

Аномалии СВЧ поглощения квазиодномерного $\text{CsMnCl}_3 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ в импульсном магнитном поле

А. Г. Андерс, М. И. Кобец

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

Статья поступила в редакцию 18 декабря 1998 г.

В квазиодномерном антиферромагнетике $\text{CsMnCl}_3 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ обнаружено интенсивное СВЧ поглощение в диапазоне частот, расположенном ниже щели спектра спиновых волн. Поглощение наблюдается в поляризации $\mathbf{h} \parallel \mathbf{H}$ при приложении импульсного внешнего поля вдоль «трудной» оси анизотропии. Высказано предположение, что поглощение связано с нарушением межцепочечного магнитного порядка, вызываемым импульсом внешнего поля.

В квазиодновимірному антиферромагнетиту $\text{CsMnCl}_3 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ виявлено інтенсивне НВЧ поглинання в частотному діапазоні, що розташований нижче щілини в спектрі спінових хвиль. Поглинання спостерігається в поляризації $\mathbf{h} \parallel \mathbf{H}$, коли імпульсне зовнішнє поле спрямовано вздовж «важкої» вісі анизотропії. Висловлено припущення, що поглинання пов'язано з порушенням міжланцюгового магнітного впорядкування, що викликається імпульсом зовнішнього поля.

PACS: 75.50.Ee, 76.50.+g, 76.90.+d

Низкоразмерные магнетики, обладающие сильной пространственной анизотропией обменных взаимодействий, характеризуются довольно сложным спектром поглощения энергии СВЧ диапазона. Пример такого спектра демонстрирует квазиодномерный двухосный антиферромагнетик $\text{CsMnCl}_3 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ [1,2] с температурой Нееля $T_N = 4,89$ К. Наряду с полосами однородного антиферромагнитного резонанса (АФМР), соответствующего возбуждению магнонов с волновым вектором $\mathbf{k} = 0$, в нем наблюдается линейное по мощности магнитодипольное допороговое двухмагнонное поглощение, связанное с одновременным возбуждением двух спиновых волн с $\mathbf{k}_1 = -\mathbf{k}_2$ при распаде кванта СВЧ поля. В работах [1,2] подробно исследовалось поведение этого спектра при разных ориентациях внешнего поля, его трансформация при изменении частоты и температуры. Фрагмент частотно-полевой зависимости полос поглощения в случае ориентации внешнего поля \mathbf{H} вдоль «трудной» оси анизотропии \mathbf{a} представлен на рис. 1. В экспериментах [1,2] эти зависимости были получены традиционной радиоспектроскопической методикой в режиме медленного сканирования поля на фиксированных частотах СВЧ возбуждения.

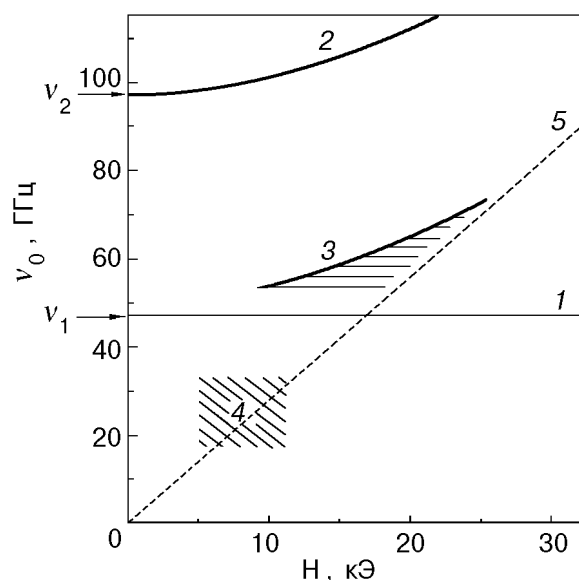


Рис. 1. Частотно-полевая диаграмма полос СВЧ поглощения в $\text{CsMnCl}_3 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ при ориентации внешнего поля $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}$, $T = 2$ К. Сплошные линии 1 и 2 соответствуют полосам однородного АФМР (возбуждения с $\mathbf{k} = 0$). Полоса 3 — разностный процесс допорогового двухмагнонного поглощения магнонов ветвей 1 и 2 (возбуждения с $\mathbf{k}_1 = -\mathbf{k}_2$). Поглощение 4 наблюдается в режиме импульсной развертки поля, 5 — частотно-полевая зависимость резонансного поглощения эталонного образца ДФПГ (дифенилпикрилгидрозил).

При исследованиях в импульсных внешних полях нами обнаружен новый, необычный характер поглощения СВЧ энергии. При ориентации внешнего поля $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}$ в частотном диапазоне, расположенном ниже щели спектра спиновых волн ν_1 системы, наблюдается дополнительное поглощение. Эксперимент проводился на радиоспектрометре с отражательным резонатором (волна типа H_{10n}) при уровнях выходной мощности СВЧ генератора $P < 10$ мВт в диапазоне частот $\nu_0 = 18\text{--}35$ ГГц, длительность импульса магнитного поля $\tau = 20$ мс при синусоидальной форме импульса, температурный диапазон наблюдений составлял 1,6–2 К, регистрация сигнала поглощения производилась на осциллографе.

Основные характерные особенности этого поглощения следующие. Оно наблюдается лишь на частотах $\nu_0 < \nu_1$, при этом поляризация магнитной компоненты СВЧ поля $\mathbf{h} \parallel \mathbf{H} \parallel \mathbf{a}$. Поглощение состоит из двух полос, пиковая интенсивность которых сравнима с пиковой интенсивностью линии однородного резонанса. Форма полос довольно симметрична, иногда на левом склоне удается наблюдать слабо разрешенную структуру.

Своеобразны временные характеристики этого поглощения, они схематически изображены на рис. 2. Время задержки τ_1 первой полосы относительно начала импульса поля явно зависит от амплитуды и, следовательно, от крутизны фронта импульса поля, поскольку в условиях эксперимента длительность импульса поля оставалась по-

стоянной. При неизменной амплитуде импульса поля величина τ_1 растет при уменьшении рабочей частоты. При достаточно малой амплитуде (случай 3, рис. 2) время задержки может превышать длительность импульса поля $\tau_1 > \tau$.

Время задержки второй полосы τ_2 значительно (\sim в 10 раз и более) превосходит τ_1 и уменьшается с уменьшением амплитуды импульса поля. Наконец, установлено, что вторая полоса поглощения наблюдается даже в том случае, когда подача СВЧ излучения на образец задержана на время $\tau_{\text{del}} \approx 0,1$ с, что существенно превышает τ_1 и длительность импульса поля τ .

Таким образом, детектируемое поглощение является следствием действия импульса магнитного поля, в то время как СВЧ облучение образца играет роль инструмента для обнаружения последствий такого импульса. Можно полагать, что в результате этого воздействия происходит перенормировка магнитного спектра системы, аналогичная наблюдаемой при нагреве кристалла, в результате которой понижается значение энергетической щели спектра до величины $\nu_1 < \nu_0$. Это должно привести к появлению поглощения на рабочей частоте ν_0 , поскольку оно будет соответствовать возбуждению однородной моды АФМР с $k = 0$ для направления поля $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}$. При этом поглощение будет соответствовать первой из наблюдаемых полос, отстоящей от начала импульса поля на время τ_1 , причем более низким частотам рабочего диапазона будут соответствовать большие времена задержки.

Скорость же последующего охлаждения магнитной подсистемы, связанного с отводом тепла в гелиевую ванну через фонную подсистему кристалла, определяется конкретными деталями экспериментальной техники — способом крепления образца на стенке резонатора, давлением теплообменного газа и т. д. Этот процесс сопровождается повышением собственной резонансной частоты магнитной подсистемы и повторным резонансным поглощением в момент τ_2 на остающейся неизменной рабочей частоте ν_0 , которое происходит, естественно, через существенно большее время, чем τ_1 .

Следует, однако, отметить, что нагрев кристалла должен быть при этом весьма заметным. В соответствии с результатами исследования температурных зависимостей щелей спектра АФМР $\text{CsMnCl}_3 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ [3] снижению величины ν_1 до диапазона рабочих частот ν_0 должно соответствовать повышение температуры магнитной подсистемы образца от исходной примерно на 1,5–2 К.

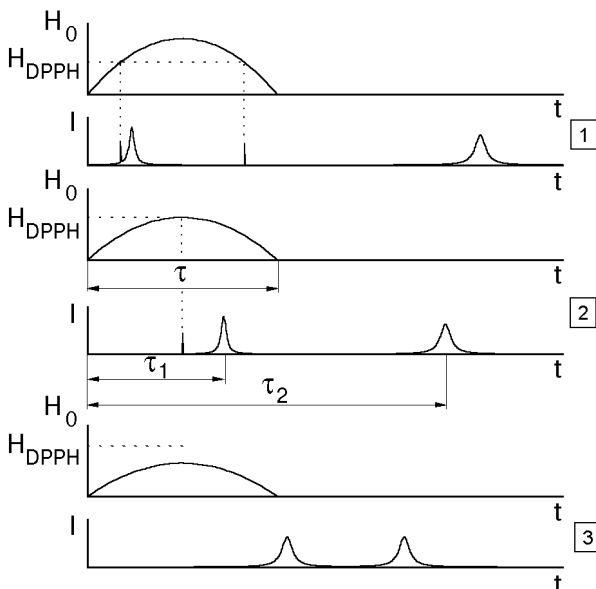


Рис. 2. Трансформация наблюдаемой на фиксированной частоте полосы поглощения с интенсивностью I_0 при изменении амплитуды импульса магнитного поля H_0 . H_{DPPH} — значение поля, соответствующее ЭПР поглощению эталонного образца.

В то же время влияние тривиального источника нагрева за счет вихревых токов, наводимых импульсом поля в резонаторе, следует исключить. Для устранения возможной передачи тепла от стенок резонатора к образцу последний в ряде экспериментов покрывался теплозащитной оболочкой из парафина, что не приводило к заметному изменению наблюдаемых эффектов. Кроме того, при повороте образца без теплозащитной оболочки на угол 90° , при котором внешнее поле \mathbf{H} ориентируется вдоль легкой оси \mathbf{b} , линия однородного АФМР, наблюдаемая в диапазоне рабочих частот в полях $H \sim 10\text{--}15$ кЭ, не изменяет значение резонансного поля. Это свидетельствует о сохранении неизменной температуры образца при используемых умеренных значениях амплитуды импульса поля H_0 .

Указанному повышению спиновой температуры соответствует возрастание магнитной энергии кристалла за счет взаимодействия импульса внешнего поля с наведенным магнитным моментом образца, образующимся вследствие скоса магнитных подрешеток при направлении поля, перпендикулярном «легкой» оси:

$$E_M = \mathbf{M} \cdot \mathbf{H} = N g S \mu_B \int_0^\tau (H_0^2 / H_e) \sin(\pi t / \tau) dt .$$

Здесь N — число ионов Mn^{2+} с эффективным g -фактором $g = 2$ и спином $S = 5/2$; μ_B — магнетон Бора; H_e — обменное поле, равное 230 кЭ в $\text{CsMnCl}_3 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$. Поскольку при температурах $T \leq 2$ К вклад фононной подсистемы в теплоемкость этого кристалла практически отсутствует [4], для образца с типичными размерами $5 \times 2 \times 0,5$ мм при $T = 1,5$ К и значением удельной теплоемкости $C = 0,5$ Дж/(моль·К) приращение спиновой температуры $\Delta T_s \approx 1,5$ К.

По оценкам [4] время спин-спиновой релаксации τ_s в этом случае довольно мало, при значении обменного параметра в цепочках ионов Mn^{2+} $J = 3$ К оно порядка 10^{-8} с. При $t > \tau_s$ вся спиновая подсистема при указанном приращении температуры должна перейти в квазиравновесное состояние. Однако время спин-фононной релаксации

$$\tau_{sl}^{-1} = \frac{\Theta_c}{\hbar} \frac{T}{\rho a^2 s^2} \left(\frac{T}{\Theta_c} \right)^{5/2} \exp(-\Theta_D^2 / 4\Theta_c T)$$

оказывается существенно больше, и при значении параметра обмена $\Theta_c = 30$ К, средней скорости звука $s = 2$ км/с, плотности вещества

$\rho = 2,84$ г/см³ и температуры Дебая $\Theta_D = 56$ К при $T = 2$ К равно 10^{-2} с [5], что сравнимо с длительностью импульса поля.

Таким образом, при таких соотношениях времен должны происходить разогрев и последующее охлаждение магнитной подсистемы кристалла, т.е. следовало бы ожидать примерного равенства $\tau_1 \sim \tau_s$ и $\tau_2 \sim \tau_{sl}$, причем в интервале $\tau_1\text{--}\tau_2$ система должна пребывать в режиме, близком к адиабатическому. Кроме того, аналогичный перегрев магнитной подсистемы должен наблюдаться и при направлении поля вдоль «промежуточной» оси \mathbf{c} . Однако результаты эксперимента свидетельствуют, что, во-первых, величины параметров τ_1 и τ_2 заметно отличаются от этих оценок, а, во-вторых, преимущественным направлением поля для наблюдения эффекта является $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}$. Поэтому представляют интерес как процессы возбуждения системы в начале импульса поля, когда еще можно ожидать сохранения адиабатичности режима, так и состояние системы в интервале $\tau_1\text{--}\tau_2$, где адиабатичность, по-видимому, уже нарушается. При этом следует иметь в виду, что в таком заметно перегретом состоянии магнитная подсистема должна быть существенно нелинейной.

Начальный процесс возбуждения может быть обусловлен генерацией стационарных нелинейных состояний типа солитонов или доменных границ, которые, как известно [6], могут существовать в $\text{CsMnCl}_3 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ при данной ориентации внешнего и высокочастотного магнитных полей. Принципиальная же возможность ударного возбуждения солитонов как пространственно-однородным, так и пространственно-локализованным импульсным магнитным полем исследовалась соответственно в работах [7] и [8], в которых магнитная система рассматривалась как существенно нелинейная. В этом случае время релаксации солитонных возбуждений в магнитную подсистему кристалла может быть оценено на основании результатов работы [7]. Для $\text{CsMnCl}_3 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ оно довольно мало и составляет величину $\tau_{\text{sol-s}} = E_0 / \eta c^2 \approx 10^{-8}$ с (E_0 и c — энергия и предельная скорость доменной границы; η — параметр вязкости), что сравнимо со временем установления квазиравновесного распределения внутри самой магнитной подсистемы τ_s , определяемым обменным рассеянием магнонов. При этом эффективность возникновения стационарных нелинейных состояний может оказаться весьма высокой. Оценки показывают, что при перегреве магнитной подсистемы образца указанных выше размеров на 2 К может возникнуть $\sim 10^{18}$ кинков в

цепочках ионов марганца, что составляет ~ 5% от общего числа магнитных узлов в кристалле. Образование же нелинейных состояний по междоцепочечным направлениям со слабой обменной связью энергетически во много раз выгоднее, и их реализация, естественно, должна привести к ослаблению междоцепочечных корреляций.

В то же время взаимодействие импульсного поля с магнитной подсистемой в $\text{CsMnCl}_3 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ может иметь принципиально иную природу, чем образование указанных нелинейных состояний, связанную с особенностями его магнитной структуры. Напомним, что орторомбическая ячейка кристалла с пространственной группой P_{cca} содержит четыре магнитных иона Mn^{2+} , занимающих попарно эквивалентные места [10]. Магнитные ионы, занимающие неэквивалентные места в ячейке вдоль направления a , связаны сильным антиферромагнитным обменным взаимодействием $J = 3 \text{ K}$ и составляют цепочки, являющиеся основой квазиодномерной магнитной структуры этого кристалла. Слабые междоцепочечные обменные взаимодействия J_1 и J_2 вдоль направлений b и c также антиферромагнитны, их значения $J_1/J \sim 10^{-2}$, $J_2/J \sim 10^{-4}$. Магнитная ячейка $\text{CsMnCl}_3 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ образуется за счет удвоения параметра b , и, таким образом, этот кристалл является восьмиподрешеточным антиферромагнетиком, хотя в большинстве работ по исследованию магнитных и резонансных свойств он рассматривался как двухподрешеточный.

Соседние ионы в цепочке могут быть связаны антисимметричным обменным взаимодействием вида $\mathbf{D}_{jl} [\mathbf{S}_j \times \mathbf{S}_l]$, и спиновый гамильтониан вида

$$H_D = \sum_j D_j (S_j^z S_{j+1}^x - S_j^x S_{j+1}^z), \quad (1)$$

где оси x, y, z соответственно параллельны направлениям a, b, c ячейки, учитывался в работе [11] при анализе ширины линии ЭПР этого соединения. В магнитоупорядоченном состоянии взаимодействие вида (1) приводит к скосу магнитных моментов соседних узлов цепочки и образованию ферромагнитного момента цепочки в целом, направленного вдоль оси a . Он компенсируется моментом противоположного направления в соседней цепочке, и, таким образом, магнитная ячейка спонтанного ферромагнитного момента не имеет.

Значение параметра D_j может быть оценено на основании результатов работы [11] по вкладу антисимметричного обмена в ширину линии ЭПР. Он составляет величину $\approx 5 \cdot 10^{10} \text{ c}^{-1}$, что приводит для основного состояния системы к значению

ферромагнитного момента цепочки (в расчете на один узел) $M_F = (D_j/2J)gS \mu_B \approx 0,05 \mu_B$.

Поскольку междоцепочечной связи соответствует «слабое» обменное поле $H_{e1} = 2J_1 S k_B / g \mu_B \sim 500 \text{ Э}$, внешнее поле ориентации $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}$ при $H \geq H_{e1}$ должно вызвать фазовый переход, связанный с переориентацией ферромагнитных моментов для половины цепочек. При условии, что вся энергия $E_M = M_F H$, выделяемая при таком переходе, перейдет в тепло, это может привести к дополнительному возрастанию температуры образца на $\Delta T \sim 0,25 \text{ K}$.

В этом случае для объяснения наблюдаемых эффектов необходимо учитывать специфику магнитоупорядоченного состояния квазиодномерной магнитной системы. Дело в том, что практически во всем температурном диапазоне антиферромагнитного состояния $\text{CsMnCl}_3 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$, за исключением милликельвиновой области, равновесная магнитная структура довольно сильно флуктуирует по междоцепочечным связям. Поэтому температурная зависимость магнитного спектра системы, в том числе и его щелей, по сути, отражает именно степень возрастания этих флуктуаций и соответственно динамику междоцепочечного разупорядочения, достигающих максимума в точке Нееля $T_N = 4,89 \text{ K}$, в то время как ближний антиферромагнитный порядок в цепочках сохраняется вплоть до $T \sim 30 \text{ K}$.

Вызываемый внешним полем фазовый переход неизбежно порождает фазовое расслоение системы, в результате которого междоцепочечный корреляционный радиус, количественно характеризующий степень междоцепочечного упорядочения, резко уменьшается и становится заведомо меньше размеров образца в направлении слабого обмена. Температура фононного резервуара в процессе действия импульса поля остается неизменной. При этом магнитная подсистема кристалла на его фоне оказывается перегретой и более разупорядоченной, чем равновесная для данной температуры, что должно проявиться в соответствующем уменьшении значений энергетических щелей магнитного спектра. Заметим, что предельный случай междоцепочечного разупорядочения и зануления междоцепочечного корреляционного радиуса соответствует теореме Мермина и Вагнера [12] об отсутствии дальнего магнитного порядка и, естественно, занулению энергетических щелей спектра в одномерном магнетике.

В этом случае величина параметра задержки τ_1 , определяемая скоростью процесса междоцепочечного разупорядочения, должна зависеть от крутизны импульса поля, поскольку, как сказано

выше, сам процесс разупорядочения начнется с фазового перехода при $H \geq H_{e1}$. Параметр τ_2 определяется скоростью восстановления междоцепочечных корреляций, в процессе которого должен произойти обратный фазовый переход в чисто антиферромагнитную фазу. Временные характеристики этих процессов могут заведомо различаться из-за наличия внешнего поля в первом из них и его отсутствия во втором. Но в любом случае следует иметь в виду, что процессы преобразования доменов, сопровождающие фазовое расслоение при фазовых переходах, носят, как правило, длинновременной диффузионный характер. И поскольку в нашем случае термодинамические потенциалы соответствующих фаз различаются мало, следует ожидать значительных времен релаксации неравновесных структур. Эти времена могут быть дополнительно увеличены за счет естественной дефектности кристалла.

Таким образом, основные качественные характеристики СВЧ поглощения, наблюдаемого в $\text{CsMnCl}_3 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ в импульсных магнитных полях, могут объясняться динамикой разрушения и восстановления дальнего магнитного порядка по междоцепочечным направлениям в кристалле.

В заключение следует отметить, что уменьшение щелей энергетического спектра $\text{CsMnCl}_3 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ в импульсном внешнем магнитном поле также отмечалось, хотя и не интерпретировалось, в работе [13]. При исследовании спектра экситон-магнонного поглощения в этом кристалле наблюдалось существенное (\sim в 1,5 раза и более) уменьшение значений щелей при измерениях в импульсном поле по сравнению с их величиной в стационарных полях.

Авторы выражают признательность М. М. Богдану за полезные обсуждения полученных результатов.

1. А. Г. Андерс, А. И. Звягин, А. И. Петутин, *ФНТ* **3**, 649 (1977).
2. А. Г. Андерс, А. И. Звягин, А. И. Петутин, *ФНТ* **6**, 491 (1980).
3. А. Г. Андерс, А. И. Петутин, Ю. В. Переверзев, А. И. Звягин, *ФНТ* **5**, 604 (1979).
4. А. И. Ахиезер, В. Г. Барьяхтар, С. В. Пелетминский, *Спиновые волны*, Наука, Москва (1967).
5. К. Kopinga, *Phys. Rev.* **B16**, 427 (1977).
6. Б. А. Иванов, А. К. Колежук, *ФНТ* **17**, 343 (1991); *ФНТ* **21**, 355 (1995).
7. Ю. С. Кившарь, Б. А. Маломед, *ФТТ* **31**, 209 (1989); *ФММ* № 3, 5 (1990).
8. И. Л. Любчанский, В. Л. Соболев, Т. К. Соболева, *ФНТ* **13**, 1061 (1987).
9. Б. А. Иванов, А. Л. Сукстанский, Е. В. Тартаковская, *ФНТ* **13**, 982 (1987).
10. S. J. Jensen, P. Andersen, and S. E. Rasmussen, *Acta Chem. Scand.* **16**, 189 (1962).
11. K. Nagata and T. Hirose, *J. Phys. Soc. Jpn.* **40**, 1584 (1976).
12. N. D. Mermin and H. Wagner, *Phys. Rev. Lett.* **17**, 1133 (1966).
13. В. П. Новиков, И. С. Качур, В. В. Еременко, *ФНТ* **7**, 223 (1981).

Anomalies of microwave absorption in quasi-one-dimensional $\text{CsMnCl}_3 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ in pulsed magnetic field

A. G. Anders and M. I. Kobetz

Intense microwave absorption in the quasi-one-dimensional antiferromagnet $\text{CsMnCl}_3 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ is observed in a frequency range below the spin-wave spectrum gap for a pulsed magnetic field applied along the «hard» anisotropy axis and for $\mathbf{h} \parallel \mathbf{H}$ polarization of a high-frequency component. The absorption is assumed to be due to the field-induced frustration of the interchain magnetic order.