

НАЦИОНАЛЬНАЯ АКАДЕМИЯ НАУК УКРАИНЫ
ФИЗИКО-ТЕХНИЧЕСКИЙ ИНСТИТУТ НИЗКИХ ТЕМПЕРАТУР
ИМЕНИ Б. И. БЕРКИНА

На правах рукописи
УДК 538.22

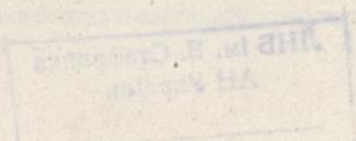
ПИРЯТИНСКАЯ Валерия Геннадиевна

ВЛИЯНИЕ РАЗМЕРНОСТИ И СИММЕТРИИ МАГНИТНОЙ СТРУКТУРЫ
НА ОПТИЧЕСКИЕ СПЕКТРЫ ПОГЛОЩЕНИЯ
АНТИФЕРРОМАГНИТНЫХ ДИЭЛЕКТРИКОВ

01.04.11 - физика магнитных явлений

А В Т О Р Е Ф Е Р А Т
диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Харьков - 1994





Диссертация является рукописью.

Работа выполнена в Физико-техническом институте низких температур им. Б. И. Веркина Национальной Академии Наук Украины.

Научный руководитель: доктор физико-математических наук,
ведущий научный сотрудник
В. В. ШАПИРО

Официальные оппоненты: доктор физико-математических наук,
профессор
Ю. А. ПОПКОВ

доктор физико-математических наук,
ведущий научный сотрудник
Ю. В. ПЕРЕВЕРЗЕВ

Ведущая организация - Институт Монокристаллов НАН Украины

Защита состоится " 28 " ИЮНЯ 1994 г. в 15 часов
на заседании Специализированного совета К 016.27.01 при Физико-
техническом институте низких температур им. Б. И. Веркина НАН Украины
(310164, г. Харьков - 164, пр. Ленина, 47).

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке Физико-техни-
ческого института низких температур им. Б. И. Веркина НАН Украины.

Автореферат разослан " 27 " МАЯ 1994 г.

Отзывы на автореферат в двух экземплярах, с подписью,
заверенной Гербовой печатью, просим направлять по адресу:
310164, г. Харьков - 164, пр. Ленина, 47, ФТИИТ НАН Украины,
ученому секретарю Специализированного совета К 016.27.01

Ученый секретарь Специализированного совета
кандидат физико-математических наук

П. П. Паль-Валь

Актуальность темы. Оптическая спектроскопия антиферромагнитных (АФМ) кристаллов является одним из важнейших направлений в современной физике твердого тела. В последние годы интерес к спектральным исследованиям АФМ кристаллов резко возрос с связи с появлением нового класса объектов - низкоразмерных магнетиков. Эти соединения обладают выраженной пространственной анизотропией взаимодействий, определяющих магнитное упорядочение. Низкоразмерные магнетики, как правило, характеризуются низкой симметрией кристаллических структур и многоподрешеточностью магнитных структур. Они привлекают внимание исследователей благодаря ряду интересных особенностей спектральных и кинетических свойств элементарных возбуждений, наблюдение которых принципиально невозможно в трехмерных АФМ кристаллах.

Важным фактором, способствовавшим интенсивному развитию спектроскопии магнитных кристаллов в последние годы, явился также значительный прогресс в области экспериментальной техники, появление новых фотоэлектрических методов детектирования световых потоков, в частности, многоканальной регистрации спектров, которые позволили добиться исключительно высокого динамического разрешения и значительно улучшить качество регистрируемых спектров. Все это дало новые возможности при исследовании тонкой структуры спектров низкоразмерных АФМ кристаллов, а также позволило вернуться к некоторым неразрешенным проблемам спектроскопии трехмерных соединений.

Цель работы является исследование спектров поглощения света в широком классе АФМ соединений переходных металлов, обладающих различной симметрией и размерностью магнитных структур, в области спин-запрещенных и спин-разрешенных оптических переходов. В работе рассматриваются такие вопросы, как влияние размерности и симметрии кристалла на термическое уширение экситонных полос поглощения, обусловленное рассеянием экситонов на магнонах, а также на тонкую структуру экситон-магнетонного спектра поглощения света. Значительное внимание уделяется исследованиям спектров в магнитных полях, перестраивающих основное магнитное состояние АФМ кристалла.

Научная новизна определяется результатами, которые впервые получены при выполнении данной работы и выносятся на защиту:

1. Экспериментально и теоретически исследовано влияние размерности магнитной структуры на характер термического уширения экситонных полос в спектрах поглощения света АФМ кристаллов.

2. Исследована тонкая структура спектра поглощения света и магнитное давидовское расщепление экситонных полос в квазидвумерном АФМ $\text{NH}_3(\text{CH}_3)_2\text{NH}_3\text{MnCl}_4$; обнаружен ряд особенностей, свидетельствующих об изменении симметрии кристалла при низких температурах.

3. Обнаружено и исследовано бетевское магнитное расщепление полос в спектре поглощения света карбоната марганца, зависящее от направления внешнего магнитного поля и имеющее при NiS_2 немонокотный характер.

4. Исследовано влияние внешнего магнитного поля, перестраивающего магнитную структуру АФМ кристалла, на спектр поглощения света в области спин-разрешенных оптических переходов.

Научное и практическое значение диссертационной работы заключается в получении экспериментальных данных о спектральных свойствах АФМ кристаллов с различными размерностями магнитных структур, что способствует развитию теоретических моделей низкоразмерных АФМ кристаллов, а также может быть полезно при техническом использовании этих соединений.

Апробация работы. Результаты работы докладывались на следующих конференциях, совещаниях: Международные конференции по магнетизму и магнитным материалам (МММ'92, Хьюстон, США, 1992; МММ'93, Миннеаполис, США, 1993), Всесоюзное совещание по физике низких температур (Донецк, 1990), 2-я Международная конференция по магнитооптике ISMO'91 (Харьков, 1991), 2-я Международная конференция по физике магнитных материалов (Пекин, Китай, 1991), XX Международная конференция по физике низких температур LT-93 (Орегон, США, 1993).

Публикации. Основные результаты диссертации опубликованы в 7 печатных работах, список которых приведен в конце автореферата.

Структура и объем работы. Диссертационная работа состоит из введения, пяти глав, заключения и списка цитируемой литературы, включающего 86 наименований. Полный объем работы составляет 132 страницы, включая 34 рисунка.

СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во введении сформулированы цель и задачи диссертационной работы, обоснован выбор объектов исследования, приведены основные положения, выносимые на защиту, описана структура диссертации, представлен список опубликованных работ по теме диссертации.

Первая глава является обзорной. В ней изложены основные зако-

номерности формирования спектров поглощения света АФМ кристаллов и некоторые расчетные методы. В обзоре уделяется внимание таким вопросам, как спектр магнитных возбуждений (оптических и спиновых) в АФМ кристаллах, их роль в формировании спектра поглощения света, влияние внешнего магнитного поля на основное магнитное состояние АФМ кристалла и его оптический спектр.

Вторая глава посвящена описанию магнито-оптической установки, с помощью которой проводились экспериментальные исследования спектров поглощения света. Установка позволяет изучать спектры в оптическом диапазоне 200 ± 1000 нм при варьировании температуры от 1,5 до 300 К и при наложении внешних магнитных полей (в стационарном режиме - до 8 Т, в импульсном - до 40 Т).

В качестве спектральных приборов в установке использовались: для изучения тонкой структуры спектра поглощения - спектрограф ДФС-13 (линейная дисперсия $2 \text{ \AA}/\text{мм}$), для обзора спектра во всей видимой области - призмный монохроматор SPM-2. Регистрация световых потоков осуществлялась с помощью многоканального оптического анализатора ОМА 1450А (фирмы Princeton Applied Research), детектор которого представляет собой линейную матрицу 512 фотодиодов. Из анализатора данные передавались через последовательный порт RS232C в персональный компьютер АТ-386. Получение стационарных магнитных полей осуществлялось с помощью сверхпроводящего соленоида типа катушек Гельмгольца. Магнитные поля высокой напряженности создавались с помощью импульсной методики в малогабаритном двухсекционном соленоиде. Световой импульс синхронизировался во времени с максимумом импульса магнитного поля, а также с моментом начала сбора данных многоканальным оптическим анализатором.

В следующих трех главах изложены основные результаты работы.

В третьей главе рассматривается вопрос о влиянии размерности магнитной структуры АФМ кристаллов на уширение экситонных полос поглощения света, связанное с рассеянием экситонов на магнонах.

В качестве объектов исследования выбраны АФМ соединения иона Mn^{2+} с различной размерностью структур, обладающие магнитной анизотропией типа "легкая ось": трехмерный (3-d) MnF_2 (экситонная полоса, соответствующая оптическому переходу ${}^6\text{A}_1({}^6\text{S}) \rightarrow {}^4\text{T}_2({}^4\text{G})$), квазидвумерный (q-2-d) $\text{NH}_4(\text{CH}_3)_2\text{NH}_4\text{MnCl}_4$ (${}^6\text{A}_1({}^6\text{S}) \rightarrow {}^4\text{E}_g({}^4\text{G})$) и квазиодномерный (q-1-d) $\text{CsMnCl}_3 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ (${}^6\text{A}_1({}^6\text{S}) \rightarrow {}^4\text{T}_2({}^4\text{D})$).

В § 3.1 представлены результаты исследования термического уширения экситонных полос поглощения света. Рис. 1 иллюстрирует темпе-

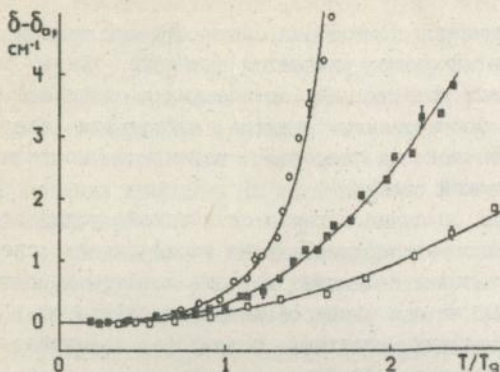


Рис. 1. Температурное уширение экситонных полос поглощения в спектрах АФМ кристаллов: q-1-d CsMnCl₂·2H₂O (○), q-2-d NH₃(CH₃)₂NH₂MnCl₄ (□) и 3-d MnF₂ (■). Сплошные линии соответствуют расчету по формулам (1), (2).

ратурные зависимости изменения полуширин полос $\delta - \delta_0$ (δ_0 - полуширина, аппроксимированная к нулевой температуре). Из рисунка видно, что во всех случаях существенные изменения полуширин начинаются при температурах $T \approx 0,8T_g$, где $T_g = \epsilon_g/k_B$ (ϵ_g - энергетическая щель в спектре спиновых волн).

Полуширина экситонной линии выражается через мнимую часть массового оператора одночастичной функции Грина экситонов [1] (при $T \ll T_N$ можно ограничиться вторым порядком теории возмущений). Оценки для области температур, сравнимых с T_g , где основной вклад в рассеяние экситонов вносят магныны вблизи "дна" спин-волновой зоны, дают для АФМ кристалла размерности $n = 2, 3$:

$$\delta(T) \sim T^{n-1} S_n(T_g/T), \quad \text{где} \quad S_n(T_g/T) = \sum_{l=1}^{\infty} l^{1-n} \exp(-lT_g/T) \quad (1)$$

Для q-1-d АФМ температурная зависимость полуширины имеет вид:

$$\delta(T) \sim \ln \kappa S_n(T_g/T), \quad (2)$$

где $\kappa = (J_1/J_2)^{1/2}$, J_1, J_2 - обменные интегралы вдоль направлений сильного и слабого обменных взаимодействий, соответственно. Таким образом, в спектре поглощения строго одномерного АФМ диэлектрика узкие экситонные полосы теоретически могут существовать только при нулевой температуре. Однако весьма слабая логарифмическая расходимость зависимости (2) при $\kappa \rightarrow \infty$ указывает на то, что в спектрах реальных q-1-d АФМ кристаллов со сколь угодно сильной пространственной анизотропией обменных взаимодействий можно обнаружить тонкие экситонные полосы и при ненулевых температурах.

На рис. 1, наряду с экспериментальными зависимостями, приведены расчетные кривые, полученные по формулам (1), (2).

В § 3.2 проводится сравнение уширения экситонных полос при использовании двух различных методов нерезонансной активации спиновых волн - при обычном повышении температуры и при наложении внешнего магнитного поля вдоль "легких" осей АФМ кристаллов. В последнем случае рост чисел заполнения магнов происходит в результате понижения энергии низкочастотной спин-волновой ветви. Если эксперимент проводится при достаточно низкой температуре, то основной вклад в рассеяние экситонов вносят магны в узкой области k -пространства вблизи "дна" зоны. При этом особенности в плотности магнонных состояний, обусловленные пониженной размерностью магнитной структуры, должны проявляться более отчетливо, чем в случае активации магнов за счет повышения температуры.

Действительно, в спектре q -1-d кристалла вблизи поля спин-флор перехода наблюдалось значительное (более чем в 3 раза) уширение экситонной полосы. Слабое уширение полосы наблюдается в q -2-d АФМ, что же касается 3-d АФМ, то в полях $H \leq H_c$ экситонная полоса практически не уширяется.

Четвертая глава посвящена исследованию особенностей тонкой структуры спектра поглощения света квазидвумерного перовскитоподобного АФМ кристалла $\text{NH}_3(\text{CH}_2)_2\text{NH}_3\text{MnCl}_4$ (EDAMnCl₄).

В спектрах комбинационного рассеяния света EDAMnCl₄ при низких температурах ($T \leq 15$ K) были обнаружены особенности, не укладывавшиеся в рамки ранее принятой модели двухподрешеточного двумерного АФМ. Наряду с обычной полосой двухмагнонного рассеяния с энергией $2E_m$ ($E_m = 65 \text{ см}^{-1}$ - максимальная энергия магнов на границе зоны Бриллюэна), была обнаружена дополнительная полоса с энергией высокочастотного края $2E'_m \approx 95 \text{ см}^{-1}$. Происхождение ее связывалось с изменением магнитной симметрии кристалла в результате удвоения магнитной ячейки в плоскости перовскитоподобных слоев. Зона Бриллюэна при этом сокращается в два раза, и в плотности состояний спиновых волн возникает дополнительная особенность, связанная с искажением дисперсионной кривой вблизи новой границы зоны [2].

С целью получения более полной информации об энергетической структуре спин-волнового спектра EDAMnCl₄ были проведены исследования тонкой структуры экситон-магнонного спектра поглощения света, его температурных и поляризационных зависимостей. На рис. 2 представлен спектр поглощения света EDAMnCl₄ в области оптического пе-

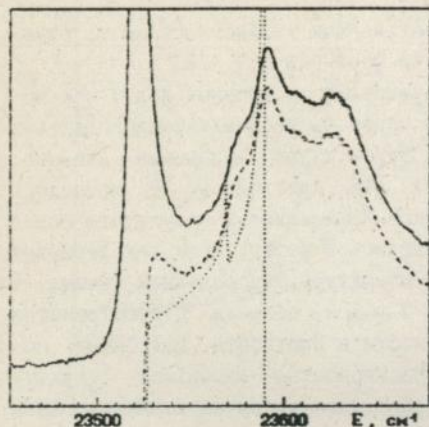


Рис. 2. Спектр поглощения света EDAMnCl_4 :
 — экспериментальная кривая;
 - - - экспериментальная кривая с вычетом экситонного поглощения;
 - расчет.

перехода ${}^6A_{1g} ({}^6S) \rightarrow {}^4E_g ({}^4G)$ в поляризации $\hat{\epsilon}_{\omega}^{\parallel bc}$. На этом участке наблюдается чисто экситонная линия с частотой $E_{\text{ex}} = 23523.6 \text{ см}^{-1}$. С коротковолновой стороны от нее расположена экситон-магنونная полоса, имеющая два выраженных максимума, отстоящих на 46 и 66 см^{-1} от экситонной линии. С увеличением температуры интенсивность первого максимума быстро уменьшается, и при $T \approx 20 \text{ K}$ он исчезает; второй же сохраняется при более высоких температурах. Существенное ослабление наблюдается и для линии E_{ex} . Совпадение частотных интервалов между экситонной полосой E_{ex} и ее ближайшими коротковолновыми спутниками с величинами E_m и E'_m , полученными из анализа спектров комбинационного рассеяния света, а также корреляция в температурном поведении спектров поглощения и комбинационного рассеяния света дают основание утверждать, что дополнительная особенность в спектральном распределении плотности магнонных состояний действительно имеет место.

Исследования поляризационных свойств спектра поглощения света показали, что экситонная полоса E_{ex} имеет электродипольную природу. Это противоречит имеющимся данным о кристаллической структуре EDAMnCl_4 , согласно которым в позиции иона Mn^{2+} имеется центр инверсии, и говорит о том, что поглощающие ионы Mn^{2+} не расположены в центрах симметрии даже относительно октаэдра лигандов Cl^- .

Симметричный анализ показывает, что если в точечной группе иона Mn^{2+} имеется центр инверсии, то спектральное распределение коэффициента экситон-магнного поглощения в поляризации $\hat{\epsilon}_{\omega}^{\parallel bc}$ имеет вид (без учета экситон-магнного взаимодействия)

$$K_y(E) \sim \sum_k u_k^2 [A_x \sin^2(bk_x/2) \cos^2(ck_z/2) + A_z \cos^2(bk_x/2) \sin^2(ck_z/2)] \delta(E - E_{ex} - E_{mag}(k)) \quad (3)$$

Здесь u_k - коэффициенты преобразований Боголюбова-Тябликова, E_{ex} - энергия экситона, $E_{mag}(k)$ - дисперсия энергии магновов, $x||b$, $y||c$, $z||c$. Выражение (3) обращается в нуль при $k_x = k_z = 0$, а значит, не описывает "плато", возникающее в спектральном распределении экситон-магнонного поглощения вблизи линии E_{ex} вследствие слабой дисперсии магновов в направлении y .

Если же предположить наличие искажений кристаллической структуры, приводящих к потере центра симметрии в позиции иона Mn^{2+} , выражение для $K_y(E)$ будет содержать, помимо (3), слагаемые типа

$$\sum_k u_k^2 \cos^2(bk_x/2) \cos^2(ck_z/2) \delta(E - E_{ex} - E_{mag}(k)), \quad (4)$$

не обращающиеся в нуль при $k_x = k_z = 0$.

Отсутствие центра симметрии в позиции поглощающего иона само по себе еще не приводит к появлению новой особенности в спектральном распределении плотности магнонных состояний, и, соответственно, обсуждаемого пика E'_m . Для этого необходимо предположить удвоение ячейки кристалла в плоскости перовскитоподобных слоев, т.е. перейти к четырехподрешеточной модели. С другой стороны, удвоение ячейки кристалла в перовскитоподобном слое с неизбежностью приведет к потере операции инверсии в пространственной группе кристалла. Расчет для одного из вариантов такого удвоения вдоль оси b с учетом вкладов (3) и (4) представлен в сравнении с экспериментальной формой экситон-магнонной полосы на рис. 2.

В пятой главе рассматривается ряд эффектов в спектрах поглощения света АФМ кристаллов, связанных с перестройкой магнитной структуры во внешнем магнитном поле.

§ 5.1 связан с изучением спектра поглощения света $EDAMnCl_4$ в магнитных полях с целью получения дополнительной информации о его кристаллической и магнитной структуре.

В магнитных полях, ориентированных вдоль кристаллографической оси c и приблизительно равных 4 и 17 Т, наряду с полосой E_{ex} появляются две дополнительные компоненты (соответственно E'_{ex} и E''_{ex}). Зависимости частот всех трех компонент от напряженности магнитного поля имеют квадратичный характер (рис. 3). Наблюдение трех давидовских компонент в магнитном поле еще раз подтверждает правильность предположения о наличии четырех магнитных ионов в элементарной

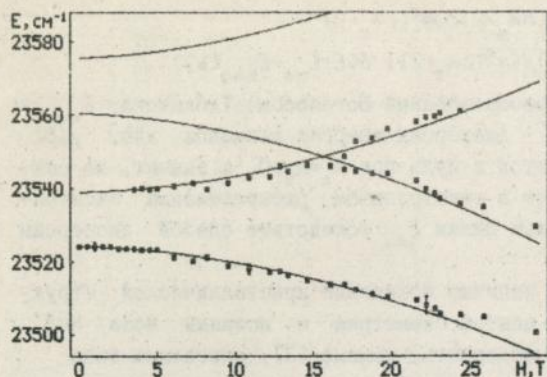


Рис. 3. Магнитное давидовское расщепление экситонной полосы поглощения света в EDAMnCl_4 . $H \parallel c$.
 ■ - эксперимент;
 — - расчет.

ячейке EDAMnCl_4 . Начальное расщепления полос E_{ex} и E'_{ex} при $H = 0$ может свидетельствовать как о неколлинеарности магнитной структуры, так и о энергетической неэквивалентности магнитных ионов, которая может возникнуть в результате удвоения элементарной ячейки. Однако большое различие начальных интенсивностей компонент при $H = 0$ определенно свидетельствует о том, что расщепление в значительной мере имеет резонансную природу и, следовательно, магнитная структура EDAMnCl_4 является изначально неколлинеарной.

Энергии E компонент расщепления экситонной полосы в четырех-подрешеточном АФМ являются решениями уравнения:

$$\det \left[(\epsilon_i + D_i - \mu_B g H S_i - E) \delta_{ik} + \Gamma_{ik} \right] = 0, \quad (i, k = 1..4) \quad (5)$$

где ϵ_i - энергия внутриионного возбуждения i -го иона, D_i - изменение энергии взаимодействия иона с окружением при переходе в возбужденное состояние, μ_B - магнетон Бора, g - g -фактор, S_i - вектор спина i -го магнитного иона, Γ_{ik} - энергии резонансных взаимодействий. Наилучшее количественное описание экспериментальных зависимостей можно получить при неэквивалентности всех четырех ионов ячейки. Соответствующие расчетные кривые приведены на рис. 3.

Дополнительным аргументом в пользу начальной неколлинеарности магнитной структуры EDAMnCl_4 является отсутствие линейного зеемановского псевдорасщепления экситонной линии или сдвига ее компонент при ориентации магнитного поля вдоль оси антиферромагнетизма при $H \leq H_c$ ($H_c = 3.5 \text{ T}$ - значение поля спин-флип перехода).

В § 5.2 представлены результаты исследования необычного магнитного расщепления полос, обнаруженного в спектре поглощения света

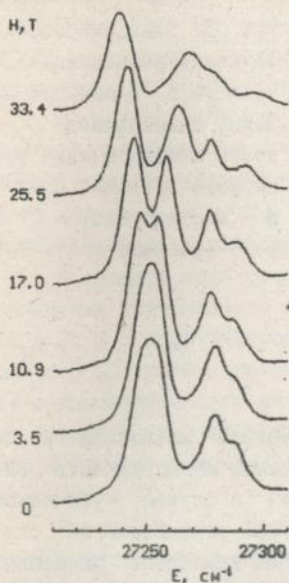


Рис. 4. Спектр поглощения света MnCO_3 в области электронного перехода ${}^6A_{1g}({}^6S) + {}^4T_{2g}({}^4D)$ в магнитном поле $H \parallel C_3$.

Предлагаемая интерпретация эффекта основывается на бетевском, внутриионном характере расщепления орбитального дублета, происходящего от ${}^4T_{2g}({}^4D)$ - состояния иона Mn^{2+} . Спин-орбитальное взаимодействие, учитываемое во втором порядке теории возмущений, может привести к расщеплению этого уровня на четыре компоненты.

Симметричный анализ приводит к следующей форме для эквивалентного оператора спин-орбитального взаимодействия:

$$\begin{aligned}
 V_{1z}^{(2)} = & \frac{V}{S^2} \left\{ \frac{2}{3} \alpha_1 L_z^2 S_x^2 + \frac{2}{3} \alpha_2 (L_x^2 + L_y^2) S_z^2 + \frac{2}{3} \alpha_3 (S_x^2 + S_y^2) L_z^2 + \right. \\
 & + \frac{1}{2} \alpha_4 (L_x^2 + L_y^2) (S_x^2 + S_y^2) - \frac{4}{3} \alpha_5 (L_x S_x + L_y S_y) L_z S_z + \frac{1}{3} \alpha_6 (L_x S_y - L_y S_x)^2 + \\
 & \left. + \frac{\sqrt{2}}{3} \alpha_7 [(S_y^2 - S_x^2) L_y - 2S_x S_y L_x] L_z + \frac{\sqrt{2}}{3} \alpha_8 [(L_y^2 - L_x^2) S_y - 2L_x L_y S_x] S_z \right\} \quad (6)
 \end{aligned}$$

легкоплоскостного АФМ MnCO_3 (электронный переход ${}^6A_{1g}({}^6S) + {}^4T_{2g}({}^4D)$). В этой области наблюдаются экситон-магнитонные полосы с частотами максимумов $E_1 = 27251.4 \text{ см}^{-1}$, $E_2 = 27279.6 \text{ см}^{-1}$ и $E_3 = 27287.6 \text{ см}^{-1}$ (рис. 4). Чисто экситонных линий обнаружить не удалось из-за малых толщин образцов.

В магнитном поле NiC_2 полоса E_1 вначале сужается, затем уширяется и, наконец, разделяется на две компоненты (рис. 4). Таким образом, при $H = 0$ она является спектрально неразрешенным дублетом. В малых полях зависимость величины расщепления полосы E_1 от напряженности магнитного поля носит немонотонный характер, в больших ($H \geq 10 \text{ T}$) она практически линейна (рис. 5). Компоненты высокочастотной группы (E_2 и E_3) ведут себя в магнитном поле аналогичным образом.

Расщепление носит выраженный анизотропный характер: в магнитном поле, ориентированном в базисной плоскости (NiC_2), положения максимумов всех компонент практически не изменяются.

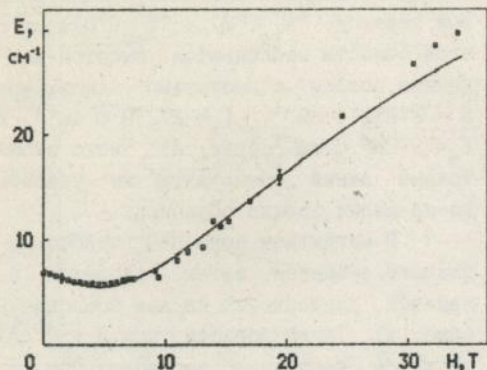


Рис. 5. Зависимость величины расщепления дублета E_1 в спектре $MnCO_3$ от напряженности внешнего магнитного поля $H \parallel C_3$: ■ - эксперимент; — - расчет.

Параметр V характеризует общую эффективность механизма и по порядку величины равен $25 + 45 \text{ см}^{-1}$. Коэффициенты α_i могут быть выражены через параметры кристаллического поля (в случае кубической симметрии все $\alpha_i = 1$). Произведя в операторе (6) усреднение по спиновым состояниям, получаем зависимость энергий компонент расщепления от направлений спинов (γ_i - направляющие косинусы вектора S):

$$e_{1,2} = B\gamma_z^2 \pm \left[C^2(\gamma_x^2 + \gamma_y^2)^2 + D^2(\gamma_x^2 + \gamma_y^2)\gamma_z^2 + E\gamma_x\gamma_z(3\gamma_x^2 - \gamma_x^2) + F\gamma_y\gamma_z(3\gamma_x^2 - \gamma_y^2) \right]^{1/2}, \quad (7)$$

При ориентации магнитного поля перпендикулярно кристаллографической оси C_3 $\gamma_z = 0$, а $\gamma_x^2 + \gamma_y^2 = 1$, следовательно, величина расщепления с полем не изменяется, что находится в полном соответствии с экспериментальными результатами. В случае же $H \parallel C_3$ вектор антиферромагнетизма ориентируется в базисной плоскости вдоль оси второго порядка x , при этом $\gamma_z \approx m$, $\gamma_x \approx (1-m^2)^{1/2}$, $\gamma_y \approx 0$. Хорошее совпадение измеренных и расчетных величин расщепления наблюдается практически во всем интервале магнитных полей (рис. 5).

§ 5.3 посвящен сравнительному анализу влияния внешнего магнитного поля, перестраивающего магнитную структуру кристалла, на спектр поглощения света в области спин-запрещенных и спин-разрешенных оптических переходов. Как известно, в области спин-запрещенных переходов в формировании тонкой структуры спектра существенную роль играют комбинированные процессы с участием спиновых волн. Внешнее магнитное поле, перестраивающее магнитную структуру кристалла, су-

щественным образом влияет на интенсивности соответствующих полос поглощения [3]. Что касается спин-разрешенных оптических переходов в АФМ кристаллах, вопрос о влиянии на них магнитного упорядочения до настоящего времени не исследовался.

В качестве объекта выбрано АФМ соединение, в оптическом спектре которого имеются оба типа переходов - легкоплоскостной CoCo_2 . Исследуемый спектральный диапазон охватывал область спин-разрешенного перехода ${}^4F + {}^4P$ и спин-запрещенного ${}^4F + {}^2P$. Магнитное поле прикладывалось перпендикулярно оси C_z .

В области спин-разрешенного перехода наблюдаемые относительные изменения коэффициента поглощения света в магнитном поле $H = H_E$ ($H_E = 21 \text{ Т}$ - эффективное поле обменного взаимодействия) составляют около 5 %, причем главным образом они связаны со сдвигом полос, а не с изменением интегральной интенсивности поглощения. В то же время изменение интегрального коэффициента экситон-магнитного поглощения в области спин-запрещенного перехода в том же поле H_E составляет около 50 %.

Таким образом, можно сделать вывод, что спектр поглощения света АФМ кристалла в области спин-разрешенных оптических переходов, в отличие от спин-запрещенных, слабо зависит от его магнитной структуры. Действительно, в области спин-запрещенных переходов комбинированные процессы поглощения индуцируются благодаря обменному взаимодействию магнитных ионов из противоположных подрешеток, которое существенно зависит от взаимной ориентации их спинов. В случае же спин-разрешенных переходов оптический спектр определяется, главным образом, внутрионными взаимодействиями, этот механизм оказывается гораздо более эффективным, чем обменный (что проявляется и в значительном различии интенсивностей полос поглощения). По этой причине и все изменения интегральной интенсивности таких полос поглощения в магнитном поле очень невелики.

В заключении сформулированы основные результаты диссертационной работы, выносимые на защиту:

1. Экспериментально и теоретически исследовано влияние размерности магнитной структуры, а также энергетической щели в спин-волновом спектре на характер термического уширения экситонных полос в спектрах поглощения света АФМ кристаллов.

Показано, что размерность магнитной структуры оказывает наиболее существенное влияние на характер уширения экситонных полос при активации спиновых волн не повышением температуры, а наложением

внешнего магнитного поля вдоль "легких" осей кристаллов.

2. В спектре поглощения света квазидвумерного АФМ EDAMnCl_4 при низких температурах обнаружены особенности, свидетельствующие об удвоении его элементарной ячейки в перовскитоподобном слое и потере центра инверсии. Обнаружено магнитное давидовское расщепление экситонных полос в спектре EDAMnCl_4 , характер которого подтверждает вывод об удвоении ячейки и указывает на неколлинеарность магнитной структуры EDAMnCl_4 в отсутствие магнитного поля.

3. Обнаружено необычное анизотропное магнитное расщепление полос поглощения в спектре легкоплоскостного АФМ MnCO_3 , имеющее при $\text{H} \parallel \text{C}_3$ немонотонный характер. Показано, что расщепление имеет бетевское происхождение и обусловлено спин-орбитальным взаимодействием во втором порядке теории возмущений. Дано описание зависимости расщепления от напряженности и ориентации внешнего магнитного поля.

4. На примере CoCO_3 показано, что спектр поглощения света АФМ кристалла в области спин-разрешенных переходов практически не чувствителен к изменению магнитной структуры.

Подводя окончательные итоги проведенных исследований, можно сделать следующие выводы:

Спектр поглощения света АФМ кристалла чувствителен к магнитному упорядочению лишь в области спин-запрещенных оптических переходов. В этой области тонкая структура спектра поглощения, влияние на нее температуры и внешнего магнитного поля определяются симметрией и размерностью магнитной структуры кристалла. Формирование же спектра в области спин-разрешенных оптических переходов определяется главным образом внутриионными взаимодействиями и практически не чувствительно к магнитному упорядочению.

Список литературы, цитированной в автореферате

1. Агранович В. М. Теория экситонов. - М.: Наука, 1968, - 382 с.
2. Eremenko V. V., Gnezdilov V. P., Kurnosov V. S., Fomin V. I. Low-Temperature Anomaly of Two-Magnon Raman Scattering in $\text{NH}_3(\text{CH}_3)_2\text{NH}_2\text{MnCl}_4$ crystal // Proceedings of the 2nd International Symposium on Magneto-Optics. Kharkov, 1992. - p. 171-174.
3. Вердян А. И., Еременко В. В., Канер Н. Э., Литвиненко Ю. Г., Шапиро В. В. Механизмы экситон-магнонного поглощения света двухподрешеточным неколлинеарным антиферромагнетиком CoCO_3 // ФНТ - 1980. - 6, - N 5, - с. 644-655.

Основные результаты диссертации опубликованы в работах:

1. Еременко А. В., Качур И. С., Пирятинская В. Г., Славин В. В. Влияние структуры спин-волнового спектра антиферромагнитных кристаллов на температурное уширение экситонных полос поглощения // ФНТ - 1992. - 18, - N 4, - с. 380-385.
2. Shapiro V. V., Kachur I. S., Piryatinskaya V. G., Eremenko A. V., Slavin V. V. Optical Investigations of Exciton-Magnon Scattering by Using Different Methods of Incoherent Spin Waves Activation // Proceedings of the 2nd International Symposium on Physics of Magnetic Materials. Beijing, China, 1992. - v.1, - p. 137-140.
3. Еременко В. В., Качур И. С., Курносое В. С., Пирятинская В. Г., Фомин В. И., Шапиро В. В. Особенности экситонного и экситон-магнонного поглощения и комбинационного рассеяния света в квазидвумерном антиферромагнетике $\text{NH}_3(\text{CH}_2)_2\text{NH}_3\text{MnCl}_4$ // УФЖ - 1992. - 37, - N 12, - с. 1805-1811.
4. Eremenko V. V., Kachur I. S., Piryatinskaya V. G., Shapiro V. V. Low Temperature Exciton-Magnon Light Absorption in 2-d AFM $\text{NH}_3(\text{CH}_2)_2\text{NH}_3\text{MnCl}_4$ // Physica B - 1994. - 194-196, - p. 191-192.
5. Еременко В. В., Качур И. С., Пирятинская В. Г., Шапиро В. В. Неколлинеарная многоподрешеточная магнитная структура квазидвумерного антиферромагнетика $(\text{CH}_2)_2(\text{NH}_3)_2\text{MnCl}_4$ // ФНТ - 1993. - 19, - N 7, - с. 846-849.
6. Еременко В. В., Шапиро В. В., Качур И. С., Пирятинская В. Г. Линейное магнитное расщепление полос поглощения света в легкоплоскостном антиферромагнетике // ФНТ - 1992. - 18, - N 9, - с. 977-982.
7. Шапиро В. В., Качур И. С., Еременко А. В., Пирятинская В. Г. Спектральные свойства слабоферромагнитного диэлектрического кристалла CoCO_3 в состоянии, близком к насыщенному парамагнитному // ФНТ - 1992. - 18, - N 4, - с. 370-379.

Ав 30.396

Ответственный за выпуск - кандидат физ.-мат. наук
ЗИНОВЬЕВ П. В.

Подписано к печати 17.05.1994 г.,
физ. п. л. 1, учет. изд. л. 1, заказ N 26, тираж 100 экз.

Ротапринт ФТИИТ АН Украины, 310164, Харьков-164, пр. Ленина, 47