Физика низких температур, 1995, т. 21, № 10, с. 1084–1087

Краткие сообщения УДК 537.635;537.611.45

Антиферромагнитный резонанс соединения $(NH_3)_2(CH_2)_3CuCl_4$ в магнитных полях, превышающих обменные

А. А. Степанов, М. И. Кобец, В. А. Пащенко

Физико-технический институт низких температур им. Б. И. Веркина НАН Украины, Украина, 310164, г. Харьков, пр. Ленина, 47
E-mail: pashchenko@ilt.kharkov.ua

Статья поступила в редакцию 26 апреля 1995 г., после переработки 7 июня 1995 г.

Изучены магнитные и резонансные свойства квазидвумерного магнетика $(NH_3)_2(CH_2)_3CuCl_4$ в сильных магнитных полях. Обнаружена низкочастотная ветвь АФМР в полях, превышающих поле обменного взаимодействия (спин-флип резонанс), которая обусловлена взаимодействием Дзялошинского.

Вивчено магнітні і резонансні властивості квазідвовимірного магнетика $(NH_3)_2(CH_2)_3CuCl_4$ в сильних магнітних полях. Виявлено низькочастотну вітку АФМР в полях, що перевищують поле обмінної взаємодії (спін-фліп резонанс), яка обумовлена взаємодією Дзялошинського.

Соединение $(NH_3)_2(CH_2)_3CuCl_4$) относится к слоистым магнетикам типа $(NH_3)_2(CH_2)_nCuCl_4$ ($n = 2-6$). Единственный представитель этого семейства $(NH_3)_2(CH_2)_2CuCl_4$ является трехмерным магнетиком [1], все остальные — квазидвумерные антиферромагнетики (АФМ). Удачное сочетание трехмерных и квазидвумерных антиферромагнетиков в одном семействе дает возможность проследить трансформацию резонансных и магнитных свойств слоистых кристаллов при изменении числа метиленовых групп n.

Соединение $(NH_3)_2(CH_2)_3CuCl_4$ (сокращенно 2C3Cu) кристаллизуется в орторомбическую систему с пространственной группой *Pnma*. В элементарной кристаллической ячейке, которая имеет следующие размеры: $a = 7{,}200$ Å, $b = 18{,}246$ Å, $c = 7{,}451$ Å, содержится четыре магнитных иона Cu^{2+} [2]. Исследования магнитных свойств 2C3Cu [3] показали, что этот кристалл характеризуется достаточной степенью двумерности, которая возникла при увеличении числа метиленовых групп на единицу. Из измерений магнитных статических свойств данных АФМ [3] следует, что обменное взаимодействие ионов Cu^{2+} в плоскости имеет ферромагнитный характер $J/k = 15$ K, а межплоскостное обменное взаимодействие — антиферромагнитный. Температура магнитного упорядочения $T_N = 14{,}9$ K.

Антиферромагнитный резонанс (АФМР) в 2C3Cu изучался при ориентации внешнего поля H вдоль трех кристаллографических направлений a, b, c, совпадающих с магнитными осями x, y, z соответственно. При температуре 4,2 K спектр АФМР характеризуется следующими параметрами: $\nu_{01} = 25{,}5$ ГГц, $\nu_{02} = 8{,}2$ ГГц, $H_{sf} = 2{,}7$ кЭ, $H_f = 41$ кЭ, где ν_{01} и ν_{02} — щели в спектре спиновых волн при $H = 0$; H_{sf} — поле спин-флоп перехода; H_f — поле спин-флип перехода. Сравнительно низкое значение межслоевого обменного поля позволяет исследовать характер спин-флип перехода в этом соединении и наличие взаимодействия Дзялошинского. Поэтому в дальнейшем мы опускаем характеристики АФМР, относящиеся к малым полям, и рассматриваем область полей фазового перехода типа захлопывания подрешеток.

Анализ магнитных конфигураций в рамках пространственной группы *Pnma* проведен на основе двухподрешеточной модели ромбического АФМ. Гамильтониан ромбического АФМ, помещенного во внешнее магнитное поле, имеет вид [4]

$$\hat{H} = -\delta \mathbf{l}^2/2 + \beta_1 l_x^2/2 + \beta_2 l_y^2/2 + \beta_3 m_x^2 + \beta_4 m_y^2 +$$

$$+ d_1 m_x l_y - d_2 m_y l_x + \tau_1 H_x l_y - \tau_2 H_y l_x - \mathbf{mH},$$

где δ — обменная константа; $\beta_1, \beta_2, \ldots$ — константы анизотропии; $\mathbf{l}$ — вектор антиферромагнетизма; $\mathbf{m}$ — вектор ферромагнетизма; τ_1, τ_2 — величины, характеризующие анизотропию g-фактора. Магнитные состояния этого гамильто-

© А. А. Степанов, М. И. Кобец, В. А. Пащенко, 1995

ниана обстоятельно проанализированы в работе [5], а расчет высокочастотной восприимчивости в сильных магнитных полях проведен в [6]. Эксперименты по АФМР показывают, что в основном состоянии 2C3Cu вектор антиферромагнетизма l ∥ z и, значит, $m = 0$. Поскольку, однако, рассматриваемая симметрия допускает наличие слабого ферромагнетизма при других ориентациях l, при H ∥ x или H ∥ y должно происходить вращение вектора l к оси *y* или *x* соответственно. Магнитному полю, в котором исчезает компонента l_z, соответствует фазовый переход второго рода, а его значение определяется соответствующей константой Дзялошинского, и величина его меньше, чем поле насыщения [6].

Такой фазовый переход обнаружен нами в 2C3Cu при ориентации магнитного поля H ∥ x. Величина поля перехода $H_f^x = 39{,}6$ кЭ. На рис. 1 представлена частотно-полевая зависимость АФМР 2C3Cu при H ∥ x, которая описывается в пределах погрешности эксперимента формулами работы [6]. Низкочастотная ветвь АФМР в полях $H > H_f^x$ наблюдается при параллельной поляризации H ∥ h. Интенсивность поглощения наблюдаемого резонанса на два порядка меньше основного резонанса. Запись спектра АФМР в этом случае представлена на рис. 2. Согласно [6], наблюдение резонансного поглощения в полях, превышающих поле фазового перехода, однозначно указывает на существование взаимодействия Дзялошинского в кристалле 2C3Cu. Эксперимент позволил определить величину эффективного поля Дзялошинского:

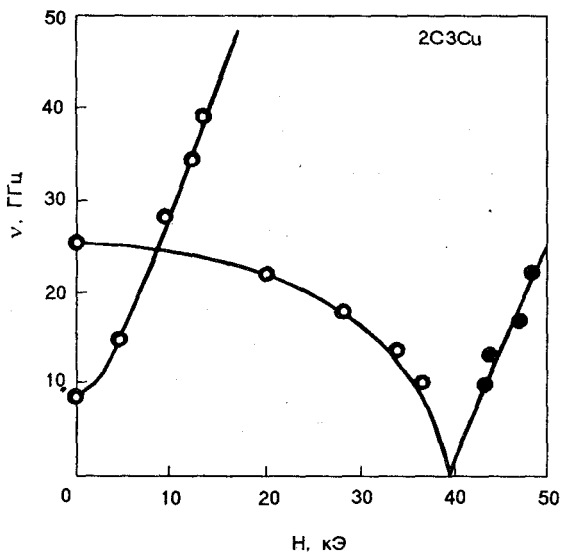

Рис. 1. Частотно-полевая зависимость спектра АФМР в 2C3Cu при H ∥ x ($T = 4{,}2$ K) (○ — АФМР; сплошные линии — теоретический расчет; ● — ФМР (спин-флип резонанс).

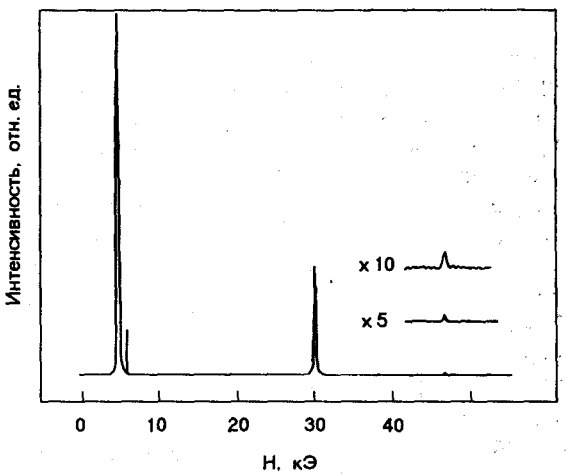

Рис. 2. Запись спектра АФМР в 2C3Cu при H ∥ x; $\nu = 16{,}57$ ГГц; $T = 4{,}2$ K. Малоинтенсивная линия поглощения в большем поле — спин-флип резонанс. На вставке — усиленная малоинтенсивная линия поглощения.

$$\nu_1 = \nu_{01}(1 - H^2/H_f^2);$$

где

$$H_f = \frac{H_{a1}(H_e + H_{a2})}{\sqrt{H_{a1}^2 + H_{d1}^2}}; \quad H_{d1} = 0{,}5 \text{ кЭ}.$$

Если внешнее магнитное поле H направлено по оси легкого намагничивания z, происходит спин-флип переход в поле $H_f^z = 41$ кЭ. Интересно отметить, что, в соответствии с результатами работы [6], оказывается возможным наблюдение АФМР на спин-флип моде при H ∥ z. Хотя магнитная структура 2C3Cu при $H > H_f^z$ представляет собой в рамках двухподрешеточной модели насыщенное ферромагнитное состояние, число мод АФМР никак не связано с этим состоянием. По-прежнему должны наблюдаться две моды АФМР, что и подтверждается экспериментально.

При ориентации магнитного поля H вдоль оси *y* низкочастотная ветвь АФМР в полях, превышающих поле H_f^y, не наблюдается ни при каких поляризациях переменного СВЧ поля. Этот результат свидетельствует о том, что в изучаемом соединении 2C3Cu одна из констант Дзялошинского близка к нулю или, другими словами, что вклад антисимметричного обменного взаимодействия и вклад типа одноионной анизотропии компенсируют друг друга. Этот вывод согласуется с оценкой $(\Delta g/g)^2 H_e^F \approx (\Delta g/g) H_e^{AF}$; H_e^F — внутрислоевое обменное взаимодействие; H_e^{AF} — межслоевое, а Δg и g — анизотропия *g*-фактора и его величина.

Для проверки правильности интерпретации полученных экспериментальных результатов по

АФМР в окрестности фазового перехода исследована зависимость магнитной восприимчивости от магнитного поля в трех кристаллографических направлениях. Применялась индукционная методика измерения магнитной восприимчивости в импульсных и постоянных магнитных полях, основанная на использовании в качестве датчика катушки, в которой переменное магнитное поле наводит эдс. В эксперименте использовались две соленоидальные катушки, включенные навстречу друг другу, в одну из которых помещался образец. Такая система является датчиком сигналов, пропорциональных величине дифференциальной магнитной восприимчивости dM/dH. Другая катушка служит для компенсации наводимой внешним полем эдс. Результаты измерения магнитной восприимчивости в 2C3Cu в сильных магнитных полях приведены на рис. 3. При ориентации внешнего магнитного поля H параллельно оси легкого намагничивания z наблюдается типичная для АФМ зависимость dM/dH. В малых полях (на рис. 3 не показано) пик восприимчивости соответствует скачку намагниченности при фазовом переходе первого рода (спин-флоп переход). Величина магнитного поля, соответствующая спин-флоп переходу, равна $H_{sf} = 2{,}7$ кЭ. В сильных полях ($H = H_f^z = 41$ кЭ) наблюдается фазовый переход второго рода (спин-флип переход), сопровождающийся резким скачком dM/dH. При ориентации магнитного поля H вдоль оси y происходит также скачкообразное обращение dM/dH в нуль в поле $H_f^y = 46$ кЭ.

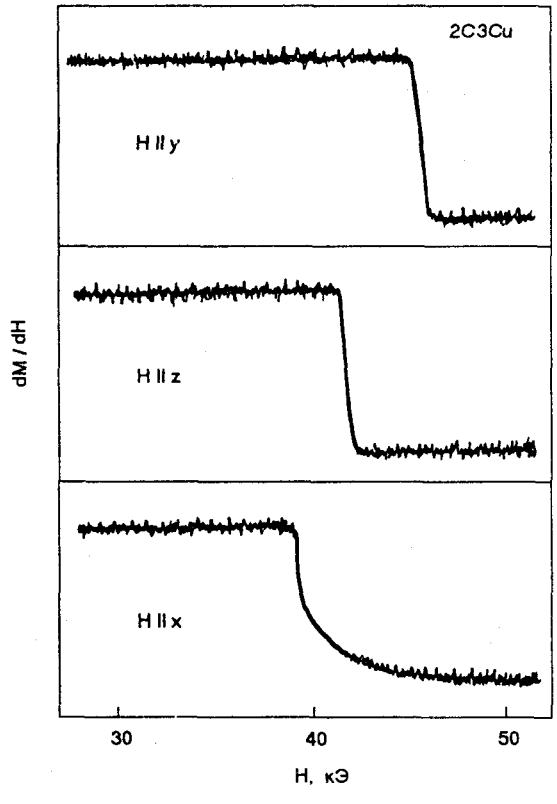

Рис. 3. Полевые зависимости дифференциальной магнитной восприимчивости в 2C3Cu в сильных магнитных полях при $T = 4{,}2$ K.

Другой тип зависимости dM/dH наблюдается при ориентации H вдоль оси x (направление наблюдения спин-флип резонанса). В поле $H = H_f^x = 39{,}6$ кЭ происходит резкое изменение dM/dH, переходящее затем в плавный ход полевой зависимости восприимчивости, что говорит о наличии слабого ферромагнитного момента в этом направлении.

Таким образом, совокупность резонансных и магнитных измерений позволяет восстановить магнитные параметры, описывающие статические и высокочастотные свойства 2C3Cu. При температуре 4,2 K параметры, описывающие спектр АФМР, следующие:

$$\nu_{01} = 25{,}5 \text{ ГГц}, \ \nu_{02} = 8{,}2 \text{ ГГц}, \ H_{sf} = 2{,}7 \text{ кЭ},$$

$$2H_e = 41 \text{ кЭ}, \ H_{a1} = 2{,}0 \text{ кЭ}, \ H_{a2} = 0{,}14 \text{ кЭ},$$

$$H_{d1} = 0{,}5 \text{ кЭ}.$$

Здесь эффективные магнитные поля H_{a1}, H_{a2}, H_{d1}, $2H_e$ соответствуют константам гамильтониана β_1, β_2, d_1, δ. Величины g-факторов, полученные нами в ЭПР экспериментах и использованные при описании магнитоупорядоченного состояния, равны: $g_x = g_z = 2{,}13$, $g_y = 2{,}00$.

Полученные результаты позволяют сделать вывод, что кристалл 2C3Cu является низкоразмерным магнетиком с взаимодействием Дзялошинского. Изменение числа метиленовых групп n от 2 к 3 не влияет на структуру слоя и, как следствие, на внутрислоевые характеристики. В то же время эффективное поле межслоевого обменного взаимодействия при изменении n на единицу уменьшается на порядок (для 2C2Cu $H_e = 572$ кЭ [3], для 2C3Cu $H_e = 41$ кЭ). Следует отметить, что причины и характер магнитного упорядочения в этом соединении обязаны межслоевому взаимодействию и упорядочение носит трехмерный характер. Подтверждением этого является быстрое снижение температуры магнитного упорядочения T_N (для 2C2Cu $T_N = 31{,}5$ K, для 2C3Cu $T_N = 14{,}9$ K) и величины энергетических щелей примерно в три раза, т.е. изменяются термодинамические свойства этих соединений.

Переход от трехмерной магнитной структуры (2C2Cu) к двумерной (2C3Cu) позволяет уменьшить величину обменного взаимодейсвия между

слоями и изучить низкочастотную ветвь АФМР в полях, превышающих поле обменного взаимодействия (спин-флип резонанс).

1. L. O. Snively, P. J. Seifert, K. Emerson, and J. E. Drumheller, *Phys. Rev.* **B20**, 2101 (1979).
2. D. W. Phelps, D. B. Losee, W. E. Hatfield, and D. J. Hordgson, *Jnorg. Chemistry* N12, 3147 (1976).
3. H. von Kanel, *Physika* **B96**, 167 (1979).
4. Е. Ф. Туров, *Физические свойства магнитоупорядоченных кристаллов*, Изд-во АН СССР, (1963).
5. В. М. Гредескул, С. А. Гредескул, В. В. Еременко, В. М. Науменко, *Препринт ФТИНТ АН УССР*, г. Харьков (1969).
6. В. Г. Барьяхтар, В. А. Львов, В. Т. Телепа, Д. А. Яблонский, *ФТТ* **25**, 797 (1983).

AFMR in $(NH_3)_2(CH_2)_3CuCl_4$ in magnetic fields exceeding the exchange ones

A. A. Stepanov, M. I. Kobets, and V. A. Pashchenko

The maghetic and resonance properties of the quasi-two-dimensional magnetic $(NH_3)_2(CH_2)_3CuCl_4$ are studied in strong magnetic fields. In the fields exceeding the exchange interaction field (spin-flip resonance) a low-frequency branch of AFMR has been revealed which is due to Dz'aloshinsky interaction.