

Магнонные полосы-спутники в оптическом спектре антиферромагнитного Rb_2MnCl_4

© Е.А. Попов, С.Г. Овчинников*

Сибирский государственный аэрокосмический университет,
660014 Красноярск, Россия

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

(Поступила в Редакцию 8 января 2003 г.)

Исследовалось изменение оптического поглощения в области перехода ${}^6A_{1g} \rightarrow {}^4A_{1g}, {}^4E_g({}^4G)$ в ионах марганца в двумерном антиферромагнетике во внешнем магнитном поле, индуцирующем неколлинеарность магнитной структуры. Наблюдалось появление и усиление „горячих“ и „холодных“ полос-спутников экситон-магнонных полос. Рассчитана форма магнонных полос-спутников, в которых проявляется двумерный характер магнитной структуры: в поглощение вносят заметный вклад магноны из внутренних точек зоны Бриллюэна; определяющую роль в поглощении, связанном с уничтожением магнона, при низкой температуре играют нулевые магнитные колебания.

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

Оптические спектры антиферромагнетиков, содержащих ионы с незаполненной $3d$ -оболочкой, связаны, как правило, с запрещенными по проекции спина в одноионном приближении переходами. Поэтому в спектрах таких кристаллов интенсивные электродипольные полосы поглощения обусловлены возбуждением групп взаимодействующих ионов, в частности, пар обменно связанных ионов, принадлежащих разным магнитным подрешеткам. В спектрах коллинеарных антиферромагнетиков характерным является наличие одномагнонных полос-спутников экситонных полос. При индуцировании внешним магнитным полем неколлинеарности магнитных подрешеток разрешаются переходы с участием в поглощении четного числа магнонов [1]. Зависимости интенсивности и положения максимума поглощения многомагнонных спутников от угла скоса магнитных подрешеток позволяет установить механизм образования полос поглощения света. Так, в RbMnCl_3 и CoCO_3 наблюдались узкие изолированные магнонные полосы-спутники, соответствующие пикам плотности экситон-магнонных состояний в особых точках зоны Бриллюэна, связанные с участием в поглощении света нескольких магнонов [2], с характерным поведением в магнитном поле. В настоящей работе представлены результаты измерения оптического спектра поглощения антиферромагнитного Rb_2MnCl_4 в области ${}^6A_{1g} \rightarrow {}^4A_{1g}, {}^4E_g({}^4G)$ перехода. В магнитном поле наблюдалось изменение спектра поглощения, которое мы связали с двумерным характером его магнитной структуры, определяющим особенности в плотности состояний комбинаций квазичастиц, участвующих в оптических возбуждениях.

Кристаллы Rb_2MnCl_4 при комнатной температуре имеют тетрагональную структуру симметрии D_{4h}^{17} . При температуре ниже $T_N = 57$ К в кристалле устанавливается антиферромагнитный порядок с анизотропией типа легкая ось. Магнитные моменты направлены параллельно C_4 оси симметрии кристалла [3]. Обменное поле $H_E \approx 800$ кОе. Поле спин-флоп перехода $H_{SF} = 56$ кОе.

Ионы Mn^{2+} расположены в слоях, перпендикулярных C_4 оси симметрии кристалла, в узлах плоской квадратной решетки. Межслоевое расстояние значительно превосходит расстояние между ближайшими ионами Mn^{2+} , лежащими в одном слое. В результате внутрислоевое обменное взаимодействие между ионами Mn^{2+} на два порядка превосходит межслоевое, обуславливая двумерное ($2d$) поведение магнитной системы кристалла.

Спектры поглощения света измерялись с использованием спектрометра, имеющего разрешение $3 \text{ \AA}/\text{mm}$. Магнитное поле, напряженностью до 230 кОе, получалось в импульсном соленоиде с длительностью импульса 20 ms. Спектры фиксировались на фотопленку.

Поляризованные спектры поглощения света кристаллами разной толщины t при температуре $T = 4.2$ К приведены на рис. 1. Согласно правилам отбора магни-

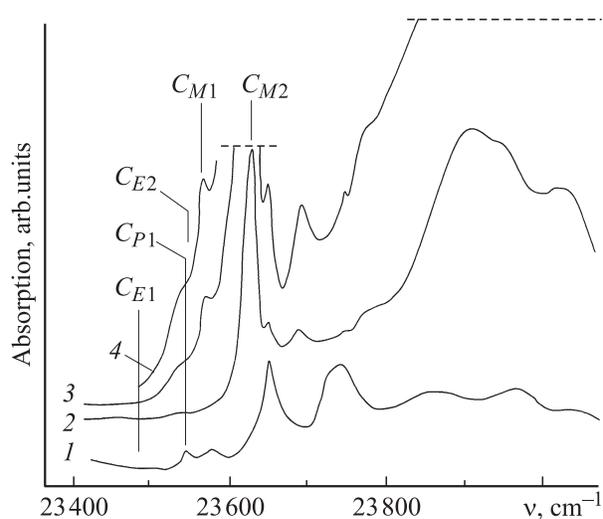


Рис. 1. Поляризованные спектры Rb_2MnCl_4 в области ${}^6A_{1g} \rightarrow {}^4A_{1g}, {}^4E_g({}^4G)$ перехода при $T = 4.2$ К: 1 — π -спектр, $t = 2.2$ mm; 2 — α -спектр, $t = 0.14$ mm; 3 — α -спектр, $t = 0.5$ mm; 4 — σ -спектр, $t = 1.51$ mm.

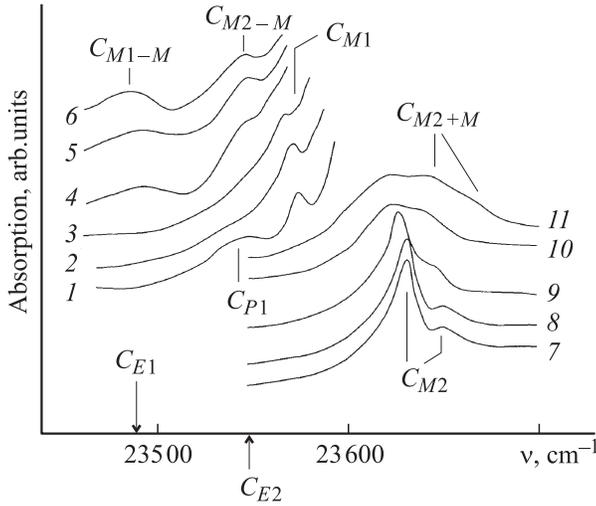


Рис. 2. α -спектры Rb_2MnCl_4 толщиной $t = 1.65$ мм в магнитном поле H , кОе: 1 — 0, 2 — 46, 3 — 70, 4 — 135, 5 — 160, 6 — 230 и $t = 0.08$ мм при H , кОе: 7 — 0, 8 — 46, 9 — 135, 10 — 160, 11 — 230. $T = 4.3$ К, $H \parallel C_4$.

тодипольные экситонные линии в Rb_2MnCl_4 должны наблюдаться в поляризациях α (направление света $\mathbf{k} \parallel C_4$ оси кристалла; электрический вектор световой волны $\mathbf{E} \perp C_4$) и π ($\mathbf{k} \perp C_4$, $\mathbf{E} \parallel C_4$), электродипольные одномагнотные спутники экситонных полос — в поляризациях α и σ ($\mathbf{k} \perp C_4$, $\mathbf{E} \perp C_4$). Нам не удалось обнаружить экситонные линии на кристаллах имевшейся толщины. В работе [4] в спекте магнитного кругового дихроизма обнаружены две дихроичные магнитодипольные линии (23489 и 23547 cm^{-1}), положение которых отмечено на рис. 1. Они обозначены соответственно C_{E1} и C_{E2} и интерпретированы как экситонные. Полосы C_{P1} и C_{M1} авторами [4] определены, как фотонный и магнотный спутники экситонной полосы C_{E1} . Полоса C_{M1} находится на расстоянии ~ 80 cm^{-1} , что соответствует частоте магнота на границе зоны Бриллюэна.

Мы измерили спектры поглощения света при изменении температуры от 1.8 до 100 К и магнитного поля. Температурные зависимости оказались мало информативными. При повышении температуры до T_N полосу поглощения расширяют, и проследить с достаточной точностью за положением большинства из них не представляется возможным. Единственная обособленная полоса, C_{M2} , за которой можно проследить до T_N и выше, не претерпевает значительного сдвига при $T < T_N$, что является типичным проявлением двумерности магнитной структуры кристалла [5].

Изменение красного края α -спектра поглощения в магнитном поле при температуре $T = 4.3$ К толстого и тонкого кристалла приведено на рис. 2. В магнитном поле, превышающем поле спин-флоп перехода, когда появляется скачок магнитных моментов подрешеток, происходит значительная перестройка спектра. Появляется и нарастает по интенсивности широкая полоса C_{M2+M} , накрывающая слабеющую полосу C_{M2} . В поле, превы-

шающем 100 кОе, появляются и растут по интенсивности линии на частотах чисто экситонного перехода — C_{M1-M} и C_{M2-M} . Такие полевые зависимости позволяют предположить, что C_{M2+M} — экситон-двухмагнотная полоса (магнотный спутник экситон-магнотной (ЭМ) полосы C_{M2}), а C_{M1-M} и C_{M2-M} — „горячие“ спутники ЭМ полос. Интегральная интенсивность таких полос должна быть пропорциональна $\sin^2 2\theta \cdot \sin^4 \theta$, где $\cos \theta = H/2H_E$, θ — половина угла между подрешетками. Однако в первом случае полоса необычно широкая, а во втором — интенсивность полос должна быть пропорциональна заселенности магнотных состояний [6], $n = [\exp(\varepsilon_m/kT) - 1]^{-1}$, которая мала при температуре эксперимента, и линии не должны наблюдаться. Для объяснения этих фактов нужно учесть особенности магнитной структуры кристалла.

С использованием результатов работы [6] рассчитана форма полос поглощения. Для ЭМ полосы коэффициент поглощения на частоте ω вычислялся по формуле

$$K^{e+m}(\omega) \propto \sum_{\mu, \mathbf{k}} |\mathbf{P}(\mathbf{k})|^2 \Phi_{\mu}^{e+m}(\mathbf{k}) \delta(\omega - E_{\mu}(\mathbf{k}) - \varepsilon_{\mu}(-\mathbf{k})),$$

для ее „холодного“ магнотного спутника —

$$K^{e+m+m}(\omega) \propto \sum_{\mu, \mathbf{k}} |\mathbf{P}(\mathbf{k})|^2 \Phi_{\mu}^{e+m+m}(\mathbf{k}) \delta \left(\omega - E_{\mu}(\mathbf{k}) - \sum_{\mathbf{k}_1 - \mathbf{q} = -\mathbf{k}} (\varepsilon_{\mu}(\mathbf{k}_1) + \sum_{\mathbf{q}} \varepsilon_{\mu}(\mathbf{q})) \right)$$

для „горячего“ —

$$K^{e+m-m}(\omega) \propto \sum_{\mu, \mathbf{k}} |\mathbf{P}(\mathbf{k})|^2 \Phi_{\mu}^{e+m-m}(\mathbf{k}) \delta \left(\omega - E_{\mu}(\mathbf{k}) - \sum_{\mathbf{k}_1 - \mathbf{q} = -\mathbf{k}} (\varepsilon_{\mu}(\mathbf{k}_1) - \sum_{\mathbf{q}} \varepsilon_{\mu}(\mathbf{q})) \right).$$

Здесь $\mathbf{P}(\mathbf{k})$ — дипольный момент перехода в \mathbf{k} -пространстве, $\Phi_{\mu}^{e+m}(\mathbf{k})$ — функции, зависящие от направления магнитных моментов подрешеток, заселенности магнотных состояний и структуры кристалла. Суммирование ведется по всем векторам \mathbf{k} зоны Бриллюэна и зонам μ . Энергии экситона и магнота $E_{\mu}(\mathbf{k})$ и $\varepsilon_{\mu}(\mathbf{k})$ вычислялись в приближении ближайших соседей по формулам

$$E_{\mu}(\mathbf{k}) = \Delta \tilde{\varepsilon} + A \cos \theta \tilde{z} \tilde{M} \tilde{\gamma}(\mathbf{k}) - (-1)^{\mu} z |M| \gamma(\mathbf{k}) \cos^2 \theta,$$

$$\varepsilon_{\mu}(\mathbf{k}) = SI(0) \sqrt{1 - \gamma^2(\mathbf{k}) + 2 \cos^2 \theta \gamma(\mathbf{k}) [\gamma(\mathbf{k}) - (-1)^{\mu}]},$$

$$\gamma(\mathbf{k}) = \cos \left(\frac{ak_x}{2} \right) \cos \left(\frac{ak_y}{2} \right),$$

$$\tilde{\gamma}(\mathbf{k}) = \frac{1}{2} (\cos ak_x + \cos ak_y),$$

a — параметр решетки. В отличие от [6] не учитывалась перенормировка энергии экситона за счет ЭМ взаимодействия Δ и полагалось, что $|\Delta(\mathbf{k}, \mu)|^2 = \Delta \sin^2 2\theta$.

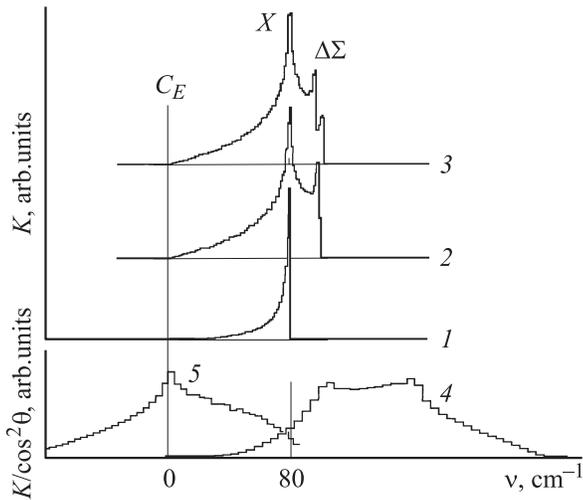


Рис. 3. Расчитанная форма полос: 1 — ЭМ при $K_1 = 0, K_2 = 0$; 2 — ЭМ, $K_1 = 0, K_2 = 2.5$; 3 — ЭМ, $K_1 = 0.1, K_2 = 2.5$; 4 — „холодного“ магнонного спутника ЭМ полосы, $K_1 = 0, K_2 = 2.5$; 5 — „горячего“ магнонного спутника ЭМ полосы, $K_1 = 0, K_2 = 2.5$.

Роль ЭМ взаимодействия в этом случае заключается в разрешении магнонных спутников ЭМ полосы. Остальные обозначения соответствуют [2]. При вычислениях варьировались параметры $K_1 = |M| \cos^2 \theta$ и $K_2 = \tilde{M}$, определяющие передачу возбуждения внутри и между подрешетками.

Вычисленная форма ЭМ полосы и ее „холодного“ одномагнонного спутника с характерными слабо выраженными пиками, обусловленными особенностями плотности состояний, соответствует наблюдаемой, если положить $K_2 = 2.5 \cdot |J|$ (рис. 3). Здесь J — величина внутрислоевого обмена между ближайшими соседями. Величину $|M|$ определяют по давидовскому расщеплению экситонной полосы. В нашем случае этого сделать не удалось, так как не удалось наблюдать слабую экситонную полосу на кристаллах имевшейся толщины. Поэтому в расчетах выбирались малые в единицах $|J|$ значения K_1 , что определяется диапазоном использованных магнитных полей. При этом форма полос меняется незначительно, в то время как максимумы интенсивности должны изменяться как $\sin^4 \theta$ и $\sin^2 2\theta \sin^4 \theta$ для одно- и двухмагнонных спутников соответственно. Форма двухмагнонного спутника приведена на рис. 3 при малых значениях K_1 , где представлена зависимость $\sim K^{e+m+m}(\omega) / \cos^2 \theta$, так как при $H = 0, \theta = \pi/2$ (и соответственно $K_1 = 0$) $K^{e+m+m}(\omega) = 0$. Увеличение доли магнов с волными векторами в точках общего типа по сравнению с особыми точками в $2d$ антиферромагнетике приводит к формированию широкой двухмагнонной полосы.

В отличие от „холодного“ магнонного спутника ЭМ полосы „горячий“ спутник ЭМ полосы на фоне широкого купола имеет острый пик на частоте, близкой к частоте экситона (рис. 3) при $K_2 = 2.5$ и $K_1 = 0$.

Поэтому полосы C_{M-M1} и C_{M-M2} достаточно узкие. Их значительная интенсивность и слабая зависимость от температуры являются следствием двумерности магнитной структуры. Согласно [6], $\Phi_{\mu}^{e+m-m}(\mathbf{k}) \sim n_{\mu}(\mathbf{k})$. Расчет уменьшения намагниченности за счет нулевых колебаний для двумерного гейзенберговского антиферромагнетика показал [7], что при $T = 0$ оно может достигать $\sim 20\%$. Следовательно, при низкой температуре n принимает значение не меньше 0.2, что обеспечивает достаточное число магнов для участия в „горячем“ процессе поглощения света. В вычислении формы полосы полагалось, что магны равномерно распределены в зоне Бриллюэна.

Если суммировать интенсивности полос с весами, зависящими от скоса подрешеток в поле, то получим спектр, близкий к экспериментально наблюдаемому.

Список литературы

- [1] В.В. Горбач, М.А. Пакиж, Э.Г. Петров. УФЖ **37**, 1670 (1992).
- [2] В.В. Ерёмченко, Н.Ф. Харченко, Ю.Г. Литвиненко, В.М. Науменко. Магнитооптика и спектроскопия антиферромагнетиков. Наук. думка, Киев (1989). 262 с.
- [3] H.T. Witteveen. J. Solid State Chem. **11**, 3, 245 (1974).
- [4] A. Vervoitte, J.C. Canit, B. Briat, U. Cambli. Phys. Stat. Sol. (b) **124**, 1, 87 (1984).
- [5] N. Kojima, T. Van, I. Tsujikawa. J. Phys. Soc. Japan **44**, 919 (1978).
- [6] В.В. Горбач, Э.Г. Петров. ФТТ **32**, 1418 (1990).
- [7] С.Г. Овчинников, О.Г. Петраковский. ФТТ **29**, 1866 (1987).