

© 1991

ОПТИЧЕСКОЕ ПРОЯВЛЕНИЕ «ПСЕВДСПИН-ФЛОП» ПЕРЕХОДОВ В ЯН-ТЕЛЛЕРОВСКИХ ИЗИНГОВСКИХ АНТИФЕРРОМАГНЕТИКАХ

В. Д. Ашкинази, Б. Г. Вестер

В ян-теллеровских изинговских антиферромагнетиках в магнитном поле может реализоваться псевдоспин-флоп фаза, в которой одновременно упорядочены как магнитные дипольные, так и электрические квадрупольные моменты ионов. Исследованы температурные и полевые зависимости частот и интенсивностей линий в спектре оптического поглощения таких систем.

1. Кристаллы с подрешеткой ионов с вырожденными основными состояниями обладают интересными особенностями, связанными с упорядочениями локальных ян-теллеровских деформаций, — кооперативным эффектом Яна—Теллера [1]. Если ян-теллеровские ионы характеризуются сильной спин-орбитальной связью, то структурное упорядочение сопровождается значительным изменением и магнитных свойств. Если вырождение некрамерсово, то возможны как магнитный, так и структурный фазовые переходы. Реализуется при этом, как правило, лишь один из них, отвечающий более сильному взаимодействию. В случае, когда более выгодное упорядочение оказывается антиферромагнитным, оно может быть дестабилизировано магнитным полем. В таких случаях из-за существенной магнитоупругой связи на фазовой диаграмме (H, T) могут возникать области так называемой магнитодисторсионной фазы [2], в которой одновременно упорядочены как магнитные дипольные, так и электрические квадрупольные моменты ионов (по аналогии со спин-флоп фазой в обычных (не ян-теллеровских) анизотропных антиферромагнетиках [3] такая фаза может быть названа псевдоспин-флоп).

Аномалии упругих и магнитных свойств внутри этой фазы и на ее границах, определяемые усредненными по узлам состояниями всего кристалла, были исследованы в работе [4]. Однако при сложных типах упорядочений в смешанных ян-теллеровских кристаллах и во многих других случаях весьма полезно иметь информацию о локальных состояниях отдельных ян-теллеровских ионов. Такая информация может быть получена при использовании резонансных методов. Ниже будут исследованы полевые и температурные зависимости оптического спектра поглощения ян-теллеровских кристаллов, в которых реализуется магнитодисторсионная фаза.

Как и в [2, 4], рассмотрим тетрагональные кристаллы с основным некрамерсовым дублетом ионов одной из подрешеток. Используя для описания дублета псевдоспин $S=1/2$, S_x -компонента которого описывает магнитный дипольный, а S_x — квадрупольный моменты, можно записать гамильтониан в виде [1]

$$\mathcal{H} = - \sum_{m,n} (J_{mn} S_z^m S_z^n + A_{mn} S_x^m S_x^n) - \frac{1}{2} g \beta H \sum_m S_x^m. \quad (1)$$

На фазовой диаграмме (рис. 1) в области полей $H_1(T) < H < H_2(T)$ и температур $T < T_{кр}$ существует магнитодисторсионная фаза II, в которой $\bar{S}_z^I = \bar{S}_z^{II} \neq 0$ и $\bar{S}_x^I = \bar{S}_x^{II} \text{sign } A$. Область существования этой фазы тем больше, чем ближе друг к другу значения $|J|$ и $|A|$ ($J = \sum_m J_{mn}$, $A = \sum_m A_{mn}$).

2. Рассмотрим оптический переход из основного состояния, вырожденного в отсутствие внешнего поля и упорядочения, на возбужденный синглет, преобразующийся по полносимметричному представлению (рассмотрение для других неполносимметричных синглетов проводится аналогично). Если этот синглет достаточно удален от других уровней, то его

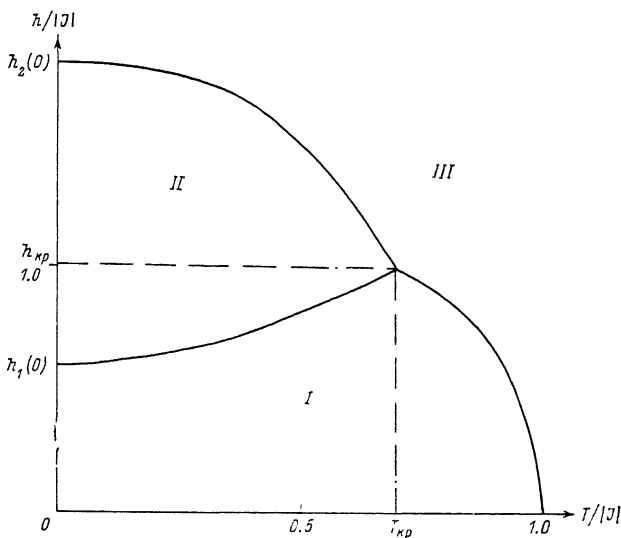


Рис. 1. Фазовая диаграмма ян-теллеровского антиферромагнетика.

$h=1/2 \cdot g\beta H$, h и T в единицах $|J|$. Здесь и далее $|A/J|=0.8$.

энергия слабо зависит от поля и параметров порядка; ниже мы этой зависимостью пренебрегаем. Так как для рассматриваемых систем электрон-фононное взаимодействие является, как правило, слабым, исследование будет ограничено лишь бесфононными линиями (БФЛ).

В приближении молекулярного поля одноузельный гамильтониан α -й подрешетки дается выражением ($\alpha=1,11$)

$$\mathcal{H}_\alpha = -(J\bar{S}_z^{\alpha'} + h)S_z^\alpha - A\bar{S}_x^{\alpha'}S_x^\alpha, \quad (2)$$

здесь $n=(1/2)g\beta H$. Из (2) находим собственные значения энергии иона

$$\epsilon_\alpha^{1,2} = \mp \epsilon_\alpha = \mp [(J\bar{S}_z^{\alpha'} + h)^2 + (A\bar{S}_x^{\alpha'})^2]^{1/2}. \quad (3)$$

Равновесные значения параметров порядка $\bar{S}_{z,x}^\alpha$, минимизирующие свободную энергию, удовлетворяют системе уравнений

$$\begin{aligned} \bar{S}_z^\alpha &= (J\bar{S}_z^{\alpha'} + h)\epsilon_\alpha^{-1} \text{th } \epsilon_\alpha/kT, \\ \bar{S}_x^\alpha &= A\bar{S}_x^{\alpha'}\epsilon_\alpha^{-1} \text{th } \epsilon_\alpha/kT. \end{aligned} \quad (4)$$

Частоты, соответствующие спектральным линиям, равны $(\Omega_0 \pm \epsilon_\alpha/\hbar)$, где $\hbar\Omega_0$ — разность энергий возбужденного и нерасщепленного основного состояний.

Далее исследуем поглощение поляризованного света, распространяющегося вдоль c -оси в направлении магнитного поля. Поляризация падающего света дается выражением $\mathbf{e} = \mathbf{p}\mathbf{e}_+ + \mathbf{q}\mathbf{e}_-$, где \mathbf{e}_+ и \mathbf{e}_- — векторы право- и левовращательной поляризации. Запишем волновую функцию k -го состояния α -й подрешетки в виде

$$\Psi_k^\alpha = C_{+k}^\alpha \varphi_+ + C_{-k}^\alpha \varphi_-, \quad (5)$$

где φ_+ и φ_- — собственные функции магнитного момента S_z и преобразуются как $x+iy$ и $x-iy$ соответственно.

Интенсивность электродипольного $i \rightarrow f$ перехода пропорциональна

$$I_{i \rightarrow f} \sim |\mathbf{e}^* \cdot \mathbf{d}_{fi}|^2 n_k^\alpha = |p^*(d_-)_{fi} + q^*(d_+)_{fi}|^2 n_k^\alpha, \quad (6)$$

где $d_\pm = d_x \pm id_y$, n_k^α — бoльцмановская заселенность начального состояния α -й подрешетки $n_k^\alpha = \exp(-\varepsilon_\alpha/kT) \cdot 2 \operatorname{ch}(\varepsilon_\alpha/kT)$. Так как $\langle \varphi_f | d_\pm | \varphi_i \rangle = 0$, то, используя (5), выражение (6) можно переписать в виде

$$I_{\alpha k \rightarrow f} = I_0 |p^* C_{+k}^\alpha + q^* C_{-k}^\alpha|^2 n_k^\alpha, \quad (7)$$

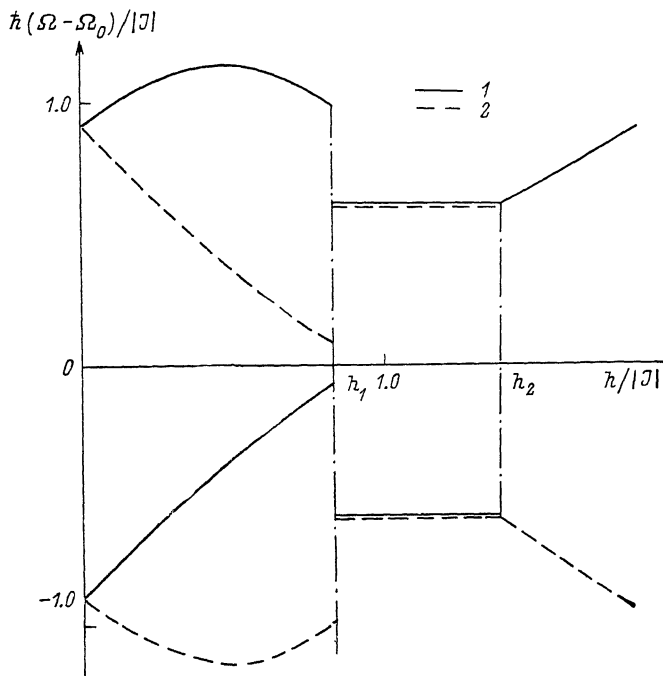


Рис. 2. Полевая зависимость частот БФЛ $E \rightarrow A$ перехода.

1 (2) — лево(право)поляризованный свет ($T/|J|=0.6$).

где I_0 — интенсивность поглощения право(лево)вращательно-поляризованного света при переходе из начального состояния φ_- (φ_+) в состояние φ_f . Коэффициенты C даются выражениями

$$C_{+k}^\alpha = \frac{JS_z^{\alpha'} + \hbar - \varepsilon_\alpha^k}{\sqrt{(JS_z^{\alpha'} + \hbar - \varepsilon_\alpha^k)^2 + (AS_z^{\alpha'})^2}},$$

$$C_{-k}^\alpha = \frac{AS_z^{\alpha'}}{\sqrt{(JS_z^{\alpha'} + \hbar - \varepsilon_\alpha^k)^2 + (AS_z^{\alpha'})^2}}. \quad (8)$$

Очевидно, что в антиферрофазе, где магнитные моменты в I и II подрешетках направлены по полю и против поля соответственно, имеем

$$C_{-1}^I = C_{+2}^I = C_{-2}^{II} = C_{+1}^{II} = 0, \quad C_{-2}^I = C_{+1}^I = C_{-1}^{II} = C_{+2}^{II} = 1. \quad (8a)$$

В парамагнитной фазе

$$C_{-1}^{I,II} = C_{+2}^{I,II} = 0, \quad C_{-2}^{I,II} = C_{+1}^{I,II} = 1. \quad (8б)$$

В смешанной фазе, где векторы псевдоспина имеют отличные от нуля как чисто магнитную S_z , так и чисто квадрупольную S_x компоненты, функции φ_+ и φ_- перемешиваются

$$C_{-2}^{I, II} = C_{+1}^{I, II} = \sqrt{\frac{1}{2}(1 + \bar{S}_x/\bar{S})}, \quad -C_{+2}^{I, II} = C_{-1}^{I, II} = \sqrt{\frac{1}{2}(1 - \bar{S}_x/\bar{S})}, \quad (8B)$$

где

$$\bar{S} = \sqrt{S_x^2 + S_z^2}.$$

3. Подставляя в выражение (8) равновесные значения \bar{S}_i , получаемые численным решением системы (4), по формулам (3) и (7) находим положения и интенсивности линий в спектре. Полевая зависимость спектров (рис. 2, 3) сильно зависит от температуры, при которой она исследуется.

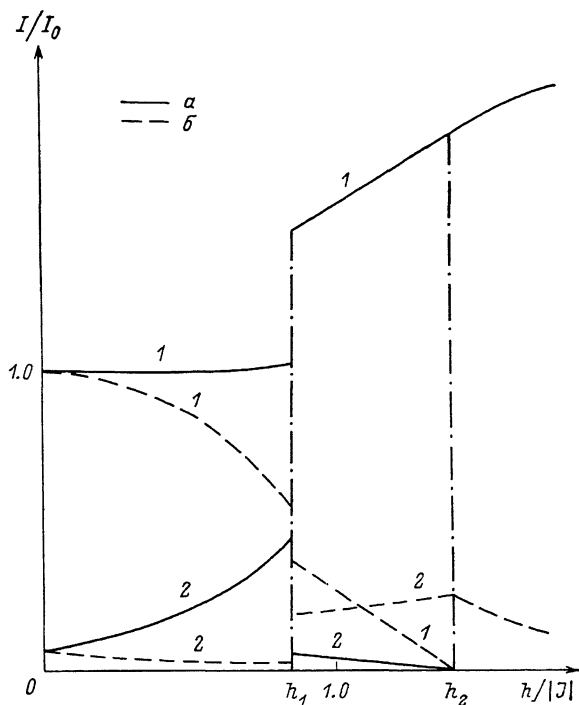


Рис. 3. Полевая зависимость интенсивностей БФЛ $E \rightarrow A$ перехода.

α (β) — лево(право)поляризованный свет. 1 (2) — коротко(длинно)волновые компоненты ($T/|J| = 0.6$).

При $T < T_c$ в слабых полях $h < h_1(T)$ наблюдается обычная для антиферромагнетика картина. В каждой подрешетке возможны два перехода из компонент основного дублета на возбужденный синглет. В спектре наблюдаются четыре линии (по две в каждой поляризации); интенсивность линий, обязанных переходам из нижайшей компоненты дублета, больше. При $T \rightarrow 0$ длинноволновые линии вымораживаются и в спектре наблюдается обычное псевдозеemanовское расщепление. При $h_2 > h > h_1$ кристалл находится в магнитодисторсионной фазе, где подрешетки являются в магнитном отношении эквивалентными. Оптический спектр при этом заметно меняется: четыре линии схлопываются в две, наблюдаемые при обеих поляризациях. Интенсивность коротковолновой линии больше для левополяризованного света, интенсивность длинноволновой линии больше для света правой поляризации. Характерная особенность оптического спектра в этой фазе — отсутствие полевой зависимости положения линий, т. е. при увеличении поля линии не сдвигаются. Однако соотношение между их интенсивностями в различных поляризациях меняется: коротковолновая линия становится все более левополяризованной, а длинноволновая — правополяризованной. Характерной для рассматриваемой ситуации оказывается линейное изменение интенсивностей с полем. И наконец, при $h \geq h_2$ в парамагнитной фазе наблюдается привычная картина:

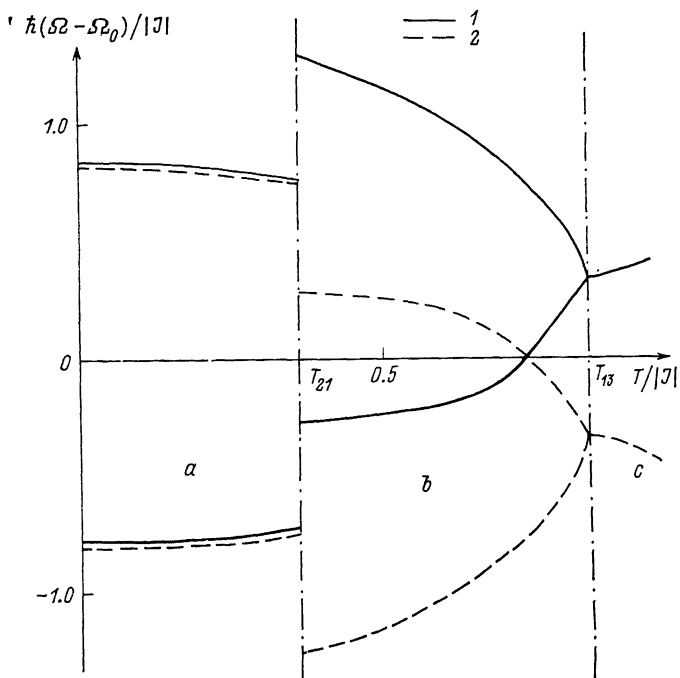


Рис. 4. Температурная зависимость частот БФЛ $E \rightarrow A$ перехода.
 1 (2) — лево(право)поляризованный свет ($\hbar/|J| = 0.7$).

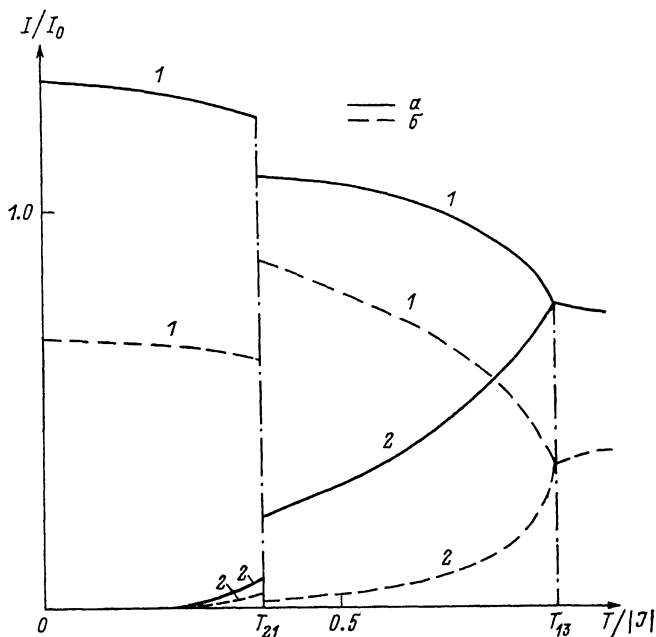


Рис. 5. Температурная зависимость интенсивностей БФЛ $E \rightarrow A$ перехода.
 а (б) — лево(право)поляризованный свет. 1 (2) — коротко(длинно)волновые компоненты ($\hbar/|J| = 0.7$).

коротковолновая линия в левой поляризации, длинноволновая в правой, положение линий и их зависимость от поля имеют привычный характер.

Если $T > T_c$, то магнитодисторсионная фаза не реализуется ни при каком значении внешнего магнитного поля и полевые зависимости положения линий и их интенсивностей имеют вид, обычный для изинговских антиферромагнетиков.

Температурное поведение оптического спектра ян-теллеровских антиферромагнетиков (рис. 4, 5) зависит от величины внешнего магнитного поля, при котором эти спектры исследуются. Ясно, что при $h < h_1$ кристалл не попадает в магнитодисторсионную фазу ни при какой температуре и температурные зависимости положения линий, их интенсивностей и поляризаций аналогичны известным для обычных антиферромагнетиков. Если $h_2 > h > h_1$, то при низких температурах кристалл находится в магнитодисторсионной фазе, где, как отмечалось, спектр состоит из двух линий (область *a*; рис. 4), наблюдаемых в различных поляризациях. С ростом температуры до $T = T_{21}(h)$ происходит перераспределение интенсивностей (рис. 5) между коротко- и длинноволновыми линиями в пользу последней. Если $h_1 < h < h_{кр}$, то при $T > T_{21}(h)$ (область *b*; рис. 4) после первородного перехода в антиферромагнитную фазу в спектре появляются четыре линии, относительные интенсивности которых увеличиваются от длиннокоротковолновым. С ростом температуры линии, наблюдаемые в одинаковой поляризации, сближаются и при $T \geq T_{13}(h)$ (область *c*; рис. 4) в спектре наблюдаются две линии: более интенсивная коротковолновая левой поляризации и менее интенсивная длинноволновая правой поляризации. Дальнейшее увеличение температуры приводит к выравниванию интенсивностей, а частоты стремятся к $\Omega_0 \pm h/\hbar$. При приближении h к $h_{кр}$ область *b* уменьшается и исчезает при $h = h_{кр}$.

Указанные особенности полевого и температурного поведения оптического спектра ян-теллеровских антиферромагнетиков весьма характерны, что позволяет надежно идентифицировать появление псевдоспин-флор фазы.

Список литературы

- [1] Gehring G. A., Gehring K. A. // Rep. Progr. Phys. 1975. V. 38. N 1. P. 1—89.
- [2] Вехтер Б. Г. // ФТТ. 1988. Т. 30. № 4. С. 1199—1202.
- [3] Ashkinazy V. D., Vekhter B. G. // J. Magn. Magn. Mat. 1989. V. 81. P. 221—226.
- [4] Вонсовский С. В. Магнетизм. М.: Наука, 1971. 1032 с.

Институт химии АН МССР
Кишинев

Поступило в Редакцию
28 декабря 1990 г.