

КОГЕРЕНТНАЯ ПЕРЕСТРОЙКА СПЕКТРА СПИНОВЫХ ВОЛН АНТИФЕРРОМАГНИТНОГО ФТОРИДА КОБАЛЬТА С ПРИМЕСЬЮ МАРГАНЦА ($\text{CoF}_2 + 4 \cdot 10^{-3} \text{Mn}^{2+}$)

*В.М. Науменко, В.В. Еременко, В.М. Бандура,
В.В. Пишко*

Впервые экспериментально доказано, что именно концентрация примеси ответственна за характер перестройки спин-волнового спектра в антиферромагнитных кристаллах с примесями: в кристаллах CoF_2 с примесью MnF_2 около $4 \cdot 10^{-3}$ перестройка спектра становится когерентной. Определены константы взаимодействия примесных уровней с АФМР $m_1 \approx 20 \text{ см}^{-1}$ и $m_2 \approx 21,5 \text{ см}^{-1}$.

Полученные ранее экспериментальные данные по исследованию примесных магнитных возбуждений в кристаллах с малой концентрацией примеси ($c \ll 1$) удовлетворительно объяснялись теорией в предположении, что они локализованы (см., например, обзор [1]). Однако результаты двух экспериментальных работ [2, 3] не объяснялись существующей теорией. В одной из этих работ [2] было обнаружено расщепление линии антиферромагнитного резонанса (АФМР), а в другой [3] – значительное усиление примесных колебаний при их сближении с линией АФМР. Картина сильно напоминала ту, которая была предсказана Рашбой [4] для примесного поглощения вблизи экситонных зон в молекулярных кристаллах.

Недавно была создана теория [5 – 7], которая объяснила эксперимент. Она базируется на свойствах систем с примесными состояниями большого радиуса. Важным свойством таких систем является наличие в них малого параметра $c_0 \approx 3/4\pi \cdot v/r^3$, где v – объем элементарной ячейки, а r – радиус примесного состояния; r возрастает по мере приближения примесного уровня к спин-волновой зоне кристалла: $r = a \sqrt{\Omega / |\omega_{np} - \omega_{\text{АФМР}}|}$, где a – постоянная решетки, Ω – величина, примерно равная ширине спин-волновой зоны, ω_{np} и $\omega_{\text{АФМР}}$ – частоты примесного колебания и АФМР. Когда $r \gtrsim r_{np}$, где r_{np} – среднее

расстояние между примесными ионами, наступает коллективная перестройка спин-волнового спектра. Эта перестройка может быть когерентной (КП) или некогерентной (НКП). При КП в спектре вместо одной возникают две разделенные между собой области зонных состояний, характеризуемых волновыми векторами. Примесные колебания перестают быть локализованными и становятся примесными спиновыми волнами. При НКП размывается широкая область вблизи края зоны и заполняется флуктуационными локализованными состояниями; при этом существует лишь одна область зонных состояний. При КП и НКП происходит усиление интенсивности примесных колебаний за счет собственных, если примесные колебания приближаются ко дну спин-волновой зоны.

Важнейшим и довольно неожиданным результатом новой теории является то, что характер перестройки спектра (КП или НКП) определяется концентрацией примеси, хотя по-прежнему $c \ll 1$. Существует критическая концентрация $c_{кр} = \eta (m/\Omega)^6$, где m – константа резонансного взаимодействия колебаний примеси и матрицы, η – численный множитель $\approx 0,1$, такая, что, если $c_0 < c < c_{кр}$, то имеет место НКП, а если $c > c_{кр}$, то – КП. Наша задача заключалась в проверке этого утверждения.

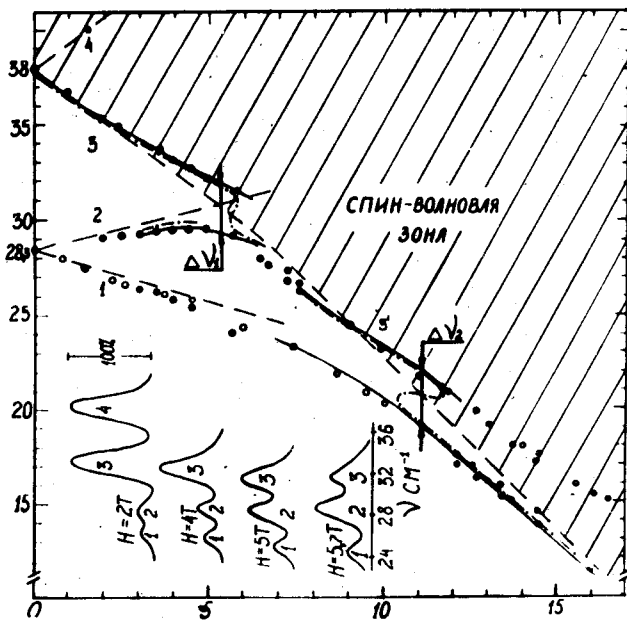


Рис. 1. Поведение линий поглощения в $\text{CoF}_2 + 4 \cdot 10^{-3} \text{Mn}^{2+}$, $H \parallel C_4$, 1, 2 – примесный резонанс; 3, 3', 4 – АФМР. Пунктир – феноменологический расчет без учета взаимодействия между колебаниями; сплошные и штрих-пунктирные линии – теоретические в сечении по частоте и по полю соответственно; \bullet – экспериментальные точки, полученные при развертке спектра по частоте; \circ – то же, но при развертке по полю

Удобным объектом исследования является кристалл $\text{CoF}_2 + \text{Mn}^{2+}$, в котором ранее [3, 6, 8] наблюдались КП и НКП, но при различных ориентациях внешнего магнитного поля и различных поляризациях, так что нельзя было сделать однозначного вывода о причинах разного характера перестройки спектра. Нас прежде всего интересовала область пересечения верхнего зеемановского примесного уровня с низкочастотной (НЧ) модой АФМР, где ранее [3] наблюдалась НКП в кристалле с концентрацией примеси Mn^{2+} $c = (2 \pm 1) \cdot 10^{-4}$ (по весу). Мы ис-

следовали кристалл, в котором $c = (4 \pm 2) \cdot 10^{-3}$. На рис. 1 представлена полученная нами частотно-полевая зависимость примесных мод и АФМР. В левом нижнем углу схематично представлена эволюция линий поглощения при развертке спектра по частоте. Рис. 2 демонстрирует изменение интегральных интенсивностей линий. Из рисунков видно, что в обеих областях пересечения примесных линий с НЧ модой АФМР наблюдаются особенности, характерные для КП: кротовое расщепление примесных линий и линий АФМР, сопровождаемое перекачкой интенсивности; в точке равенства интенсивностей ("точке крота") взаимодействующие линии разделены энергетическим интервалом $\Delta\nu$; обе линии хорошо видны как до, так и после точки крота. Координаты точек крота: $\nu_{кр1} = 30,5 \pm 0,3 \text{ см}^{-1}$, $H_{кр1} = 5,3 \pm 0,2 \text{ Т}$; $\nu_{кр2} = 20,5 \pm 0,5 \text{ см}^{-1}$, $H_{кр2} = 11,1 \pm 0,5 \text{ Т}$. При НКП линии сливались [3].

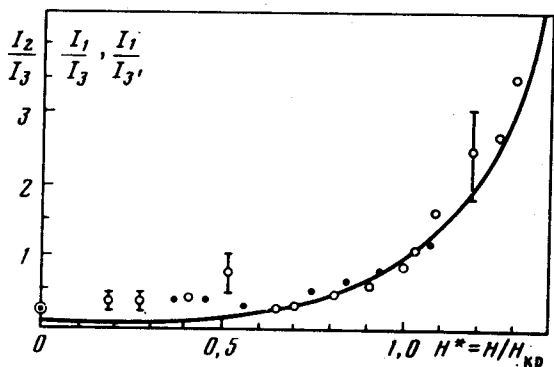


Рис. 2. Зависимость отношения интегральных интенсивностей линий от H . $\circ - I_2/I_3$; $\bullet - I_1/I_3$, I_1/I_3' , $\bullet - I_1, I_2$ — интенсивности примесных мод 1, 2 рис. 1; I_3, I_3' — то же для моды 3 АФМР. Сплошная кривая — теория [7]

Эксперимент проводился на дифракционном длинноволновом ИК спектрометре и на субмиллиметровом спектрометре проходного типа. Образцы были хорошего оптического качества и имели форму диска $\phi = 3 - 6 \text{ мм}$ и толщиной $0,1 - 0,2 \text{ мм}$. При $H = 0$ ширина примесной линии и линии АФМР составляла около $1,5$ и $2,2 \text{ см}^{-1}$ соответственно и с изменением поля существенно не изменялась. Форма линий — промежуточная между лоренцевой и гауссовой. Концентрация примесей определялась спектральным анализом с градуировкой прибора по образцовым порошкам, приготовленным весовым методом из чистого CoF_2 и MnF_2 ¹⁾. При подсчете интенсивностей вводились поправки на аппаратную функцию спектрометров и усечение линий, так что погрешность в определении интегральной интенсивности линий не превышала 30%.

Теоретические зависимости на рис. 1 получены авторами работы [7] с использованием значения $c = 3,5 \cdot 10^{-3}$, дающего наилучшее описание данного эксперимента. Пользуясь выражением $\Delta\nu = 2m\sqrt{c}$, справедливым при $c \gg c_{кр}$ [5 — 7], найдем константы резонансного взаимодействия для верхнего и нижнего крота ($\Delta\nu_1 = (2,5 \pm 0,3) \text{ см}^{-1}$, $\Delta\nu_2 = (2,7 \pm 0,3) \text{ см}^{-1}$): $m_1 = (19,8 \pm 10) \text{ см}^{-1}$, $m_2 = (21,3 \pm 10) \text{ см}^{-1}$. Эти оценки согласуются с теоретическими значениями: $m_1 = 22,3 \text{ см}^{-1}$, $m_2 = 27,3 \text{ см}^{-1}$ [7]. Неплохое согласие с теорией наблюдается также для изменения интенсивности в магнитном поле (рис. 2). Расхождение

¹⁾ Пользуемся случаем поблагодарить Л.Е.Усенко за выполнение анализа.

эксперимента и теории в области $H^* < 0,6$ объясняется, по-видимому, необходимостью учета взаимодействия всех трех колебаний в области полей $H < 0,6 T$. Эксперимент позволяет дать грубую оценку $c_{кр}$ для верхнего кроста: $2 \cdot 10^{-4} < c_{кр1} < 4 \cdot 10^{-3}$, что согласуется с теоретическими оценками $c_{кр1} \approx 6 \cdot 10^{-4}$ и $c_{кр2} \approx 2 \cdot 10^{-3}$ [7]. Более точное определение $m_1, m_2, c_{кр 1,2}$ и верхнего коэффициента η будет сделано нами после выполнения эксперимента на образцах с различными более точно определенными концентрациями марганца.

Благодарим М.А.Иванова, В.М.Локтева, Ю.Г.Погорелова за плодотворное обсуждение и предоставленные результаты расчета.

Физико-технический институт
низких температур
Академии наук Украинской ССР

Поступила в редакцию
29 июля 1980г.

Литература

- [1] R. Weber. Z. Physik, 233, 299, 1969.
- [2] А.С.Боровик-Романов, В.Ф.Мещеряков. Письма в ЖЭТФ, 28, 425, 1968;
Б.С. Думеш, В.М.Егоров, В.Ф.Мещеряков. ЖЭТФ, 61, 320, 1971.
- [3] А.С.Прохоров, Е.Г.Рудашевский. Письма в ЖЭТФ, 22, 214, 1975.
- [4] Э.И.Рашба. ФТТ, 4, 3301, 1962.
- [5] М.А.Иванов, Ю.Г.Погорелов. ЖЭТФ, 76, 1010, 1979.
- [6] М.А.Иванов, Ю.Г.Погорелов, В.М.Локтев et al. Solid State Comm., 33, 623, 1980.
- [7] М.А.Иванов, В.М.Локтев, Ю.Г.Погорелов. Перестройка спектра спиновых возбуждений анизотропного АФ с магнитными примесями в магнитном поле. Препринт ИТФ АН УССР, г. Киев, 1980.
- [8] V.M.Naumenko. Intern. Journ. IR and mm Waves, 1980, (в печати).