

# ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ АНТИФЕРРОМАГНИТНОГО РЕЗОНАНСА В НЕКОЛЛИНЕАРНОМ АНТИФЕРРОМАГНЕТИКЕ $Mn_3Al_2Ge_3O_{12}$

Ю. В. Красникова <sup>a,b\*</sup>, В. Н. Глазков <sup>a,b</sup>, Т. А. Солдатов <sup>a,c</sup>

<sup>a</sup> Институт физических проблем им. П. Л. Капицы Российской академии наук  
119334, Москва, Россия

<sup>b</sup> Национальный исследовательский университет Высшая школа экономики  
101000, Москва, Россия

<sup>c</sup> Московский физико-технический институт  
141700, Долгопрудный, Московская обл., Россия

Поступила в редакцию 14 апреля 2017 г.

Для алюминиево-марганцевого граната  $Mn_3Al_2Ge_3O_{12}$  получены частотно-полевые зависимости АФМР на частотах 1–125 ГГц в полях до 6 Тл. Для всех ориентаций в частотно-полевых зависимостях АФМР присутствовало три моды колебаний с двумя щелями величиной около 40 и 70 ГГц. Описание частотно-полевых зависимостей АФМР в рамках гидродинамической теории Андреева–Марченко [7] хорошо соответствует экспериментальным данным. В окрестности щелевых частот во всех трех ориентациях в поле до 10 кЭ наблюдались гистерезис сигнала поглощения и зависимость сигнала поглощения от предыстории образца, предположительно связанные с доменной структурой образца. Наблюдение сигнала АФМР на частотах 1–5 ГГц позволило получить оценку величины эффекта расталкивания мод электронной и ядерной прецессии в окрестности спин-переориентационного перехода при  $\mathbf{H} \parallel [100]$ .

DOI: 10.7868/S0044451017090139

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Соединение  $Mn_3Al_2Ge_3O_{12}$  представляет собой антиферромагнетик, у которого ниже температуры Нееля ( $T_N = 6.5$  К [1]) формируется сложный неколлинеарный порядок, описываемый двенадцатью подрешетками. Кристаллическая структура этого соединения принадлежит к кубической группе симметрии  $O_h^{10}$ , а в упорядоченной антиферромагнитной фазе спины лежат в одной из плоскостей типа (111) [2]. В кубическом кристалле есть четыре эквивалентных направления типа [111], поэтому в точке Нееля может возникать несколько антиферромагнитных доменов. В магнитном поле эквивалентность этих доменов будет нарушаться. Существование таких доменов проявляется в особенностях магнитоупругости кристаллов  $Mn_3Al_2Ge_3O_{12}$ , наблюдавшихся в работе [3]. В работе [4] авторы связывают наблюдаемое нелинейное поглощение радио-

частотного сигнала с колебанием доменных границ между антиферромагнитными доменами.

Динамика магнитных возбуждений в  $Mn_3Al_2Ge_3O_{12}$  изучалась методом неупругого рассеяния нейтронов [2], методом антиферромагнитного резонанса [5] и методом ЯМР на ядрах  $^{55}Mn$  [6]. В работе [2] были определены дисперсионные кривые спиновых волн. Помимо акустических мод были обнаружены оптические (обменные) моды спиновых волн с щелью около 250 ГГц. Методом АФМР была подробно исследована низкочастотная динамика в диапазоне частот от 20 до 80 ГГц и полей до 20 кЭ [5]. Также было проведено ЯМР-исследование магнитного порядка в  $Mn_3Al_2Ge_3O_{12}$  на частотах от 200 до 640 МГц [6].

Для описания частотно-полевых зависимостей АФМР и ЯМР в  $Mn_3Al_2Ge_3O_{12}$  успешно применялась теория Андреева–Марченко [5–8]. Эта теория предсказывает смягчение одной из мод АФМР в поле спин-переориентационного перехода при  $\mathbf{H} \parallel [100]$ . При этом мода АФМР должна будет пересечь моду ЯМР и сверхтонкое взаимодействие на

\* E-mail: krasnikova.mipt@gmail.com

ионах марганца должно привести к расталкиванию этих мод. Наличие этого взаимодействия наблюдалось в ЯМР-экспериментах [6] как смягчение некоторых мод ЯМР. Динамика ядерной подсистемы и взаимодействие ее с электронной подсистемой для  $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$  описаны в работе [8].

Целью нашей работы было изучение спиновой динамики в  $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$  в широком диапазоне частот и полей, детальное исследование частотно-полевой зависимости АФМР в окрестности поля спин-переориентационного перехода, а также исследование доменной структуры упорядоченной фазы. Исследования выполнены как на более высоких частотах и в больших полях по сравнению с работой [5], так и на частотах от 1 до 20 ГГц, закрывая разрыв между экспериментами ЯМР и АФМР. Полученные данные были описаны в рамках теории Андреева – Марченко [7]. Был обнаружен гистерезис резонансного поглощения, предположительно связанный с доменной структурой упорядоченной фазы  $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ , и обнаружена медленная релаксация доменной структуры после выведения поля.

## 2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

### 2.1. Образцы и детали эксперимента

В нашей работе использовались те же монокристаллы, что и в работах [4, 6]. Для низкочастотных измерений (ниже 25 ГГц) использовался образец, сориентированный ранее для измерений ЯМР с точностью около  $1^\circ$ . Для высокочастотных измерений были подготовлены образцы меньших размеров (массой около 1 мг). Для ориентирования этих образцов использовался рентгеновский дифрактометр BRUKER APEX II. Точность перенесения ориентации образца с дифрактометра в ЭПР-спектрометр составляла  $3^\circ$ – $5^\circ$ .

Для изучения спиновой динамики в  $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$  были использованы спектрометры магнитного резонанса проходного типа. Регистрировалась зависимость СВЧ-сигнала, прошедшего через резонатор с образцом, от медленно меняющегося магнитного поля, при этом частота СВЧ-поля оставалась постоянной. Для измерений на различных частотах в диапазоне 1–125 ГГц использовался набор спектрометрических вставок, различающихся геометрией резонатора и типом используемых волноводов.

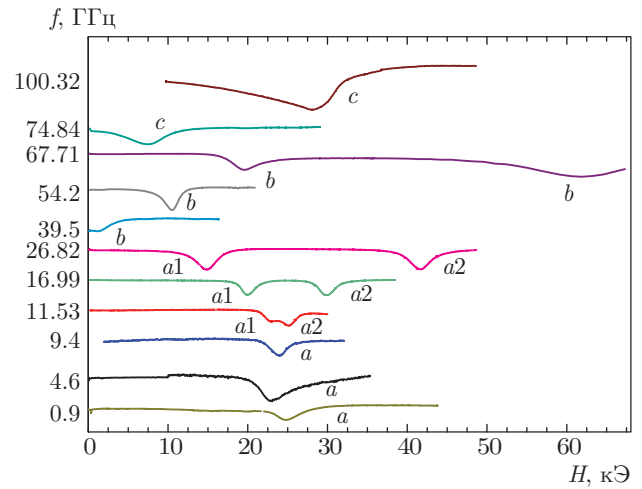


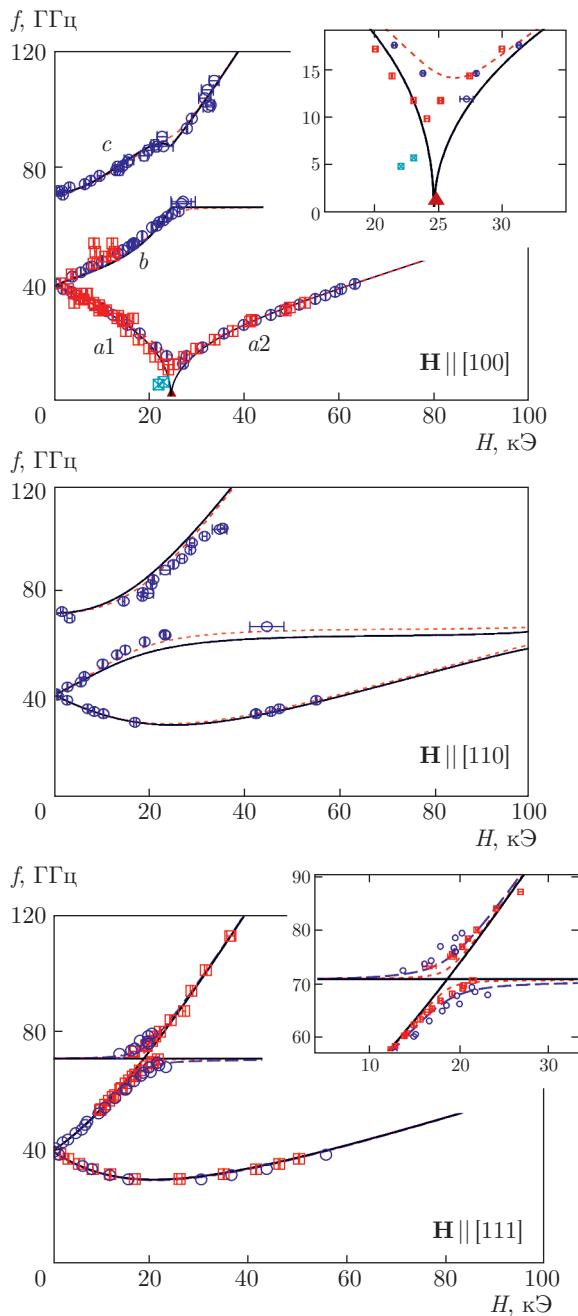
Рис. 1. Спектры резонансного поглощения в  $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$  различных частот в ориентации  $\mathbf{H} \parallel [100]$  при температуре  $T = 1.8$  К. Индексы  $a, b, c$  соответствуют различным модам колебаний, см. рис. 2

Основная часть результатов получена при  $T = 1.8$  К. Измерения на низких частотах (1–5 ГГц) выполнялись при температурах до 1.3 К.

### 2.2. Частотно-полевая зависимость АФМР

Пример спектров поглощения, полученных для ориентации  $\mathbf{H} \parallel [100]$ , представлен на рис. 1. Эти данные позволяют построить частотно-полевую зависимость АФМР в  $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$  для заданной ориентации. Таким образом были получены частотно-полевые зависимости АФМР для трех ориентаций ( $\mathbf{H} \parallel [100]$ ,  $\mathbf{H} \parallel [111]$ ,  $\mathbf{H} \parallel [110]$ ) образцов относительно магнитного поля (рис. 2). Во всех трех ориентациях наблюдаются три моды АФМР с двумя щелями величиной около 40 ГГц и 70 ГГц. В ориентации  $\mathbf{H} \parallel [100]$  также наблюдается смягчение одной из мод АФМР в поле около 24 кЭ, связанное со спин-переориентационным переходом. Следов оптических мод на частотах до 140 ГГц не обнаружено.

Измеренные частотно-полевые зависимости АФМР были описаны в рамках гидродинамической теории Андреева – Марченко [7]. Согласно этой теории магнитную структуру планарного неколлинеарного антиферромагнетика можно описать двумя антиферромагнитными векторами  $\mathbf{l}_1, \mathbf{l}_2$ . Все дальнейшие рассуждения о динамике такой системы можно строить в терминах колебаний тройки векторов  $\mathbf{l}_1, \mathbf{l}_2$  и  $\mathbf{n} = \mathbf{l}_1 \times \mathbf{l}_2$ . Лагранжиан для данной задачи записывается в виде



**Рис. 2.** Частотно-полевая зависимость АФМР для трех ориентаций:  $\mathbf{H} \parallel [100]$ ,  $\mathbf{H} \parallel [111]$ ,  $\mathbf{H} \parallel [110]$  при температуре 1.8 К. Сплошными и пунктирными линиями показаны результаты численного моделирования соответственно для точной ориентации и с отклонением поля на  $5^\circ$ , для ориентации  $\mathbf{H} \parallel [111]$  показаны результаты моделирования с отклонением поля на  $10^\circ$ . На вставках показаны увеличенные фрагменты результатов моделирования частотно-полевых зависимостей АФМР для ориентаций  $\mathbf{H} \parallel [100]$  и  $\mathbf{H} \parallel [111]$

$$L = T - U = \frac{I}{2} (\dot{\mathbf{l}}_1 + \gamma[\mathbf{l}_1 \times \mathbf{H}])^2 + \frac{I}{2} (\dot{\mathbf{l}}_2 + \gamma[\mathbf{l}_2 \times \mathbf{H}])^2 + \frac{I'}{2} (\dot{\mathbf{n}} + \gamma[\mathbf{n} \times \mathbf{H}])^2 - \lambda \left[ \frac{2}{\sqrt{3}}(l_{1x}l_{2x} - l_{1y}l_{2y}) + l_{1z}^2 - l_{2z}^2 \right].$$

Последнее слагаемое — энергия анизотропии, вид которой определяется симметрией кристалла;  $I, I'$  — динамические постоянные, связанные с восприимчивостью следующим образом:  $\chi' = 2\gamma^2 I$ ,  $\chi = 2\gamma^2(I + I')$ , где  $\chi'$  — восприимчивость, параллельная направлению  $\mathbf{l}_1 \times \mathbf{l}_2$ , а  $\chi$  — перпендикулярная к нему. Для нахождения частот собственных колебаний необходимо найти положение равновесия тройки векторов  $\mathbf{l}_1, \mathbf{l}_2, \mathbf{n}$  в заданном внешнем поле и линеаризовать уравнения динами (уравнения Эйлера–Лагранжа) в окрестности этого положения равновесия. В случае  $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$  невозможно решить эту задачу аналитически для произвольного направления поля. Поэтому для нахождения частотно-полевой зависимости АФМР мы использовали численный алгоритм, описанный в работе [9]. Результаты моделирования показаны на рис. 2. Константы, описывающие экспериментальные данные, показанные на рис. 2:  $\gamma = 17.59 (10^9 \text{ рад/с} \cdot \text{кЭ})$  (2.8 ГГц/кЭ),  $\lambda = 1 \text{ кЭ}^2$ ,  $I = 1.36 \cdot 10^{-5} \text{ кЭ}^2 / (10^9 \text{ рад} \cdot \text{с}^{-1})^2$ ,  $I' = 9.04 \cdot 10^{-6} \text{ кЭ}^2 / (10^9 \text{ рад} \cdot \text{с}^{-1})^2$ . Здесь гирромагнитное отношение зафиксировано равным чисто спиновому значению, значение постоянной  $\lambda$  зафиксировано произвольно (одновременное масштабирование всех констант в лагранжиане не меняет частот собственных колебаний), величины  $I$  и  $I'$  использовались как подгоночные параметры. Эти значения параметров соответствуют щелям спектра АФМР  $\nu_{10} = 39.5 \text{ ГГц}$ ,  $\nu_{20} = 70 \text{ ГГц}$  и полю спин-переориентационного перехода при  $\mathbf{H} \parallel [100]$   $H_c = 23 \text{ кЭ}$ . Для учета возможной разориентации образца в реальном эксперименте на рис. 2 также показаны модельные частотно-полевые зависимости для слегка отклоненного от точной ориентации поля.

### 2.3. Изучение взаимодействия электронной и ядерной мод спиновой прецессии

Теоретическое моделирование, рассматривающее только электронную прецессию, предсказывает обращение в нуль частоты АФМР в поле спин-переориентационного перехода. Однако сверхтонкое взаимодействие с ядерной подсистемой приводит к расталкиванию электронной и ядерной мод спиновой прецессии. Это расталкивание можно

оценить по теории, описанной в работе [8]: частота АФМР в поле перехода с учетом сверхтонкого взаимодействия равна  $\nu_e \approx [\gamma_e/\gamma_n \sqrt{\chi_n/\chi_e}] \nu_n$ , где  $\gamma_e = 2.8$  ГГц/кЭ,  $\gamma_n = 1.06$  МГц/кЭ и  $\chi_e = 0.3$  ед. СГС/моль,  $\chi_n = 5 \cdot 10^{-7}$  ед. СГС/моль — гиромагнитные отношения и магнитные восприимчивости для электронной и ядерной подсистем, а  $\nu_n \approx 600$  МГц — частота ЯМР, величины взяты из работы [6] и соответствуют температуре  $T = 1.2$  К. Эта оценка дает  $\nu_e \approx 2.1$  ГГц, и ожидаемое расталкивание мод составляет 1.5 ГГц.

Примеры линий поглощения и положения резонансных полей на частотно-полевой диаграмме в ориентации  $\mathbf{H} \parallel [100]$ , где присутствует спин-переориентационный переход, показаны на рис. 1 и рис. 2. Мы наблюдали сигнал поглощения вблизи поля перехода на частотах вплоть до 900 МГц. Две компоненты этого сигнала (относящиеся к падающей и растущей ветвям АФМР) разрешались выше 10 ГГц. Сигнал поглощения на частотах ниже 5 ГГц был очень чувствителен к ориентации образца и пропадал при изменении ориентации примерно на  $3^\circ$ .

Частота ЯМР  $^{55}\text{Mn}$  в нулевом поле составляет около 600 МГц [6], в нашем эксперименте по антиферромагнитному резонансу наблюдается возникновение поглощения в поле спин-переориентационного перехода на частоте 930 МГц, т. е. кажущаяся величина расталкивания мод составляет около 400 МГц, что заметно меньше сделанной выше оценки. Это различие теоретических и экспериментальных данных можно объяснить большой собственной шириной линии антиферромагнитного резонанса: полуширина линии АФМР по полю вблизи поля смягчения составляет около 0.8 кЭ (моды  $a_1$  и  $a_2$  на рис. 1), что с учетом наклона частотно-полевой зависимости дает ширину линии около 1.5 ГГц. Таким образом, наблюдаемый на частоте 930 МГц сигнал поглощения может наблюдаться на крыле резонансной линии, смещенной за счет сверхтонкого взаимодействия на 1.5–2 ГГц выше частоты ЯМР. Наши результаты позволяют получить только оценку сверху для расталкивания электронной и ядерной мод: оно не превышает 5 ГГц (утроенной собственной полуширины линии АФМР).

#### 2.4. Наблюдение гистерезиса поглощения в малых полях

Для  $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$  в упорядоченном состоянии спины лежат в плоскости, перпендикулярной направлению типа [111]. В кубическом кристалле су-

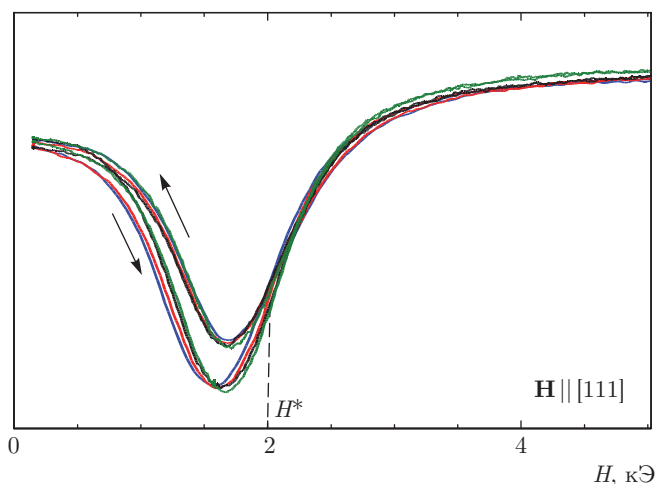


Рис. 3. (В цвете онлайн) Пример гистерезиса сигнала поглощения для ориентации  $\mathbf{H} \parallel [111]$  на частоте 37.62 ГГц при температуре 1.8 К. Запись данных производилась при различных скоростях развертки сигнала по полю: 2 кЭ/мин (зеленая и черная линии), 6 кЭ/мин (красная линия) и 10 кЭ/мин (синяя линия). Штриховой линией показано поле монокристаллизации  $H^*$ . Стрелками показаны направления прохода по полю

ществует четыре эквивалентные ориентации спиновой плоскости  $n \parallel [111], [\bar{1}\bar{1}1], [1\bar{1}\bar{1}], [\bar{1}1\bar{1}]$ , что должно приводить к образованию доменов. Поскольку резонансное поле АФМР зависит от ориентации магнитного поля относительно осей упорядоченной структуры, при наличии магнитных доменов в образце ожидалось бы появление дополнительных линий резонансного поглощения. Однако при измерении частотно-полевых зависимостей регулярное появление дополнительных линий поглощения не было обнаружено. В то же время на частотах, близких к целевым, где сигнал поглощения наблюдался в малых полях, был обнаружен гистерезис поглощения (рис. 3). Мы наблюдали его для всех изучаемых ориентаций образца относительно поля ( $\mathbf{H} \parallel [100]$ ,  $\mathbf{H} \parallel [111]$ ,  $\mathbf{H} \parallel [110]$ ). Было проверено, что наблюдение гистерезиса не зависит от скорости развертки поля, подаваемой СВЧ-мощности и способов монтажа образца.

Наблюдаемый сигнал поглощения зависит от предыстории образца. При охлаждении образца через точку Нееля в нулевом поле записываемая с ростом поля линия поглощения отличается как от линии поглощения, записываемой с уменьшением поля, так и от линии поглощения, записываемой с ростом поля в больших полях. Линия поглощения, записываемая с уменьшением поля, повторяется независимо от предыстории образца, включая охлаждение через температуру Нееля в поле.

Для всех исследованных ориентаций образца линии поглощения, записываемые с увеличением и уменьшением поля, совпадают выше некоторого порогового поля  $H^*$ . Величина этого поля зависит от ориентации: при  $T = 1.8$  К для  $\mathbf{H} \parallel [100]$   $H^* = (7.5 \pm 0.5)$  кЭ, для  $\mathbf{H} \parallel [110]$   $H^* = (3.5 \pm 0.5)$  кЭ, для  $\mathbf{H} \parallel [111]$   $H^* = (2.0 \pm 0.2)$  кЭ. Температурную зависимость мы систематически не исследовали, для  $\mathbf{H} \parallel [100]$  при  $T = 4.2$  К пороговое поле уменьшилось до  $H^* = (6.0 \pm 0.2)$  кЭ. Если при записи линии поглощения, не доходя до порогового поля, начать уменьшать поле, то гистерезис сохраняется, но «петля гистерезиса» уменьшается.

В некоторых экспериментах (на частотах, близких к щелевым) при уменьшении поля сигнал возвращался к новому уровню, после чего уже в нулевом поле медленно релаксировал к исходному уровню мощности. Характерное время релаксации сигнала, наблюдаемой в нулевом поле, составляло порядка 20 с.

Наблюдаемый гистерезис может быть связан с перестройкой доменной структуры в магнитном поле. Согласно результатам наших экспериментов монодоменизация образца происходит в поле около 10 кЭ. Это отличает наши результаты от наблюдения нелинейного радиочастотного поглощения в ЯМР-эксперименте [4], связываемого с колебаниями доменных границ, — в ЯМР-эксперименте эффект нелинейного поглощения наблюдался при  $\mathbf{H} \parallel [100]$  вплоть до поля переориентационного перехода (24 кЭ).

### 3. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Нами были измерены частотно-полевые зависимости АФМР для  $\text{Mn}_3\text{Al}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$  в диапазоне частот 1–120 ГГц и полей 0–6 Тл. Эти зависимости с высокой точностью описываются теоретически в рамках гидродинамической теории Андреева–Марченко. Данные, полученные в нашей работе, дополняют полученные ранее частотно-полевые зависимости АФМР [5] и демонстрируют новые результаты. По сравнению с ранее полученными результатами нам удалось существенно расширить диапазон измерений и подробнее изучить АФМР в окрестности поля переориентационного перехода, где также присутствует эффект расталкивания ядерной и элект-

ронной мод спиновой прецессии. Наблюдаемый на частотах порядка 1 ГГц сигнал поглощения связан, по-видимому, с большой собственной шириной линии АФМР. Обнаружен гистерезис резонансного поглощения, связанный с перестройкой доменной структуры образца. При этом выше некоторого порогового поля наблюдалась монодоменизация образца, величина этого поля зависела от ориентации.

Авторы благодарят Б. В. Милля (МГУ им. Ломоносова) за предоставленные образцы, А. М. Тихонова за обсуждения в процессе работы. Также авторы благодарят А. И. Смирнова и Л. Е. Свистова за ценные замечания и поддержку в работе.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (грант № 16-02-00688), РНФ (грант № 17-12-01505) и в рамках программы фундаментальных исследований РАН «Электронный спиновый резонанс, спин-зависящие электронные эффекты и спиновые технологии». Работа в НИУ ВШЭ (Ю. В. К. и В. Н. Г.) выполнена в рамках программы фундаментальных исследований ВШЭ.

### ЛИТЕРАТУРА

1. W. Prandl, Phys. Stat. Sol. (b) **55**, K159 (1973).
2. A. Gukasov, V. P. Plakhty, B. Dorner, S. Yu. Kokovin, V. N. Syromyatnikov, O. P. Smirnov, and Yu. P. Chernenkov, J. Phys.: Condens. Matter **11**, 2869 (1999).
3. З. А. Казей, Н. П. Колмакова, М. В. Леванидов, Б. В. Милл, В.И.Соколов, ЖЭТФ **92**, 2277 (1987).
4. А. М. Тихонов, Н. Г. Павлов, Письма в ЖЭТФ **99**, 255 (2014).
5. Л. А. Прозорова, В. И. Марченко, Ю. В. Красняк, Письма в ЖЭТФ **41**, 522 (1985).
6. А. М. Тихонов, Н. Г. Павлов, О. Г. Удалов, Письма в ЖЭТФ **96**, 568 (2014).
7. А. Ф. Андреев, В. И. Марченко, УФН **130**, 1 (1980).
8. О. Г. Удалов, ЖЭТФ **140**, 561 (2011).
9. V. Glazkov, T. Soldatov, and Yu. Krasnikova, Appl. Magn. Reson. **47**, 1069 (2016).