

Поглощение света обменно-связанными ионами в 2D-антиферромагнетике

© Е.А. Попов, Б.В. Безносиков*

Сибирский государственный аэрокосмический университет,
660014 Красноярск, Россия

* Институт физики им. Л.В. Киренского Сибирского отделения Российской академии наук,
660036 Красноярск, Россия

E-mail: ise@iph.krasn.ru

(Поступила в Редакцию 28 октября 2002 г.)

Представлены результаты экспериментального изучения спектра оптического поглощения кристаллов $\text{Rb}_2\text{Mn}_x\text{Cd}_{1-x}\text{Cl}_4$ в области магнетонного спутника экситонной полосы. Концентрация x менялась от 1.0 до 0.4. При замещении ионов марганца ионами кадмия по мере нарастания магнитного структурного беспорядка наблюдается появление дополнительных полос поглощения. Их поведение в магнитном поле при спин-флоп фазовом переходе, а также поведение интенсивности при изменении концентрации x позволили заключить, что они связаны с возбуждением обменно-связанных пар ионов марганца в различном окружении в пределах плоской квадратной решетки. На основе оптических измерений построена фазовая граница между антиферромагнитной и спин-флоп фазами. Оценена точка магнитного протекания.

Работа частично финансировалась Целевой федеральной программой „Интеграция“ № 0017.

Богатая тонкая структура оптических спектров поглощения антиферромагнетиков, содержащих 3d-ионы, обусловлена наличием взаимодействий различной природы в кристаллах. В области оптических частот в спектре магнитных кристаллов кроме полос, связанных с „одноионными“ электронными оптическими переходами, наблюдаются полосы, в образовании которых участвуют возбуждения разной природы (магноны, фононы и т.п.). Основные черты поведения полос разной природы известны [1,2], что позволяет идентифицировать полосы поглощения, а затем, используя данные оптических спектров, изучать особенности энергетических спектров возбуждений и магнитной структуры кристалла. Разупорядочение кристалла, например заметная концентрация примеси, нарушает трансляционную симметрию, и квазичастичный подход, лежащий в основе описания оптических спектров, теряет смысл. Если порядок в кристалле нарушается, можно ожидать качественных изменений в оптических спектрах поглощения. Так, при введении в антиферромагнетик магнитной примеси в спектре могут появляться дополнительные полосы, обусловленные локализованными либо резонансными состояниями [2,3]. Нам удалось наблюдать появление новых линий в спектре двумерного 2D-антиферромагнетика при замещении магнитных ионов немагнитными в Rb_2MnCl_4 , разбавленном ионами Cd^{2+} .

Кристаллы Rb_2MnCl_4 при комнатной температуре имеют тетрагональную структуру симметрии D_{4h}^{17} . При температуре $T_N = 57$ К в кристалле устанавливается антиферромагнитный порядок с анизотропией типа „легкая ось“, параллельная оси C_4 симметрии кристалла [4]. Поле спин-флоп перехода $H_{SF} = 56$ кОе. Ионы Mn^{2+} расположены в слоях, перпендикулярных оси C_4 симметрии кристалла, в узлах плоской квадратной решетки. Межслоевое расстояние значительно превосходит рас-

стояние между ближайшими ионами Mn^{2+} , лежащими в одном слое. В результате внутрислоевое обменное взаимодействие между ионами марганца на два порядка превосходит межслоевое, что обуславливает двумерное поведение магнитной системы кристалла.

Кристаллы были выращены в вертикальной трубчатой печи методом Бриджмена. Спектры поглощения света измерялись с использованием спектрометра, имеющего разрешение $3 \text{ \AA}/\text{mm}$, при температуре 4.3 К. Магнитное поле напряженностью до 250 кОе получалось в импульсном соленоиде с длительностью импульса 20 ms. Спектры фиксировались на фотопленке.

На рис. 1 приведены α -спектры поглощения света $\text{Rb}_2\text{Mn}_x\text{Cd}_{1-x}\text{Cl}_4$ в области частот $\sim 26500 \text{ cm}^{-1}$ при различных концентрациях x . Поглощение в этой области обусловлено переходом ${}^6A_{1g}({}^6S) \rightarrow {}^4T_{2g}({}^4D)$ внутри 3d-оболочки ионов Mn^{2+} . На рисунке показана длинноволновая часть группы полос, связанная с этим переходом. Здесь наблюдается узкая электродипольная полоса D_1 (при $x = 1.0$). Ее поляризация соответствует правилам отбора для одномагнетонного спутника экситонной полосы. На основе магнитных [5] и магнитооптических [6] измерений получена величина обменного внутрислоевого взаимодействия между ионами Mn^{2+} : $J/k = -5.6$ К. Оценка энергии магнонов с волновыми векторами на границе зоны Бриллюэна, вносящих, как правило, основной вклад в экситон-магнетонное поглощение в коллинеарном антиферромагнетике, дает величину 80 cm^{-1} . Магнитодипольная экситонная полоса с энергией, на $\sim 80 \text{ cm}^{-1}$ меньшей, чем у D_1 , обнаружена в спектре магнитного кругового дихроизма [7]. Из-за малой интенсивности она не наблюдалась в спектре поглощения. На рис. 1 она обозначена как E_1 (указано ее расположение). Форма линии экситон-магнетонного поглощения для 2D-антиферромагнетика с квадратной

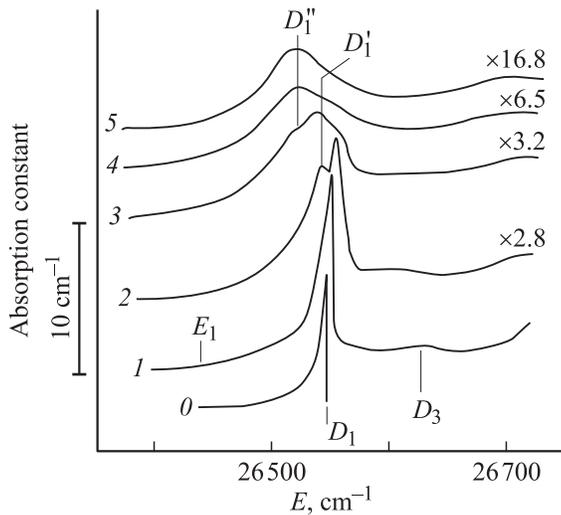


Рис. 1. α -спектры поглощения света в $\text{Rb}_2\text{Mn}_x\text{Cd}_{1-x}\text{Cl}_4$ в области экситон-магнонного поглощения D_1 при различных концентрациях x : 0 — 1.0 (рассчитанная форма экситон-магнонной полосы), 1 — 1.0, 2 — 0.9, 3 — 0.8, 4 — 0.7, 5 — 0.4. Направление света $\mathbf{k} \parallel C_4$, поляризация $\mathbf{E} \perp C_4$. $T = 4.3$ К.

решеткой вычислялась в [8]. Она зависит от многих параметров и может быть различной. Однако в случае пренебрежения взаимодействием между экситоном и магноном и при малых значениях параметров резонансной передачи оптических возбуждений от иона к иону (и как следствие малой дисперсионной экситонной зоны) полоса становится узкой и резко асимметричной. Вычисленная при таких допущениях с использованием соотношений работы [8] форма полосы для случая квадратной антиферромагнитной решетки приведена на рис. 1 (кривая 0). Значение обменного интеграла при этом взято из [6], а величина поля анизотропии из [5]. Последняя практически не влияет на форму экситон-магнонной полосы, однако устраняет расхожимость в выражении для формы полосы в центре зоны Бриллюэна.

При уменьшении концентрации ионов Mn^{2+} в области линии D_1 появляются дополнительные линии (D_1' и D_1''), в то время как сама экситон-магнонная полоса D_1 теряет интенсивность и при $x = 0.7$ практически не наблюдается (кривая 4 на рис. 1).

На рис. 2 представлено поведение энергии полос D_1 , D_1' , D_1'' в магнитном поле, параллельном оси C_4 кристаллов. В антиферромагнитной фазе при спин-флоп переходе все полосы α -спектра (включая появляющиеся при разбавлении магнитного кристалла) скачком смещаются на одну и ту же величину. Этот факт указывает на то, что все они связаны с одним и тем же экситоном.

Величина скачка энергии полос при спин-флоп переходе почти линейно спадает с уменьшением концентрации x , отражая уменьшение среднего обменного поля при разбавлении кристалла Rb_2MnCl_4 , и обращается в нуль при $x \approx 0.6$. На вставке к рис. 2 показана зависи-

мость поля спин-флоп перехода от концентрации ионов марганца при $T = 4.3$ К, полученная по наблюдению полос D_1 , D_1' , D_1'' в магнитном поле. Соответствующая оценка критической концентрации перехода кристалла из антиферромагнитного в неупорядоченное состояние ($x_c = 0.6$) хорошо согласуется с теоретическим значением для точки магнитного протекания в плоской квадратной решетке (0.59).

Экситон-магнонная полоса D_1 в Rb_2MnCl_4 является уникальной по своим параметрам из-за малой дисперсии экситонной зоны. Замещение в магнитной решетке ионов марганца ионами кадмия нарушает трансляционную симметрию и исходный магнитный порядок. В этом случае в экситон-магнонном поглощении увеличивается вклад коротковолновых магнонов (ближний магнитный порядок) и полоса должна становиться более симметричной, а с уменьшением концентрации x терять интенсивность. Такое поведение наблюдается для D_1 .

На то, что появляющиеся в разбавленных кристаллах полосы D_1' и D_1'' связаны с таким же процессом возбуждения, как и в случае D_1 , указывает их положение. По энергии их максимумы лежат на $\sim E_m/4$ и $\sim E_m/2$ ниже, чем D_1 , где E_m — энергия магнона на границе зоны Бриллюэна. На такую величину уменьшается энергетический интервал между состояниями, расщепленными

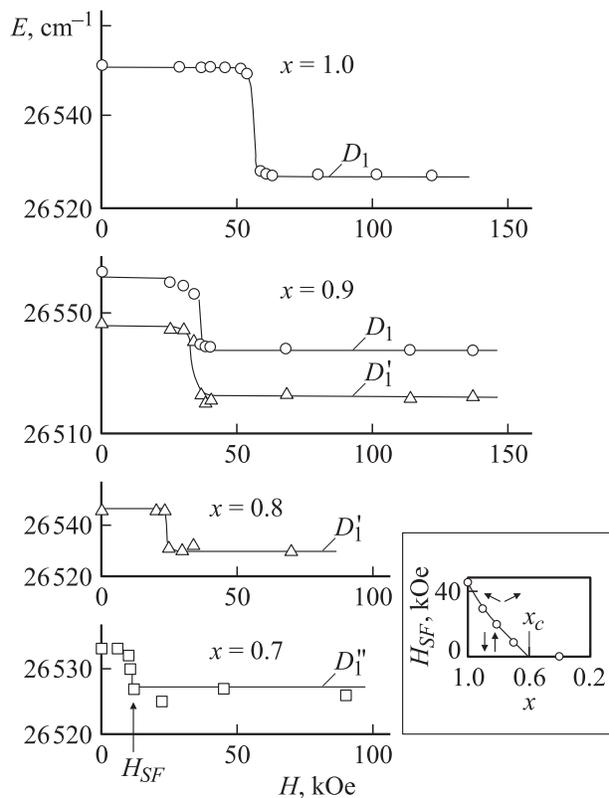


Рис. 2. Зависимости энергии полос D_1 , D_1' и D_1'' от магнитного поля $\mathbf{H} \parallel C_4$ при различных концентрациях x . $T = 4.3$ К. На вставке приведен построенный на основе спектральных измерений фрагмент фазовой диаграммы в координатах x — \mathbf{H} при $T = 4.3$ К.

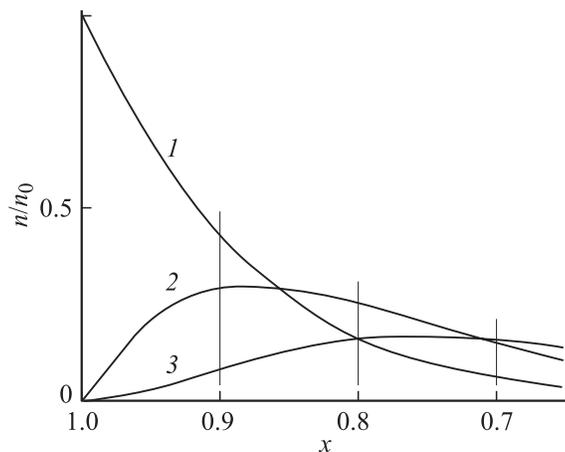


Рис. 3. Зависимость относительного числа пар ионов-соседей марганца в квадратной решетке от концентрации x в случаях, когда в их ближайшем окружении нет ни одного иона кадмия (1), содержатся один (2) и два (3) иона кадмия.

по проекции спина в локальном обменном поле, если источником поля считать ближайшее окружение пары ионов $\text{Mn}^{2+}\text{-Mn}^{2+}$, а в ближайшем окружении один или два иона Mn^{2+} замещены ионами Cd^{2+} . Интегральное поглощение обменно-связанной парой магнитных ионов пропорционально числу таких пар. Вероятности обнаружения ни одного, одного или двух ионов Cd^{2+} в ближайшем окружении пары $\text{Mn}^{2+}\text{-Mn}^{2+}$ зависят от концентрации x . На рис. 3 приведены статистические оценки этих вероятностей, полученные статистическим моделированием. Аналитические зависимости вероятностей от x для этих трех случаев составляют соответственно x^8 , $6x^7(1-x)$ и $15x^6(1-x)^2$ и совпадают с кривыми на рис. 3. Если полоса D_1 с разбавлением кристалла сохраняет свою форму, а полосы D'_1 и D''_1 имеют гауссову форму, то после разделения этих трех полос их интегральные интенсивности примерно следуют зависимостям, показанным на рис. 3. Вертикальными линиями на рис. 3 отмечено соотношение числа таких пар для концентраций, при которых проводились измерения. Эти соотношения очень хорошо коррелируют с соотношениями интенсивностей полос D_1 , D'_1 и D''_1 . Следовательно, полосы D'_1 и D''_1 возникают вследствие возбуждения в пространственно разупорядоченной магнитной структуре обменно-связанных пар ионов Mn^{2+} , в ближайшем окружении которых находятся ионы Cd^{2+} .

В спектрах кристалла Rb_2MnCl_4 кроме D_1 наблюдаются также магнотные спутники как в области перехода ${}^6A_{1g}({}^6S) \rightarrow {}^4T_{2g}({}^4D)$ [9], так и в области ${}^6A_{1g}({}^6S) \rightarrow {}^4A_{1g}({}^4G)$. Однако форма полос в этих случаях такова, что не позволяет наблюдать дополнительных полос, аналогичных D'_1 , D''_1 .

Таким образом, в работе исследованы зависимости оптического поглощения $2D$ -магнетика от концентрации магнитных ионов и от магнитного поля в окрестности экситон-магнотного поглощения. Из-за уникальных

параметров экситон-магнотной полосы D_1 в спектре при разбавлении антиферромагнитного кристалла немагнитной примесью впервые наблюдалось появление дополнительных полос поглощения, обусловленных возбуждением светом обменно-связанных пар ионов Mn^{2+} . На основе спектральных измерений построена граница между антиферромагнитной и спин-флор фазами.

Авторы выражают благодарность И.С. Эдельман за обсуждение результатов работы.

Список литературы

- [1] Э.Г. Петров. Теория магнитных экситонов. Наук. думка, Киев (1976). 240 с.
- [2] В.В. Еременко, Н.Ф. Харченко, Ю.Г. Литвиненко, В.М. Науменко. Магнитооптика и спектроскопия антиферромагнетиков. Наук. думка, Киев (1989). 262 с.
- [3] O. Cadot, C. Mathoniere, O.Kahn. Inorg. Chem. **39**, 17, 3799 (2000).
- [4] H.T. Witteveen. J. Solid. State Chem. **11**, 3, 245 (1974).
- [5] Н.В. Федосеева, И.П. Спевакова, А.Н. Бажан, Б.В. Безноси́ков. ФТТ **20**, 9, 2776 (1980).
- [6] Е.А. Попов, М.М. Котлярский. ФТТ **22**, 10, 3019 (1980).
- [7] A. Vervoitte, J.C. Canit, B. Briat, U. Cambli. Phys. Stat. Sol. (b) **124**, 1, 87 (1984).
- [8] N. Kojima, T. Van, I. Tsujikawa, J. Phys. Soc. Jap. **44**, 3, 923 (1978).
- [9] E.A. Popov, M.M. Kotlyrskii. Phys. Stat. Sol. **96**, 1, 163 (1979).