнитно-упорядоченных ионов меди. Экспериментальные точки температурных зависимостей (рис. 2) соответствуют значениям внешнего магнитного поля. Экспериментальные точки спектра АФМР (рис. 1) соответствуют значениям магнитного поля внутри образца и учитывают поле размагничивания, равное  $4\pi N_x M_x$ , где  $M_x$  — намагниченность кристалла вдоль оси а. При нулевой температуре в спин-флоп и спин-флип фазе намагниченности равны  $M_x = M_0 H / H_f$ ,  $M_x = M_0$  соответственно. Максимальная величина размагничивающего поля, достигаемая в спин-флип фазе, равна  $4\pi N_x M_0 = 24$  Э.

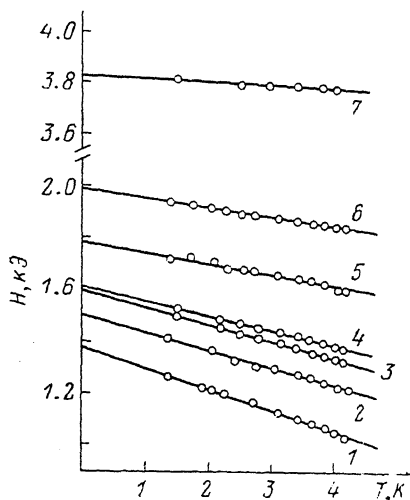


Рис. 2. Температурная зависимость резонансных полей АФМР  $(C_2H_5NH_3)_2 \cdot CuCl_4$ .

$$\nu_{1,6} = 2.772 \pm 0.007, \quad \nu_{2,5} = 1.882 \pm 0.003, \quad \nu_{3,4} = 0.732 \pm 0.002, \quad \nu_7 = 9.174 \pm 0.002 \text{ ГГц.}$$



Рис. 3. Линии АФМР при  $\nu = 0.732$  ГГц в интервале температур 4.2—1.5 К.

$T, K: 1 - 1.5, 2 - 2.2, 3 - 2.8, 4 - 4.2.$

В двухподрешеточных антиферромагнетиках, симметрия которых допускает существование взаимодействия Дзялошинского, в спин-флип фазе существуют две ветви магнитного резонанса. Колебаниям одной из них, имеющих в антиферромагнетиках любого типа, соответствует прецессия суммарной намагниченности кристалла. Поэтому эта ветвь называется ферромагнитной и ее частота в поле  $H > H_f$  приближенно описывается выражением  $2\pi\nu_f/\gamma \simeq H$ . В колебаниях второй ветви принимают участие компоненты векторов антиферромагнетизма, перпендикулярные магнитному полю, равновесные значения которых в спин-флип фазе равны нулю. Поэтому вторую ветвь можно назвать антиферромагнитной. Именно она является мягкой модой при фазовом переходе из спин-флип в спин-флоп фазу. Как показано в работе [4], эта ветвь может возбуждаться в экспериментах по АФМР лишь при наличии взаимодействия Дзялошинского.

Выражение для частотно-полевой зависимости антиферромагнитной ветви спин-флип фазы с учетом магнитоупругой связи в ромбическом антиферромагнетике с магнитной симметрией типа  $(C_2H_5NH_3)_2CuCl_4$ , полученное в [3], можно привести к виду

$$(2\pi\nu_{af}/\gamma)^2 = (H - H_{f0})(H - H_{f0} - b), \quad (1)$$

где  $\gamma = g\mu_B/\hbar$ ,  $g=2.16$  [8],  $\mu_B$  — магнетон Бора,  $b_2$  — константа анизотропии,  $H_{f_0}$  — поле спин-флип перехода без учета магнитоупругой связи. Именно в этом поле частота  $\nu_{af}$  обращается в нуль.

Используя формулу (1) для аппроксимации экспериментальной зависимости  $\nu_{af}(H)$ , находим, что при  $H_{f_0}=1.555$  кЭ,  $b_2=-1.803$  кЭ данное выражение в интервале использованных частот в пределах погрешности измерения частот и резонансных полей хорошо описывает наблюдаемое поведение частоты антиферромагнитной ветви.

Резонансные линии спектра АФМР, наблюдаемые при  $\nu=0.732$  ГГц при понижении температуры, смещаются в более высокие поля, постепенно сближаются относительно друг друга (рис. 3). При  $T=1.5$  К еще наблюдается частичное разрешение между ними. Среднее значение резонансных полей этих линий при экстраполяции к нулевой температуре (рис. 2;  $H_3, H_4$ ) дает значения истинного поля спин-флип перехода  $H_f=1.576$  кЭ, при котором частота возбуждения в спин-флоп фазе равна частоте возбуждения в спин-флип фазе.

Поле  $H_f$ , будучи подставлено в выражение (1), аппроксимирующее экспе-

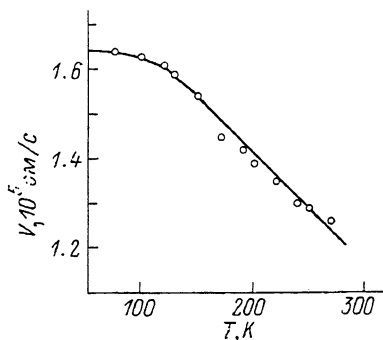


Рис. 4. Температурная зависимость скорости поперечного звука в  $(C_2H_5NH_3)_2CuCl_4$  при направлении распространения и поляризации вдоль оси  $c$  и  $a$  соответственно.

риментально наблюдаемую частотно-полевою зависимость, дает значение частоты  $\nu_0=0.590$  ГГц, которое представляет собой величину щели в спектре АФМР кристалла  $(C_2H_5NH_3)_2CuCl_4$  при фазовом переходе второго рода из спин-флип фазы в спин-флоп фазу. Если щель имеет магнитоупругую природу, то, согласно [3], различие между  $H_f$  и  $H_{f_0}$  определяется слагаемыми магнитоупругого взаимодействия вида  $\lambda_{65} m_x l_y u_{xz}$  и равно  $H_f - H_{f_0} = 2M_0 \lambda_{65}^2 / C_{55}$ , где  $M_0 = 2gS\mu_B/\nu_0$  — намагниченность подрешетки;  $\nu_0$  — объем элементарной ячейки;  $C_{55}$  — элемент тензора упругости кристалла;  $\lambda_{65}$  — элемент тензора магнитоупругого взаимодействия;  $m_x$  — компонента вектора намагниченности;  $l_y$  — компонента вектора антиферромагнетизма, которая в этом случае является параметром порядка.

Для определения значения  $C_{55}$  проведено изучение температурной зависимости скорости распространения ультразвука в кристалле  $(C_2H_5NH_3)_2CuCl_4$ . Измерение скорости распространения ультразвука проведено на импульсном ультразвуковом спектрометре фазовым методом на частоте 25 МГц. Погрешность измерения скорости составляет не более 2%. На рис. 4 приведена температурная зависимость скорости ультразвука, оси распространения и поляризации которого направлены соответственно вдоль  $c$  и  $a$  осей.

При понижении температуры от 300 до 100 К скорость распространения ультразвука возрастает более чем на 30%. Дальнейшее понижение температуры не приводит к существенному изменению скорости звука, что дает основание использовать значение  $V$ , полученное вблизи температуры кипения азота, для расчетов в случае более низких температур. При  $T=78$  К скорость ультразвука достигает  $1.64 \cdot 10^5$  см/с.

Принимая плотность кристалла  $(C_2H_5NH_3)_2CuCl_4$  равной  $\rho = 1.701$  г/см<sup>3</sup> [9], находим  $C_{55} = 4.58 \cdot 10^{10}$  дин/см<sup>2</sup>.

Используя полученные значения  $C_{55}$  и  $H_f - H_{f_0} = 21$  Э, можно получить оценку константы релятивистской магнитострикции  $\lambda_{65} = 170$  кЭ.

Представляет интерес сравнение величины  $\lambda_{65}$  с величиной констант

магнитоотрицательной обменной природы, которые определяют, например, зависимость температуры Нееля от всестороннего сжатия кристалла.

Полагая, что зависимость  $T_N$  от давления определяется преимущественно константами обменного происхождения  $\lambda^{(e)}$ , и используя выражение для  $dT_N/dP$ , приведенное в [10], можно оценить величину

$$\lambda^{(e)} \approx \frac{3k}{2M_0v_0} \frac{dT_N}{dP} \frac{C_{11} + C_{22} + C_{33}}{3}, \quad (2)$$

где  $k$  — постоянная Больцмана,  $dT_N/dP = 0.27$  К/кбар [11]. Согласно ультразвуковым измерениям,  $(C_{11} + C_{22} + C_{33})/3 = 1.1 \cdot 10^{11}$  дин/см<sup>2</sup>. Оценка (2) константы магнитоотрицательности дает  $\lambda^{(e)} \approx 300$  кЭ, что вдвое больше полученного значения  $\lambda_{65}$ .

Магнитоотрицательные константы обменной и релятивистской природы по порядку величины соизмеримы, что, по-видимому, обусловлено квазидвумерностью магнетика.

#### Список литературы

- [1] Туров Е. А., Шавров В. Г. // УФН. 1983. Т. 140. № 3. С. 429—462.
- [2] Балбашов А. М., Марчуков П. Ю., Николаев И. В., Рудашевский Е. Г. // ФТТ. 1988. Т. 30. № 3. С. 675—682.
- [3] Барьяхтар В. Г., Витебский И. М., Пашкевич Ю. Г., Соболев В. Л., Тарасенко В. В. // ФТТ. 1984. Т. 26. № 10. С. 3035—3041.
- [4] Васюков В. Н., Журавлев А. В., Лукин С. Н., Пашкевич Ю. Г., Соболев В. Л., Телера В. Т. // ФТТ. 1984. Т. 26. № 5. С. 1297—1305.
- [5] Васюков В. Н., Журавлев А. В., Лукин С. Н., Телера В. Т. // ФНТ. 1983. Т. 9. № 4. С. 429—432.
- [6] Денисов Ю. Н., Калинин В. В. // ПТЭ. 1965. № 2. С. 134—135.
- [7] Барьяхтар В. Г., Галкин А. А., Ковнер С. Н., Попов В. А. // ЖЭТФ. 1970. Т. 58. № 2. С. 494—506.
- [8] Drumheller J. E., Amundson P. H., Emerson K. // J. Chem. Phys. 1969. V. 51. N 12. P. 5729—5730.
- [9] Steadman J. P., Willet R. D. // Inorg. Chim. Acta. 1970. V. 4. N 2. P. 367—371.
- [10] Пашкевич Ю. Г., Соболев В. Л., Телера В. Т. // Препринт АН УССР ДонФТИ-84-1 (76). Донецк, 1984. 72 с.
- [11] Богданов А. Н., Пузыня А. И., Телера В. Т., Шатский П. П. // ФНТ. 1987. Т. 13. № 1. С. 73—78.

Донецкий физико-технический  
институт АН УССР  
Донецк

Поступило в Редакцию  
29 сентября 1988 г.  
В окончательной редакции  
9 января 1989 г.