Физика низких температур, 1996, т. 22, № 12, с. 1447–1451

# Диссипативные структуры в $KEr(MoO_4)_2$, индуцированные СВЧ полем

В. И. Кутько, М. И. Кобец

*Физико-технический институт низких температур им. Б. И. Веркина НАН Украины, Украина, 310164, г. Харьков, пр. Ленина, 47*
E-mail: kutko@ilt.kharkov.ua

Статья поступила в редакцию 17 мая 1996 г., после переработки 27 июня 1996 г.

Измерена интенсивность релаксационного поглощения в критической области структурного фазового перехода кристалла $KEr(MoO_4)_2$ при различных уровнях мощности СВЧ поля. Обнаружена последовательность особенностей (бифуркаций) в релаксационном поглощении, имеющих пороговый характер по интенсивности СВЧ радиации. Высказывается предположение, что особенности в релаксационном поглощении вызваны образованием диссипативных структур на колебаниях кристаллической решетки $KEr(MoO_4)_2$ и являются бифуркациями Хопфа.

Виміряно інтенсивність релаксаційного поглинання в критичній області структурного фазового переходу кристала $KEr(MoO_4)_2$ при різних потужностях НВЧ поля. Виявлено послідовність особливостей (біфуркацій) в релаксаційному поглинанні, які мають пороговий характер по інтенсивності НВЧ радіації. Висловлюється припущення, що особливості в релаксаційному поглинанні викликані утворенням дисипативних структур на коливаннях кристалічної гратки $KEr(MoO_4)_2$ та являються біфуркаціями Хопфа.

## Введение

Ян-теллеровские кристаллы представляют интерес как системы с известным микроскопическим механизмом структурных фазовых переходов: корреляцией локальных ян-теллеровских искажений из-за обмена виртуальными фононами. Характерной особенностью таких систем является сильная связь электронов и кристаллической решетки. Вследствие такой связи появляется возможность сильно влиять на решетку, воздействуя на электронную подсистему.

Соединение $KEr(MoO_4)_2$ входит в семейство двойных щелочно-редкоземельных молибдатов, в которых наблюдаются низкотемпературные структурные фазовые переходы, обусловленные кооперативным эффектом Яна—Теллера (КЭЯТ) [1,2].

Особенности кристаллической структуры и динамики кристаллической решетки этих соединений обычно обусловливают многоподрешеточный тип ян-теллеровского упорядочения ниже структурного фазового перехода [3]. Первое возбужденное состояние редкоземельного иона в этих кристаллах расположено близко к основному уровню (10–20 $см^{-1}$). Даже при низкой локальной симметрии ян-теллеровских центров ($C_2$) электрон-фононное взаимодействие обычно имеет достаточную величину, чтобы снять квазивырождение низколежащих электронных уровней и привести к структурному фазовому переходу типа КЭЯТ. Однако в $KEr(MoO_4)_2$ в температурном интервале 2–35 К структурный фазовый переход не наблюдался [4]. Показано, что энергия взаимодействия ян-теллеровских центров ($A = 4$ $см^{-1}$) в этом соединении меньше величины расщепления нижайших штарковских уровней ($\Delta = 15$ $см^{-1}$) [5].

Внешнее магнитное поле $H \parallel a$ ($a$ — ось кристалла) меняет спектр иона $Er^{3+}$ таким образом, что отношение $A/\Delta$ увеличивается и в некотором критическом поле в кристалле $KEr(MoO_4)_2$ происходит структурный фазовый переход типа КЭЯТ [6]. В работе [6] получены ($H$, $T$) и ($H$, $\varphi$) фазовые диаграммы кристалла $KEr(MoO_4)_2$ (здесь $\varphi$ — угол между направлением поля $H$ и осью $a$). Определены критическая температура, критическое поле, а также критические углы, при которых фазовые переходы I рода сменяются переходами второго рода.

В критических точках, а также на линиях фазовых переходов второго рода наблюдается пик СВЧ поглощения. При изменении частоты СВЧ поля положение этого пика в магнитном поле не изменя-

© В. И. Кутько, М. И. Кобец, 1996

ется. Поэтому мы считаем, что это нерезонансное поглощение имеет релаксационную природу.

Ранее были проведены исследования сильно неравновесного состояния в кристалле $KEr(MoO_4)_2$ в условиях воздействия СВЧ излучения в области релаксационного поглощения с целью обнаружения неравновесного фазового перехода в связанной электрон-фононной системе [7]. Обнаружена особенность в релаксационном поглощении, имеющая пороговый характер по мощности СВЧ поля. Это явление интерпретировалось как неравновесный фазовый переход, обусловленный возникновением когерентной структуры на фононах.

В результате этих исследований возник вопрос о возможных механизмах перехода системы от регулярного движения к динамическому хаосу. Следует подчеркнуть, что единого механизма перехода к хаотическому движению не существует. Пока неизвестно, каким образом можно заранее узнать, какой из сценариев перехода к хаосу реализуется в нашей системе. Поэтому цель работы — исследовать механизмы перехода от регулярного движения к хаотическому, а также поведение исследуемой системы в условиях сильно неравновесного состояния.

## Методика эксперимента

Соединение $KEr(MoO_4)_2$ кристаллизуется в структуру ромбической сингонии (пространственная группа $D_{2h}^{14}$) с параметрами элементарной ячейки $a = 5{,}063$ Å; $b = 18{,}250$ Å; $c = 7{,}915$ Å, содержащей четыре формульные единицы вещества [8,9]. В целом структура состоит из слоев $[Er(MoO_4)_2]_{\infty\infty}^-$, чередующихся со слоями ионов щелочного металла $K^+$. Ввиду слабой связи ионов $K^+$ со слоями $[Er(MoO_4)_2]_{\infty\infty}^-$ эти кристаллы имеют выраженную слоистость с плоскостью спайности (010). Характерной особенностью структуры также является цепочечное расположение ионов $Er^{3+}$ внутри слоя $[Er(MoO_4)_2]_{\infty\infty}^-$ вдоль кристаллографического направления [001]. Локальная симметрия ионов $Er^{3+}$ низкая ($C_2$), поэтому нижайший мультиплет иона $Er^{3+}$ ($^4I_{15/2}$) расщепляется кристаллическим полем на восемь крамерсовых дублетов. Расстояния от основного до ближайших двух энергетических уровней равны 15,4 и 30,5 $см^{-1}$ [4].

Кристаллы выращены методом спонтанной кристаллизации из раствора в расплаве, имеют розовый цвет, характерные размеры 10×10×1 мм. Исследования проводились на ЭПР спектрометре отражательного типа со сверхпроводящим соленоидом ($H$ = 75 кЭ) в диапазоне частот 18–30 ГГц и температурном интервале 1,9–4,2 К. Для измерений использовались образцы размерами 2×2×0,2 мм. Измерения проводились в следующей последовательности. Сначала вращением образца вокруг оси [010] ориентировали вектор напряженности внешнего магнитного поля вдоль оси $a$. Как было установлено в [6], напряженность поля, при которой наблюдается фазовый переход I рода, достигает экстремального значения $H \sim 41{,}5$ кЭ при ориентации $\mathbf{H} \parallel a$. Затем вращением образца в этой же плоскости добивались отсутствия в спектре поглощения гистерезиса по магнитному полю. При угле между внешним магнитным полем и осью $a$ близком к 4,5° фазовый переход первого рода переходит в фазовый переход второго рода [6]. В этой критической области исследовалась зависимость спектра поглощения от величины внешнего магнитного поля при различных уровнях мощности СВЧ поля.

## Экспериментальные результаты

На рис. 1 представлена зависимость СВЧ поглощения кристалла $KEr(MoO_4)_2$ от величины внешнего магнитного поля $H$ при различных уровнях мощности СВЧ накачки. Как видно из рисунка, при малых уровнях мощности СВЧ поля в спектре поглощения наблюдается релаксационный пик, максимум которого соответствует полю 38,5 кЭ. Затем при достижении определенного значения уровня мощности СВЧ поля в максимуме релаксационного пика появляется узкий провал, глубина которого увеличивается с увеличением интенсивности высокочастотного поля. По мере увеличения мощности СВЧ поля провал расширяется и в центре появляется новый пик поглощения. Положение этого пика в магнитном поле совпадает с положением первоначального максимума, который наблюдался при малом уровне мощности накачки (рис. 1,*а*). Такое поведение системы мы назвали бифуркацией. В этой области система перестраивает механизм диссипации поглощенной СВЧ мощности (т.е. система фактически выходит на регулярный режим). Дальнейшее увеличение мощности СВЧ поля приводит ко второй и третьей бифуркациям.

Поведение спектра в области второй и третьей бифуркаций отличается тем, что если при первой бифуркации релаксационный пик практически исчезал, то при второй и третьей он только уширялся, и на нем появлялась структура (рис. 1,*б*). При этом если в результате первой бифуркации релаксационная полоса сужается по отношению к ширине полосы до бифуркации, то вследствие второй и третьей — заметного сужения нет. В области

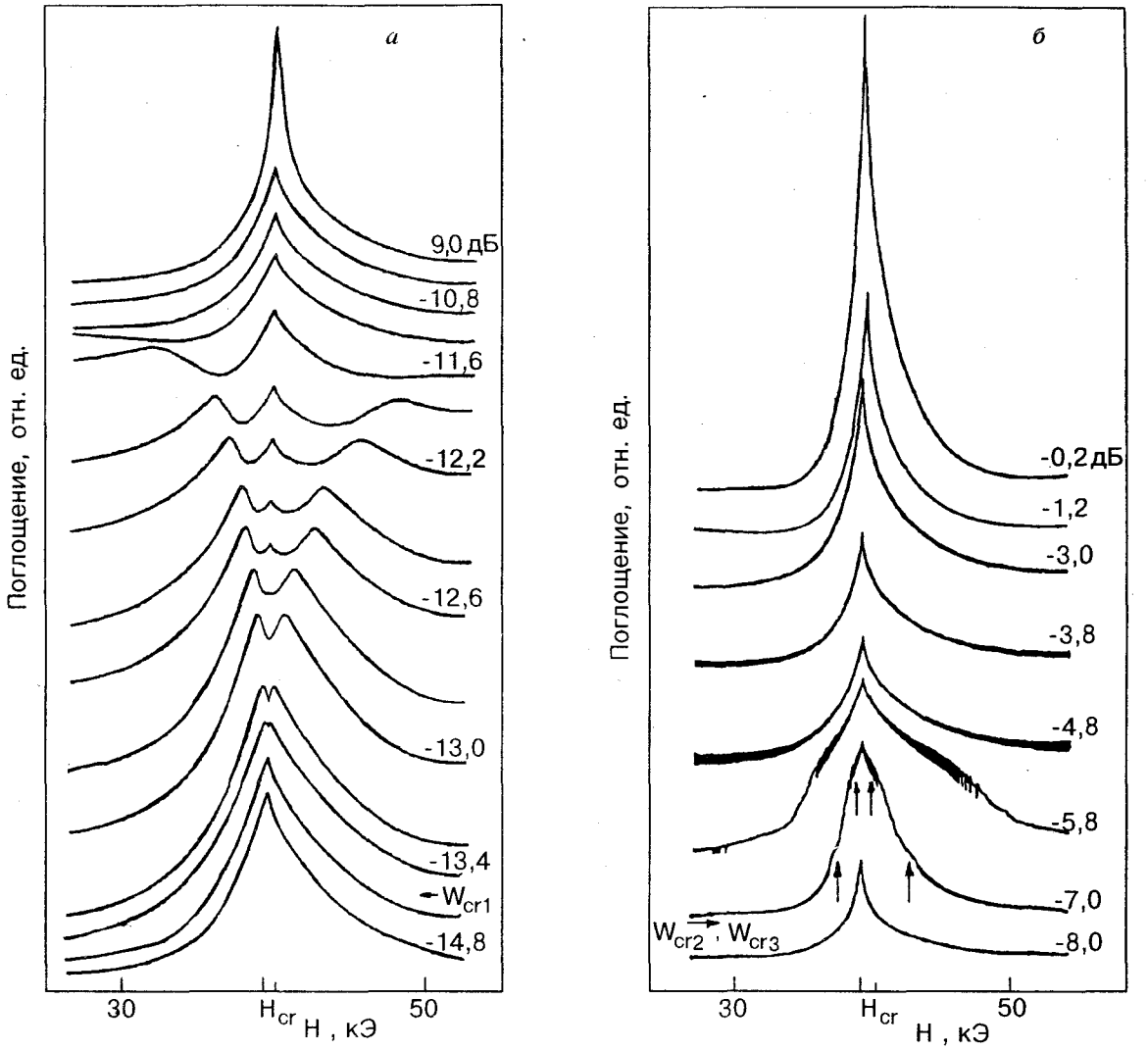


*Рис. 1.* Зависимость спектра поглощения кристалла $KEr(MoO_4)_2$ от величины внешнего магнитного поля (**H** ∥ *a*) при различной величине СВЧ мощности накачки (**h** ∥ c); **h** — вектор высокочастотного поля; $\nu$ = 18,7 ГГц; $T$ = 1,9 К: область первой бифуркации [7] (*а*); области второй и третьей бифуркаций (*б*).

третьей бифуркации в спектре возникает низкочастотный шум, который, по-видимому, свидетельствует о возникновении в переходной области хаотического движения в системе (рис. 1,*б*). При дальнейшем увеличении мощности накачки этот низкочастотный шум смещается в область больших и малых полей по отношению к релаксационному пику и в спектре восстанавливается релаксационный пик, аналогичный пику до второй и третьей бифуркаций. По экспериментальным данным, представленным на рис. 1, была построена диаграмма зависимости напряженностей магнитных полей $H$, при которых наблюдались максимумы поглощения на релаксационном пике, от мощности $W$ СВЧ поля (рис. 2).

### Обсуждение экспериментальных результатов

Для обсуждения описанной выше эволюции спектра СВЧ поглощения мы привлекли концепцию последовательности неравновесных фазовых переходов в диссипативной системе. Основанием для такого подхода является тот факт, что описанное явление имеет пороговый характер зависимости от величины СВЧ мощности накачки [7], а также то, что исследуемая система находится в области структурного фазового перехода, для которой характерна большая лабильность. Кроме того, рассматриваемая система является открытой со значительной диссипацией энергии в термостат.

В области релаксационного поглощения СВЧ мощности происходит возбуждение электронной под-

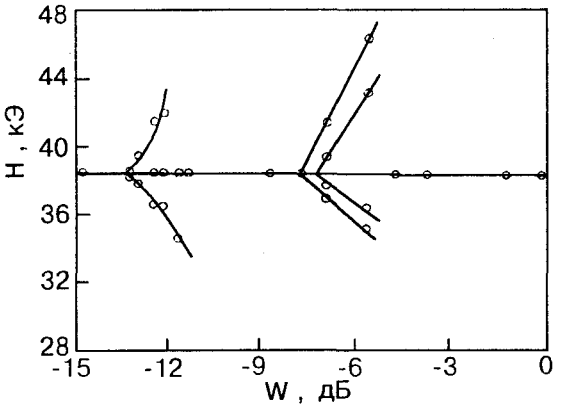


*Рис. 2.* (*H*, *W*)-фазовая диаграмма динамического состояния кристалла $KEr(MoO_4)_2$ : *H* — внешнее магнитное поле; *W* — мощность СВЧ поля накачки.

системы ионов $Er^{3+}$, которая затем релаксирует в фононную подсистему. Вследствие сильной электрон-фононной связи ян-теллеровских центров время релаксации электронной подсистемы в фононную пренебрежимо мало. Фононы отдают энергию в термостат значительно медленнее, поскольку кристалл находится в области структурного фазового перехода [10]. Мы полагаем, что значительное отличие времени релаксации электронных возбуждений ян-теллеровских центров и времени установления термодинамического равновесия в решетке создает сильно неравновесное состояние в подсистеме фононов, что приводит к образованию на них диссипативных структур.

Интерес вызывает эволюция системы к хаотическому движению. Переход системы к динамическому хаосу через бифуркации удвоения периода является характерным для широкого класса диссипативных систем [11]. Этот сценарий начинается с бифуркации Хопфа из устойчивого фокуса в предельный цикл с частотой *f*. При дальнейшем изменении параметра наблюдается последовательность бифуркаций удвоения, приводящих к периодическому движению с частотами $f/2, f/4, f/8, f/16, \ldots$

Фейгенбаум показал [12], что зависимость бифуркаций от параметра и форма спектра носят универсальный характер. Закон подобия в этом случае можно представить в виде

$$\frac{W_{k+1} - W_k}{W_k - W_{k-1}} = \frac{1}{\delta}; \quad \delta = 4{,}6692 \ldots ,$$

$\delta$ — универсальная постоянная; $W_k$ — значение мощности СВЧ поля накачки, при которой происходит *k*-я бифуркация.

Скорость сходимости $W$ к $W_\infty$ можно приближенно представить следующей асимптотической формулой:

$$W_k = W_\infty + A\delta^{1-k}.$$

Здесь $W_\infty$ — значение мощности СВЧ поля, при которой система переходит к хаотическому движению. Оценить $W_\infty$ можно через $W_1$ и $W_2$:

$$W_\infty \approx W_1 + 1{,}3\left(W_2 - W_1\right).$$

Все эти формулы получены из теории ренормализации [11].

Анализ полученных экспериментальных результатов на основании приведенных выше формул показывает, что первые три бифуркации, наблюдаемые нами, не укладываются в серию бифуркаций удвоения периода. Рюэль и Текенс предложили другой механизм возникновения турбулентности [13], согласно которому в системе сначала происходят две последовательные бифуркации Хопфа, затем нелинейность разрушает трехчастотное движение и образуется «странный аттрактор». Поведение нашей системы напоминает сценарий Рюэля—Текенса, так как проявление в ней хаотичности наблюдается в области начала третьей бифуркации, и затем наблюдается регулярное движение. Однако для однозначного утверждения, что в этой области в системе наблюдается движение типа «странного аттрактора», необходим тщательный анализ низкочастотного шума. Переход к хаосу по сценарию Помо—Манневиля предусматривает переход к хаотическому движению с перемежаемостью [14]. В этой модели при увеличении некоторого параметра периодическая траектория непосредственно превращается в хаотическую с перемежаемостью в результате обратной тангенциальной бифуркации. Можно утверждать, что поведение нашей системы не удовлетворяет сценарию Помо—Манневиля, мы наблюдаем «шумовое» движение в хаотическом режиме только в области начала третьей бифуркации.

Резюмируя, можно сказать, что из трех обычно используемых механизмов перехода к хаосу для нашего случая качественно наиболее близок механизм Рюэля—Текенса. Хотя не исключено, что при дальнейшей эволюции системы возможна реализация механизма Фейгенбаума.

К проблеме первых трех бифуркаций можно подойти с несколько иной точки зрения.

В [7] симметрийный анализ позволил установить три канала релаксации электронных возбуждений на фононные

$$B_{2U}(0; 0; q_z) + B_{3U}(0; 0; -q_z) ,$$

$$B_{2U}(q_x ; 0; 0) + B_{3U}(-q_x ; 0; 0) ,$$

$$B_{2U}(0; q_y ; 0) + B_{3U}(0; -q_y ; 0) .$$

Здесь $B_{2U}$ и $B_{3U}$ — симметрия соответствующих фононных возбуждений; $q_x$, $q_y$, $q_z$ — их волновые векторы.

Мы предполагаем, что первые три бифуркации обусловлены возникновением диссипативных структур, образующихся по трем каналам релаксации. Если наши представления верны, можно утверждать, что в системе после трех бифуркаций Хопфа устанавливаются три взаимно перпендикулярные динамические структуры на акустических фононах по соответствующим осям кристалла.

Вопрос о дальнейшей эволюции системы и механизме перехода от регулярного движения к динамическому хаосу остается до конца не выясненным и требует дальнейших исследований при более значительных уровнях мощности СВЧ поля, а также независимыми методами. Эти исследования планируются.

В заключение авторы благодарят профессора Н. Ф. Харченко за плодотворное обсуждение результатов работы.

Работа выполнена при финансовой поддержке фонда INTAS, грант 94-935.

1. А. И. Звягин, Т. С. Стеценко, В. Г. Юрко, Р. А. Вайшнорас, *Письма в ЖЭТФ* **17**, 190 (1973).
2. И. В. Скоробогатова, А. И. Звягин, *ФНТ* **4**, 800 (1978).
3. M. J. Leask, A. C. Tropper, and M. R. Wells, *J. Phys.* **C14**, 3481 (1981).
4. В. И. Кутько, Ю. Н Харченко, А. А. Степанов, Н. М. Нестеренко, *ФНТ* **20**, 361 (1994).
5. В. И. Кутько, В. А. Пащенко, М. И. Кобец, *ФНТ* **19**, 1354 (1993).
6. В. И. Кутько, М. И. Кобец, В. А. Пащенко, Е. Н. Хацько, *ФНТ* **21**, 441 (1995).
7. В. И. Кутько, М. И. Кобец, *ФНТ* **21**, 1169 (1995).
8. Р. Ф. Клевцова, С. В. Борисов, *ДАН СССР* **177**, 1333 (1967).
9. В. И. Спицын, В. К. Трунов, *ДАН СССР* **185**, 854 (1969).
10. А. Брус, Р. Каули, *Структурные фазовые переходы*, Мир, Москва (1984).
11. А. Лихтенберг, М. Либерман, *Регулярная и стохастическая динамика*, Мир, Москва (1984).
12. M. J. Feigenbaum, *Los Alamos Science* **1**, 4 (1980).
13. D. Ruelle and F. Takens, *Commun. Math. Phys.* **20**, 167 (1971).
14. P. Mannelille and Y. Pomeau, *Physica* **1**, 219 (1980).

## The dissipative structures induced by microwave field in $KEr(MoO_4)_2$

V. I. Kut'ko and M. I. Kobets

The intensity of relaxation absorption in the critical region of the structural phase transition was measured in different microwave fields in the $KEr(MoO_4)_2$ crystal.

A sequence of peculiarities (bifurcations) of the threshold character in the intensity of microwave radiation has been revealed in relaxation absorption. It is supposed that the relaxation absorption peculiarities are the Hopf biturcations and are caused by the formation of dissipative structures on vibrations of the crystal lattice of $KEr(MoO_4)_2$.