

УДК 537.611.45
 © 1990

ИЗМЕНЕНИЕ СПЕКТРА АФМР $(C_2H_5NH_3)_2CuCl_4$ ПОД ДЕЙСТВИЕМ ВСЕСТОРОННЕГО ДАВЛЕНИЯ

В. Н. Васюков, В. Т. Телена

Проведено исследование изменений спектра АФМР квазидвумерного антиферромагнетика $(C_2H_5NH_3)_2CuCl_4$, вызванных влиянием всестороннего давления, действующего на кристалл. В интервале давлений от нуля до 10 кбар исследованы частотно-полявые зависимости ферромагнитных ветвей спектра АФМР. Показано, что изменение направления оси легкого намагничивания $(C_2H_5NH_3)_2CuCl_4$ происходит при давлении $P_c = 8.9$ кбар.

Тетрахлоркупроат этиламмония $(C_2H_5NH_3)_2CuCl_4$ представляет собой квазидвумерный антиферромагнетик с температурой Нееля $T_N = 10.2$ К [1], обладающий слабой анизотропией магнитных свойств в плоскости (ab) кристалла.

При воздействии на кристаллы всестороннего давления анизотропия в «легкой» плоскости (ab) уменьшается, о чем свидетельствует уменьшение величины поля спи-флоп перехода $(C_2H_5NH_3)_2CuCl_4$, описанное в работах [2-4].

В [4] было показано, что при давлении $P_c \approx 6 \div 7$ кбар направление оси легкого намагничивания кристалла изменяется: при $P < P_c$ направлена вдоль оси a кристалла, при $P > P_c$ совпадает с кристаллической осью b . Низкая точность определения P_c обусловлена особенностями использованной в работе [4] низкочастотной методики экспериментального исследования.

Целью настоящей работы является изучение изменения спектра антиферромагнитного резонанса (АФМР) $(C_2H_5NH_3)_2CuCl_4$ при воздействии на кристалл всестороннего давления.

Измерение спектра АФМР проведено на спектрометре с коаксиальным резонатором проходного типа со спиральным внутренним проводником [5]. Внешним экраном резонатора являлись стенки камеры высокого давления типа поршень—цилиндр [6]. Давление в камере измерялось манганиновым датчиком, прокалбированным при низких температурах по переходу в сверхпроводящее состояние олова [7].

Исследуемый образец в форме цилиндра диаметром 3 и высотой 0.5 мм ориентировался в резонаторе таким образом, чтобы СВЧ поле было направлено вдоль кристаллографической оси c , совпадающей с осью цилиндра. Направление постоянного поля, создаваемого магнитом, лежало в плоскости (ab) кристалла.

Однородные колебания магнитных моментов в системе типа $(C_2H_5NH_3)_2CuCl_4$ могут быть описаны в рамках двухподрешеточной модели [8] с эффективным гамильтонианом

$$\mathcal{H}/M_0V = -H_E + H'_E(m^2 - l^2) + a_y m_y^2 + a_x m_x^2 + b_y l_y^2 + b_x l_x^2 - 2H_d(m_y l_x + m_x l_y) - 2mH, \quad (1)$$

$M_0 = g \mu_B S/V_0$ — намагниченность насыщения одной подрешетки; $e = (\sigma_1 - \sigma_2)/2$; $m = (\tau_1 + \sigma_2)/2$, где $\sigma_1 = M_1/M_0$, $\sigma_2 = M_2/M_0$ — относитель-

ные намагниченности подрешеток. Магнитное поле лежит в плоскости (ab) кристалла.

При нормальном давлении и $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}$ антиферромагнетик $(\text{C}_2\text{H}_5\text{NH}_3)_2\text{CuCl}_4$ может находиться в одном из трех возможных фазовых состояний: антиферромагнитном (AF) $H < H_{SF}$, спин-флор состоянии (SF) $H_{SF} < H < H_{fa}$ и спин-флип состоянии $H > H_{fa}$. В случае $\mathbf{H} \parallel \mathbf{b}$ возможны два неколлинеарных состояния [9].

Энергия основного состояния и ориентация намагниченностей подрешеток

Фаза	Намагниченность подрешеток	Плотность энергии в единицах M_0
$\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}$		
AF	$\alpha_1(1, 0, 0)$ $\alpha_2(-1, 0, 0)$	$-H_E - H'_E$
SF	$\alpha_1(\cos \theta, \sin \theta \cos \varphi, \sin \theta \sin \varphi)$ $\alpha_2(\cos \theta, -\sin \theta \cos \varphi, \sin \theta \sin \varphi)$	$-H_E - H'_E + H_A - H^2/H_{fa}$
F	$\alpha_1(1, 0, 0)$ $\alpha_2(1, 0, 0)$	$-H_E + H'_E - 2H$
$\mathbf{H} \parallel \mathbf{b}$		
SF _b	$\alpha_1(\cos \alpha, \sin \alpha \cos \beta, -\sin \alpha \sin \beta)$ $\alpha_2(-\cos \alpha, \sin \alpha \cos \beta, \sin \alpha \sin \beta)$	$-H_E - H'_E - H^2/(H_{fb} \sqrt{1 + \text{tg}^2 \beta})$
F _b	$\alpha_1(0, \cos \beta, -\sin \beta)$ $\alpha_2(0, \cos \beta, \sin \beta)$	$-H_E - H'_E - (2H - H_{fb})/\sqrt{1 + \text{tg}^2 \beta}$

Энергия основного состояния различных фаз $(\text{C}_2\text{H}_5\text{NH}_3)_2\text{CuCl}_4$ и ориентация намагниченностей подрешеток приведены в таблице. Ориентация намагниченностей приведена в системе координат, оси которой направлены вдоль векторов кристалла \mathbf{a} , \mathbf{b} , \mathbf{c} соответственно. В таблице использованы обозначения: $\cos \theta = H/H_{fa}$, $\text{tg} 2\varphi = 2H_d/H_e$, $\sin \alpha = H/H_{fb}$, $\text{tg} \beta = -H_d/b_x$, $H_e = 2H'_E + a_x - b_y$, $H_A = b_y - H_d^2/H'_e$, $H'_e = H_e/(1 - \text{tg}^2 \varphi)$, $H_{fa} = 2H'_E - H_A$, $H_{fb} = (2H'_E + a_y) \cos \beta + H_d \sin \beta$, $H_{SF}^2 = H_A H_{fa}$.

Частоты АФМР в антиферромагнитной фазе AF при $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}$ описываются соотношением

$$\begin{aligned}
 (2\pi\nu_1, 2/\gamma)^2 &= \{A \pm (A^2 - 4B)^{1/2}\}/2, \\
 A &= 2H^2 + E_1^2 + E_2^2, \quad E_1^2 = b_y(2H'_E + a_x) - H_d^2, \quad E_2^2 = b_x(2H'_E + a_y) - H_d^2, \\
 B &= \{H^2 - (2H'_E + a_y)b_y\} \{H^2 - (2H'_E + a_x)b_x\}.
 \end{aligned} \tag{2}$$

В работе [8] отмечалось, что частота возбуждения ν_1 при воздействии на кристалл всестороннего давления уменьшается в несколько раз, приближаясь к нулевому значению.

Действие всестороннего давления на кристалл $(\text{C}_2\text{H}_5\text{NH}_3)_2\text{CuCl}_4$ не изменяет его симметрию. Поэтому в выражении (1) дополнительные, более низкосимметричные, члены не появятся. Изменение магнитных свойств кристалла, вызванное внешним давлением, может быть описано зависимостью от давления параметров системы.

Согласно (2), частота возбуждения в нулевом магнитном поле равна $\nu_1(0) = \gamma E_1/2\pi$ и наиболее чувствительна к изменению параметра b_y , который характеризует анизотропию магнитных свойств в плоскости (ab) кристалла.

При достижении давления P_c частота $\nu_1(0)$ обращается в нуль, что выполняется при условии $b_y = H_d^2/(2H'_E + a_x)$. При этом эффективное поле H_A (и связанное с ним поле спин-флор перехода H_{SF}) равно нулю, т. е. антиферромагнетик из ромбического переходит в легкоплоскостной.

Значение давления P_c , при котором происходит изменение направления оси легкого намагничивания, экспериментально наиболее удобно

определять, изучая угловую зависимость резонансной линии спектра АФМР, принадлежащей ферромагнитной ветви. На рис. 1 приведена частотно-полевая зависимость ферромагнитных ветвей спектра АФМР $(C_2H_5NH_3)_2CuCl_4$ для двух значений внешнего всестороннего давления. Ветвь $1b$ соответствует частоте ν_1 при $\mathbf{H} \parallel \mathbf{b}$ и $P=2.3$ кбар и описывается выражением

$$(2\pi\nu_1/\gamma)^2 = E_1^2 + H_1^2 \sin^2 \alpha, \quad (2\pi\nu_2/\gamma)^2 = E_2^2 \cos^2 \alpha, \quad (3)$$

$$H_1^2 = (H_e + b_y)(H_e - a_x) \cos^4 \beta + \{B_x^2 + 2H'_E(H_e + 2b_x) - 2a_x b_y\} \cos^2 \beta \sin^2 \beta + (2b_x^2 + 4b_x H'_E - a_x b_y + H_a^2) \sin^4 \beta.$$

Как следует из (3), частота ферромагнитной ветви при $P=P_c$ прямо пропорциональна величине магнитного поля H . Ветвь $2b$ на рис. 1 соответствует ν_1 при $\mathbf{H} \parallel \mathbf{b}$ и $P=8.3$ кбар. Частоты этой ветви зависят от H практически линейно, что свидетельствует о малости E_1^2 по сравнению со вторым слагаемым, определяющим значение ν_1^2 .

Ветвь $2a$ АФМР (спин-флор фаза), соответствующая ориентации магнитного поля вдоль оси \mathbf{a} , при давлении $P=8.3$ кбар, находится правее ветви $2b$ ($\mathbf{H} \parallel \mathbf{b}$), что свидетельствует о том, что давление 8.3 кбар близко к P_c , но все-таки меньше его. На рис. 1 частоты АФМР $(C_2H_5NH_3)_2CuCl_4$ в спин-флор фазе при $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}$ и $P=2.3$ кбар соответствуют ветви $1a$.

Таким образом, при воздействии всестороннего давления на кристалл $(C_2H_5NH_3)_2CuCl_4$ ферромагнитная ветвь АФМР для $\mathbf{H} \parallel \mathbf{b}$ (фаза SF_b) по всей длине монотонно приближается к прямой линии, проходящей через начало координат и описываемой соотношением $\nu = \gamma H H_1 / 2\pi H_{fb}$. При этом E_1 уменьшается до нуля. В свою очередь ветвь фазы SF для $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}$ монотонно приближается к той же прямой с другой стороны. При этом H_{SF} уменьшается до нуля. При достижении P_c ветви АФМР, соответствующие $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}$ и $\mathbf{H} \parallel \mathbf{b}$, сливаются в одну. Анизотропия ферромагнитной ветви спектра АФМР исчезает.

При дальнейшем возрастании давления ветвь АФМР фазы SF_b ($\mathbf{H} \parallel \mathbf{b}$) перемещается в том же направлении, приобретая положительную кривизну. При этом $\nu_1(H)$ продолжает описываться соотношением (3) с той лишь разницей, что E_1^2 следует считать отрицательной величиной. При этом изменяется физический смысл E_1^2 . При $P < P_c$ E_1 определяет частоту возбуждения однородных колебаний антиферромагнетика при $H=0$, а при $P > P_c$ — $E_1^2 H_{fb}^2 / H_1^2$ определяет квадрат поля устойчивости SF_b фазы.

Ветвь спин-флор фазы ($\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}$) при увеличении давления свыше P_c (на диаграмме частота—поле) продолжает двигаться в направлении, противоположном ветви фазы SF_b . При этом частоты АФМР фазы SF в наших обозначениях описываются соотношением [8, 9]

$$(2\pi\nu_1, 2/\gamma)^2 = \{C \pm \{C^2 - 4 \sin^2 \theta (H_A^2 \cos^2 \theta + \varepsilon_1^2 \varepsilon_2^2)\}^{1/2}\} / 2, \quad (4)$$

$$C = H_2^2 \cos^2 \theta + (\varepsilon_2^2 + \varepsilon_1^2) \sin^2 \theta, \quad H_2^2 = H'_0 \{H'_0 / \cos^2 \varphi + a_y - a_x + (b_x - b_y) \operatorname{tg}^2 \varphi - 4H_d \operatorname{tg} \varphi\},$$

$$H_A^2 = H'_0 \{H_A \varepsilon_2^2 + H_{fa} (b_x - b_y) (H'_0 + a_y - a_x) - H_{fa} H_d (a_x - a_y) \operatorname{tg} \varphi\} / \cos^2 \varphi.$$

Частоты возбуждения АФМР в нулевом поле при $P > P_c$ определяются выражением

$$(2\pi\nu_1(0)/\gamma)^2 = \varepsilon_1^2 = -H_A H'_0 / \cos^2 \varphi, \quad (5)$$

$$(2\pi\nu_2(0)/\gamma)^2 = \varepsilon_2^2 = \cos^2 \varphi H_{fa} \{b_x - b_y - (a_x - a_y) \operatorname{tg}^2 \varphi + 4H_d \operatorname{tg} \varphi\}.$$

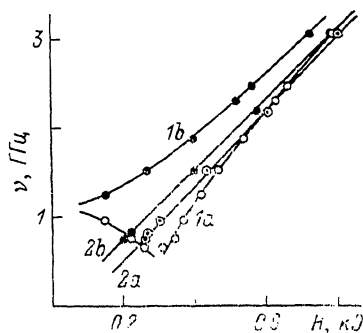


Рис. 1. Частотно-полевая зависимость ферромагнитной ветви спектра АФМР $(C_2H_5NH_3)_2CuCl_4$ для давлений $P < P_c$.

При $P < P_c$ соотношение (4) также описывает спектр АФМР $(C_2H_5NH_3)_2CuCl_4$ с той лишь разницей, что ϵ_1^2 следует считать отрицательной величиной. При этом изменяется физический смысл ϵ_1^2 . При $P > P_c$ ϵ_1 определяет частоту возбуждения однородных колебаний антиферромагнетика при $H=0$, а при $P < P_c$ выражение $-\epsilon_1^2 \epsilon_2^2 H_{fa}^2 / H_3^4$ определяет квадрат поля лобильности SF фазы.

На рис. 2 приведены частотно-полевые зависимости спектра АФМР $(C_2H_5NH_3)_2CuCl_4$, экспериментально наблюдаемые при $P > P_c$ ($H \parallel a$ (1a, 2a), $H \parallel b$ (1b, 2b), $P=9.2$ (1a, 1b) и 9.9 кбар (2a, 2b)). При сравнении зависимостей рис. 1 и 2 обращает на себя внимание тот факт, что ветвь АФМР, соответствующая $H \parallel a$, как бы меняется местами с ветвью, соответствующей АФМР при $H \parallel b$.

Согласно таблице, при $P > P_c$ и $H \parallel a$ энергия основного состояния фазы больше энергии основного состояния спин-флоп фазы, поэтому АФ

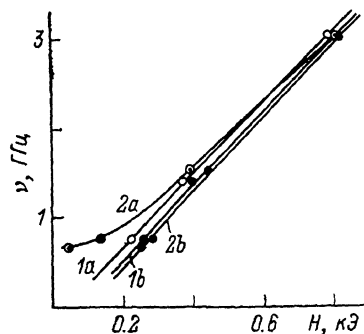


Рис. 2. Частотно-полевая зависимость ферромагнитной ветви спектра АФМР $(C_2H_5NH_3)_2CuCl_4$ для давлений $P > P_c$.

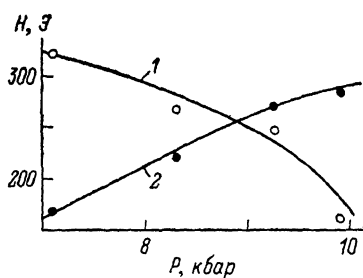


Рис. 3. Зависимость резонансного поля ферромагнитной ветви от давления при частоте $\nu=800$ МГц.

фаза при $P > P_c$ не существует, но возникает новая слабоферромагнитная фаза. Векторы намагниченности и антиферромагнетизма этой фазы в основном состоянии m $(0, \sin \gamma \sin \delta, \sin \gamma \cos \delta)$, e $(0, \cos \gamma \cos \delta, -\cos \gamma \sin \delta)$ описываются двумя углами, зависящими от магнитного поля. При $H=0$ $\delta=0$, $\gamma=\varphi$, энергия основного состояния новой фазы равна $-H_E - H'_E + H_A$.

Если для фиксированной частоты СВЧ поля построить зависимости от давления резонансных полей линии спектра АФМР ферромагнитной ветви для ориентации внешнего магнитного поля вдоль оси a и вдоль оси b кристалла, то следует ожидать, что они пересекутся при давлении, равном P_c , независимо от выбранной частоты.

На рис. 3 приведена зависимость положений резонансных линий ферромагнитной ветви спектра АФМР $(C_2H_5NH_3)_2CuCl_4$ на частоте $\nu=800$ МГц от величины всестороннего давления, действующего на кристалл, для ориентации магнитного поля $H \parallel a$ (1) и $H \parallel b$ (2). Аппроксимируя экспериментальные зависимости $H_a(P)$ и $H_b(P)$, можно определить величину критического давления $P_c=8.9$ кбар. Аналогичные экспериментальные зависимости, полученные для других частот, дают величину P_c , отличающуюся не более чем на 0.1 кбар.

Авторы благодарят В. Н. Криворучко за обсуждение работы и конструктивные замечания.

Список литературы

- [1] Jongh L. J., de Amstel W. D., Miedema A. R. // Physica. 1972. V. 58. N 2. P. 277—304.
- [2] Chikamatsu M., Jamazaki H., Jamagata K., Abe H. // J. Magn. and Magn. Mater. 1983. V. 31—34. N 10. P. 1191—1192.
- [3] Васюков В. Н., Лукия С. Н., Телеса В. Т. // ФНТ. 1985. Т. 11. № 1. С. 96—98.

- [4] Богданов А. Н., Пузыня А. И., Телпа В. Т., Шатский П. П. // ФНТ. 1987. Т. 13. № 1. С. 73—78.
- [5] Денисов Ю. Н., Калининченко В. В. // ПТЭ. 1965. № 2. С. 134—135.
- [6] Ицкевич Е. С. // ПТЭ. 1963. № 4. С. 148—151.
- [7] Thompson J. D. // Rev. Sci. Instrum. 1984. V. 55. N 2. P. 231—234.
- [8] Васюков В. Н., Журавлев А. В., Лукин С. Н., Пашкевич Ю. Г., Соболев В. Д., Телпа В. Т. // ФТТ. 1984. Т. 26. № 5. С. 1297—1305.
- [9] Gredescul V. M., Gredescul S. A., Eremenko V. V., Naumenko V. M. // J. Phys. Chem. Sol. 1972. V. 33. N 4. P. 859—880.

Донецкий физико-технический институт
АН УССР
Донецк

Поступило в Редакцию
18 мая 1989 г.

