

РОССИЙСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК  
ИНСТИТУТ ФИЗИЧЕСКИХ ПРОБЛЕМ имени П.Л.КАПИЦЫ

---

на правах рукописи

СВИСТОВ ЛЕОНИД ЕВГЕНЬЕВИЧ

**НОВЫЕ ДИНАМИЧЕСКИЕ ЭФФЕКТЫ В  
АНТИФЕРРОМАГНИТНЫХ ДИЭЛЕКТРИКАХ**

Специальность 01.04.09 - Физика низких температур

**А в т о р е ф е р а т**

диссертации на соискание ученой степени  
доктора физико-математических наук

МОСКВА 2007

Работа выполнена в Институте физических проблем  
имени П.Л. Капицы РАН

Официальные оппоненты:

доктор физико-математических наук С.М. Коршунов

доктор физико-математических наук В.А. Тулин

доктор физико-математических наук А.Ю. Якубовский

Ведущая организация:

Казанский Государственный Университет

Защита состоится 07 ноября 2007 года в 10 часов на заседании  
Диссертационного совета Д 002.103.01  
при Институте физических проблем им. П.Л. Капицы РАН  
119334, Москва, ул. Косыгина, д.2 .

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке  
Института физических проблем им. П.Л. Капицы РАН.

Автореферат разослан 2007 года.

Ученый секретарь Совета ,  
член-корр. РАН,  
доктор физико-математических наук, профессор

Л.А. Прозорова

# ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

## **Актуальность темы.**

В центре внимания работы находятся магнитные диэлектрики, в которых обменное взаимодействие является главным. В ионных кристаллах основную роль играет косвенное обменное взаимодействие спинов катионов через расположенные между ними анионы. Короткодействие обменного взаимодействия между ионами магнитной системы открывает экспериментальную возможность исследовать магнитные системы разных размерностей в трехмерных объектах. Так, например, если магнитные ионы занимают кристаллографические позиции вдоль цепочек, которые разделены немагнитными ионами, то обменное взаимодействие между ионами цепочки будет существенно превосходить взаимодействия ионов разных цепочек. Можно ожидать, что свойства таких объектов будут близки к свойствам одномерных магнетиков. Такие объекты называют квазиодномерными. По аналогии, квазидвумерными магнетиками называются слоистые структуры, в которых обменные взаимодействия между магнитными ионами внутри одного слоя существенно превосходят магнитные взаимодействия ионов соседних слоев. Большинство экспериментальных результатов, обсуждаемых в работе, получено при низких температурах, когда магнитная система находится в магнитоупорядоченной фазе. В области низких температур термодинамические свойства магнитоупорядоченного магнетика определяются элементарными возбуждениями, магнонами (или спиновыми волнами). Взаимодействие между магнонами приводит к конечному времени жизни магнонов и, кроме того, к перенормировке спектра. Спектр магнонов можно считать независимым от температуры только при  $T \ll T_N$ .

В трехмерных магнетиках, в которых в рамках квазиклассического рассмотрения существует одна магнитная структура, соответствующая минимуму энергии, учет взаимодействия магнонов обычно приводит к температурной зависимости коэффициентов, определяющих их спектр. Качественный вид спектра при этом не изменяется и определяется магнитной структурой [1].

Иная ситуация реализуется в случае, если основное состояние магнитной структуры вырождено, т.е. существует несколько структур с близкими значениями энергии. В этом случае тепловые и квантовые флуктуации могут оказаться решающими в выборе реализующейся при данной температуре магнитной структуры.

Работа состоит из двух частей.

Первая часть работы посвящена экспериментальным исследованиям нелинейных свойств антиферромагнетиков с анизотропией типа "легкая плоскость" на примере  $\text{MnCO}_3$  и  $\text{FeVO}_3$ . В этой части работы экспериментально исследовалось изменение магнитного момента образца при возбуждении интенсивного пакета квазичастиц. Электронные магноны, ядерные магноны, квазифононы возбуждались линейным и параметрическим радиочастотными методами. Эти эксперименты были проведены с целью изучения сценария релаксации возбужденного пакета неравновесных квазичастиц к тепловому равновесию. В этой же части работы обсуждаются результаты исследования спин-волновых резонансов в тонких пластинах антиферромагнетиков с магнитной анизотропией типа "легкая плоскость". В этих исследованиях были изучены температурные зависимости собственной частоты и ширины линий спин-волновых резонансов с большими волновыми числами с целью определения температурной перенормировки спектра и оценки частоты релаксации. Исследование нелинейных свойств магнетиков является актуальным, как с фундаментальной, так и с прикладной точки зрения. В этой части работы обсуждаются новые исследования сильно возбужденной магнитной системы, проведенные с помощью различных нестандартных экспериментальных методик. Эти эксперименты позволили проверить имеющиеся к настоящему моменту представления о взаимодействиях различных типов элементарных возбуждений, а также обнаружили новые неожиданные динамические свойства трехмерных магнетиков, например, динамическое намагничивание образца звуком.

Во второй части исследуются свойства квазидвумерных и квазиодномерных фрустрированных неколлинеарных антиферромагнетиков на примере  $\text{RbFe}(\text{MoO}_4)_2$ ,  $\text{KFe}(\text{MoO}_4)_2$ ,  $\text{LiCuVO}_4$ . Интерес к таким объектам возник по-

сле теоретических работ [2–4], в которых рассматривались магнитные фазовые диаграммы двумерных антиферромагнитных систем, магнитные ионы которых расположены на треугольной решетке. Эти работы предсказывали в таких структурах необычные фазовые диаграммы на плоскости магнитное поле – температура, в которых многие магнитные структуры определяются квантовыми и тепловыми флуктуациями. Теоретическое рассмотрение [5] показало, что такие необычные фазы сохраняются и в трехмерном случае при условии слабого межплоскостного взаимодействия. Теоретические исследования таких модельных объектов интенсивно проводятся уже более тридцати лет. Поиск и исследование реальных объектов, на которых такие квантовые макроскопические эффекты наблюдаются экспериментально, является актуальной фундаментальной задачей. В настоящей работе описаны новые исследования, проведенные с помощью различных экспериментальных методик, фазовых диаграмм и магнитных структур, а также спектра магнитных возбуждений таких магнетиков.

### **Научная новизна и положения, выносимые на защиту.**

В данной работе проведены новые экспериментальные исследования, основные результаты которых могут быть сформулированы следующим образом:

1. Создана методика измерения изменения магнитного момента образца с помощью сверхпроводящего квантового магнитометра при различных динамических воздействиях (возбуждении магнонов, ядерного магнитного резонанса, звука).

2. Изучено изменение магнитного момента  $\Delta M$  антиферромагнетика  $MnCO_3$  при возбуждении радиочастотной накачкой неравновесных коллективных колебаний ядерной и электронной спиновых систем (ядерных магнонов). Показано, что наблюдаемое  $\Delta M$  определяется неравновесными ядерными магнонами с малыми волновыми векторами. Проведена оценка времени термализации неравновесных ядерных магнонов внутри ядерной спиновой подсистемы. Величина времени термализации внутри ядерной подсистемы оказалась много меньше времени спин решеточной релаксации  $T_1$ , что оправдывает введение квазиравновесной температуры ядерной спиновой подсистемы.

мы  $T_n$ .

3. Изучено изменение магнитного момента легкоплоскостного антиферромагнетика  $MnCO_3$  при параметрическом возбуждении магнонов. Полученное значение уменьшения магнитного момента, по меньшей мере в 6 раз превосходит величину  $\Delta M$ , обусловленную магнонами, находящимися в параметрическом резонансе с СВЧ-накачкой. Это свидетельствует о том, что основной процесс релаксации связан с процессами образования вторичных квазичастиц, обладающих значительным магнитным моментом. Используя результаты теоретического рассмотрения собственных процессов релаксации магнонов в  $MnCO_3$  можно заключить, что самый вероятный процесс релаксации – упругое рассеяние магнонов на дефектах образца.

4. В образцах  $MnCO_3$  и  $FeVO_3$  в виде тонких пластин удалось наблюдать спин-волновые резонансы с рекордно большими порядками ( $n \sim 100 \div 1000$ ). Определена температурная зависимость константы неоднородного обменного взаимодействия  $FeVO_3$ .

Обнаружено, что эффективность возбуждения спин-волновых резонансов существенно зависит от искусственно создаваемых в образце упругих деформаций. Создание в образцах в форме пластин изгибных деформаций позволяет разрешить спин-волновые резонансы с малыми волновыми числами.

5. Проведены экспериментальные исследования изменения магнитного момента  $\Delta M$  антиферромагнетика типа "легкая плоскость"  $FeVO_3$  при возбуждении в нем неравновесных фононов с помощью СВЧ-накачки и пьезоизлучателя. Обнаружено явление стимулированного намагничивания образца фононной накачкой, теоретически предсказанное в работе [6].

6. Экспериментально показано, что  $RbFe(MoO_4)_2$  является квазидвумерным антиферромагнетиком на треугольной решетке с магнитной анизотропией типа "легкая плоскость". Получены параметры взаимодействий, определяющие магнитную структуру: обменные интегралы внутрислоевых и межслоевых взаимодействий, константа анизотропии и др.

7. Проведено исследование магнитных структур, реализующихся в  $RbFe(MoO_4)_2$  в области низких температур в магнитном поле методом ЯМР на ядрах  $^{87}Rb$ . Результаты исследования находятся в качественном соответ-

ствии с магнитными структурами, предложенными в теоретических работах [3–5]. ЯМР исследования обнаруживают переход из соизмеримой в несоизмеримую структуру.

8. Получены фазовые диаграммы  $\text{RbFe}(\text{MoO}_4)_2$  на плоскости магнитное поле – температура для  $H \perp C_3$  и  $H \parallel C_3$ . Магнитные фазы при  $T \ll T_N$  для  $H \perp C_3$  могут быть сопоставлены с магнитными фазами, предложенными в теоретической работе [5]. Фазовая диаграмма и критическое поведение  $\text{RbFe}(\text{MoO}_4)_2$  демонстрируют хорошее количественное соответствие с результатами вычислений в рамках двумерной квазиклассической XY-модели [7].

9. Экспериментально показано, что  $\text{KFe}(\text{MoO}_4)_2$  является квазидвумерным антиферромагнетиком на треугольной искаженной решетке с магнитной анизотропией типа "легкая плоскость". Получены параметры взаимодействий, определяющие магнитную структуру. Предложена модель магнитной структуры с двумя типами магнитных плоскостей, упорядоченных коллинерным и спиральным образом, адекватно описывающая всю совокупность имеющихся к настоящему моменту экспериментальных данных.

10. Проведено исследование магнитных свойств квазиодномерного фрустрированного антиферромагнетика  $\text{LiCuVO}_4$  методами электронного спинового резонанса и ядерного магнитного резонанса на немагнитных ионах  $\text{Li}^{1+}$  и  $\text{V}^{5+}$ . В магнитоупорядоченной фазе в магнитном поле обнаружен ряд фазовых переходов. Показано, что все фазовые переходы происходят между несоизмеримыми спиральными магнитными структурами. Предложены магнитные фазы, описывающие весь комплекс имеющихся к настоящему моменту экспериментальных данных.

Перечисленные выше положения выносятся на защиту.

### **Апробация работы.**

Изложенные в диссертации результаты были представлены на следующих российских и международных конференциях:

1. 26-й конгресс по магнитному резонансу, AMPERE ( Греция, Афины 1992)
2. Московский международный симпозиум по магнетизму, MISM (Россия,

Москва 2003,2005)

3. Современное развитие магнитного резонанса, EPR-60, международная конференция (Россия, Казань 2004)
4. Исследование наноскопических свойств твердых тел резонансными методами, NANORES-2004, международная конференция (Россия, Казань 2004)
5. Международная конференция по функциональным материалам, ICFM (Украина, Крым 2005)
6. Всероссийское совещание по физике низких температур НТ-34 (Сочи, 2006).
7. Международный семинар по спиновым волнам (Санкт-Петербург, 1998, 2002, 2007)
8. Общественный семинар по магнетизму.
9. Семинары и ученые советы в Институте физических проблем им. П.Л.Капицы РАН и ежегодные научные конференции Института кристаллографии им. А.В.Шубникова РАН.

### **Основные результаты работы диссертации опубликованы:**

1. Л.Е.Свистов, "Изменение магнитного момента легкоплоскостного антиферромагнетика  $MnCO_3$  при параметрическом возбуждении магнонов", ЖЭТФ, т.99(1991), стр.1612-1618
2. В.Ya.Kotyuzhanskii, L.E.Svistov, H.Benner, "Observation of the 'size effect' at the linear excitation of spin-waves in antiferromagnetic  $MnCO_3$ ", J.Phys.:Condens.Matter v.3(1991), pp.9253-9256
3. L.E.Svistov, J.Löw, H.Benner, "The effect of nuclear spin waves on the magnetization of  $MnCO_3$ ", J.Phys.:Condens.Matter v.5(1993), pp.4215-4224

4. L.E.Svistov, V.L.Safonov, H.Benner, "Detection of UHF sound in the antiferromagnet  $\text{FeVO}_3$  by a SQUID magnetometer", *J.Phys.:Condens.Matter* v.6(1994), pp.8051-8063
5. Л.Е.Свистов, В.Л.Сафонов, К.Р.Хачеватская, "Спин-волновые резонансы в неоднородно деформированных пластинах  $\text{FeVO}_3$ ", *ЖЭТФ*, т.112(1997), стр.564-573
6. Л.Е.Свистов, Х.Беннер, "Эффект намагничивания  $\text{FeVO}_3$  СВЧ-накачкой", *ЖЭТФ*, т.115(1999), стр.1107-1115
7. L.E.Svistov, A.I.Smirnov, L.A.Prozorova, O.A.Petrenko, L.N.Demianets, A.Ya.Shapiro, "Quasi-two-dimensional antiferromagnet on a triangular lattice  $\text{RbFe}(\text{MoO}_4)_2$ ", *Phys.Rev.B* v.67(2003), pp.094434
8. S.A.Klimin, M.N.Popova, B.N.Mavrin, L.E.Svistov, A.I.Smirnov, L.A.Prozorova, H.-A.Krug von Nidda, Z.Seidov, A.Loidl, L.N.Demianets, A.Ya.Shapiro, "Structural phase transition in the two-dimensional triangular lattice antiferromagnet  $\text{RbFe}(\text{MoO}_4)_2$ ", *Phys.Rev.B* v.68(2003), pp.174408
9. Л.Е.Свистов, А.И.Смирнов, Л.А.Прозорова, О.А.Петренко, А.Я.Шапиро, Л.Н.Демьянец, "Возможное сосуществование спиральной и коллинеарной структур в антиферромагнитном  $\text{KFe}(\text{MoO}_4)_2$ ", *Письма ЖЭТФ*, т.80(2004), стр.231-235
10. Л.Е.Свистов, Л.А.Прозорова, Н.Бюттген, А.Я.Шапиро, Л.Н.Демьянец, "Исследование магнитной структуры квазидвумерного антиферромагнетика  $\text{RbFe}(\text{MoO}_4)_2$  на треугольной решетке методом ЯМР ( $^{57}\text{Rb}$ )", *Письма ЖЭТФ*, т.81(2005), стр.133-138
11. L.E.Svistov, A.I.Smirnov, L.A.Prozorova, O.A.Petrenko, A.Micheler, N.Büttgen, A.Ya.Shapiro, L.N.Demianets, "Magnetic phase diagram, critical behavior, and two-dimensional to three-dimensional crossover in the triangular lattice antiferromagnet  $\text{RbFe}(\text{MoO}_4)_2$ ", *Phys.Rev.B* v.74(2006), p.024412

12. N.Büttgen, H.-A.Krug von Nidda, L.E.Svistov, L.A.Prozorova, A.Prokofiev, W.Aßmus, "Spin-modulated quasi-one-dimensional antiferromagnet  $\text{LiCuVO}_4$ ", Phys. Rev. B v.76(2007), p.014440

## **Структура и объем диссертации.**

Диссертация состоит из семи глав, разбитых на две части:

1. Динамические эффекты в 3-D антиферромагнетиках.
2. Исследование фрустрированных антиферромагнетиков.

Во введении к каждой из частей диссертации обосновывается актуальность выбранной темы и, формулируются задачи исследований.

Общий объем диссертации составляет 220 страниц машинописного текста и включает в себя основной текст, список литературы из 151 наименований и 90 рисунков.

## **СОДЕРЖАНИЕ ДИССЕРТАЦИИ**

### **Часть I. Динамические эффекты в 3-D антиферромагнетиках.**

Первая часть работы посвящена исследованию нелинейных свойств антиферромагнетиков с магнитной анизотропией типа "легкая плоскость" на примере  $\text{MnCO}_3$  и  $\text{FeVO}_3$ , кристаллическая структура которых описывается пространственной группой  $D_{3d}^6$ . Нейтронографические исследования [8, 9] показали, что ниже температуры Нееля  $T_N$  ( $T_N=32$  К для  $\text{MnCO}_3$  и  $T_N=348$  К для  $\text{FeVO}_3$ ) они становятся слабыми ферромагнетиками, у которых магнитные моменты двух подрешеток лежат в базисной плоскости, перпендикулярной оси третьего порядка. Скос магнитных подрешеток, с которым связан слабый ферромагнитный момент, обусловлен взаимодействием Дзялошинского [10]. Анизотропия в плоскости обычно мала. Вырождение основного состояния магнитной системы относительно поворота вокруг оси высокого порядка приводит к тому, что одна из ветвей спектра магнонов в отсутствие магнитного поля обладает малой величиной щели, которая определяется слабыми по сравнению с обменными взаимодействиями.

В случае  $\text{MnCO}_3$  в области температур жидкого гелия величина щели

определяется в основном сверхтонким взаимодействием электронной спиновой системы с моментами ядер  $^{55}\text{Mn}$ . Это взаимодействие приводит к появлению длинноволновых возбуждений, так называемых ядерных магнонов, частоты которых находятся вблизи частоты ядерного магнитного резонанса на ядрах  $^{55}\text{Mn}$  в сверхтонком поле, создаваемом на них электронным окружением.

В случае  $\text{FeVO}_3$  величина щели низкочастотной ветви спектра магнонов определяется магнитоупругим взаимодействием. При этом спектр фононов в области малых волновых векторов становится нелинейным.

Несмотря на то, что эффективные поля, обусловленные магнитоупругим и сверхтонким взаимодействиями, невелики ( $\sim 1 \text{ Oe}$ ), величина щели в спектре магнонов, искажения фононного спектра, а также зона ядерных возбуждений оказываются значительными, поскольку в случае антиферромагнетиков типа "легкая плоскость" параметры, определяющие спектр квазичастиц, зависят от произведения слабого эффективного поля и сильного обменного поля [11,12]. Такое "обменное усиление" слабых взаимодействий является характерной особенностью легкоплоскостных антиферромагнетиков и проявляется не только в линейной, но и в нелинейной динамике – во взаимодействии элементарных возбуждений.

Деление ветвей спектров квазичастиц на электронные магнонные, упругие и ядерные магнонные условно, поскольку нормальные моды представляют собой связанные колебания упругих и магнитных компонент. Чтобы подчеркнуть сложный характер колебаний к названию соответствующих ветвей спектра часто добавляют предлог квази- (квазимагнонная, квазифононная ветви спектра). Результаты экспериментальных и теоретических исследований спектров возбуждений таких антиферромагнетиков собраны в монографиях и обзорах (см. напр. [12–15]).

Возбуждение неравновесной квазичастицы приводит к изменению проекции магнитного момента  $\mathbf{M}$  образца на направление внешнего статического поля  $\mathbf{H}$ . Изменение магнитного момента, связанное с возбуждением одной квазичастицы, равно [14]:

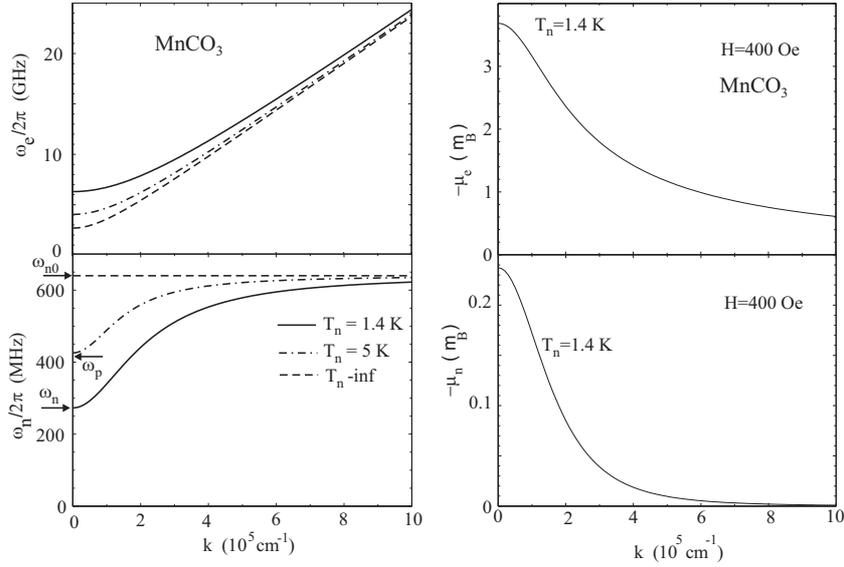


Рис. 1: Левая панель: спектры электронных и ядерных магнонов при различных температурах ядерной спиновой системы. Правая панель: изменение магнитного момента, вызванное возбуждением одной квазичастицы.

$$\mu_{\omega k} = -\partial \varepsilon_k / \partial H, \quad (1)$$

где  $\varepsilon_k$  – энергия квазичастицы с волновым вектором  $k$ . На рис. 1,2 приведены спектры возбуждений и вычисленные величины эффективных значений магнитных моментов квазимагнонов, квазифононов и ядерных магнонов в  $\text{MnCO}_3$  и  $\text{FeVO}_3$ .

Значительные эффективные магнитные моменты квазифононов и ядерных магнонов в области малых волновых векторов связаны с компонентами электронной спиновой подсистемы.

В главах 1,2,4 этой части работы обсуждаются эксперименты, в которых определялось изменение магнитного момента монокристаллических образцов антиферромагнетиков с магнитной анизотропией типа "легкая плоскость" при возбуждении в них неравновесного пакета квазичастиц: ядерных магнонов, электронных магнонов, фононов. Квазичастицы возбуждались параметрическим и резонансным методами. Изменение магнитного момента образца  $\Delta M$  обусловлено квазичастицами, находящимися в резонансе с СВЧ-накачкой и вторичными магнонами. Число квазичастиц, находящихся в резонансе с СВЧ-накачкой, а также обусловленное ими изменение магнитного

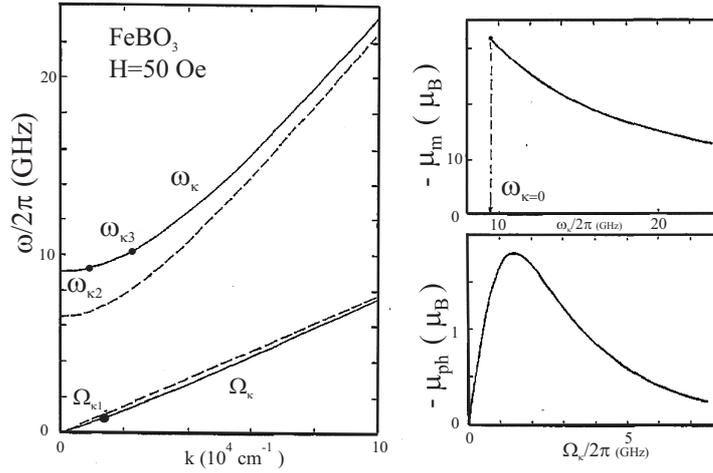


Рис. 2: Левая панель: спектры магнонов и фононов антиферромагнитного  $\text{FeBO}_3$  (сплошные линии); спектры, вычисленные без учета магнитоупругого взаимодействия (пунктирные линии). Правая панель: изменение магнитного момента образца, вызванное возбуждением одной квазичастицы.

момента может быть определено, исходя из величины поглощаемой образцом СВЧ мощности, и частоты релаксации квазичастиц, определенной, например, по порогу их параметрического возбуждения. Таким образом, такие эксперименты позволяют получить величину изменения магнитного момента, связанного со вторичными квазичастицами и в конечном итоге информацию о сценарии термализации магнитной системы.

Первые экспериментальные исследования изменения магнитного момента парамагнетика и ферромагнетика при возбуждении в них парамагнитного и ферромагнитного резонансов, соответственно, были выполнены Н. Бломбергом и С. Вангом в 1953 г. [16]. В антиферромагнетике типа "легкая плоскость" изменение магнитного момента при возбуждении однородного колебания методом антиферромагнитного резонанса и магнонов с большими волновыми векторами, возбужденных методом параллельной накачки, исследовались в работах [17, 18] на монокристаллах  $\text{CoCO}_3$  и  $\text{FeVO}_3$  соответственно. В первой работе изменение магнитного момента определялось оптическими методами. Во второй работе изменение магнитного момента измерялось с помощью сверхпроводящего квантового магнитометра. Результаты работы [18] стимулировали описываемые в этой части работы исследования.

Для измерения изменения магнитного момента образца под действием СВЧ накачки был сконструирован спектрометр, комбинированный со сверхпроводящим квантовым магнетометром, который позволял проводить измерения в области полей 0–500 Ое и температур 1.4–130 К. Низкотемпературная часть СВЧ-спектрометра располагалась внутри металлического сосуда Дьюара, который являлся тепловым и высокочастотным экраном. Магнитное поле создавалось сверхпроводящим соленоидом, работающим в короткозамкнутом режиме.

Поскольку измеряемая характеристика  $\Delta M$  является интегральной, то такие эксперименты имели смысл для объектов, спектральные и нелинейные свойства которых были уже изучены экспериментально и теоретически. Обширная информация о магнитных свойствах  $MnCO_3$  и  $FeVO_3$ , а также наличие теоретических исследований нелинейных магнитных свойств антиферромагнетиков с магнитной анизотропией типа "легкая плоскость" было одним из определяющих факторов при выборе объектов исследований.

**В первой главе** обсуждается экспериментальное исследование изменения магнитного момента монокристаллического образца  $MnCO_3$  при возбуждении в нем неравновесных ядерных магнонов. На рис. 3 приведена схема низкотемпературной части измерительной установки и ориентации радиочастотного поля  $\mathbf{h}$ , кристаллографической оси  $\mathbf{C}_3$ , и измеряемого изменения магнитного момента  $\Delta M$ . РЧ-магнитное поле в образце, необходимое для возбуждения ядерной спиновой подсистемы, создавалось с помощью 1–3 витков, на которые была нагружена коаксиальная РЧ-линия.

На рис. 4 приведено полученное относительное изменение магнитного момента образца в зависимости от частоты накачки  $\omega_p$ , снятое при различных уровнях РЧ-мощности (сплошная линия - 0 dB, штрих-пунктирная - -3 dB, пунктирная - -10 dB). Записи сделаны при плавном увеличении частоты РЧ-генератора. Пики на полученных зависимостях, наблюдаемые при малых уровнях РЧ-мощности, связаны с резонансами в передающей линии, которые приводят к зависимости амплитуды радиочастотного поля  $h$  в образце от частоты  $\omega_p$ . Начиная с некоторого уровня РЧ-мощности величина  $\Delta M/M$  перестает зависеть от РЧ-мощности (см. кривую 0 dB на рис. 3, снятую при

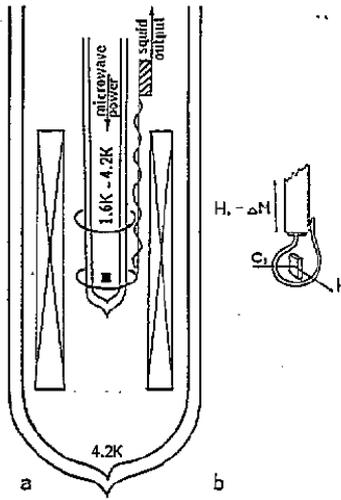


Рис. 3: Низкотемпературная часть прибора (схема).

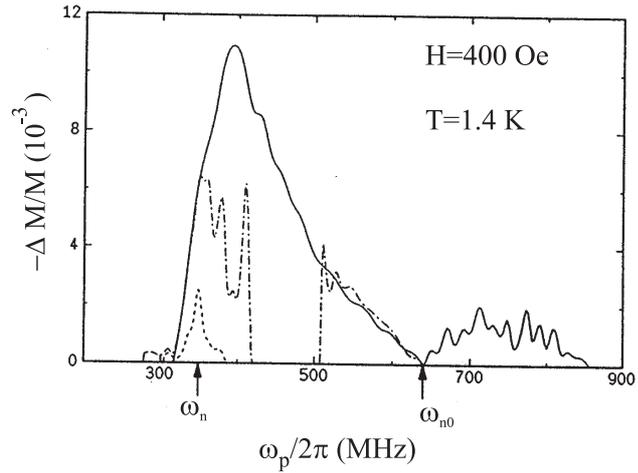


Рис. 4: Относительное изменение магнитного момента образца, в зависимости от частоты накачки  $\omega_p$ , измеренное при различных уровнях РЧ-мощности (сплошная линия - 0 dB, штрих-пунктирная - -3 dB, пунктирная - -10 dB).

$\omega_p < 640$  MHz). Зависимость  $\Delta M/M$  от величины  $\omega_p$  может быть разделена на две области. Первая область частот простирается от частоты ЯМР, измеренного в режиме малой РЧ-мощности  $\omega_{n,k=0}(T = 1.4K) = 350$  MHz до несмещенной частоты ЯМР  $\omega_{n0} = 640$  MHz (см. рис. 2). В этой области частот изменение магнитного момента образца связано с перегревом ядерной спиновой системы. Вторая область частот соответствует области частот, больших 640 MHz. В этой области частот изменение магнитного момента образца связано с параметрическим возбуждением ядерных магненов. В работе обсуждаются результаты измерений, полученные при достаточно большой РЧ-мощности (см. кривую 0 dB на рис. 3), т.е. в режиме насыщения, при котором ядерная спиновая система перегрета во всем объеме образца, и во всем образце выполняется условие  $\omega_n(Tn > T) \simeq \omega_p$ . Анализ экспериментальных результатов показывает, что наблюдаемое  $\Delta M$  определяется неравновесными ядерными маггнонами с волновыми векторами, близкими к нулю. Этот результат позволяет получить независимую оценку числа ядерных магненов в волновой части спектра, а также оценку времени термализации неравновесных ядерных магненов внутри ядерной спиновой подсистемы. Определенное время термализации в исследованной области температур и полей более чем

в 10 раз меньше, чем время спин решеточной релаксации ядерной системы  $T_1$ .

**Во второй главе** обсуждается исследование изменения магнитного момента  $\Delta M$  образца при параметрическом возбуждении электронных магнонов. В качестве объекта исследования был выбран антиферромагнетик с магнитной анизотропией типа "легкая плоскость"  $\text{MnCO}_3$ . Параметрическое возбуждение магнонов осуществлялось методом параллельной накачки на частоте  $\omega_p/2\pi = 36 \text{ GHz}$ . Использовался цилиндрический резонатор, настроенный на моду  $H_{012}$ , в пучность магнитного СВЧ-поля  $h$  которого помещался исследуемый образец. Прошедшая через резонатор СВЧ-мощность, пропорциональная квадрату поля на образце,  $h^2$ , измерялась с помощью квадратичного детектора, который градуировался по термисторному измерителю мощности. Поле  $h$  на образце определялось по величине падающей мощности и параметрам резонатора с абсолютной точностью 20%. Измерение абсолютного значения порогового поля параметрической неустойчивости  $h_c$  позволяет определить параметр релаксации магнонов, находящихся в параметрическом резонансе с СВЧ накачкой. Измерение поглощаемой образцом СВЧ-мощности при параметрическом возбуждении магнонов и возникающее при этом изменение магнитного момента образца позволило определить эффективный магнитный момент, связанный с возбуждением одного магнона на частоте 18 GHz:  $\mu_{\omega k} \approx 5 \pm 1.5 \mu_B$ . Это значение, по крайней мере, в шесть раз превосходит значение  $\mu_{\omega k} = 0.68 \mu_B$ , вычисленное по формуле 1.

Отсюда можно заключить, что для  $\text{MnCO}_3$ , также как и для  $\text{FeVO}_3$ ,  $\text{CoCO}_3$  ([17,18]), в исследованной области полей и температур время релаксации продольной составляющей магнитного момента существенно превосходит время выхода из резонанса с накачкой, определенного из величины порога параметрической неустойчивости. По всей видимости, самым эффективным механизмом релаксации в исследованной области полей является упругий процесс рассеяния магнонов на дефектах, который выводит магноны из резонанса с накачкой и определяет пороговое поле параметрической неустойчивости  $h_c$ , но не приводит к релаксации магнитного момента образца.

Помимо порогового процесса параметрического возбуждения магнонов и

связанного с ним изменения магнитного момента образца в экспериментах было обнаружено линейное по СВЧ-мощности уменьшение магнитного момента образца. Такое линейное изменение магнитного момента при воздействии СВЧ-накачки наблюдалось не только в экспериментах по параметрическому возбуждению магнонов в  $\text{MnCO}_3$ , но и в изоморфном ему антиферромагнетике  $\text{CoCO}_3$ , а также в экспериментах по линейному и параметрическому возбуждению фононов в  $\text{FeVO}_3$ . Такое линейное изменение магнитного момента мы связываем с линейным процессом возбуждения магнонов:  $\omega_p = \omega_k$ . Поскольку волновой вектор СВЧ фотона приблизительно в  $10^5$  раз меньше волнового вектора возбуждаемых при таком процессе квазичастиц, то эффективность такого процесса существенно зависит от дефектов образца, в частности, от его границ. Эти наблюдения стимулировали исследования линейного возбуждения магнонов с большими волновыми векторами, описанные в следующей главе диссертации.

**В третьей главе** диссертации описаны экспериментальные исследования линейного возбуждения СВЧ-магнитным полем спин-волновых резонансов с большими волновыми числами в тонких пластинах антиферромагнетных  $\text{MnCO}_3$  и  $\text{FeVO}_3$ . Исследования проводились на стандартных ЭПР-спектрометрах фирмы Bruker и Varian в СВЧ диапазонах 8 мм и 3 см.

Исследования показали, что в образцах  $\text{MnCO}_3$  в полях, много меньших поля антиферромагнитного резонанса, наблюдаются резонансные особенности, соответствующие спин-волновым резонансам высокого порядка ( $n \sim 1500$ ). Наблюдаемый спектр далек от спектра, ожидаемого для образца идеальной формы. Это указывает на то, что толщина в разных местах пластины различна. Результат интерференции спектров, полученных от разных частей образца наблюдается в эксперименте. Характерный период резонансных пиков позволяет определить значение константы неоднородного обменного взаимодействия  $\alpha_{\parallel}$ , которая с точностью эксперимента совпала со значением, определенным в [19, 20] методами неупругого рассеяния нейтронов и параметрического возбуждения магнонов.

В антиферромагнитном  $\text{FeVO}_3$  константа неоднородного обменного взаимодействия имеет величину в 10 раз больше, чем в  $\text{MnCO}_3$ . Кроме того,

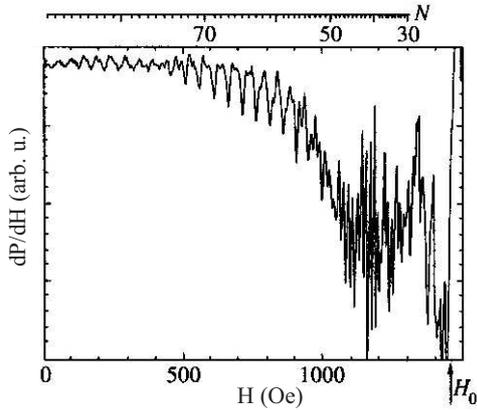


Рис. 5: Производная поглощаемой образцом мощности по полю ( $dP/dH$ ) от  $H$ , при  $T=80$  К.

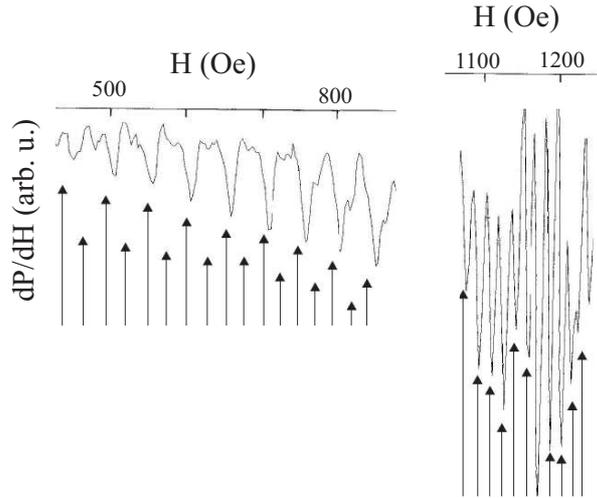


Рис. 6: Два фрагмента записи рис. 5 в бóльшем масштабе. Стрелками приведены вычисленные значения резонансных полей.

образцы  $FeVO_3$  представляли собой почти в пять раз более тонкие пластины и имели более высокое качество. Эти обстоятельства позволили получить и исследовать в  $FeVO_3$  спектры спин-волновых резонансов с большими волновыми числами.

На рис. 5,6 приведены фрагменты записи производной поглощаемой образцом мощности по полю ( $dP/dH$ ) от  $H$ , при  $T=80$  К. На рисунках показан результат расчета полей спин-волновых резонансов. Разницы полей между соседними резонансными особенностями находятся в хорошем соответствии с вычисленными. Спин-волновой резонанс, наблюдаемый в области малых полей соответствует номеру  $n \simeq 80$ . Эти резонансы соответствуют значениям  $k_z \simeq 1.5 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-1}$ . Спин-волновые резонансы с  $n \leq 20 - 30$  вблизи поля антиферромагнитного резонанса  $H_0$  разрешить не удастся.

В работе определена температурная зависимость константы неоднородного обменного взаимодействия  $FeVO_3$  в области температур 30-250 К. При температуре большей, чем  $1/3$  от температуры Нееля обнаружено заметное смягчение спектра магнонов, которое, по-видимому, связано с их взаимодействием.

Исследование спин-волновых резонансов показало, что эффективность их возбуждения существенно зависит от искусственно создаваемых в образце

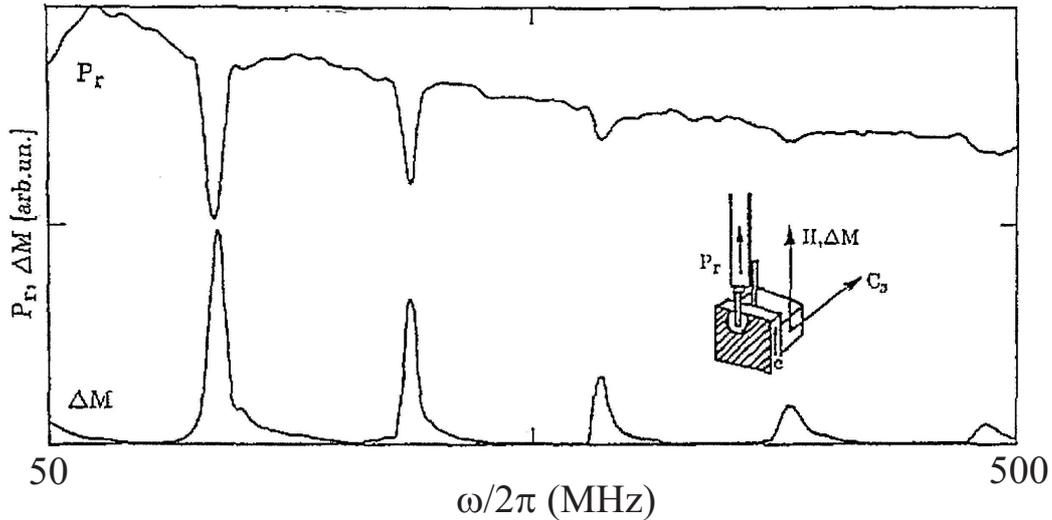


Рис. 7: Записи изменения магнитного момента  $\Delta M$  образца  $\text{FeVO}_3$  и отраженной от пьезо элемента РЧ-мощности в зависимости от частоты генератора.

упругих деформаций. Создание в образце деформаций изгибного типа позволяет разрешить спин-волновые резонансы с малыми волновыми числами. Обсуждается модель, которая описывает результаты эксперимента.

**В четвертой главе** обсуждаются эксперименты, в которых исследовалось изменение магнитного момента образца  $\text{FeVO}_3$  при возбуждении в нем звука высокой частоты.

Спектры квазимагнонов и квазифононов и вычисленный магнитный момент, связанный с возбуждением одной квазичастицы в антиферромагнитном  $\text{FeVO}_3$  приведены на рис. 2. Исследования воздействия РЧ-накачки квазифононов на магнитный момент образца проводились с помощью прибора, схема которого приведена на рис. 1. Эксперименты проводились в ванне жидкого азота и жидкого гелия, в области полей до 500 Oe и частот от 0.1 GHz до 10 GHz. Квазифононы возбуждались с помощью пьезопреобразователя и с помощью переменного магнитного поля, для чего использовался набор коаксиальных и спиральных резонаторов.

На рис. 5 приведены записи  $\Delta M$  и сигнала снимаемого с детектора, регистрирующего отраженную от пьезоэлемента РЧ-мощность в зависимости от частоты генератора. Изменение магнитного момента образца наблюдалось при значениях частот РЧ-генератора, при которых наблюдался акустический

резонанс в пьезопреобразователе. При возбуждении квазифононов с помощью переменного магнитного поля в СВЧ резонаторе можно было определить интенсивность их накачки и количественно сопоставить ее с измеренным изменением магнитного момента образца  $\Delta M$ .

В результате экспериментов было обнаружено, что изменение магнитного момента образца при возбуждении квазифононов, как и ожидалось, отрицательно при температуре  $T = 77$  К. Однако, при температуре  $T=1.5-4.2$  К,  $\Delta M$  положительное, т.е. возбуждение неравновесных квазифононов приводит к увеличению магнитного момента образца. Изменение магнитного момента образца при воздействии на него СВЧ-мощности было обратимо.

Возможность индуцирования магнитного момента звуковой накачкой обсуждалась в работе [6]. В этой работе было показано, что в антиферромагнетиках, в которых разрешен трехчастичный магнон-фононный процесс релаксации ( $m_1 + ph \longleftrightarrow m_2$ , квазичастицы участвующие в этом процессе схематически обозначены на рис. 2) в области низких температур можно ожидать явление динамического намагничивания образца. Качественно это явление можно объяснить следующим образом. Магнитный момент, связанный с возбуждением одного магнона, существенно зависит от его частоты (рис. 1). При наличии звуковой накачки трехчастичный магнон-фононный процесс приводит к перераспределению заселенности тепловых магнонов вдоль спектра, а именно, уменьшению числа низкочастотных магнонов за счет увеличения числа магнонов в области высоких частот с сохранением их общего числа. Такое перераспределение магнонов приводит к росту магнитного момента образца.

## **Часть II. Исследование фрустрированных антиферромагнетиков.**

В этой части работы описаны экспериментальные исследования свойств магнетиков, в которых тепловые и квантовые флуктуации определяют реализующиеся магнитные структуры. Основное внимание уделено описанию экспериментальных исследований фрустрированных квазидвумерных антиферромагнетиков с плоской треугольной решеткой.

В отсутствии внешнего магнитного поля в обменном приближении га-

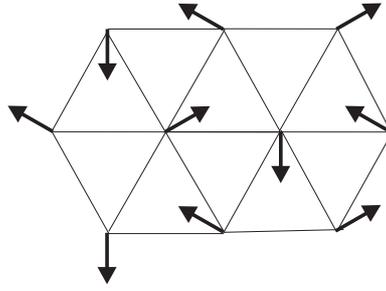


Рис. 8: Магнитная структура, соответствующая минимуму обменной энергии двумерного антиферромагнетика с треугольной решеткой.

мильтониан антиферромагнетика имеет вид:

$$\mathcal{H} = 2J \sum_{ij} S_i S_j, \quad (J > 0) \quad (2)$$

(суммирование производится по ближайшим соседям.)

Рассмотрим три спина, находящиеся в вершинах равностороннего треугольника ( $J_1=J_2=J_3$ ). Рассматривая задачу классически, легко получить, что минимуму энергии соответствует компланарное расположение трех спинов, такое, что углы между ними составляют  $120^\circ$ . Для двумерного антиферромагнетика с треугольной решеткой минимальной обменной энергией обладает трехподрешеточная магнитная структура, изображенная на рис. 8. Действительно, для каждой тройки соседних спинов такой структуры выполняется условие минимума энергии – угол между соседними спинами равен  $120^\circ$ . Основное состояние в обменном приближении бесконечно вырождено, поскольку величина обменной энергии не меняется при изменении ориентации обменной структуры в пространстве.

При приложении магнитного поля появляется магнитный момент, который связан со скосом магнитных подрешеток. Возможные магнитные структуры изображены на рис. 9. Все конфигурации с одинаковым вектором магнитного момента, но с различными относительными ориентациями магнитных подрешеток, обладают одинаковой энергией в приближении молекулярного поля для модели Гейзенберга ([4]). Так, например, структура зонтичного типа "а" в которой все три подрешетки скошены в направлении внешнего магнитного поля, имеет ту же энергию, что и планарные "b" "b'". В этих приближениях при увеличении магнитного поля структура "b" становится

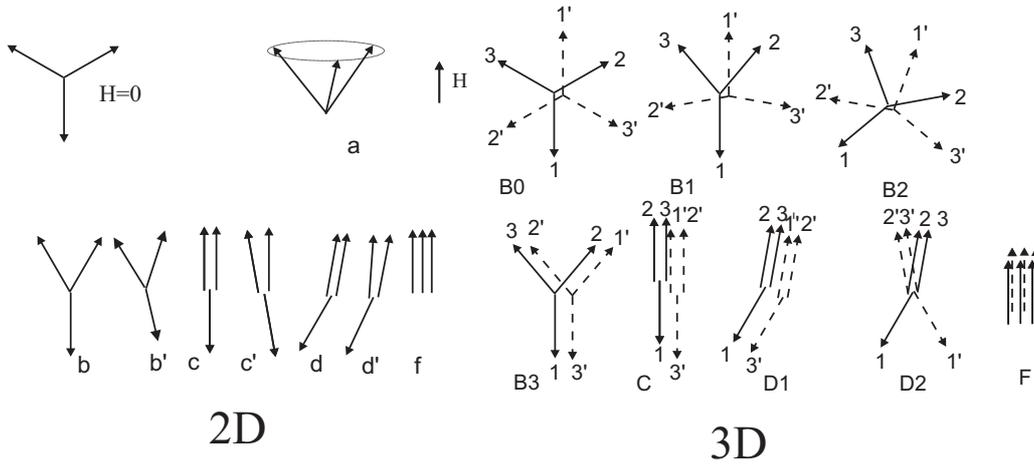


Рис. 9: Схема ожидаемых магнитных структур для двумерного антиферромагнетика с треугольной решеткой (a–f) и трехмерного шестиподрешеточного антиферромагнетика со слабым антиферромагнитным межплоскостным обменным взаимодействием (B<sub>0</sub>–F). Направления магнитных подрешеток соседних плоскостей обозначены цифрами без штрихов и со штрихами.

коллинеарной ("c" -конфигурация) в выделенном поле, значение которого равно  $H_c = H_{sat}/3$ , где  $H_{sat}$  - поле насыщения. В полях, больших  $H_c$  структура снова становится неколлинеарной с двумя параллельными подрешетками, скошенными по отношению к направлению третьей подрешетки (фаза "d" на рис. 9). И в поле  $H = H_{sat}$  происходит переход в фазу "f", в которой все спины сонаправлены. Отметим, что в рамках приближения молекулярного поля как фаза "c", так и фаза "d" вырождены с набором структур, обозначенных на рис. 9, как "c'" и "d'". Учет квантовых и тепловых флуктуаций снимает описанное вырождение ([3, 4, 21]). В магнитном поле планарные структуры оказываются более выгодными, чем структура зонтичного типа. Выбор в классе планарных структур происходит в пользу более симметричных структур, обозначенных на рис. 9 буквами без штриха. Кроме того, тепловые и квантовые флуктуации приводят к стабилизации коллинеарной спиновой конфигурации "c" в некоторой области полей  $H_{c1} \leq H \leq H_{c2}$  в окрестности поля  $H = \frac{1}{3}H_{sat}$ . Причем, согласно этим работам, такое плато намагниченности следует ожидать в сравнительно широкой области полей.

В случае наличия анизотропии типа "легкая плоскость" при приложении магнитного поля в легкой плоскости, ожидаемые магнитные структуры такие

же, как и в изотропном случае, и выбор их также определяется тепловыми и квантовыми флуктуациями. При приложении поля перпендикулярно легкой плоскости выбор реализующейся фазы определяется не флуктуациями, а анизотропией и энергетически выгодной оказывается магнитная структура зонтичного типа ("а").

В этом разделе работы обсуждаются исследования трехмерных слоистых структур, состоящих из слабосвязанных параллельных плоскостей. Трехмерная структура образуется трансляцией плоской треугольной структуры в направлении оси третьего (или шестого) порядка. Учет межплоскостного антиферромагнитного обменного взаимодействия приводит к тому, что реализуется по меньшей мере шестиподрешеточная трехмерная магнитная структура. Несмотря на трехмерный порядок, устанавливающийся в таких структурах, в случае слабого межплоскостного взаимодействия основные черты, характерные для двумерных систем, остаются. Межплоскостное взаимодействие может привести к появлению дополнительных фазовых переходов, связанных с перестройкой взаимной ориентации магнитных моментов соседних плоскостей. Возможные магнитные структуры трехмерного антиферромагнетика в магнитном поле исследовались теоретически в рамках  $XU$ -модели в работе [22], а для гейзенберговского антиферромагнетика в работе [5]. Схема ожидаемых магнитных структур в случае шести подрешеток для антиферромагнетика с треугольной решеткой показана на рис. 9. В нулевом магнитном поле реализуется структура  $B_0$ , в которой спины ближайших магнитных ионов соседних плоскостей антипараллельны благодаря антиферромагнитному межплоскостному взаимодействию.

Разница в свободной энергии для различных структур, обусловленная флуктуациями, невелика, поэтому выбор магнитной структуры в реальных кристаллах обусловлен такими взаимодействиями как обменное взаимодействие внутри слоев и между слоями, релятивистское взаимодействие с кристаллическим окружением, диполь-дипольное взаимодействие. Поэтому магнетики, в которых флуктуации определяют реализующуюся магнитную структуру, редки. В приложении к этой части работы приведен обзор магнитных свойств известных нам квазидвумерных антиферромагнетиков с треугольной решеткой. У большинства из них обменное взаимодействие в плос-

кости велико, что обеспечивает большие значения полей насыщения и ограничивает экспериментальные возможности исследования их фазовых диаграмм. Дополнительное ограничение накладывают возможности получения монокристаллических образцов. Таким образом, удобными объектами исследования к настоящему моменту является очень ограниченный список слоистых антиферромагнетиков:  $\text{Cs}_2\text{CuBr}_4$ ,  $\text{Cs}_2\text{CuCl}_4$ ,  $\text{RbFe}(\text{MoO}_4)_2$ ,  $\text{KFe}(\text{MoO}_4)_2$ . Из них только монокристаллы  $\text{RbFe}(\text{MoO}_4)_2$  обладают в области низких температур высокой кристаллографической симметрией, так что обменное взаимодействие между ближайшими магнитными ионами железа вдоль трех направлений одинаково. Такую структуру мы будем называть структурой с правильной треугольной решеткой.

**В пятой главе** обсуждается исследование магнитных свойств квазидвумерного антиферромагнетика с правильной треугольной решеткой  $\text{RbFe}(\text{MoO}_4)_2$ . Схема кристаллической решетки приведена на рис. 10. Магнитные ионы  $\text{Fe}^{3+}$  ( $S = 5/2$ ) занимают позиции в узлах гексагональных плоских решеток. Тетраэдры  $\text{MoO}_4$  расположены между слоями ионов  $\text{Fe}^{3+}$ . Обменный интеграл  $J$  определяет обменное взаимодействие в плоскости треугольной структуры, а  $J'$  - между ближайшими ионами в соседних плоскостях. Косвенное обменное взаимодействие между ионами  $\text{Fe}^{3+}$  в плоскости треугольной структуры происходит через два иона кислорода, в то время как для ионов, принадлежащих разным плоскостям, обмен происходит через три или даже более ионов кислорода. Разница обменных путей определяет квазидвумерность структуры.

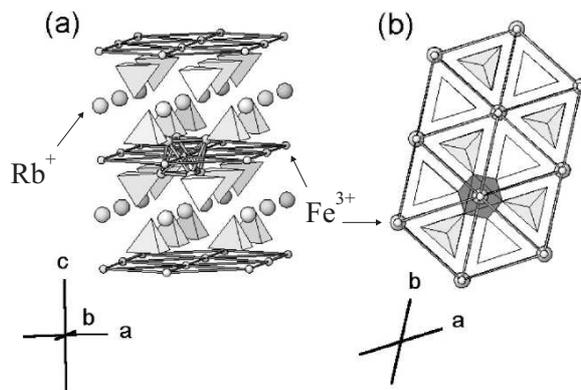


Рис. 10: Схема кристаллической решетки  $\text{RbFe}(\text{MoO}_4)_2$ .

В работе [23] исследовались кривые намагничивания порошковых образцов  $\text{RbFe}(\text{MoO}_4)_2$  в магнитоупорядоченной фазе. В этой работе было определено поле насыщения  $H_{sat} \simeq 186$  kOe, а также было обнаружено плато намагничивания в поле, близком к трети поля насыщения. Авторы этой работы предположили, что  $\text{RbFe}(\text{MoO}_4)_2$  является двумерным антиферромагнетиком с треугольной решеткой, а наблюдаемое плато намагничивания связано с коллинеарной фазой, стабилизированной квантовыми и тепловыми флуктуациями. Работа [23] стимулировала экспериментальные исследования, описываемые в этой главе диссертации.

В первой части главы обсуждаются результаты исследования монокристаллических образцов  $\text{RbFe}(\text{MoO}_4)_2$  методами магнитометрии, калориметрии, электронного спинового резонанса и ядерного магнитного резонанса. Все измерения были выполнены на монокристаллах одной ростовой партии. Магнитные свойства  $\text{RbFe}(\text{MoO}_4)_2$  существенно анизотропны.

На рис. 11а приведена полевая зависимость намагниченности (верхняя панель) и ее производной (нижняя панель)  $\text{RbFe}(\text{MoO}_4)_2$  для  $H \perp C_3$ ,  $T = 1.6$  К ( $T_N = 3.9$  К.) На вставке показана в бóльшем масштабе область вблизи поля перехода  $H_{c3}$ . При такой ориентации статического поля наблюдается ряд аномалий, соответствующих магнитным фазовым переходам. При ориентации магнитного поля вдоль оси  $C_3$  магнитный момент растет с полем линейно (рис. 11b).

На рис. 12 представлены частоты антиферромагнитного резонанса  $\text{RbFe}(\text{MoO}_4)_2$  в зависимости от магнитного поля при  $H \parallel C_3$ ,  $H \perp C_3$ ,  $T = 1.3$  К. Точками представлены экспериментальные данные. Сплошные линии соответствуют теоретическим зависимостям, вычисленным в рамках различных моделей.

В результате этих работ показано, что  $\text{RbFe}(\text{MoO}_4)_2$  является квазидвумерным антиферромагнетиком на треугольной решетке с магнитной анизотропией типа "легкая плоскость". Получены параметры взаимодействий, определяющие магнитную структуру:

Величина обменного интеграла в плоскости треугольной структуры:  $J=0.6$  К. Эта величина получена из данных по измерению восприимчивости и из

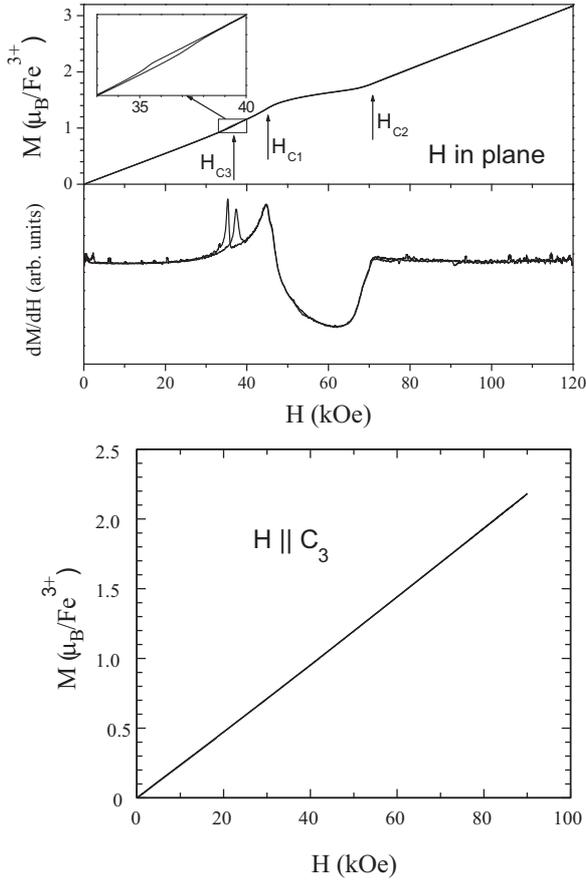


Рис. 11: Полевая зависимость намагниченности  $M(H)$  и ее производной монокристалла  $\text{RbFe}(\text{MoO}_4)_2$  для  $H \perp C_3$  (верхняя панель);  $M(H)$  для  $H \parallel C_3$  (нижняя панель)

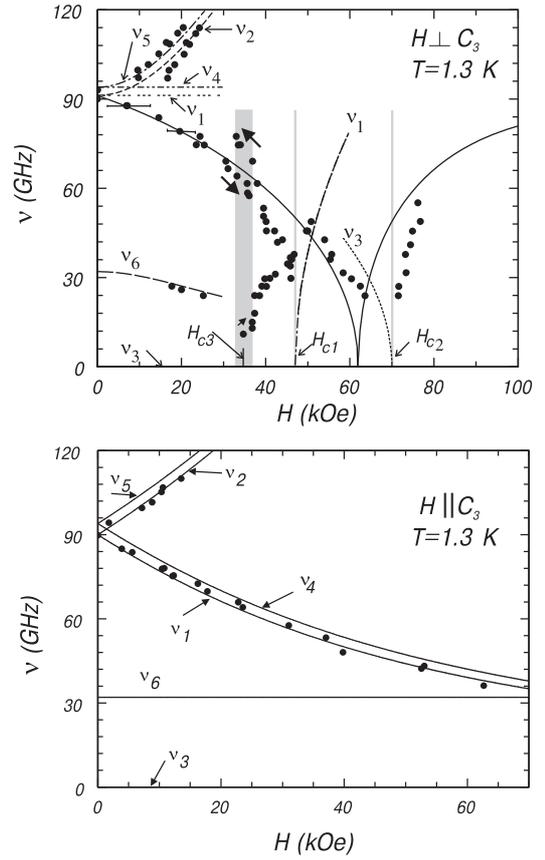


Рис. 12: Частоты АФМР  $\text{RbFe}(\text{MoO}_4)_2$  в зависимости от магнитного поля при  $H \perp C_3$  и  $H \parallel C_3$ ,  $T = 1.3$  К. Точками представлены экспериментальные данные.

величины поля насыщения.

Величина константы анизотропии  $D=0.25$  К. Величины константы  $D$ , полученные из данных по измерению восприимчивости, из исследований АФМР и ЭПР находятся в хорошем соответствии.

Величина обменного интеграла взаимодействия между плоскостями слоистой структуры:  $J'=0.01 \cdot J=0.006$  К. Значение величины  $J'$  получено из измерений спектра АФМР. Это значение  $J'$  находится в соответствии с температурой 2D-3D кроссовера, наблюдаемого на температурной зависимости теплоемкости.

На рис. 13 приведена фазовая  $H$ - $T$  диаграмма  $\text{RbFe}(\text{MoO}_4)_2$ . Точками обозначены положения фазовых переходов, полученные с помощью различных экспериментальных методик. На том же рисунке приведены границы фаз, по-

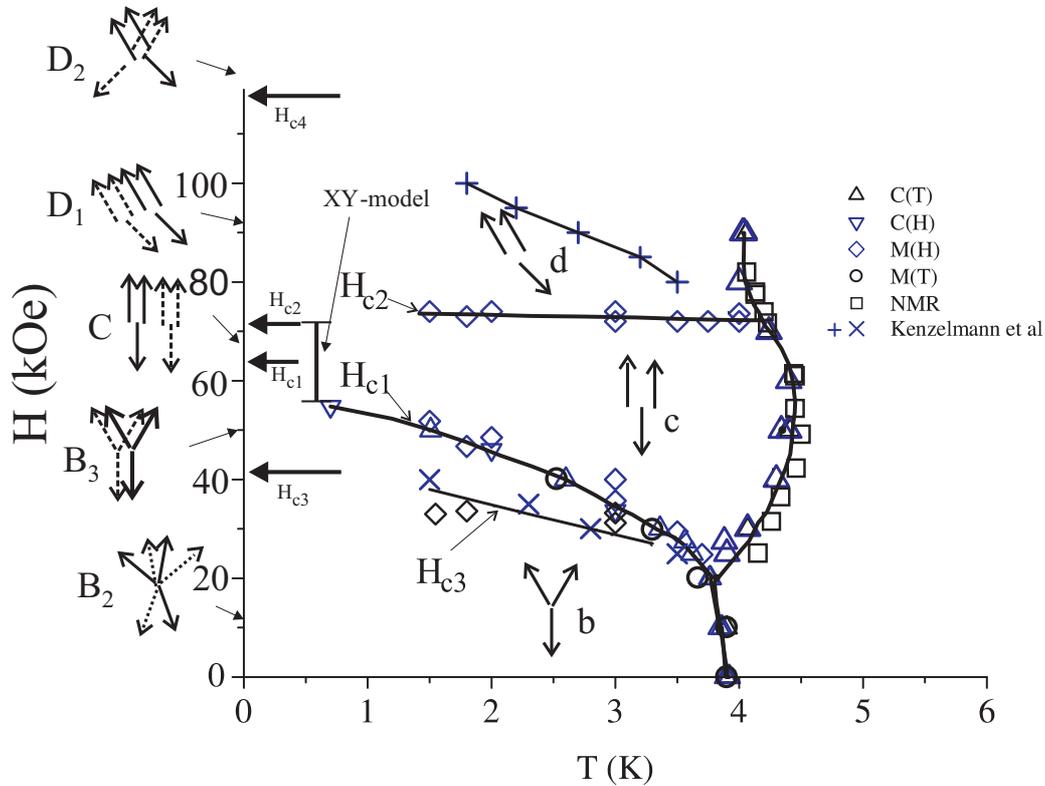


Рис. 13: Фазовая  $H$ - $T$  диаграмма  $\text{RbFe}(\text{MoO}_4)_2$  для  $H \perp C_3$ . Точками обозначены положения фазовых переходов, полученные с помощью различных экспериментальных методик. Жирными стрелками обозначены границы фаз  $H_{c1}$ –  $H_{c4}$ , полученные в работе [5] для Гейзенберговского антиферромагнетика с треугольной структурой с отношением обменных интегралов  $J'/J=0.01$  ( $T=0$ ). Схематически приведены ожидаемые магнитные структуры в рамках моделей двумерного трехподрешеточного (b, c, d) и трехмерного шестиподрешеточного ( $B_2$ ,  $B_3$ , C,  $D_1$ ,  $D_2$ ) антиферромагнетика с треугольной решеткой. Вертикальным отрезком обозначена область полей, в которой реализуется коллинеарная фаза в XY-модели [4] ( $T=0$ ).

лученные теоретически в работах [4,5] в рамках моделей Гейзенберговского и ХУ антиферромагнетика с треугольной решеткой. Схематически приведены ожидаемые магнитные структуры. Количество магнитных фаз, а также поля фазовых переходов, наблюдаемые в эксперименте и полученные теоретически, находятся в хорошем соответствии.

Для проверки соответствия предложенных магнитных структур и структур, реализующихся в  $\text{RbFe}(\text{MoO}_4)_2$ , были проведены исследования ЯМР на ядрах немагнитных ионов  $\text{Rb}^{+1}$ . Эти исследования описаны во второй части этой главы.

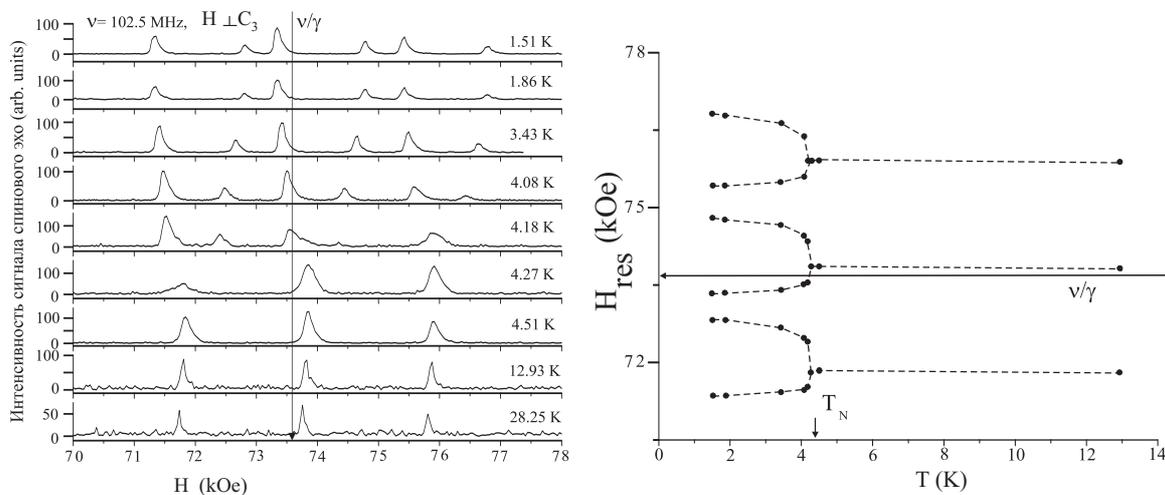


Рис. 14: Левая панель: спектры ЯМР ( $^{87}\text{Rb}$ ), снятые при разных значениях температуры.  $\nu=102.5$  МГц;  $\mathbf{H} \perp \mathbf{C}_3$ . Правая панель: зависимости величин полей ЯМР от температуры.

На левой панели рис. 14 приведены спектры ЯМР, снятые при разных значениях температуры на частоте 102.5 МГц при ориентации магнитного поля  $\mathbf{H} \perp \mathbf{C}_3$ . На правой панели рисунка приведены зависимости величин полей ЯМР от температуры. Спектр ЯМР в парамагнитной фазе состоит из трех линий, центральная из которых соответствует переходу ( $-1/2 \leftrightarrow 1/2$ ), а сателлиты – переходам ( $-3/2 \leftrightarrow -1/2$ ) и ( $1/2 \leftrightarrow 3/2$ ). Несовпадение частот таких переходов обусловлено квадрупольным взаимодействием ядра  $^{87}\text{Rb}$  с электрическим полем, создаваемым кристаллическим окружением. При переходе в антиферромагнитную фазу каждая из трех линий расщепляется на две, причем интенсивность одной из них приблизительно в два раза превосходит интенсивность другой. Сдвиг линии ЯМР связан с эффективными по-

лями, создаваемыми магнитным окружением. Расщепление линии ЯМР связано с тем, что кристаллографически эквивалентные позиции ионов рубидия в магнитоупорядоченной фазе становятся неэквивалентными. Причем количество ионов рубидия с различным магнитным окружением различаются в два раза.

Исследование ЯМР в парамагнитной фазе показало, что  $H_{eff}$  на ядре  $^{87}\text{Rb}$  в  $\text{RbFe}(\text{MoO}_4)_2$  в основном определяется дипольным полем, создаваемым магнитными ионами  $\text{Fe}^{3+}$ .

Это обстоятельство позволило сравнить измеренные эффективные поля на ядрах  $^{87}\text{Rb}$  в различных магнитных фазах с дипольными полями, вычисленными исходя из магнитных структур, предложенных в работе [5]. В результате проведенного исследования, можно заключить, что в квазидвумерном  $\text{RbFe}(\text{MoO}_4)_2$  магнитные структуры соответствуют фазам двумерной модели антиферромагнетика с треугольной решеткой [3–5].

В третьей части главы обсуждаются результаты исследования фазовой диаграммы и характеры фазовых переходов. Критические индексы определялись с помощью калориметрических измерений, а также из результатов измерения температурной зависимости параметра порядка с помощью ЯМР на ядрах  $^{87}\text{Rb}$ , смещение частоты которого связано с намагниченностью подрешеток. Антиферромагнетики с треугольными решетками существенно отличаются от обычных ферро- и антиферромагнетиков тем, что для некоторых фаз, называемых киральными, направление спина на фиксированном узле решетки еще не полностью определяет магнитную структуру, а допускает две различные спиновые конфигурации. Эти две структуры различаются направлением поворота магнитного момента при одинаковых трансляциях в соседние узлы кристаллической структуры. Киральное вырождение существенно влияет на характер фазового перехода в магнитоупорядоченное состояние [2, 24]. В рамках одной фазовой Н-Т диаграммы антиферромагнетика с треугольной решеткой могут реализовываться магнитные фазы как обладающие, так и не обладающие киральностью, поэтому при разных значениях поля можно ожидать фазовые переходы второго рода с различными критическими индексами.

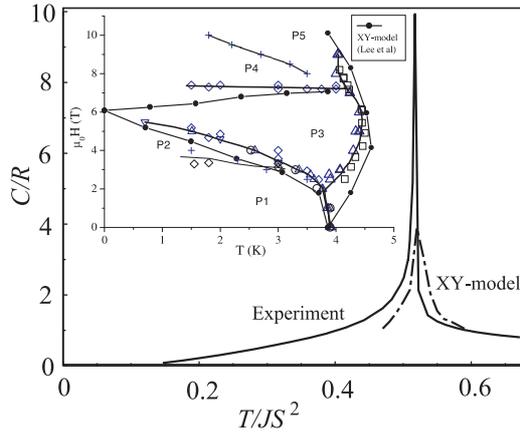


Рис. 15: Экспериментальная (сплошная линия) и расчетная [7] (пунктирная линия) зависимости теплоемкости от температуры в нулевом магнитном поле. На вставке: H-T диаграмма  $\text{RbFe}(\text{MoO}_4)_2$  при  $\mathbf{H} \perp \mathbf{C}_3$ . Не закрашенные символы и кресты - экспериментальные положения границ раздела разных фаз. Закрашенные кружки - численное моделирование [7] (XY-модель)

Фазовая диаграмма и критическое поведение  $\text{RbFe}(\text{MoO}_4)_2$  демонстрируют хорошее количественное соответствие с результатами двумерной квазиклассической XY-модели. На рис. 15 приведена экспериментальная (сплошная линия) и расчетная [7] (пунктирная линия) зависимости теплоемкости от температуры в нулевом магнитном поле. На вставке: H-T диаграмма  $\text{RbFe}(\text{MoO}_4)_2$  при  $\mathbf{H} \perp \mathbf{C}_3$ . Не закрашенные символы и кресты - экспериментальные положения границ раздела разных фаз (обозначения те же, что и на рис. 13). Закрашенные кружки - численное моделирование [7] (XY-модель) проведенное с использованием единственного параметра – значения обменного интеграла, определенного экспериментально ( $J = 0.6$  К). Сплошные линии проведены для группировки символов.

**В шестой главе** обсуждается исследование магнитных свойств квазидвумерного антиферромагнетика с искаженной треугольной решеткой. Кристаллическая структура  $\text{KFe}(\text{MoO}_4)_2$  близка к структуре  $\text{RbFe}(\text{MoO}_4)_2$  (см.рис. 10), ионы калия занимают позиции ионов рубидия. Оба вещества обладают слоистой структурой, что обеспечивает квазидвумерность их магнитных свойств.

При температуре выше температуры  $T_1 = 311$  К кристаллические структуры обоих веществ описываются группой симметрии  $D_{3d}^3$ . Однако, в случае

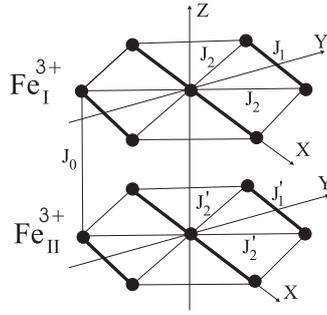


Рис. 16: Схема расположения ионов  $\text{Fe}^{3+}$  в кристаллографической структуре  $\text{KFe}(\text{MoO}_4)_2$

$\text{KFe}(\text{MoO}_4)_2$  при температурах ниже  $T_1$  кристаллическая структура понижает свою симметрию и становится моноклинной ( $C_{2h}^3$ ) [25]. При этом размер примитивной ячейки вдоль оси  $\mathbf{Z}$ , перпендикулярной магнитным слоям, удваивается и возникают два типа неэквивалентных позиций ионов железа:  $\text{Fe}_I^{3+}$  и  $\text{Fe}_{II}^{3+}$ . Ось  $\mathbf{X}$  остается осью второго порядка, а плоскость  $\mathbf{YZ}$  - плоскостью симметрии (см. рис. 16). Вследствие указанного понижения симметрии можно ожидать, что при  $T < T_1$  обменный интеграл  $J_1$  для соседних ионов железа, расположенных вдоль оси  $\mathbf{X}$ , будет отличаться от обменного интеграла  $J_2$  соседних ионов, расположенных вдоль двух других направлений треугольной структуры. Таким образом, треугольная решетка в кристаллах  $\text{KFe}(\text{MoO}_4)_2$  ожидается искаженной, и, кроме того, в этих кристаллах имеется два типа неэквивалентных слоев магнитных ионов.

Согласно теоретическому анализу [26], при искажениях ( $J_1 \neq J_2$ ) в области параметров  $J_1 > J_2/2 > 0$ , в обменном приближении реализуется несоразмерная спиральная структура, волновой вектор которой ориентирован вдоль направления с выделенным обменным взаимодействием ( $\mathbf{X}$ ). В случае  $J_2/2 > J_1 > 0$  энергетически выгодной становится обычная коллинеарная антиферромагнитная структура.

На рис. 17, приведены зависимости  $M(H)$  при  $T=1.6$  К для двух ориентаций магнитного поля. При приложении поля  $\mathbf{H} \perp \mathbf{Z}$  на зависимостях  $M(H)$  наблюдаются три особенности. Вблизи поля  $H_{c1}=12.5$  кЭ наблюдается пик производной  $dM/dH$  и изменение наклона зависимости  $M(H)$ . Еще две особенности на кривых  $M(H)$  наблюдаются в полях  $H_{c2}=52$  кЭ и  $H_{c3}=76$  кЭ. Вблизи этих значений магнитного поля наблюдаются пики производной

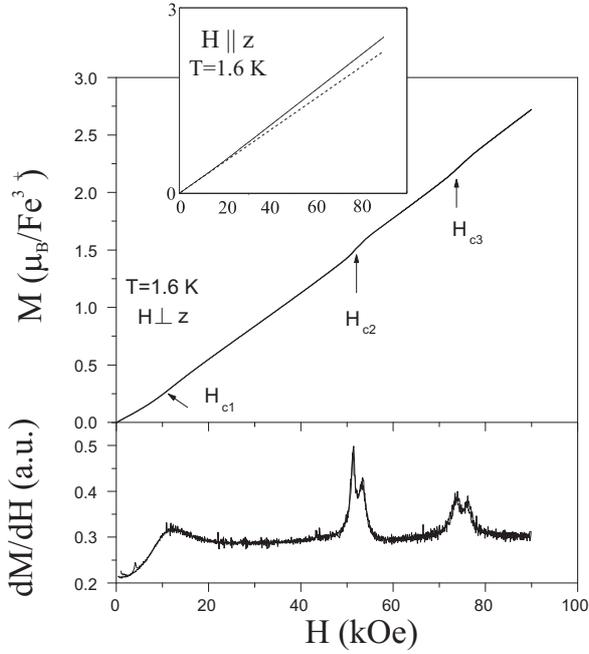


Рис. 17: Полевая зависимость намагниченности (верхняя панель) и ее производной (нижняя панель)  $\text{KFe}(\text{MoO}_4)_2$  для  $\mathbf{H} \perp \mathbf{Z}$ , вставка:  $M(H)$  при  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{Z}$ .

$dM/dH$ . При ориентации  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{Z}$  полевая зависимость магнитного момента близка к линейной.

Эксперименты показывают, что количество аномалий на кривых  $M(H)$  превосходит ожидаемое количество как для коллинеарной, так и для спиральной структуры на искаженной треугольной решетке. Действительно, для коллинеарной структуры ожидается лишь одна аномалия в виде спин-флопа, а для треугольной или двумерной спиральной - две особенности, в полях начала и окончания плато намагниченности. Выше отмечалось, что магнитная структура  $\text{KFe}(\text{MoO}_4)_2$  состоит из двух типов слабо связанных чередующихся неэквивалентных плоскостей магнитных ионов. Поэтому, рассматривается модель, в которой в плоскостях первого типа реализуется коллинеарная антиферромагнитная структура (С-плоскости), в других - спиральная спиновая структура (S-плоскости). В рамках такой модели низкополевую аномалию вблизи поля  $H_{c1}$  можно рассматривать как переориентационный переход в С-плоскостях, связанный с поворотом спиновой структуры в плоскости, перпендикулярной “трудной” оси.

На рис. 18 приведен спектр магнитного резонанса при ориентациях поля

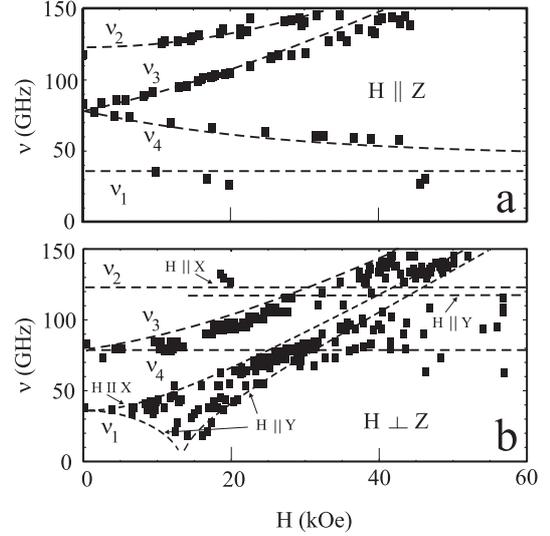


Рис. 18: Спектр антиферро-магнитного резонанса при ориентациях поля  $\mathbf{H}$  параллельно и перпендикулярно оси  $\mathbf{Z}$ ,  $T=1.3$  К.

**H** параллельно и перпендикулярно оси **Z**, при температуре 1.3 К, то есть значительно ниже  $T_N$ . Поскольку исследованные нами кристаллы при температуре ниже 311 К разбиваются на кристаллографические домены с тремя ориентациями оси **X**, то линия антиферромагнитного резонанса обычно оказывается расщепленной на три линии, относительные интенсивности которых существенно зависят от реализации доменной структуры в конкретном образце. При ориентации поля **H** параллельно оси **Z** все кристаллографические домены находятся в приблизительно эквивалентных условиях, поэтому для этого направления линии поглощения не расщеплены. На рис. 18 приведен спектр магнитного резонанса, снятый на пяти разных образцах при ориентации поля в плоскости **X<sub>Y</sub>** кристалла и неконтролируемой взаимной ориентации осей **Y** и **H**. При этой ориентации поля также наблюдались четыре ветви АФМР. Частоты  $\nu_{3,4}$  близки по величине и имеют сходные полевые зависимости с двумя ветвями спектра магнитного резонанса в треугольной спиновой структуре  $\text{RbFe}(\text{MoO}_4)_2$  (рис. 12). Вид полевых зависимостей  $\nu_1(H)$  и  $\nu_2(H)$  в  $\text{KFe}(\text{MoO}_4)_2$  характерен для коллинеарного антиферромагнетика с двумя осями анизотропии [27]. Пунктирными линиями на рис. 18 приведен спектр АФМР, полученный в предположении, что ветви  $\nu_{1,2}(H)$  определяются однородными колебаниями спинов плоскостей, в которых реализуется коллинеарная структура, а  $\nu_{3,4}(H)$  - плоскостей со спиральной магнитной структурой. Модель магнитной структуры с двумя типами магнитных плоскостей, упорядоченных коллинеарным и спиральным образом адекватно описывает всю совокупность статических и резонансных свойств кристаллов  $\text{KFe}(\text{MoO}_4)_2$ . В рамках этой модели обсуждается полученная фазовая H–T диаграмма и оцениваются константы взаимодействий.

**В седьмой главе** обсуждается исследование магнитных свойств квазиодномерного фрустрированного антиферромагнетика  $\text{LiCuVO}_4$ . Квазиодномерность  $\text{LiCuVO}_4$  обеспечивается тем, что магнитные ионы меди  $\text{Cu}^{2+}$  ( $S=1/2$ ) в кристаллической структуре расположены в виде цепочек, разделенных немагнитными ионами лития, ванадия и кислорода. На температурной зависимости магнитной восприимчивости при температуре 28 К наблюдается пологий максимум, характерный для низкоразмерных магнетиков и резкий пик при температуре  $T_N=2.3$  К, соответствующий переходу в маг-

нитоупорядоченное состояние. В результате нейтронографических исследований  $\text{LiCuVO}_4$  в работе [28] было обнаружено, что в магнитоупорядоченной фазе ( $T < T_N$ ) реализуется несоразмерная, неколлинеарная магнитная структура, схема которой приведена на рис. 19.

Волновой вектор несоразмерности магнитной структуры  $\mathbf{k}_{ic}$  направлен вдоль цепочек ионов меди. Для такой структуры магнитный момент иона меди с координатами  $x, y, z$  (базисные вектора направлены вдоль осей  $\mathbf{a}, \mathbf{b}, \mathbf{c}$  кристалла) определяется как:

$$\mu = \mu \cdot \mathbf{l}_1 (-1)^{2z/c} \cdot \cos(k_{ic} \cdot y) + \mu \cdot \mathbf{l}_2 (-1)^{2z/c} \cdot \sin(k_{ic} \cdot y), \quad (3)$$

где  $\mathbf{l}_1$  и  $\mathbf{l}_2$  - два единичных взаимно перпендикулярных вектора в  $\mathbf{ab}$  - плоскости кристалла.  $k_{ic}$ - вектор несоизмеримости (при  $H=0$ ,  $k_{ic} = 0.532$  [28, 29]).

Магнитный момент на ионе  $\text{Cu}^{2+}$  в магнитоупорядоченной фазе составляет  $0.31\mu_B$ . Исследование спектра магнитных возбуждений  $\text{LiCuVO}_4$  методом неупругого рассеяния нейтронов [29], во-первых, подтвердило, что система квазиодномерная, и, во-вторых, показало, что такая несоразмерная структура реализуется благодаря тому, что обменное ферромагнитное взаимодействие между ближайшими ионами меди вдоль цепочек существенно меньше антиферромагнитного обменного взаимодействия между ионами, следующими за ближайшими ( $J_1 = -18$  К,  $J_2 = 49$  К, см. рис. 19).

$\text{LiCuVO}_4$  является примером квазиодномерного фрустрированного антиферромагнетика со спином  $S=1/2$ , несоразмерная неколлинеарная структура которого определяется сильными обменными взаимодействиями. В этой главе обсуждаются экспериментальные исследования магнитной структуры  $\text{LiCuVO}_4$  в магнитоупорядоченной фазе, реализующейся при приложении магнитного поля методами антиферромагнитного резонанса и ЯМР на ядрах немагнитных ионов  $\text{Li}^+$  и  $\text{V}^{5+}$ .

Проведены исследования электронного спинового резонанса в парамагнитной и магнитоупорядоченной фазах в области частот 18-250 ГГц. Измерения проводились на монокристаллических образцах с ненарушенной стехиометрией.

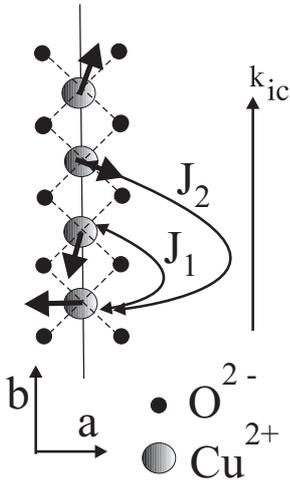


Рис. 19: Схема магнитной структуры  $\text{LiCuVO}_4$ .

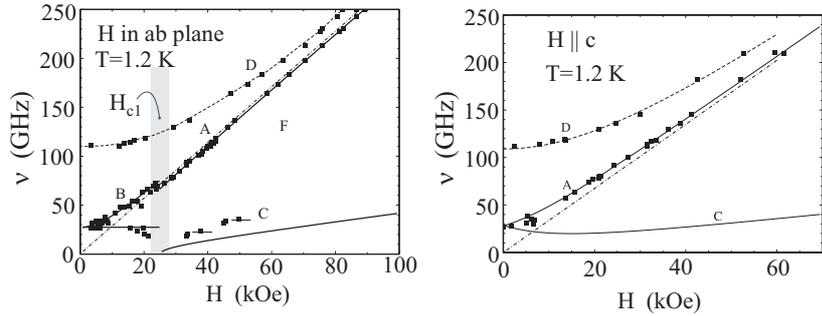


Рис. 20: Спектр магнитного резонанса при ориентациях поля  $\mathbf{H}$  перпендикулярно и параллельно оси  $\mathbf{c}$ .  $T=1.3\text{ K}$  ( $T_N=2.3\text{ K}$ ).

На рис. 20 приведен спектр магнитного резонанса при ориентациях поля  $\mathbf{H}$  параллельно и перпендикулярно оси  $\mathbf{c}$ , при температуре  $1.3\text{ K}$  ( $T_N=2.3\text{ K}$ ). В исследованной области частот обнаружены две ветви спектра магнитного резонанса. Низкочастотная ветвь – безщелевая в парамагнитной фазе, и имеет щель  $27\text{ ГГц}$  в магнитоупорядоченной фазе. Высокочастотная ветвь в магнитоупорядоченной фазе имеет щель  $108\text{ ГГц}$  и наблюдается вплоть до температур, существенно превосходящих температуру антиферромагнитного упорядочения. Низкочастотная ветвь в магнитоупорядоченной фазе - акустическая ветвь антиферромагнитного резонанса  $\text{LiCuVO}_4$ . Угловые зависимости антиферромагнитного резонанса объясняются в предположении, что  $\text{LiCuVO}_4$  обладает магнитной анизотропией типа "легкая плоскость". Затемнением на рис. 20 выделена область полей, в которой наблюдается особенность на спектре антиферромагнитного резонанса, которую мы интерпретируем, как проявление спин-переориентационного перехода типа спин-флоп. Сплошными линиями на рис. 20 изображены спектры ЭСР, полученные в рамках феноменологической теории [30, 31]. Пунктирные линии проведены для простоты восприятия.

Сопоставление величины щели низкочастотной ветви антиферромагнитного резонанса и величины поля спин-флопа, обнаруженного при ориентации статического поля в легкой плоскости кристалла, позволило определить константу анизотропии, а также анизотропию обменной восприимчивости струк-

туры в магнитоупорядоченной фазе. Высокочастотная ветвь, по-видимому, имеет обменный характер. Наблюдение ее в неупорядоченной фазе связано с наличием ближних корреляций в одномерных цепочках вплоть до температур порядка энергии внутрицепочечного обменного взаимодействия.

Во второй части главы обсуждаются исследования магнитной структуры  $\text{LiCuVO}_4$  методом ЯМР.

Результаты исследований антиферромагнитного резонанса и ЯМР в магнитоупорядоченной фазе могут быть самосогласованно описаны в рамках магнитной фазы, описываемой уравнением (3) со следующими направлениями векторов  $\mathbf{n}$  и  $\mathbf{l}$ :

$$H < H_{c1}: \mathbf{n} \parallel \mathbf{c}$$

$$H_{c1} < H < H_{c2}: \mathbf{n} \parallel \mathbf{H}$$

$$H_{c2} < H: \mathbf{l}_1 \parallel \mathbf{H}, \text{ а } \mathbf{l}_2 = 0$$

Отметим, что для области полей  $H > H_{c2}$  из наших экспериментов (ЯМР на  $^{51}\text{V}$ ) надежно можно утверждать о наличии модуляции проекций спинов ионов меди с амплитудой около  $0.4 \mu_B$  на направление магнитного поля. Наилучшее согласие полученных ЯМР спектров на ядрах  $^7\text{Li}$  получается в предположении спин-модулированной магнитной структуры, т.е. в предположении, что компоненты спиральной структуры перпендикулярные направлению статического поля не упорядочены. Фазовый переход, наблюдаемый в поле  $H_{c2}$  не обычен. Для его объяснения следует допустить, что в области больших полей становится предпочтительной ориентация плоскости спиральной структуры (или направления вектора спин-модулированной), параллельная направлению внешнего магнитного поля. Возможно, что такая ситуация может быть объяснена, если учесть тепловые и квантовые флуктуации. Так, например, для спиральной планарной магнитной структуры на треугольной решетке авторами работы [4] было показано, что учет квантовых и тепловых флуктуаций приводит к выигрышу в энергии при ориентации плоскости спиральной магнитной структуры параллельной магнитному полю.

Таким образом, в магнитоупорядоченной фазе в квазиодномерном  $\text{LiCuVO}_4$  в магнитном поле обнаружен ряд фазовых переходов. Показано,

что все фазовые переходы происходят между несоизмеримыми спиральными магнитными структурами. Предложены магнитные фазы, описывающие весь комплекс имеющихся к настоящему моменту экспериментальных данных.

\*

Список литературы

- [1] M.I. KAGANOV, A.V. CHUBUKOV, Spin Waves and Magnetic Excitations, Elsiver Sc. Publ., Amsterdam (1988)
- [2] H. KAWAMURA, S. MIYASHITA, Journal of the Physical Society of Japan **54** (1985), 4530
- [3] S.E. KORSHUNOV, J. Phys. C: Solid State Phys. **19** (1986), 5927
- [4] A.V. CHUBUKOV, D.I. GOLOSOV, Journal of Physics: Condensed Matter **3** (1991), 69
- [5] P.C. ГЕХТ, И.Н. БОНДАРЕНКО, Журнал Экспериментальной и Теоретической Физики **111** (1997), 627
- [6] В.П. СЕМИНОЖЕНКО, В.Л. СОБОЛЕВ, Физика Низких Температур **8** (1982), 830
- [7] D.H. LEE, J.D. JOANPOULOS, J.W. NEGELE, D.P. LANDAU, Physical Review B **33** (1985), 450
- [8] P.A. АЛИХАНОВ, Журнал Экспериментальной и Теоретической Физики **36** (1959), 1690
- [9] M. PERNET, D. ELMALE, J.C. JOUBERT, Sol.St.Comm. **8** (1970), 1583
- [10] И.Е. ДЗЯЛОШИНСКИЙ, Журнал Экспериментальной и Теоретической Физики **32** (1957), 1547
- [11] А.С. БОРОВИК-РОМАНОВ, Е.Г. РУДАШЕВСКИЙ, Журнал Экспериментальной и Теоретической Физики **47** (1964), 2095
- [12] Е.А. ТУРОВ, Н.Г. ГУСЕЙНОВ, Журнал Экспериментальной и Теоретической Физики **38** (1960), 1326

- [13] В.Я. КОТЮЖАНСКИЙ, Л.А. ПРОЗОРОВА, *Sov.Sci.Rev.A* **13** (1990), 1
- [14] М.П. ПЕТРОВ Е.А. ТУРОВ, *Ядерный магнитный резонанс в ферро- и антиферромагнетиках*, Наука, Москва (1969)
- [15] В.А. ТУЛИН, *Физика Низких Температур* **5** (1979), 965
- [16] N. BLOEMBERGEN, S. WANG, *Phys. Rev.* **93** (1953), 72
- [17] А.С. БОРОВИК-РОМАНОВ, В.Г. ЖОТИКОВ, Н.М. КРЕЙНЕС, А.А. ПАНКОВ, *Журнал Экспериментальной и Теоретической Физики* **70** (1976), 1924
- [18] Б.Я. КОТЮЖАНСКИЙ, Л.А. ПРОЗОРОВА, *Журнал Экспериментальной и Теоретической Физики* **85** (1983), 1461
- [19] Т.М. HOLDEN, Е.С. SWENSSON, Р. MARTEL, *Canad.J.Phys.* **50** (1972), 687
- [20] Б.Я. КОТЮЖАНСКИЙ, Л.А. ПРОЗОРОВА, *Журнал Экспериментальной и Теоретической Физики* **62** (1972), 2199
- [21] E. RASTELLI, A. TASSI, *Journal of Physics: Condensed Matter* **8** (1996), 1811
- [22] M.L. PLUMER, A. CAILLE, *Physical Review B* **42** (1990), 10388
- [23] Т. INAMI, Y. AJITO, Т. GOTO, *Journal of the Physical Society of Japan* **65** (1996), 2374
- [24] Н. KAWAMURA, S. MIYASHITA, *Journal of the Physical Society of Japan* **53** (1984), 4138
- [25] Г.Г. КРАЙНЮК, А.И. ОТКО, А.Е. НОСЕНКО, *Известия АН СССР, серия физическая* **47** (1983), 758
- [26] WEI MIN ZHANG, W.M. SASLOW, *Physical Review B* **44** (1991), 5129
- [27] Т. NAGAMIYA, K. YOSIDA, R. KUBO, *Advances in Physics* **4** (1955), 1

- [28] B.J. GIBSON, R.K. KREMER, A.V. PROKOFIEV, W. ASSMUS, G.J. MCINTYRE, *Physica* **B 350** (2004), E253
- [29] M. ENDERLE, C. MUKHERJEE, B. FÄK, R.K. KREMER, J.-M. BROTO, H. ROSNER, S.-L. DRECHSLER, J. RICHTER, J. MALEK, A. PROKOFIEV, W. ASSMUS, S. PUJOL, J.-L. RAGGAZZONI, H. RAKOTO, M. RHEINSTÄDTER, H.M. RØNNOW, *Europhys. Lett.* **70** (2005), 237
- [30] А.Ф. АНДРЕЕВ, В.И. МАРЧЕНКО, *Успехи Физических Наук* **23** (1980), 21
- [31] И.А. ЗАЛИЗНЯК, В.И. МАРЧЕНКО, С.В. ПЕТРОВ, Л.А. ПРОЗОРОВА, А.В. ЧУБУКОВ, *Письма в ЖЭТФ* **47** (1988), 172