

Нелинейный магнитный резонанс в кристалле $(\text{CH}_3\text{NH}_3)_2\text{CuBr}_4$

© Г.С. Патрин^{*,**}, Н.В. Волков^{*}, И.В. Прохорова^{**}

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

^{**} Красноярский государственный университет, 660041 Красноярск, Россия

E-mail: patrin@iph.krasn.ru

(Поступила в Редакцию 10 февраля 2004 г.)

Представлены результаты экспериментального исследования нелинейного СВЧ поглощения в антиферромагнитном кристалле $(\text{CH}_3\text{NH}_3)_2\text{CuBr}_4$. Исследованы температурные и угловые зависимости параметров нелинейного резонанса, а также зависимости от мощности СВЧ накачки. Обнаружено, что нелинейные свойства ослабевают при понижении температуры, а линейный и нелинейный вклады носят конкурирующий характер.

Настоящие исследования ведутся при финансовой поддержке федеральной программы „Университеты России — фундаментальные исследования“ (проект № УР.01.01.044).

Соединение $(\text{CH}_3\text{NH}_3)_2\text{CuBr}_4$ по своей структуре относится к семейству слоистых перовскитоподобных кристаллов [1], где группа метил-аммония служит связующим мостиком между плоскостями, содержащими магнитные ионы меди (электронная конфигурация d^9 , $S = 1/2$). Согласно магнитным статическим [2] и ЯМР [3] данным, этот кристалл является антиферромагнетиком с вектором антиферромагнетизма, направленным вдоль оси c кристалла, имеет температуру упорядочения $T_N \approx 15.8$ К и четырех-подрешеточную магнитную структуру типа „крест“. Более поздние исследования магнитных статических свойств показали [4,5], что этот кристалл не является простым квазидвумерным магнетиком и не описывается в рамках обычной модели Гейзенберга. Так, на температурной зависимости намагниченности отсутствует характерный для низкомерных систем максимум, имеется заметная зависимость температуры перехода в упорядоченное состояние от магнитного поля, и при столь низкой температуре магнитного упорядочения следы магнитных корреляций наблюдаются до температур порядка сотни градусов. При стандартной обработке экспериментальных данных [6] получается, что парамагнитные температуры Кюри различны для разных направлений: $\Theta_c^{\parallel} = -80$ К и $\Theta_n^{\perp} = -190$ К (здесь значки „ \parallel “ и „ \perp “ соответствуют случаям $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$ и $\mathbf{H} \perp \mathbf{c}$ соответственно).

Таким образом, встает вопрос о природе магнитных взаимодействий и о механизмах, ответственных за формирование магнитной структуры.

Ранее [7,8] мы сообщали об исследовании нелинейного СВЧ поглощения, подобного нелинейному резонансу классического ангармонического осциллятора в ферромагнитном кристалле $(\text{CH}_3\text{NH}_3)_2\text{CuCl}_4$. Для этого кристалла в осцилляторном приближении проанализирован нелинейный характер поведения СВЧ поглощения, а также эффект светоиндуцированного изменения магнитного состояния в бистабильном режиме при нелинейном магнитном резонансе, что позволило экспериментально

определить линию неустойчивого динамического равновесия.

В данной работе приводятся результаты экспериментальных исследований нелинейных динамических свойств в антиферромагнитном кристалле $(\text{CH}_3\text{NH}_3)_2\text{CuBr}_4$. Образцы представляли собой пластинки размером 2×2 мм и толщиной $t \sim 0.2-0.3$ мм. Ось c кристалла была ориентирована перпендикулярно плоскости пластинки. В эксперименте использовался прямоугольный резонатор (мода TE_{102} , добротность $Q \approx 1000$), действующий на частоте СВЧ излучения $f = 10.3$ GHz. Мощность СВЧ генератора $P \leq 200$ mW.

На рис. 1 представлена геометрия эксперимента и установка кристалла по отношению к лабораторной системе координат. Получено, что в линейном режиме при подходе к T_N со стороны высоких температур (парамагнитная область) значение резонансного поля стремится к нулю независимо от направления магнитного поля относительно кристаллографических осей кристалла. После того как температура антиферромагнитного перехода пройдена, из нулевых магнитных полей возникает линия магнитного резонанса, которая при дальнейшем понижении температуры сильно смещается в область больших магнитных полей, не выходя на плато вплоть до $T = 4.2$ К. Такое поведение резонансного поглощения в упорядоченной области дает основание предполагать, что спектр магнитных возбуждений может носить целевой характер.

При увеличении СВЧ мощности в магнитоупорядоченной области в кристалле $(\text{CH}_3\text{NH}_3)_2\text{CuBr}_4$ обнаружен нелинейный магнитный резонанс, по своему характеру подобный резонансу ангармонического осциллятора [9], поведение которого описывается уравнением движения типа

$$(d^2x/dt^2) + 2\lambda(dx/dt) + \omega_0^2x + \beta x^3 = P \cos(\Omega t). \quad (1)$$

Здесь все обозначения традиционные. Как известно, решение данного уравнения для стационарной амплитуды

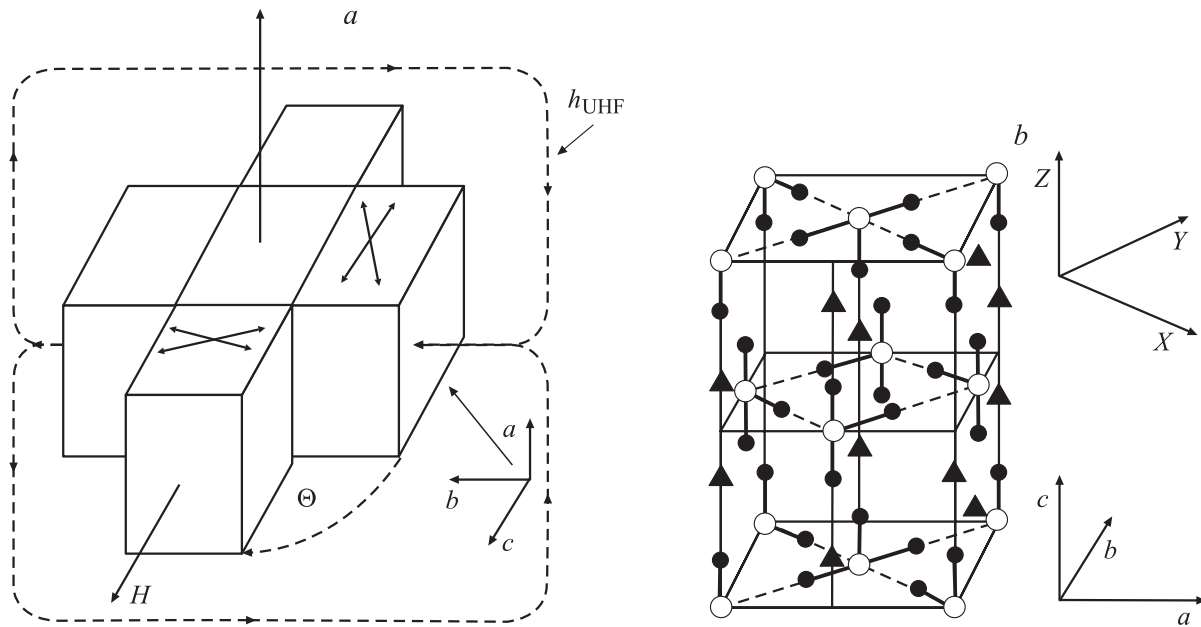


Рис. 1. *a* — направления магнитных постоянного (H) и СВЧ (h_{UHF}) полей относительно кристаллографических осей. *b* — фрагмент кристаллической структуры относительно системы координат. Светлые кружки — ионы меди, темные кружки — ионы брома, треугольники — группы метил-аммония.

в первом приближении имеет вид

$$\varepsilon = \mu A^2 \pm \{ [P/(2\Omega A)]^2 - \lambda^2 \}^{1/2}, \quad (2)$$

где $\varepsilon = \Omega - \omega_0$ — разность между частотой внешней вынуждающей силы и частотой линейного резонанса, $\mu = 3\beta/8\Omega$. В нашем эксперименте в нелинейном режиме форма линии СВЧ поглощения такая, как приведена на вставке к рис. 2, что характерно для систем с $\beta < 0$. Параметры, за которыми мы следили в эксперименте, были поле H_1 — поле первого „срыва“ при развертке магнитного поля, и ширина гистерезисной области ΔH_h . Как известно, в местах срыва производная $dA/d\varepsilon = \infty$, что дает для значений отсроек выражение [9]

$$\varepsilon_{1,2} = 2\mu A^2 \pm \{ \mu^2 A^4 - \lambda^2 \}^{1/2}, \quad (3)$$

и тогда из совместимости данного уравнения и уравнения (2) просто найти ширину гистерезисной области

$$\Delta\varepsilon = \varepsilon_2 - \varepsilon_1 = 2 \{ \mu^{2/3} (P/2\Omega)^{4/3} - \lambda^2 \}^{1/2}. \quad (4)$$

Применительно к нашему случаю $H_1 = (\Omega + \varepsilon_1)/\gamma$, а $\Delta H_h = \Delta\varepsilon/\gamma$, где γ — гиромагнитное отношение. Наиболее характерным и показательным в плане проявления нелинейных свойств является поведение ширины области гистерезиса, поскольку, как следует из (4), ширина гистерезиса пропорциональна коэффициенту нелинейности μ и практически ничем не маскируется, а затухание λ всегда можно измерить в линейном режиме. Сдвиг же всей линии как целого (а, значит и ε_1) помимо зависимости от коэффициента нелинейности μ зависит от

магнитной кристаллографической анизотропии и анизотропии обменного взаимодействия. На рис. 2 приведены угловые зависимости параметров H_1 и ΔH_h , снятые при разных температурах (подпись к рис. 2); здесь угол Θ отсчитывается от оси c кристалла. Видно, что при повышении температуры область существования нелинейного резонанса по углу увеличивается, а сами нелинейные свойства усиливаются. Это отчетливо видно

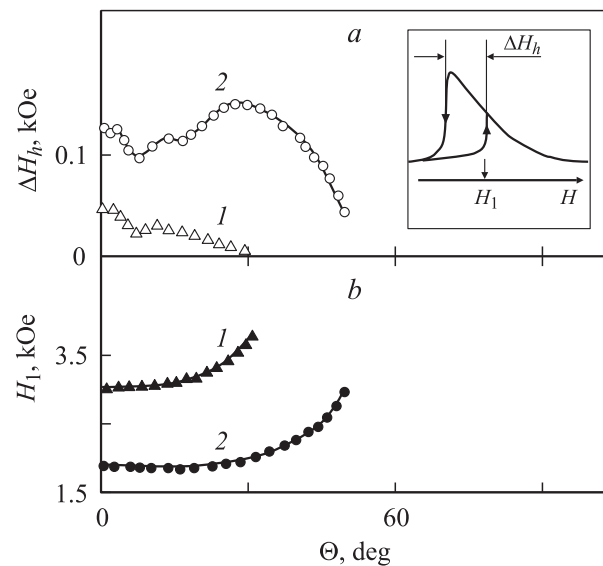


Рис. 2. Угловые зависимости параметров нелинейного магнитного резонанса. *a* — ширина гистерезиса (ΔH_h), *b* — поле срыва (H_1). 1 — $T = 5.5$, 2 — 8 К. На вставке изображена форма линии СВЧ поглощения.

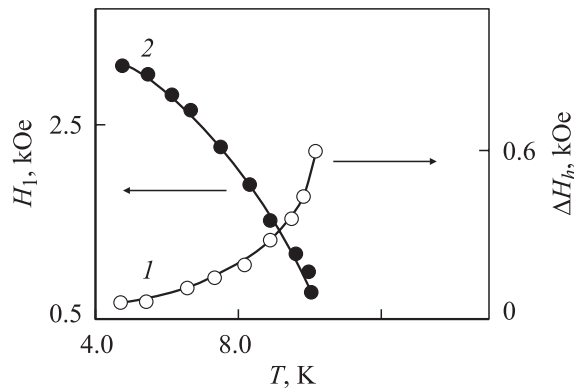


Рис. 3. Температурные зависимости параметров нелинейного резонанса. 1 — ширина гистерезиса, 2 — поле срыва. $\Theta = 0$.

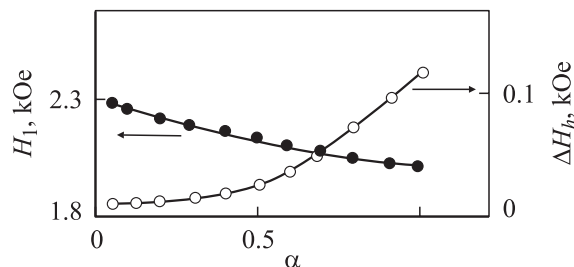


Рис. 4. Зависимости H_1 и ΔH_h от приведенной мощности СВЧ излучения ($\alpha = P_{\text{УНФ}}/(P_{\text{УНФ}})_{\text{max}}$). $\Theta = 0$, $T = 8$ К.

по температурным зависимостям параметров нелинейного резонанса на рис. 3, полученных при $\Theta = 0$. При изменении температуры $T = 4.2$ К $\rightarrow T_N$ величина ΔH_h меняется более чем на порядок. В окрестности температуры перехода в магнитоупорядоченное состояние T_N в интервале $\Delta T \approx 2$ К наблюдается сильный нелинейный резонанс по форме такой же, как на вставке рис. 2.

Поведение нелинейного поглощения в зависимости от мощности СВЧ накачки иллюстрируется на рис. 4. Видно, что при изменении мощности СВЧ излучения (эквивалент P в модели осциллятора) величина ΔH_h качественно описывается зависимостью типа (4), различия существуют лишь в окрестности значения $\alpha \sim 1$. Экспериментально измеренная величина H_1 имеет зависимость, линейную от СВЧ мощности.

По сравнению с известным нелинейным резонансом в ферромагнитном кристалле $(\text{CH}_3\text{NH}_3)_2\text{CuCl}_4$ [7] отличие состоит в том, что в случае хлорида нелинейный магнитный резонанс максимально проявляется в геометрии $\mathbf{H} \perp \mathbf{c}$, а в данном случае в геометрии $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$. Здесь же необычным является и то, что форма линии нелинейного СВЧ поглощения инвертирована. Это означает, что в случае кристалла-бромиды действия нелинейной составляющей „упругой“ части силы и высокочастотной компоненты магнитного поля (внешней силы) совпадают по направлению. Такое возможно (рис. 1), если молекулярное поле, возникающее от

нелинейного вклада, лежит в (a–b) плоскости. Когда магнитное поле \mathbf{H} направлено вдоль оси \mathbf{c} , магнитные подрешетки попарно эквивалентны, и это проявляется как вырождение резонансных частот в линейном режиме. Если говорить о природе возникновения нелинейного магнитного резонанса, то на первый взгляд, никаких особых предпосылок для этого нет. Ион меди имеет спин $S = 1/2$, значит внутрислоевое спиновое обменное взаимодействие имеет гейзенберговский вид, магнитная кристаллографическая анизотропия должна быть небольшой (что и наблюдается экспериментально); более того, магнитные ионы в разных слоях находятся на значительных расстояниях, как минимум через две группы метил-аммония, и, следовательно, обмен между слоями должен быть слабый. Все это приводит к мысли, что существует взаимодействие, сильно связывающее магнитные ионы в разных слоях и, по-видимому, таким взаимодействием может быть ян-теллеровское взаимодействие вырожденных орбитальных состояний, а через них „зацепляются“ и спины ионов. Эффектом, усиливающим нелинейную спиновую динамику, может быть нелинейное взаимодействие резонансных мод в области перекрытия резонансов.

Более точный ответ на вопросы об особенности магнитной структуры и характере спиновой динамики может быть дан на основе теоретического анализа с учетом всех взаимодействий.

Список литературы

- [1] К.С. Александров, Б.В. Безносиков. Перовскитоподобные кристаллы. Наука, Новосибирск (1977).
- [2] Y. Kimishima. J. Phys. Soc. Jap. **49**, 62 (1980).
- [3] Y. Suzuki, K. Tsuru, Y. Kimishima, H. Kubo. J. Phys. Soc. Jap. **50**, 1479 (1981).
- [4] Н.В. Федосеева, Н.В. Волков, Г.С. Патрин. ФТТ **45**, 472 (2003).
- [5] G.S. Patrin, N.V. Volkov, I.V. Prokhorova. J. Magn. Magn. Mater. **258–259**, 131 (2003).
- [6] Е.А. Туров, А.В. Колчанов, В.В. Меньшинин, И.Ф. Мирзоев, В.В. Николаев. Симметрия и физические свойства антиферромагнетиков. Физматлит, М. (2001).
- [7] G.S. Patrin, N.V. Volkov. J. Magn. Magn. Mater. **151**, 189 (1995).
- [8] Г.С. Патрин, Н.В. Волков. Письма ЖЭТФ **64**, 841 (1996).
- [9] М.И. Рабинович, Д.И. Трубецков. Введение в теорию колебаний и волн. Наука, М. (1984).