

ЯМР НА ЯДРАХ Mn⁵⁵В ЛЕГКОПЛОСКОСТНЫХ АНТИФЕРРОМАГНЕТИКАХ MnCO₃ И CsMnF₃
В МИЛЛИГРАДУСНОМ ДИАПАЗОНЕ ТЕМПЕРАТУР

Б. С. Думеш

В области температур 1 – 0,04К импульсными методами исследованы спектры ЯМР на ядрах Mn⁵⁵. Функциональная связь между сдвигом частоты и магнитным полем соответствует теории связанных колебаний электронных и ядерных моментов. Но средняя ядерная намагниченность ядер Mn⁵⁵, полученная из величины сдвига частоты, оказывается существенно меньшей, чем определяемая для системы невзаимодействующих моментов.

В антиферромагнетиках связь между ядерной и электронной спиновыми подсистемами при низких температурах оказывается настолько сильной, что происходит перестройка спектров собственных колебаний магнитных моментов (так называемый динамический сдвиг частоты – ДСЧ). Собственные частоты в этом случае находятся из уравнения [1]¹⁾.

$$(f^2 - f_{e_0}^2)(f^2 - f_{n_0}^2) - f^2 f_T^2 = 0, \quad (1)$$

где f_{e_0} и f_{n_0} – "несдвинутые" частоты АФМР и ЯМР $f_T^2 = \gamma_e^2 2H_E A <m>$, γ_e – электронное гиромагнитное отношение, H_E – обменное поле, A – константа СТВ, $<m>$ – средняя величина ядерного момента. В большом числе экспериментов [1 – 3] получено удовлетворительное согласие наблюдаемых спектров с теорией, однако все исследования проводились в узком температурном интервале (4,2 – 1К). Наша работа посвящена исследованию спектров ЯМР в области температур 1 – 0,04К, при большой ожидаемой величине поляризации ядер. Для исследования выбраны легкоплоскостные антиферромагнетики MnCO₃ и CsMnF₃. В этих веществах ДСЧ ЯМР достигает максимальной величины и достаточно хорошо исследован в области гелиевых температур [2, 3]. В этих работах получены все необходимые константы.

Низкие температуры мы получали с помощью криостата растворения He³ в He⁴. Температура измерялась с помощью угольного термометра сопротивления²⁾ и (в области 1,5 – 0,5К) с помощью He³ – конденсационного термометра. Для улучшения теплового контакта образцы и термометры помещались непосредственно в ванну растворения. Все эксперименты проводились на монокристаллических образцах. Постоянное

¹⁾ Согласно нашим расчетам, для легкоплоскостных антиферромагнетиков формула (1) выполняется при любых величинах ядерной намагниченности с точностью до членов $\approx A <m>/H_E$.

²⁾ Автор приносит благодарность К.Н. Зиновьевой за предоставление калиброванного термометра.

магнитное поле создавалось сверхпроводящим соленоидом. Ошибка в измерениях магнитного поля определялась точностью градуировки и составляла 1%. Постоянное и РЧ магнитное поле были взаимно перпендикулярны и лежали в базисной плоскости образцов. Сигнал ЯМР регистрировался с помощью наблюдения свободной прецессии после короткого РЧ импульса или сигнала спинового эха ядер Mn⁵⁵. Методика наблюдения и ЯМР спектрометр описаны в [4].

В исследованном нами диапазоне магнитных полей $f_{e_0} \gg f_{n_0} > f_n$, поэтому для квазиядерной ветви формулу (1) можно переписать в виде

$$\frac{f_n^2}{f_{n_0}^2 - f_n^2} = \frac{f_{e_0}^2}{f_T^2}, \text{ где } \begin{array}{ll} \text{для } \text{MnCO}_3 & f_{e_0}^2 = \gamma_e^2 H(H + H_D), \\ \text{для } \text{CsMnF}_3 & f_{e_0} = \gamma_e H \end{array} \quad (2)$$

где H_D – поле Дзялошинского. Здесь разделены части, зависящие от частоты и магнитного поля. Поэтому, полученные экспериментально спектры ЯМР, обрабатывались в соответствующих координатах. На рис. 1

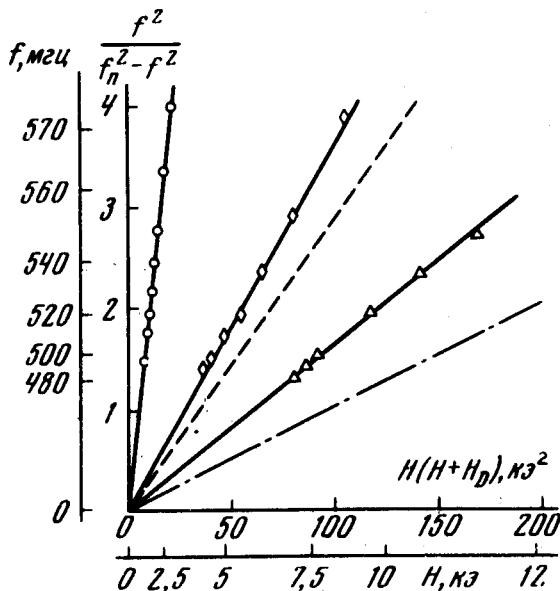


Рис. 1. Спектры ЯМР в MnCO₃ при $T = 1,12\text{K}$ (\circ), $T = 0,15\text{K}$ (\diamond), (Δ) $T = 0,043\text{K}$. Пунктирные кривые – расчет для слабовзаимодействующих моментов

представлены спектры ЯМР в MnCO₃, измеренные при постоянной температуре. Видно, что предсказываемая теорией функциональная зависимость между резонансной частотой и полем удовлетворительно выполняется при всех температурах. Из наклона прямых на рис. 1 можно определить f_T^2 и, соответственно, величину среднего момента ядер Mn⁵⁵ $\langle m \rangle$. Эти данные в зависимости от температуры приведены на рис. 2 (Δ). На том же рисунке даны значения $\langle m \rangle$, пересчитанные из зависимостей $H_{\text{рез}}(T | f_n = \text{const})$, снятых при охлаждении криостата растворения ($\Delta - f_n = 549 \text{ мГц}$, $\circ - f_n = 485 \text{ мГц}$). Здесь же приведены полученные аналогичным образом данные для CsMnF₃ ($\square - f_n = 580 \text{ мГц}$). Видно, что все результаты удовлетворительно ложатся на

универсальную кривую. Эта кривая сильно отличается от бриллюэновской функции $B_{5/2}(m_n H_n / \kappa T)$, описывающей поляризацию невзаимодействующих моментов в сверхтонком поле (пунктирная кривая на рис. 2).

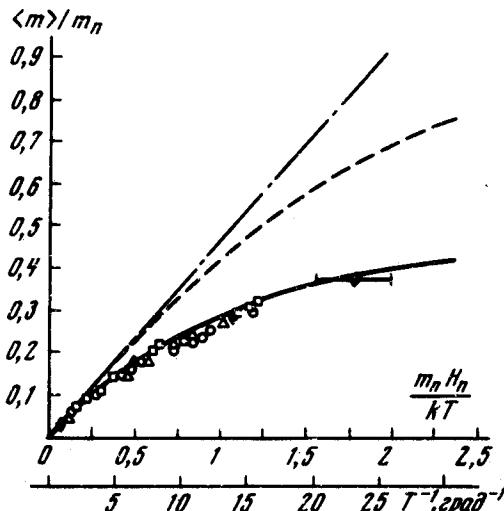


Рис. 2. Средний ядерный момент в зависимости от температуры. Штрих-пунктир — экстраполяция закона Кюри

Полученные нами результаты удовлетворительно описываются эмпирической формулой (сплошная кривая на рис. 2):

$$\frac{\langle m \rangle}{m_n} = B_{5/2} \left(\frac{m_n H_n}{\kappa T} \right) - \frac{1}{2} \left[B_{5/2} \left(\frac{m_n H_n}{\kappa T} \right) \right]^{3/2}, \quad (3)$$

где m_n — магнитный момент ядра Mn^{55} , H_n — сверхтонкое поле, κ — постоянная Больцмана.

В принципе, это расхождение может быть связано с перегревом образцов относительно смеси гелия. Одной из причин перегрева может служить воздействие измерительных РЧ импульсов. При используемых нами импульсах ($P \approx 10^{-3} \div 10^{-4}$ эл, $t \approx 1$ мксек) угол поворота спинов под действием одного импульса оказывается $\theta \approx 10^{-3}$ рад. Соответствующее изменение

магнитного момента $\frac{\Delta \langle m \rangle_z}{\langle m \rangle} \approx \theta^2 \approx 10^{-6}$. Следовательно, ошиб-

ка, возникающая при воздействии серии из $10 \div 30$ импульсов, необходимых для измерения, оказывается несущественной. При частоте повторения импульсов ≈ 1 Гц, средняя мощность $P_{ср} \approx 10^{-9} \div 10^{-10}$ эл. Поэтому максимально возможный перегрев образца за счет скачка Капицы

$\Delta T = \frac{R}{S T^3} P_{ср} \approx 10^{-3}$ К при $T = 0,1$ К (здесь S — площадь поверхности образца, R — постоянная скачка). Эта оценка сделана в предположении, что поглощается вся подводимая к образцу мощность. Оснований для такого большого поглощения нет. И действительно, при увеличении частоты повторения импульсов до 50 Гц изменения сигнала ЯМР не происходит.

Другой возможной причиной перегрева может служить медленная скорость установления теплового равновесия. Скорость установления равновесия с гелиевой ванной определяется постоянной времени тепло-сопротивления Капицы $\tau = RC/T^3$, где C – теплоемкость образца.

При низких температурах теплоемкость определяется в основном ядерным вкладом. Для верхней оценки теплоемкости можно экстраполировать данные, полученные для $MnCO_3$ при $T = 4,2 - 1,5K$ [5], где $C \sim T^{-2}$. Получаем при $T = 0,1K$ $\tau \approx 1\text{ сек.}$ Хотя скорости ядерной спинрешеточной релаксации в $MnCO_3$ и $CsMnF_3$ в области гелиевых температур известны [2, 3], данных для разумной экстраполяции в более низкие температуры не хватает. Но низкая скорость установления теплового равновесия должна проявляться во временном дрейфе положения линии ЯМР чего на эксперименте не наблюдается. Исходя из выше сказанного, мы полагаем, что температура образцов совпадает с температурой смеси гелия, и наблюдаемый нами эффект не связан с перегревом.

Следовательно, процесс поляризации ядер Mn^{55} в легкоплоскостных антиферромагнетиках не сводится к простому выстраиванию в сверхтонком поле¹⁾. В магнетиках между ядерными спинами магнитных ионов существует косвенное Сул – Накамуровское взаимодействие, приводящее к появлению элементарных возбуждений с пространственной дисперсией – ядерных спиновых волн [1]. Задача о температурной зависимости средней ядерной намагниченности в данном случае не решена. Требует также рассмотрения вопрос об основном состоянии ядерной спиновой системы в случае Сул – Накамуровского взаимодействия. Мы надеемся, что исследование этих вопросов сможет объяснить результаты нашего эксперимента.

В заключение автор выражает искреннюю признательность А.С.Боровику-Романову за постоянное руководство работой и С.М.Елагину за помощь в изготовлении криостата растворения.

Институт физический проблем
Академии наук СССР

Поступила в редакцию
5 июля 1976 г.

Литература

- [1] Е.А.Туров, М.П.Петров. "ЯМР в ферро- и антиферромагнетиках"
М., изд. Наука, 1969.
- [2] В.А.Тулин. ЖЭТФ, 55, 831, 1968.
- [3] L. B. Welsh. Phys. Rev., 156, 370, 1967.
- [4] Ю.М.Буньков, Б.С.Думеш. ЖЭТФ, 68, 1162, 1975.
- [5] И.Н.Калинкина. ЖЭТФ, 43, 2028, 1962.
- [6] Б.С.Думеш. Письма в ЖЭТФ, 23, 17, 1976.

¹⁾ Температурная зависимость ядерной намагниченности Mn^{55} в ферромагнитном Fe_2MnO_4 , полученная аналогичным образом, удовлетворительно описывается бриллюэновской функцией [6].