

Московский физико-технический институт  
(государственный университет)  
Факультет общей и прикладной физики  
Кафедра физики и техники низких температур  
Институт физических проблем им. П.Л. Капицы

Павлов Николай Геннадьевич

**Исследование резонансных свойств  
марганцевого граната в дециметровом  
диапазоне длин волн**

Выпускная квалификационная работа  
на степень магистра

научный руководитель:  
д.ф.- м.н. Алексей Михайлович Тихонов

Москва 2014

# Содержание

|  |    |
|--|----|
| Введение .....   | 3  |
| Методика измерений. ЯМР спектрометр .....                  | 5  |
| Резонансная система .....                                  | 7  |
| Исследование ЯМР в $Mn_3Al_2Ge_3O_{12}$ .....              | 10 |
| Нелинейное поглощение радиоволн в марганцевом гранате .... | 19 |
| Результаты .....   | 24 |
| Заключение .....   | 25 |
| Список литературы .....                                    | 26 |

## Введение

Исследование магнитоупорядоченных веществ включает в себя вопрос о локальном пространственном распределении электронной и спиновой плотностей в твердом теле. Такие локальные характеристики, можно извлечь путем изучения ядерного магнитного резонанса (ЯМР). Ядра, обладающие магнитным моментом, представляют собой тончайший естественный зонд, помещенный в электронную систему кристалла, и с помощью метода ЯМР можно получить важные сведения о свойствах этой системы.

Магнитный резонанс на ядрах двухвалентного иона  $^{55}\text{Mn}$  ( $3d$  магнитный ион находится в чисто спиновом состоянии, терм  ${}^6S_{\frac{5}{2}}$ ) является одним из традиционных методов изучения марганцевых антиферромагнетиков. Особенность резонансных свойств антиферромагнетиков с магнитными ионами  $\text{Mn}^{2+}$  при температурах  $\sim 1\text{K}$ , связана с корреляцией колебаний ядер с колебаниями электронной системы, приводящей к сильной деформации (пуллингу или ДСЧ) спектра ядерного резонанса. Изучение и описание искаженного спектра ядерного магнитного резонанса, его температурной зависимости представляет интерес для теории динамики неколлинеарных спиновых структур.

Неколлинеарная магнитная структура некоторых антиферромагнетиков, а также конкуренция между полем кристаллической анизотропии и обменным взаимодействием порождают интересные трансформации в спиновых решетках этих магнетиков во внешнем магнитном поле. Магнитный резонанс на ядрах  $^{55}\text{Mn}$  является мощным методом изучения этих переориентационных явлений, так как спектр ядерного магнитного резонанса очень чувствителен к симметрии упорядочения магнетика. Так, по полемому расщеплению спектра, можно определить углы между магнитным полем и направлениями спинов, то есть получить важную микроскопическую инфор-

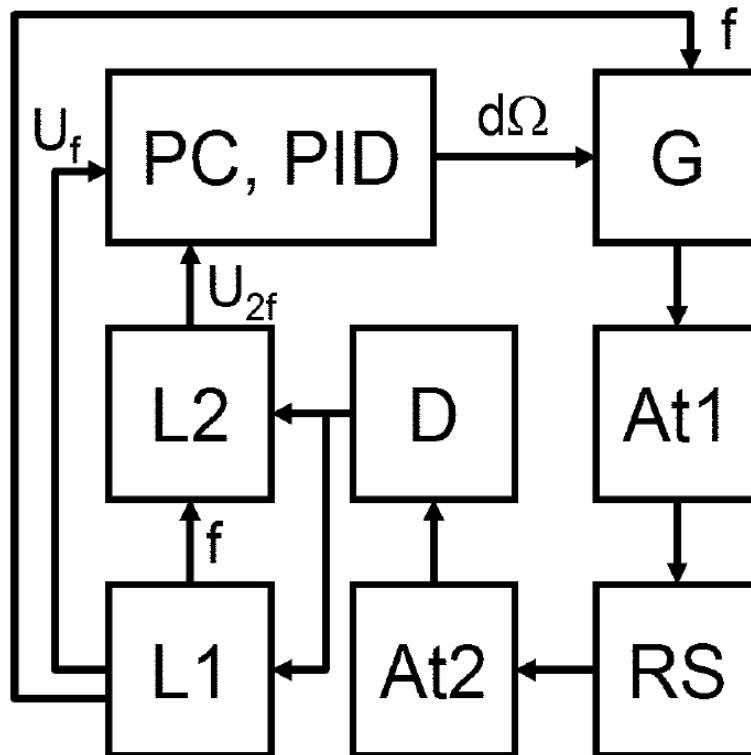
мацию о строении магнетика.

Наконец, метод ядерного магнитного резонанса позволяет изучать основное состояние антиферромагнетика. Из частоты ядерного магнитного резонанса  $^{55}\text{Mn}$  в нулевом поле, может быть установлена величина редукции средних спинов ионов марганца, возникающей из-за наличия нулевых колебаний в спиновой решетке. Диапазон частот, в котором обычно регистрируется ЯМР, составляет от 200 МГц до 700 МГц. Большая частота резонанса на ионах  $\text{Mn}^{2+}$ , порядка 600 -700 МГц связана с огромным значением среднего локального поля на ядре  $H \sim 60$  Тл, которое определяется в основном сверхтонким взаимодействием спинов ядра и иона (гироманнитное отношение для  $^{55}\text{Mn}$   $\gamma_n \approx 10.6$  МГц/Тл). Интенсивность сигналов ЯМР определяется эффектом усиления на ядре радиочастотного магнитного поля. Это делает возможным наблюдение сигналов ЯМР не только при ориентации внешнего магнитного поля перпендикулярно радиочастотному полю ( $H \perp h$ ), но и при ориентации магнитного поля параллельно радиочастотному полю ( $H \parallel h$ ).

Данная работа посвящена изучению резонансных свойств ядер  $^{55}\text{Mn}$  в дециметровом диапазоне длин волн, в неколлинеарном двенадцатиподрешеточном антиферромагнетике  $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ . В частности, исследован спектр ЯМР в марганцевом гранате, в частотном диапазоне 200-640 МГц и во внешнем магнитном поле  $H \parallel [001]$  и при  $T=1.2$  К. В полях, меньше критического  $H_c$ , при поляризации радиочастотного поля  $H \parallel h$  обнаружено три линии поглощения. При  $H > H_c$  и  $H \perp h$  наблюдается две линии поглощения [1]. Также исследовано нелинейное поглощение радиоволн в  $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$  на частотах 200–800 МГц, при большой мощности радиочастотной накачки ( $P > 10$  дБм), во внешнем магнитном поле  $H \parallel [001]$  и температуре 1.2 – 4.2 К [2].

## Методика измерений. ЯМР спектрометр.

Эксперименты по изучению ЯМР проводились на спектрометре непрерывного действия, в дециметровом диапазоне длин волн (30 – 100 см) [3]. Принцип действия спектрометра легко понять, используя блок-схему изображенную на рис.1. Частота СВЧ генератора  $G$  модулируется низкой частотой ( $f = 25\text{кГц}$ ), источником которой является внутренний генератор фазочувствительного вольтметра  $L_1$  (lock-in SR 830). Для стабилизации частоты генератора на вершине резонансного пика, используется система автоматической подстройки частоты (АПЧ), настроенная на ноль амплитуды первой гармоники модуляции. Система АПЧ включает в себя: синхронный детектор и цифровую систему слежения (РС), работающую в среде LabView (National Instruments).



**рис.1** Блок-схема ЯМР спектрометра.  $G$  – с.в.ч. генератор,  $A_{1,2}$  – аттенюаторы,  $RS$  – резонансный контур,  $D$  – квадратичный детектор,  $L_{1,2}$  – фазочувствительный вольтметр (Lock-in SR 830),  $PC$  – цифровая система слежения.  $U_f$  и  $U_{2f}$  сигнал первой и второй гармоники соответственно.

При расстройке  $\Delta\Omega$  частоты генератора от собственной частоты резонансного контура RS, на детекторе D (планарный диод) появляется сигнал  $U_f$  на частоте модуляции (первая гармоника) с фазой, зависящей от знака рассогласования. Этот сигнал регистрируется фазочувствительным вольтметром  $L_1$ . В первом приближении его амплитуда пропорциональна величине расстройки частоты ( $U_f \propto \Delta\Omega$ ). Используя  $U_f$ , цифровая система слежения вычисляет поправку к несущей частоте с.в.ч-генератора. И тем самым подстраивает частоту генератора под частоту резонансной системы. Величина расстройки вычисляется следующим образом:

$$\Delta\Omega = \alpha P \left( U_f + I \int_0^t U_f dt + D \frac{dU_f}{dt} \right)$$

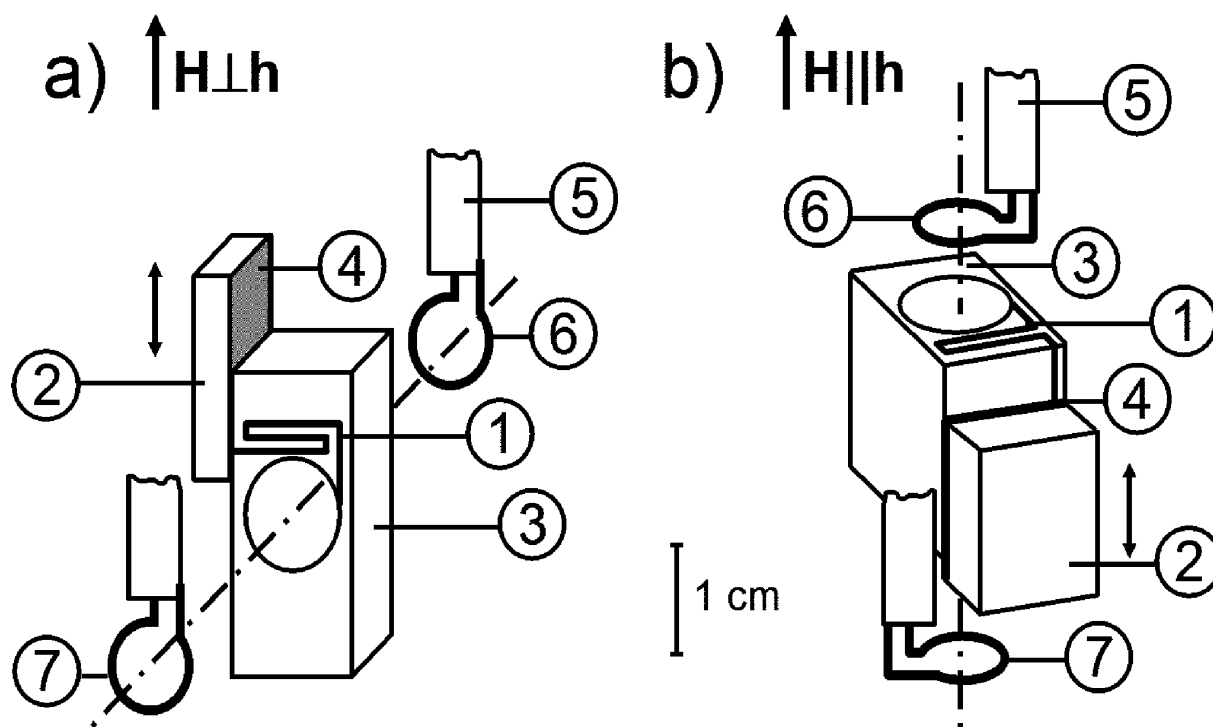
где  $P, I, D$  – параметры обратной связи, зависящие от температуры, добротности и других факторов. Их значения подбираются вручную. Константа  $\alpha$  определяется значением второй производной амплитудно – частотной характеристики системы в вершине резонансного пика на частоте модуляции.

Для сглаживания амплитудно – частотной характеристики подводящего высокочастотного тракта, на входе и выходе низкотемпературной части спектрометра устанавливаются развязывающие аттенюаторы At1 (10 дБ) и At2 (3 дБ). Регистрация поглощения производится по изменению амплитуды сигнала второй гармоники  $U_{2f}$ , при помощи второго фазочувствительного вольтметра  $L_2$  (lock in SR 830).

Спектрометр позволяет производить измерения в диапазоне температур 1.2 – 4.2 К в двух режимах: 1 – сканированием величины магнитного поля при фиксированной частоте генератора; 2 – сканированием частоты при фиксированном магнитном поле.

## Резонансная система

Резонансной системой (RS) служит резонатор типа «разорванное кольцо» [3], его конструкция показана на рис.2. Резонатор представляет собой параллелепипед, размеры которого варьируются в зависимости от необходимой частоты. В наших экспериментах резонатор имел следующие размеры: ширина 10 мм, высота 30 мм и глубина 8 мм. Резонаторы изготавливаются из бескислородной меди или сверхчистого алюминия (немагнитных веществ). Индуктивностью в «разорванном кольце» служит сквозное отверстие, а ёмкостью – узкая щель в корпусе резонатора 1 (величина зазора  $\sim 0.1$  мм). Длина щели  $L_0$  задаёт собственную частоту резонатора  $\nu_0 \sim \frac{1}{\sqrt{L_0}}$ .



**рис.2** Резонансная система. 1 – узкая щель ( $\sim 0.1$  мм); 2 – медная пластина; 3 – корпус резонатора; 4 – изолятор (полиэтилентерефталатная пленка толщиной 5 – 10 мкм); 5 – коаксиальная линия (подводит мощность); 6 – передающая петля связи; 7 – принимающая петля связи;

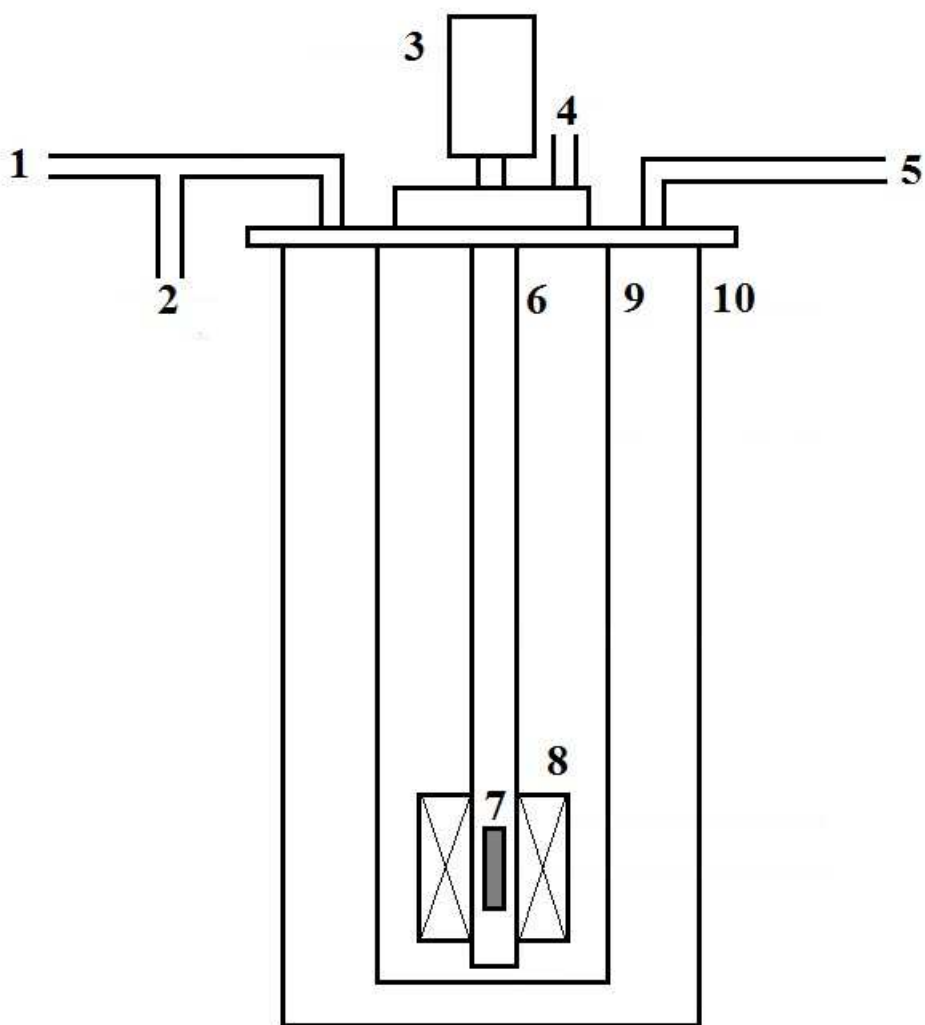
Широкополостность резонансной системы достигалась с помощью использования медной пластинки 2. Пластинка 2 механически прикреплена к штоку от шагового двигателя и соприкасается с корпусом резонатора. При вращении шагового двигателя, происходит перемещение пластины 2, при этом изменяется емкость, образованная данной пластиной с корпусом резонатора (4 - изолятор, полиэтилентерефталатная пленка толщиной 5 - 10 мкм). И соответственно сдвигается собственная частота резонатора. Диапазон широкополостности зависел от температуры и начальной частоты резонансной системы, в среднем составлял 30 – 50 МГц.

СВЧ мощность подводится коаксиальной линией 5. Индуктивная связь с резонатором осуществляется с помощью петель связи, одна из которых передающая 6, а другая принимающая 7. Нагруженная добротность резонансной системы зависит от частоты и при температуре жидкого гелия варьируется от 200 до 400. В зависимости от конструкции резонатора, есть две возможные ориентации для радиочастотного поля  $h$ , относительно внешнего магнитного поля  $H$  (рис. 2). Таким образом, можно осуществлять эксперименты при двух поляризациях радиочастотного поля: а –  $h \perp H$  и б –  $h \parallel H$ . Образец крепится на специальной подложке, изготовленной из полиамидного пластика, которая вставляется в сквозное отверстие резонатора.

Внешний вид экспериментальной установки представлен на рис.3. Резонатор с исследуемым образцом размещались внутри вакуумной камеры, которая представляет собой трубку диаметром 25 мм из нержавеющей стали. Внутри вакуумной камеры протянуты коаксиальные линии к СВЧ генератору, а также шток к шаговому двигателю. Поверх вакуумной камеры крепился сверхпроводящий соленоид, так чтобы резонатор с образцом находились в его центре (для максимальной однородности магнитного поля в



окрестностях резонатора). Расчетная неоднородность поля в центре соленоида составляет  $\pm 0.1\%$  в  $1\text{см}^3$ . Затем поверх соленоида устанавливались гелиевый и азотный дьюары. Понижение температуры системы происходило путем откачки паров гелия – высокопроизводительным вакуумным насосом. Температура в экспериментах была в диапазоне 1.2 – 4.2 К и контролировалась по давлению насыщенных паров гелия.



**рис.3** Экспериментальная установка.

1 – гелиевая сеть, 2 – высокопроизводительный вакуумный насос, 3 – шаговый двигатель, 4 – с.в.ч. генератор, 5 – форвакуумный насос, 6 – вакуумная рубашка, 7 – резонатор с образцом, 8 – сверхпроводящий соленоид, 9 – гелиевый дьюар, 10 – азотный дьюар.

## Исследование ядерного магнитного резонанса в $Mn_3Al_2Ge_3O_{12}$

Марганцевый гранат считается одним из первых обнаруженных неколлинеарных антиферромагнетиков, его группа симметрии  $O_h^{10}$ . Впервые магнитная структура граната (рис.4) была предложена Пранделем [4] на основании данных нейтронных экспериментов, а в дальнейшем подтвердилась и другими исследованиями [5].

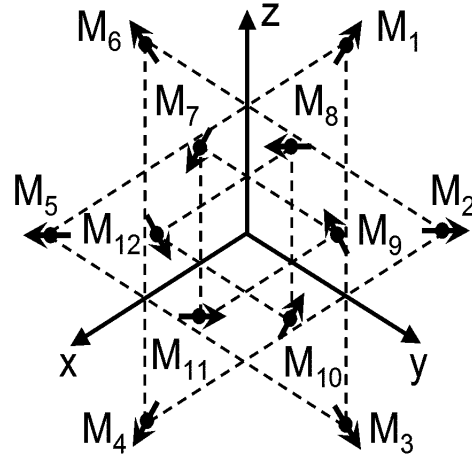


рис.4 Магнитная структура  $Mn_3Al_2Ge_3O_{12}$

$Mn_3Al_2Ge_3O_{12}$  это антиферромагнетик с температурой Нееля 6.8 К, спины которого компланарны плоскости (111), и лежат вдоль или против прямых [211], [112], [121]. Таким образом, марганцевый гранат представляет собой двенадцатиподрешеточный антиферромагнетик с «треугольным» упорядочением. При приложении внешнего магнитного поля  $H$  вдоль направления [001] происходит поворот спиновой плоскости, который заканчивается при достижении внешнего поля критической величины  $H_c \approx 2.4$  Тл.

Марганцевый гранат исследовался и ранее, так в работе [6] было обнаружено три ветви антиферромагнитного резонанса при  $H \parallel [100]$ . Так как все измерения магнитного резонанса проводились на частотах более 20 ГГц, то при обработке экспериментальных данных использовали теорию обменного приближения, а эффектами, связанными с релятивистскими искажениями обменной спиновой структуры, а также сверхтонким взаимодействием в ионе  $Mn^{+2}$  пренебрегали.

Вопрос о влиянии релятивистских взаимодействий в кристалле граната

на низкочастотную часть спектра магнитного резонанса с учетом сверхтонкого взаимодействия теоретически рассмотрен в работе Удалова [7]. Суть которой заключается в теоретическом исследовании спектра магнитного резонанса в марганцевом гранате. Согласно работе [7], особенности спектра формируются за счет влияния нескольких механизмов: косвенное взаимодействие ядерных спинов через электронную подсистему, переориентация магнитных моментов электронов во внешнем поле, релятивистские искажения обменной спиновой структуры электронной подсистемы, непосредственное влияние внешнего магнитного поля на ядерные спины. Спектр возбуждений исследован при двух ориентациях внешнего магнитного поля.

Если поле направлено вдоль оси  $C_3$ , то спектр состоит из трех ветвей, возникновение которых обусловлено косвенным взаимодействием ядерных спинов. Искажение обменной спиновой структуры электронной подсистемы за счет релятивистских взаимодействий и переориентация электронной спиновой структуры под действием внешнего поля в данном случае не возникают, как следствие высокой симметрии системы.

Если внешнее поле направлено вдоль оси  $C_4$ , то спектр состоит из 9-ти ветвей. При данной ориентации поля существенными становятся искажения спиновой структуры, а именно слабый антиферромагнетизм и анизотропная редукция спина, а также переориентация магнитных моментов электронов во внешнем поле.

Для проверки выводов теории Удалова [7], мы провели исследование марганцевого граната с помощью широкополосного ЯМР спектрометра непрерывного действия, описанного выше.

Эксперименты по изучению резонансных свойств или спектра марганцевого граната проводились в двух поляризациях радиочастотного поля  $H \parallel h$  и  $H \perp h$  на частотах 200-640 МГц. Внешнее магнитное поле  $H \parallel [001]$

и температура в экспериментах 1.2 - 4.2 К. Измерения проводились сканированием магнитного поля при фиксированной частоте, но также есть возможность сканировать частоту при фиксированном магнитном поле. Относительная стабильность частоты в экспериментах  $\Delta\nu/\nu \sim 10^{-5}$ . Примеры сканов на частоте 610 МГц при  $H \parallel h$  - сплошная линия и  $H \perp h$  - штриховая линия, приведены на рис.5 . Из графика видно что при  $H \parallel h$  - возникает два резонансных пика в полях  $\sim 1.1$  Тл и  $\sim 2.2$  Тл, соответственно, а при  $H \perp h$  - один пик в поле  $\sim 3$  Тл.

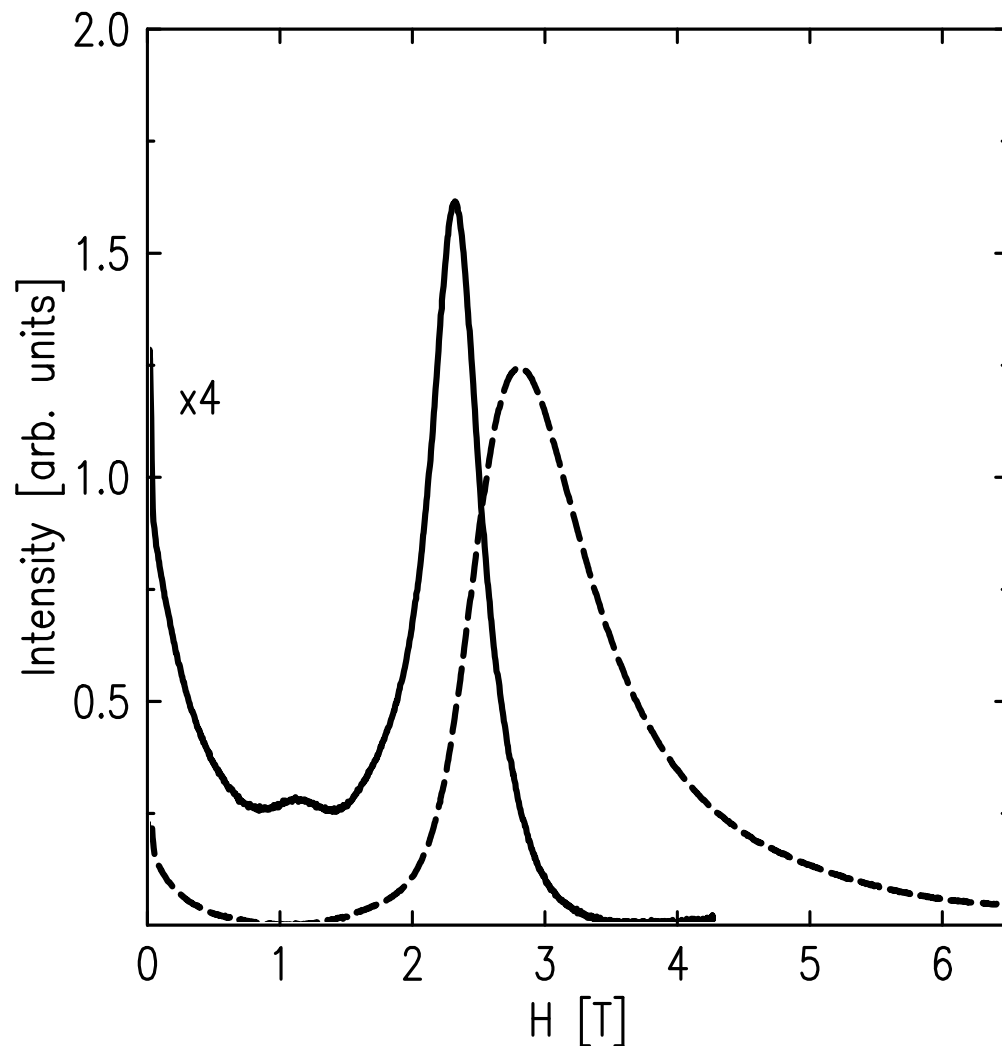


рис.5 Пример записи скана на частоте 610 МГц при  $H \parallel h$  - сплошная линия и  $H \perp h$  - штриховая линия [1].

Также наблюдается сильное поглощение в нулевом поле. Более тщательное изучение этого явления показало, что оно в основном, связано с паразитными примесями в медном резонаторе. Примесью служит двухвалентное железо  $Fe^{+2}$ , так как из экспериментов было выявлено, что гиромагнитное отношение паразитного сигнала составляет  $\gamma_{\text{пар}} \approx 60 \text{ ГГц/Тл}$ . В резонаторах из сверхчистого алюминия и сверхчистой меди данное явление было полностью подавлено.

ЯМР спектр полученный в экспериментах показан на рис.6. Линиями отмечен теоритический расчет спектра, кружками положение максимумов в экспериментах [1].

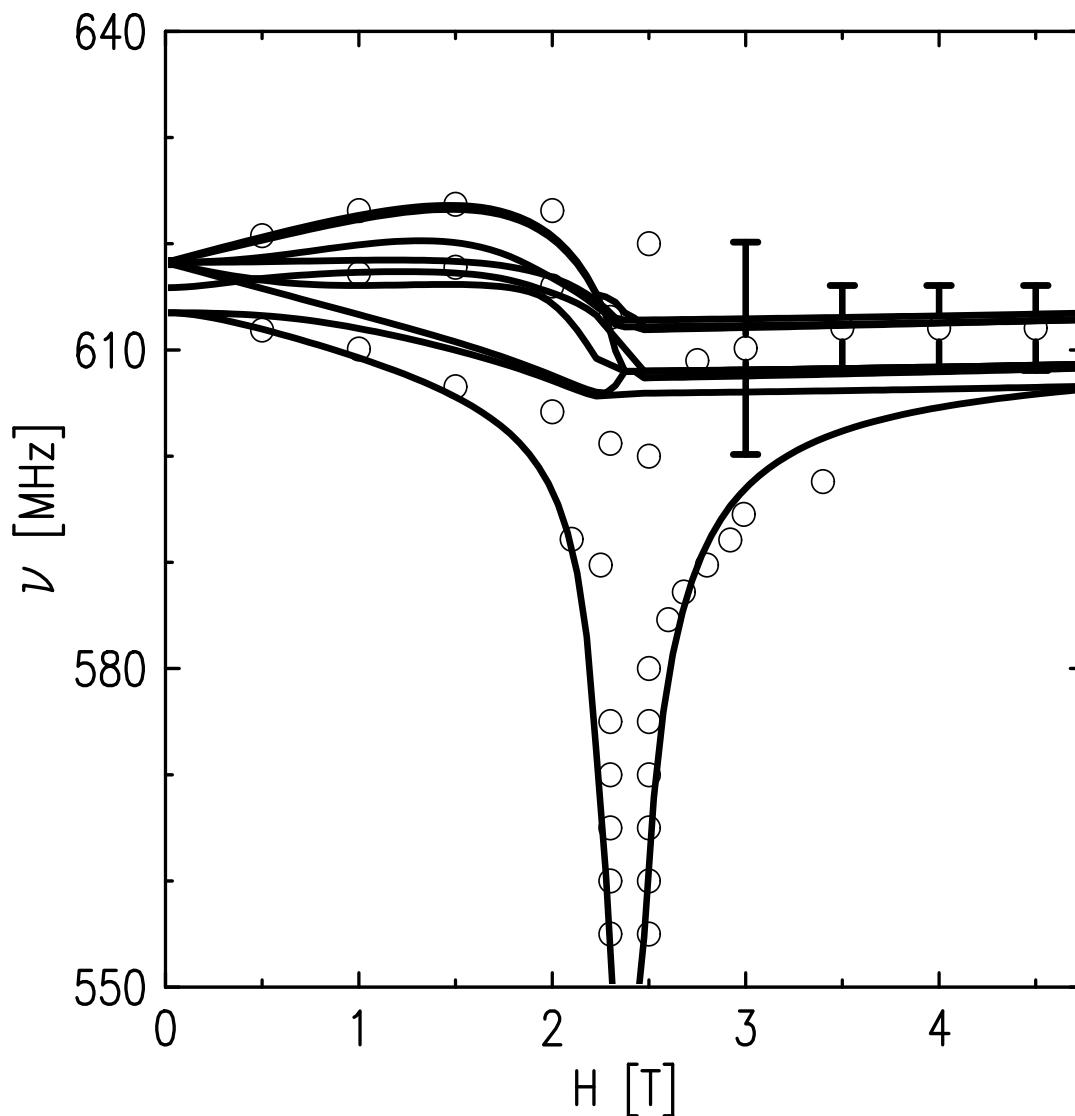
В полях, меньше поля  $H_c \approx 2.4 \text{ Тл}$  переориентационного перехода обнаружено три линии поглощения, которые возбуждаются радиочастотным полем  $h \parallel H$ . В полях  $H > H_c$  наблюдается две линии поглощения, которые возбуждаются при  $h \perp H$ .

Из экспериментальных данных было обнаружено критическое поле фазового перехода  $H_c = 2.4 \text{ Тл}$ . А также частота колебаний в нулевом поле  $\nu_n \approx 615 \text{ МГц}$ , с помощью которой был вычислен средний спин электронов в ионе  $Mn^{+2}$ .

Линии погрешности по оси частот, после поля переориетационного перехода ограничивают область сильного поглощения, частотный диапазон которой, слабо зависит от приложенного магнитного поля.

Резонансные частоты ЯМР определяются энергией сверхтонкого взаимодействия магнитных моментов  $m$  ядер  $^{55}Mn$  с магнитными моментами электронов  $M$ :

$$M = \gamma h \langle S \rangle$$



**рис.6** Спектр ЯМР в антиферромагнетике  $Mn_3Al_2Ge_3O_{12}$ : кружки - положение максимумов поглощения в эксперименте; линии - теоретический расчет [1].

$$E_{св} = -\frac{A(\vec{m}, \vec{M})}{h^2\gamma_n\gamma}$$

где  $\langle S \rangle$  - средний спин электронов в ионе,  $\gamma \approx 28.02$  ГГц/Тл - электронное гиромагнитное отношение,  $\gamma_n$  - ядерное гиромагнитное отношение, а также взаимодействием с внешним магнитным полем:

$$U = -(m, H)$$

Константа сверхтонкого взаимодействия для иона  $Mn^{2+}$  в кислородном окружении  $A \approx 1.6 \cdot 10^{-25}$  Дж [8-10]. Область частот, в которой лежат резонансы ядерных магнитных моментов, определяется средней величиной поля сверхтонкого взаимодействия:

$$H_n \approx A \langle S \rangle / h \gamma_n$$

И так как  $H_n \gg H$ , то из эксперимента следует:

$$\langle S \rangle \approx h \nu_n / A \approx 2.5$$

Что точно совпадает с основным состоянием  $Mn_3Al_2Ge_3O_{12}$  (т.к.  $Mn^{2+}$  3d ион находящийся в чисто спиновом состоянии терм  ${}^6S_{5/2}$ , поэтому эффектами связанными со спин – орбитальным взаимодействием с хорошей точностью можно пренебречь).

Из спектра на рис.6 следует, что в окрестности  $H_c$  наблюдаются две линии поглощения, которые спускаются в область нулевой частоты: одна при  $h \parallel H$  и  $H < H_c$ , а другая при  $h \perp H$  и  $H > H_c$ . Возникновение этих ветвей или «провала» в широком диапазоне частот, возникает из-за взаимодействия колебаний ядерной намагниченности  ${}^{55}Mn$  с низкочастотной ветвью антиферромагнитного резонанса [6]. Этот «провал» в спектре связан с тем, что одна из ветвей антиферромагнитного резонанса спускается в область низких частот вблизи поля  $H_c$ , что приводит к сильному взаимодействию электронных и ядерных степеней свободы и, в конечном итоге, к отталкиванию одной из ядерных веток от электронной. Ширина (по полю) «провала» в зависимости резонансных частот от величины внешнего поля, пропорциональна величине расщепления веток спектра в нулевом поле. Подгоняя экспериментальные кривые теоретическими в области «провала» можно оценить величину расщепления спектра ЯМР в нулевом поле, которое составляет  $\sim 2$  МГц (0.3% от  $\nu_n$ ).

Различие резонансных частот ЯМР во внешнем поле возникает из-за разницы в величине магнитных моментов электронов на различных узлах решетки, а также различия их ориентаций относительно внешнего поля. Высокая симметрия кристалла  $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$  приводит к тому, что величина и ориентация магнитных моментов электронов определяется относительно небольшим набором параметров. Часть этих параметров известна из работы, где проводилось исследование спектра колебаний магнитных моментов электронов [6]. В частности, отношение продольной магнитной восприимчивости электронов (вдоль вектора  $[\vec{l}_1 \times \vec{l}_2]$ ) к поперечной составляет:

$$\frac{\chi_{\parallel}}{\chi_{\perp}} = 1.28$$

а величина

$$\gamma(2\lambda_b/\sqrt{3}\chi_{\perp})^{1/2} = 39\text{ГГц}$$

– здесь  $\chi_{\perp} \approx 0.3\text{см}^3/\text{моль}$  – поперечная магнитная восприимчивость электронной подсистемы, а  $\lambda_b \approx 4.4\text{Дж}/\text{моль}$  – константа в энергии анизотропии и  $\gamma$  – электронное гиромангнитное отношение.

Как указано в работе [7], при ориентации внешнего поля вдоль оси  $C_4$  (направление [001]) спектр ЯМР содержит, вообще говоря, девять ветвей, из которых три ветви являются двукратно вырожденными. В области полей больших поля переориентационного перехода наблюдается две резонансные частоты, слабо зависящие от величины внешнего поля. Одна из них – это ветвь, поднимающаяся из области низких частот, а вторая соответствует остальным восьми ветвям, которые в силу слабого расщепления не разрешаются в эксперименте.

Согласно теории [7] анизотропия в кристалле  $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$  (при приложении внешнего поля вдоль оси  $C_4$ ) может приводить к двум типам искажений обменной спиновой структуры граната (см. рис. 4), которая описывает-



ся двумя единичными ортогональными векторами, образующими спиновую плоскость [7]. Первый – это анизотропная редукция спина, которая ранее была обнаружена в кристалле CsMnI<sub>3</sub> [11,12]. В гранате она проявляется в относительном изменении длин ортогональных антиферромагнитных векторов параметра порядка  $\vec{l}_1$  и  $\vec{l}_2$  ( $l_1^2 \neq l_2^2$ ). В полях, превосходящих поле переориентационного перехода, это приводит к подкашиванию магнитных моментов электронов относительно оси [-110]. Вторым типом искажений, разрешенным симметрией данного кристалла, при указанном направлении внешнего поля – слабый антиферромагнетизм. То есть возникновение вектора слабого антиферромагнетизма  $\vec{a}$ , который намного меньше намагниченности подрешеток  $\vec{a} \ll \vec{M}_i$ . При этом к намагниченностям  $\vec{M}_i$  подрешеток с  $i = 1, 2, 3, 10, 11, 12$  вектор слабого антиферромагнетизма  $\vec{a}$  прибавляется  $\vec{M}_i \rightarrow \vec{M}_i + \vec{a}$ , а из намагниченностей с  $i = 4, 5, 6, 7, 8, 9$  отнимается  $\vec{M}_i \rightarrow \vec{M}_i - \vec{a}$  ( $\vec{a} \ll \vec{M}_i$ ). Вектор  $\vec{a}$  направлен также, как анизотропная редукция спина – вдоль оси [-110]. Очевидно, оба явления приводят к отклонению магнитной структуры граната от треугольной 120° структуры.

Явления анизотропная редукция спина и слабый антиферромагнетизм проявляются в том, что в полях  $H > H_c$  резонанс лежит ниже резонанса в нулевом поле на  $5 \div 10$  МГц (см. рис.6). Это связано с тем, что релятивистские искажения обменной структуры приводят к одинаковому для всех узлов изменению величины магнитного момента электронов ( $\Delta M/M \approx -0.02$ ). То есть происходит подкашивание магнитных моментов подрешеток. И так как это подкашивание для двух типов искажений происходит вдоль одного направления [-110], то надежно разделить вклад от каждого из них, из экспериментальных данных не представляется возможным. Возможно указать только верхнюю границу величины данных искажений по отдельности. Слабый антиферромагнетизм вносит максимальный вклад в изменение на-

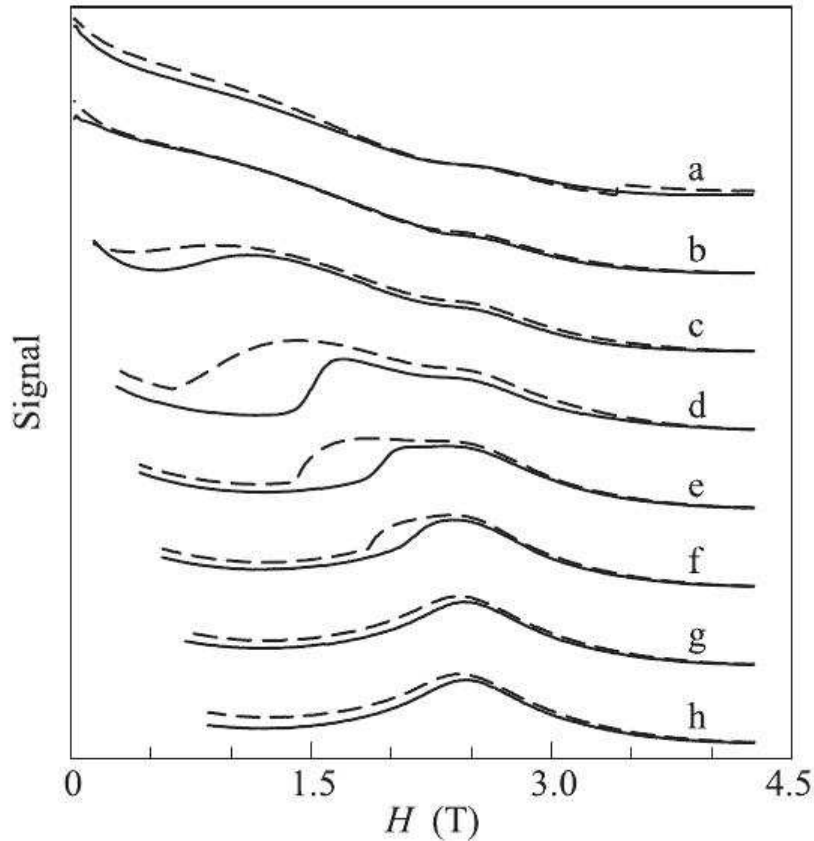
магнитности подрешеток примерно 2%.

Наши данные показывают, что искажения обменной треугольной структуры граната, связанные с наличием в кристалле релятивистских взаимодействий, малы. Из подгонки экспериментальных кривых теоретическими можно установить, что изменение величин всех магнитных моментов электронной подсистемы за счет релятивистских искажений обменной спиновой структуры при повороте спиновой плоскости от ориентации перпендикулярной оси  $C_3$  к ориентации перпендикулярной оси  $C_4$  составляет  $\approx 2\%$  или  $\Delta M/M \approx -0.02$ .

## Нелинейное поглощение радиоволн в марганцевом гранате.

Вторая часть работы связана с нелинейным поглощением радиоволн в  $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$  в диапазоне частот 200-800 МГц [2]. Эксперименты проводились на ЯМР спектрометре непрерывного действия, описанном выше. Было обнаружено, что при увеличении мощности радиочастотной накачки происходит изменение формы линии сигнала. Измерения проводились стандартным методом, сканированием поля при фиксированной частоте. Данное явление наблюдалось при различных температурах 1.2 - 4.2 К и во внешнем магнитном поле направленном вдоль оси [001]. Причем поглощение радиоволн происходило только при поляризации радиочастотного поля  $H \perp h$ , а при  $H \parallel h$  ничего подобного не наблюдалось. Таким образом, у данного явления есть селективность по направлению радиочастотного поля.

Полученные линии представлены на рис.7. Буквами над кривыми помечены формы сигнала, соответствующие различной мощности радиочастотной накачки, подводимой к резонансной системе (в дБм – децибелах относительно уровня в 1 мВт): а – 20; b – 19; c – 18; d – 17; e – 16; f – 15; g – 13; h – 10. Сплошные линии соответствуют развертке магнитного поля соленоида в сторону его увеличения, а штриховые – в сторону его уменьшения. На всех кривых наблюдается резонансное поглощение в магнитном поле  $H \approx 2.5$  Тл. Из графика видно, что при накачке 10 – 13 дБм (g,h) формы линий имеет лоренцеву форму. Но стоит пересечь порог мощности  $P \geq 15$  дБм, как форма сигнала резко меняется. К тому же возникает гистерезис при изменении развертки поля на противоположное. При очень большой мощности накачки (a,b,c), интенсивность сигнала сильно падает.



**рис.7** Зависимости формы сигнала детектора от мощности на частоте 685 МГц во внешнем магнитном поле  $H \parallel [001]$  для поляризации радиочастотного поля  $H \perp h$  и  $T = 1.2$  К. Сплошные линии соответствуют развертке магнитного поля соленоида в сторону его увеличения, штриховые – в сторону его уменьшения. Буквами над кривыми помечены формы сигнала, соответствующие различному уровню радиочастотной мощности, подводимой к резонансной системе (в дБм): а – 20; б – 19; с – 18; d – 17; e – 16; f – 15; g – 13; h – 10.

Ранее несколькими авторами изучалось параметрическое возбуждение ядерных спиновых волн в объеме кристаллов  $MnCO_3$  и  $CsMnF_3$  в условиях продольной радиочастотной накачки и двойного резонанса [13,14]. При этом использовалась зависимость положения линии антиферромагнитного резонанса от температуры ядерной магнитной системы. Подобные явления, по – видимому, также можно наблюдать и в марганцевом гранате, но только в узкой окрестности  $H_c$  и при поляризации  $H \parallel h$ , отличной от нашей. Более того, при  $H < 0.8H_c$  в силу особенностей спектра электронно-ядерных колебаний в  $Mn_3Al_2Ge_3O_{12}$  (см рис. 6) область частот ядерных магнонов

сильно сужается до диапазона 10–40 МГц в окрестности 620 МГц [1]. Таким образом, соответствующая частота параметрической накачки должна составлять  $\Omega > 1200$  МГц, что заметно выше радиочастот в нашем эксперименте. Наблюдаемое явление также невозможно объяснить резонансным рождением акустических фононов. Действительно, сечение этого процесса не должно зависеть от  $H$ . Следовательно, поглощение наблюдалось бы при  $H > H_c$ . Однако последнего в эксперименте не обнаружено. Мы связываем наблюдаемое явление диссипации электромагнитной энергии, с параметрическим возбуждением неоднородных поверхностных волн на границах антиферромагнитных доменов.

Множественное вырождение энергии основного состояния неколлинеарного кубического антиферромагнетика  $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$  позволяет реализовываться в нем многодоменной структуре, которая стабильна в широком диапазоне магнитных полей. В обменном приближении магнитная структура граната описывается парой антиферромагнитных векторов  $\vec{l}_1$  и  $\vec{l}_2$ , таких что,  $(\vec{l}_1 \perp \vec{l}_2 \text{ и } \vec{l}_1^2 = \vec{l}_2^2 = 1)$  [6]. Анализ основного состояния показывает, что оно четырехкратно вырождено по направлениям вектора  $\vec{n} = [\vec{l}_1 \times \vec{l}_2]$ , который может быть коллинеарен направлениям [111], [-111], [1-11] и [-1-11]. В магнитном поле  $H \parallel [001]$  это вырождение сохраняется вплоть до поля фазового перехода  $H_c$ , выше которого  $\vec{n} \parallel [001]$ .

Таким образом, в кристалле граната возможно сосуществование четырех типов антиферромагнитных доменов с разной ориентацией вектора  $\vec{n}$ . Доменная структура сохраняется и при небольшом отклонении поля  $H$  от оси четвертого порядка, пока поле в плоскости (110) составляет  $\leq 700$  Э [15].

Теперь о теоритическом аспекте возбуждения поверхностных волн на границах антиферромагнитных доменов. В первом приближении для электронной системы в  $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$  радиочастотное поле  $h(t)$  можно рассмат-

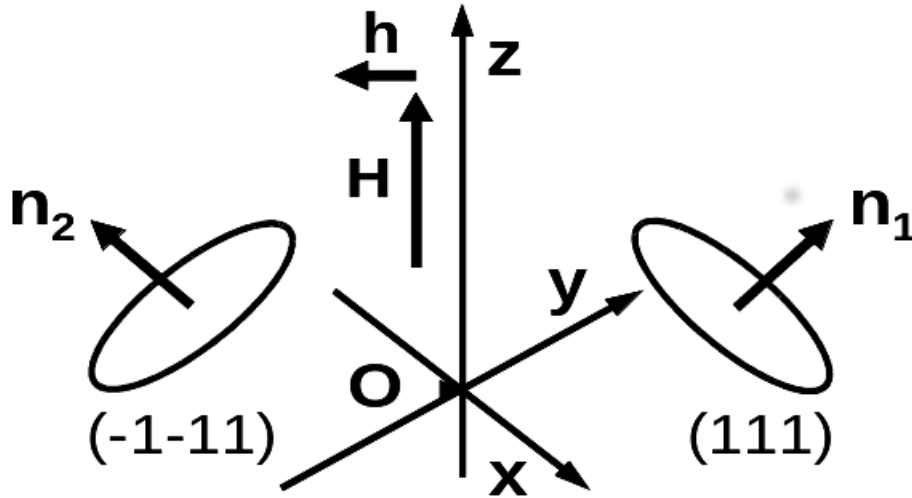
ривать как квазистатическое, поскольку его частота ( $\omega < 1\text{ГГц}$ ) значительно меньше частот антиферромагнитного резонанса, ветви которого лежат выше 20 ГГц [6]. Плотность магнитной энергии, зависящая от ориентации магнитного поля  $\vec{H} + \vec{h}$  относительно  $\vec{n}$ , имеет вид:

$$\varepsilon = \frac{1}{2} (\chi_{\perp} - \chi_{\parallel}) \left( \vec{H} + \vec{h}, \vec{n} \right)^2 \quad (1)$$

где  $\chi_{\perp}$  и  $\chi_{\parallel}$  – компоненты тензора восприимчивости в спиновой плоскости и параллельно направлению  $\vec{n}$  соответственно. В нашем эксперименте  $H \parallel [001]$ , а линейно поляризованное поле  $\vec{h}$  лежит в плоскости (110). Таким образом, разность в плотностях магнитной энергии доменов с  $\vec{n}_1 \perp [111]$  и  $\vec{n}_2 \perp [-1-11]$  составляет (см. рис. 8)

$$\varepsilon_{12} = (\chi_{\perp} - \chi_{\parallel}) \vec{H} \vec{h}(t) \sin(2\alpha) \quad (2)$$

где  $\alpha$  – угол между векторами  $\vec{H}$  и  $\vec{n}_{1,2}$ . Выражение (2) определяет силу, действующую на единицу площади границы между доменами с  $\vec{n}_1$  и  $\vec{n}_2$  и вынуждающую ее однородно колебаться.



**рис.8** Постоянное магнитное поле  $H$  ориентировано вдоль оси четвертого порядка граната (направление  $[001]$ , или ось  $Oz$ ), а переменная компонента поля  $\vec{h}$  приложена в плоскости (110), или  $(xy)$ . На единицу площади границы доменов с  $\vec{n}_1 \parallel [111]$  и  $\vec{n}_2 \parallel [-1-11]$  действует сила

$$(\chi_{\perp} - \chi_{\parallel}) \vec{H} \vec{h}(t) \sin(2\alpha)$$

Аномальное поглощение радиоволн можно рассматривать как параметрическое возбуждение неоднородных колебаний под действием силы (2). Если  $\omega_s(k)$  – частота колебаний поверхности с волновым вектором  $\vec{k}$ , то поглощение кванта радиочастотного поля может сопровождаться резонансным рождением двух квантов поверхностных волн:

$$\omega = \omega_s(k) + \omega_s(-k)$$

Энергия такого кванта равна:

$$\hbar\omega_s(k) \approx \hbar\omega/2 \sim 10^{-2}K$$

Итак, обнаружено нелинейное поглощение радиоволн в неколлинеарном 12–подрешеточном антиферромагнетике  $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ . Данное явление проявляется в изменении формы линии резонанса в зависимости от мощности радиочастотного поля. Эффект происходит в окрестности критического поля и только при поляризации  $H \perp h$ . На данный момент теория разработанная для данного вещества [7] не может объяснить возникновение таких зависимостей. Мы связываем это явление с параметрическим возбуждением неоднородных поверхностных волн на границах антиферромагнитных доменов.

## Результаты.

1) Исследован спектр ЯМР  $^{55}\text{Mn}$  12 – подрешеточного неколлинеарного антиферромагнетика  $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ , основные результаты опубликованы в [1]. Измерения проводились в частотном диапазоне 200-640 МГц и во внешнем магнитном поле  $H \parallel [001]$  и при  $T=1.2$  К. В полях, меньше критического  $H_c$ , при поляризации радиочастотного поля  $H \parallel h$  обнаружено три линии поглощения. При  $H > H_c$  и  $H \perp h$  наблюдается две линии поглощения. Параметры спектра указывают на то, что магнитная структура марганцевого граната слабо отличается от обменной треугольной 120-градусной структуры. Анизотропия редукции спина и слабый антиферромагнетизм, разрешённые симметрией данного кристалла, в поле  $H < H_c$  приводят к различию в намагниченности подрешеток  $\approx 3\%$ . При повороте спиновой плоскости от ориентации перпендикулярной оси  $C_3$  к ориентации перпендикулярной оси  $C_4$ , происходит уменьшение величины магнитных моментов электронной подсистемы  $\approx 2\%$  от средней величины в нулевом поле.

2) Исследовано нелинейное поглощение радиоволн в марганцевом гранате (результаты опубликованы в [2]), при большой мощности радиочастотной накачки ( $P > 12$  дБм) во внешнем магнитном поле  $H \parallel [001]$ , в температурном интервале 1.2 – 4.2 К и на частотах 200–800 МГц. Наблюдаемое явление диссипации электромагнитной энергии, по нашему мнению, связано с параметрическим возбуждением неоднородных поверхностных волн на границах антиферромагнитных доменов.



## Заключение.

В заключении мне бы хотелось в первую очередь поблагодарить моего научного руководителя Алексея Михайловича Тихонова за его терпение и отзывчивость – на протяжении всей нашей совместной работы. Я признателен Алексею Михайловичу за помощь, которую он оказал мне в освоении экспериментальных навыков и в первых шагах экспериментальной работы.

Отдельную благодарность хочу выразить Владимиру Ивановичу Марченко, постоянно проявлявшему интерес к нашей работе, а также за его помощь в анализе экспериментальных данных. А также Хлюстикovu Ивану Николаевичу за его ценные советы и готовность помочь в любой ситуации.

Я благодарю Александра Федоровича Андреева, давшего мне возможность учиться и сделать эту работу в Институте физических проблем.

Я благодарен Александру Ивановичу Смирнову, который не только прочитал нам несколько интересных курсов, но и в целом курировал учебу в эти годы. Я признателен Виталию Вадимовичу Завьялову, Константину Одисеевичу Кешишеву, Генриху Дмитриевичу Богомолу, Василию Николаевичу Глазкову за их внимание и участие в нашей деятельности, учебе и чьи лекции были весьма полезны в экспериментальной работе.

Я благодарю и других сотрудников института, с которыми мне пришлось иметь дело за время учебы, а также коллективы механической мастерской и гелиевой станции.

## Список литературы

- [1] А.М. Тихонов, Н.Г. Павлов, О.Г. Удалов, Письма в ЖЭТФ 96(8), 568 (2012)
- [2] А.М. Тихонов, Н.Г. Павлов, Письма в ЖЭТФ 99(4), 255 (2014)
- [3] А.М. Тихонов, А. Ю. Семанин, Г. Д. Соколов ПТЭ, N 1, 100 (2011)
- [4] Prandl, Phys. Stat. Sol. B55, K159 (1973); Kristall. 144, 198 (1976).
- [5] A. Gukasov, V.P. Plakhty, B. Dorner, J. Phys.: Condens. Matter 11, 2869 (1999).
- [6] Л.А. Прозорова, В.И. Марченко, Ю.В. Красняк, Письма в ЖЭТФ 41, 522 (1985).
- [7] О.Г. Удалов, ЖЭТФ 140 вып. 3(9), стр. 561-566 (2011).
- [8] W.M. Walsh Jr., J. Jeener, N. Bloembergen, Phys. Rev. 139, 1338 (1965).
- [9] A.J. Shuskus Jr., J. Chem. Phys. 41, 1885 (1964).
- [10] С. Гешвинд, стр. 103, *Сверхтонкое взаимодействие в твердых телах* (под ред. А.Д. Фримана и Р.Б. Френкеля) М.: Мир, 1970.
- [11] Б.С. Думеш, С.В. Петров, А.М. Тихонов, Письма в ЖЭТФ 67, 661 (1998).
- [12] В.И. Марченко, А.М. Тихонов, Письма в ЖЭТФ 69, 41 (1999).
- [13] А. Говорков, В.А. Тулин, ЖЭТФ 82, 1234 (1982).
- [14] А.В. Андриенко, В.Л. Сафонов, А.Я. Якубовский, ЖЭТФ 93, 907 (1987).
- [15] Т.В. Валянская, В.П. Плахтий, В.И. Соколов, ЖЭТФ 70, 2279 (1976).