

Обменная зависимость констант спинового гамильтониана антиферромагнитно связанных пар S -ионов

© А.М. Воротинов, Г.А. Петраковский, В.В. Руденко

Институт физики им. Л.В. Киренского СО РАН,
Красноярск, Россия

E-mail: rvv@iph.krasn.ru

(Поступила в Редакцию 12 ноября 2009 г.)

Приведены и обобщены экспериментальные данные, свидетельствующие о существовании обменно-зависимого вклада в „одноионные“ константы спиновых гамильтонианов антиферромагнитно связанных пар S -ионов в диамагнитных кристаллах.

Исследование влияния кристаллического поля на магнитную анизотропию магнитоцентрированного кристалла сводилось в литературе к подбору изоструктурного диамагнитного аналога с близкими параметрами решетки (или серии аналогов) [1], в который вводилась соответствующая примесь в количестве, необходимом для наблюдения спектра электронного парамагнитного резонанса (ЭПР) одиночных ионов. Энергетические уровни, полученные на основе гамильтониана, записанного в одноионном приближении и приближении молекулярного поля для магнитоцентрированного кристалла с использованием констант, определенных из данных ЭПР, являлись основой для расчета величины и температурной зависимости анизотропии. Однако количественные оценки, выполненные таким образом, показали существенное расхождение с данными, следующими из измерений анизотропии магнитоцентрированного вещества [1,2]. При этом наблюдалось хорошее совпадение экспериментальных и рассчитанных температурных зависимостей полей анизотропии [3]. Такая ситуация была характерна почти для всех исследованных соединений. В результате изучение анизотропии с использованием изоструктурных диамагнитных аналогов зашло в тупик и работы такого сорта длительное время не выполнялись. Возникшая проблема количественной оценки анизотропии решена в теоретической работе [4], в которой, в частности, рассмотрен „одноионный“ обменный механизм. Однако работа [4] достаточно долго оставалась незамеченной экспериментаторами. И только относительно недавно появились публикации с привлечением эксперимента [5,6], связанные с исследованием „одноионной“ обменной анизотропии. Для учета „одноионного“ обменного вклада в анизотропию магнитоцентрированных кристаллов потребовалось исследование парных взаимодействий в изоструктурных диамагнитных аналогах методом ЭПР [6].

В настоящей работе обработаны и обобщены существующие в литературе экспериментальные данные на парах (кристаллы $MBO_3 + Fe^{3+}$ ($M = Ga, In, Lu, Sc$), $CaO + Mn^{2+}$, $MgO + Mn^{2+}$, $CsCdCl_3 + Mn^{2+}$) для аксиальной константы D_S спиновых гамильтонианов [6–9] с целью демонстрации существования обменно-зависимых вкладов.

В гамильтонианах [6–9] большой изотропный обмен приводит к шести состояниям, характеризующимся общим спином $S = s_i + s_j$. Энергии этих состояний имеют вид [6–9]

$$E_S = (J/2)[S(S+1) - s_i(s_i+1) - s_j(s_j+1)].$$

Здесь S — общее спиновое число, которое для каждого мультиплета пары будет принимать одно из значений $S = s_i + s_j, s_i + s_j - 1, \dots, s_i - s_j; s_i = s_j = 5/2; s_i$ и s_j — спиновые числа ионов пары, J — параметр обмена.

Согласно [7,9], гамильтониан при сильном обменном взаимодействии для каждого отдельного мультиплета может быть представлен в терминах общего спина

$$\mathcal{H} = g\beta HS_z + (D_S/3)O_2^0(S_z).$$

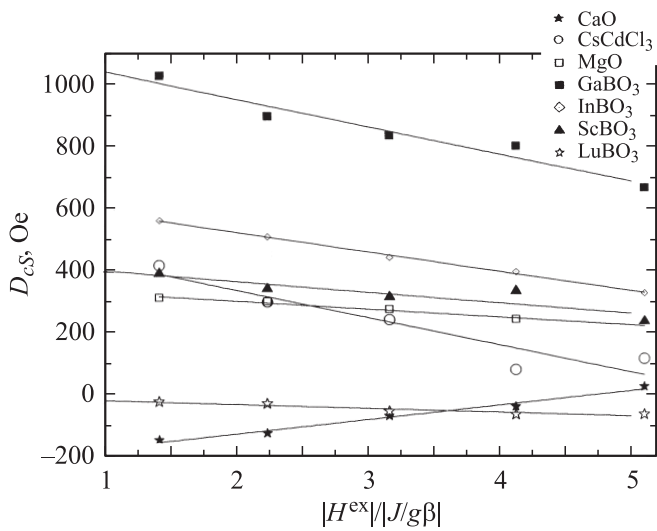
Здесь внешнее поле направлено вдоль аксиальной оси. Анизотропные члены четвертого порядка не учитываются. Константа D_S имеет вид [6–9]

$$D_S = 3\alpha_S D_{\text{dip}} + \beta_S D_{cS};$$

$\alpha_S = (1/2)[S(S+1) + 4s_i(s_i+1)]/(2S-1)(2S+3)$, $\beta_S = [3S(S+1) - 3 - 4s_i(s_i+1)]/(2S-1)(2S+3)$ являются нелинейными функциями S , которые приведены в [6–9] и численно сведены в таблицу [7], D_{dip} — константа дипольного взаимодействия, D_{cS} — константа, которая включает вклады кристаллического поля D_{cf} , локального искажения „чужой“ парой D_{c0} и „одноионного“ обменного механизма $A\sqrt{S(S+1)}$. Экспериментальные значения D_{cS} могут быть определены из

Константы спинового гамильтониана обменно-связанных пар S -ионов в диамагнитных кристаллах

Соединение	A, Oe	$D_{c0} + D_{cf}, \text{Oe}$	$D_{\text{dip}}, \text{Oe}$	$D'_{\text{dip}}, \text{Oe}$
$CaO + Mn^{2+}$	35.3	-183.8	-494.4	-498.9
$CsCdCl_3 + Mn^{2+}$	-89.7	557.2	-402.1	-407.9
$MgO + Mn^{2+}$	-15.7	334.3	-567.9	-565.6
$GaBO_3 + Fe^{3+}$	-100	1194	-71	-82
$InBO_3 + Fe^{3+}$	-55	642	-70	-69
$ScBO_3 + Fe^{3+}$	-39	458	-68	-72.6
$LuBO_3 + Fe^{3+}$	-8	-9	-78	-77



Зависимость „одноионных“ констант D_{cS} спинового гамильтониана антиферромагнитно связанных ионов $Mn^{2+}-Mn^{2+}$ и $Fe^{3+}-Fe^{3+}$ в кристаллах CaO , $CsCdCl_3$, MgO и MBO_3 ($M = Ga, In, Sc, Lu$) от величины $|H^{ex}|/|J/g\beta|$.

выражения [6–8,10]

$$D_{cS} = (D_S/\beta_S) - (3\alpha_S D'_{dip}/\beta_S). \quad (1)$$

Для описания экспериментальной зависимости использована подгоночная функция

$$D_{cS}(S) = (D_{c0} + D_{cf}) + A\sqrt{S(S+1)}.$$

Выражение для „одноионной“ обменной константы $A\sqrt{S(S+1)}$ записано в такой форме, поскольку анизотропное обменное взаимодействие всегда включает параметр изотропного обмена. А каждый мультиплет с общим спином S будет находиться в своем изотропном обменном поле, возникающем при парном взаимодействии

$$\begin{aligned} |H^{ex}| &= (1/g\beta)(\partial|E_S|/\partial|S|) \\ &= |J/g\beta|\sqrt{S(S+1)} \approx |J/g\beta|(S+1/2). \end{aligned}$$

Выражение (1) также согласуется с данными работы [4], в которой получен член гамильтониана, описывающий „одноионный“ обменный механизм в третьем порядке теории возмущений, линейный, в частности, по изотропному обменному взаимодействию. Экспериментальные результаты для констант спинового гамильтониана D_S в кристаллах $MBO_3 + Fe^{3+}$ ($M = Ga, In, Lu, Sc$), $CaO + Mn^{2+}$, $MgO + Mn^{2+}$ приведены в виде зависимостей от S в [6]. Из подгонки этих зависимостей ранее были определены параметры спинового гамильтониана D_{dip} , $D_{c0} + D_{cf}$ и A , лишь частично приведенные в литературе [6] (численные экспериментальные значения констант D_S для кристаллов $CaO + Mn^{2+}$, $MgO + Mn^{2+}$ опубликованы в [7]). Значения вычисленных для кристаллов $CaO + Mn^{2+}$, $MgO + Mn^{2+}$, $CsCdCl_3 + Mn^{2+}$ из

зависимости $D_S(S)$ параметров D_{dip} , $D_{c0} + D_{cf}$ и A представлены впервые (см. таблицу). Экспериментальные данные для D_S в $CsCdCl_3 + Mn^{2+}$ приведены в [10].

Экспериментальное значение константы дипольного взаимодействия $D'_{dip} = \{D_3 - \beta_3[D_{cf} + D_{c0} + A\sqrt{12}]\}/3\alpha_3$ с хорошей и более высокой точностью, чем D_{dip} , определяется из данных для мультиплета с $S = 3$. Константы D_3 , $(D_{c0} + D_{cf})$ и A , необходимые для такого определения, следуют из данных $D_S(S)$ [6,7,10]. Такой прием определения константы дипольного взаимодействия D'_{dip} позволил построить монотонные зависимости $D_{cS}(|H^{ex}|)$ (см. рисунок). Отметим, что при построении экспериментальной зависимости (1) точка для $S = 3$ является особенно чувствительной к погрешности определения D_3 и константы дипольного взаимодействия. Это связано с малой величиной β_3 .

Таким образом, „одноионная“ обменная константа включает корреляционную поправку $\sqrt{S(S+1)}$, которую необходимо учитывать при записи гамильтониана для пар в терминах общего спина S . Как видно из рисунка, такая запись должна носить общий характер.

Список литературы

- [1] L. Rimai, T. Kushida. Phys. Rev. **143**, 160 (1966).
- [2] S. Geschwind. Phys. Rev. **121**, 363 (1961).
- [3] G.P. Rodrigue, H. Meyer, R.V. Jones. J. Appl. Phys. **31**, 376S (1960).
- [4] A.E. Nikiforov, V.Ya. Mitrofanov, A.N. Men. Phys. Status Solidi B **45**, 65 (1971).
- [5] A.C. Москвин, И.Г. Бострем, М.А. Сидоров. ЖЭТФ **103**, 2499 (1993).
- [6] V.V. Men'shikov, S.G. Ovchinnikov, V.V. Rudenko, A.N. Sudakov, V.I. Tugarinov, A.M. Yorotynov. J. Magn. Magn. Mater. **267**, 289 (2003).
- [7] E.A. Harris. J. Phys. C **5**, 338 (1972).
- [8] A.M. Воротынов, С.Г. Овчинников, В.В. Руденко, А.Н. Судаков. ФТТ **42**, 1275 (2000).
- [9] J. Owen. J. Appl. Phys. **32**, 213S (1961).
- [10] S.N. Martynov, S.B. Petrov. Phys. Status Solidi B **149**, K 41 (1988).