

## НЕЛИНЕЙНЫЙ МАГНИТНЫЙ РЕЗОНАНС В КРИСТАЛЛАХ (CH<sub>3</sub>NH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>Mn<sub>0,5</sub>Cu<sub>0,5</sub>Cl<sub>4</sub>

*Г.С.Патрин, Н.В.Волков, Н.В.Федосеева, Е.М.Николаев*

*Институт физики им.Л.В.Киренского Сибирского отделения РАН  
660036, Красноярск, Россия*

Поступила в редакцию 28 декабря 1992 г.

В кристаллах (CH<sub>3</sub>NH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>Mn<sub>0,5</sub>Cu<sub>0,5</sub>Cl<sub>4</sub> обнаружено нелинейное СВЧ поглощение, по своему характеру подобное классическому нелинейному резонансу ангармонического осциллятора. Получены зависимости параметров кривой СВЧ поглощения от мощности накачки и температурная зависимость критической мощности.

Магнитные соединения семейства (C<sub>n</sub>H<sub>2n+1</sub>NH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>BX<sub>4</sub>, где  $n = 1, 2, \dots$ , В – ион переходной группы, а X – галоген, обладают богатым набором физических свойств и, будучи квазидвумерными кристаллами, являются модельными при изучении специфических низкомарных свойств. Путем замещения либо магнитных ионов, либо галогена, либо и тех и других одновременно, а также изменяя  $n$  удается управлять типом магнитного порядка, температурой магнитного упорядочения, анизотропными свойствами. Так, например, при  $n = 1$  в системе C<sub>2</sub>(MnCu)(ClBr)<sub>4</sub> (здесь C  $\equiv$  (CH<sub>3</sub>NH<sub>3</sub>)) при различных замещениях возможен переход от ферромагнитного порядка к антиферромагнитному, от анизотропии типа "легкая плоскость" к анизотропии типа "легкая ось"<sup>1</sup>.

Мы выбрали в качестве объекта исследования кристаллы C<sub>2</sub>Mn<sub>0,5</sub>Cu<sub>0,5</sub>Cl<sub>4</sub>, которые находятся в середине ряда Mn–Cu. С одного края этого ряда соединение C<sub>2</sub>MnCl<sub>4</sub> является антиферромагнетиком с внутри- и межплоскостными антиферромагнитными взаимодействиями, легкой осью анизотропии и  $T_N = 45$  К. В этом кристалле в спектре антиферромагнитного резонанса наряду с однородной модой магнитных колебаний обнаружена близкорасположенная обменная мода<sup>2</sup>.

С другого края этого ряда соединение C<sub>2</sub>CuCl<sub>4</sub> является ферромагнетиком типа легкая плоскость с  $T_c = 8, 9$  К. В этом соединении поведение ферромагнитного резонанса в геометрии, когда магнитное поле перпендикулярно ферромагнитным плоскостям, связывается с наличием фазы Березинского–Костерлитца–Таулесса<sup>3</sup>. Также обнаружено, что при больших уровнях СВЧ мощности имеет место бифуркация и переход к хаотическому динамическому режиму<sup>4</sup>.

Как видим, кристаллы, содержащие какой-либо один тип магнитного иона (либо Mn, либо Cu), каждый по-своему довольно интересен. Поэтому можно ожидать, что в смешанном кристалле C<sub>2</sub>(MnCu)Cl<sub>4</sub> возможно необычное сочетание свойств.

Отметим, что по данным магнитных статических измерений<sup>1</sup> кристалл C<sub>2</sub>Mn<sub>0,5</sub>Cu<sub>0,5</sub>Cl<sub>4</sub> показывает поведение, присущее ферромагнетикам типа легкая плоскость с  $T_c \approx 8$  К. Однако из температурной зависимости обратной парамагнитной восприимчивости, подчиняющейся при  $T > 110$  К закону Кюри–Вейсса, получается отрицательное значение  $\theta = -140$  К. Заметим, что в интервале температур  $T < 110$  К наблюдается немонотонное изменение восприимчивости. Такое поведение предположительно связывается с областями,

где формируется ближний магнитный порядок при конкурирующих анти- и ферромагнитных взаимодействиях и анизотропиях разного знака.

Изучение магнитного резонанса проводилось на спектрометре, описанном в <sup>5</sup>. Источником электромагнитного излучения служил перестраиваемый СВЧ генератор на диоде Ганна с максимальной мощностью  $P_{max} = 200$  Вт. Применялся прямоугольный резонатор на частоте  $f = 10$  ГГц с модой  $TE_{102}$  и добротностью  $Q \sim 1000$ .

Для измерений использовались образцы, представлявшие собой пластинки толщиной  $t \approx 0,3$  мм и размером в плоскости  $2 \times 2$  мм. Ось кристалла  $C$  была перпендикулярна плоскости пластинки.

Внешнее магнитное поле лежало в плоскости образца, а магнитная компонента СВЧ поля была вдоль оси  $C$ .

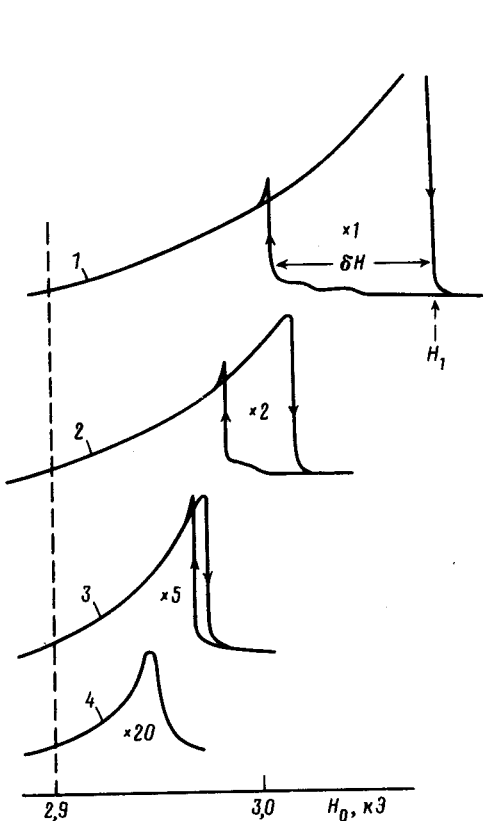


Рис.1

Рис.1. Форма линии СВЧ поглощения при разных уровнях мощности в зависимости от направления развертки магнитного поля. 1 -  $q = 0,75$ ; 2 -  $q = 0,4$ ; 3 -  $q = 0,15$ ; 4 -  $q = 0,05$ ; ( $q = P/P_{max}$ ). Цифрами указаны коэффициенты усиления

Рис.2. Зависимости критического поля  $H_1$  и ширины гистерезиса  $\delta H$  от мощности СВЧ излучения.  $T = 6,5$  К

Рис.3. Температурная зависимость величины критической мощности  $q_c = P_c/P_{max}$

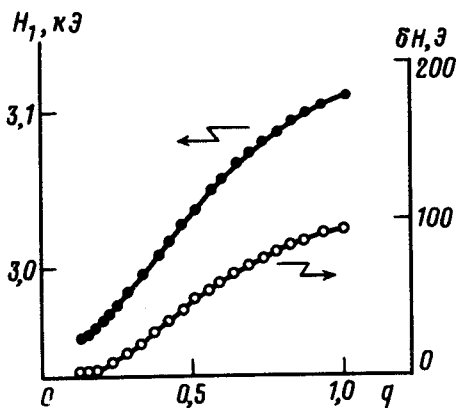


Рис.2

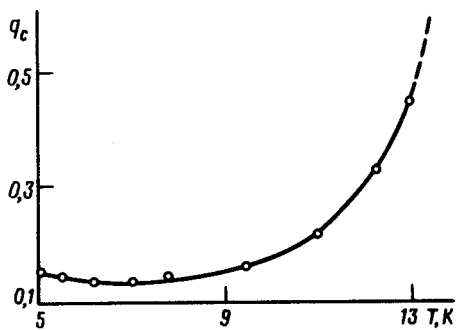


Рис.3

Нами был обнаружен необычный вид кривых резонансного поглощения при температурах ниже температуры магнитного упорядочения. При малых уровнях мощности СВЧ излучения (единицы милливатт) форма линии слабо

асимметричная и не зависит от направления развертки магнитного поля (рис.1, кривая 4). При увеличении СВЧ мощности высота резонансного пика растет и, при некотором ее значении  $P_c$ , наблюдается гистерезис в зависимости от направления развертки магнитного поля (рис.1, кривая 3). При дальнейшем увеличении СВЧ мощности происходит увеличение поглощения, смещение пика поглощения в область более высоких магнитных полей и расширение области гистерезиса (рис.1, кривые 3,4).

В свете этих результатов мы хотели бы отметить следующее. С одной стороны известно <sup>6</sup>, что подобная форма линии может наблюдаться для ансамбля поглощающих центров, имеющих гауссовское распределение расщеплений между резонирующими уровнями. Однако для таких систем не наблюдается различие хода кривых при изменении направления развертки магнитного поля. С другой стороны гистерезисные явления имеют место в неупорядоченных системах типа спиновых стекол. В них происходит сдвиг резонансного поля при изменении направления магнитного поля, но максимальная величина поглощения при этом практически не меняется <sup>7</sup>. Во всех этих случаях при увеличении СВЧ мощности происходит лишь увеличение интенсивности поглощения без заметного искажения формы линии поглощения.

Таким образом, в нашем случае по всем внешним формальным признакам ситуация очень похожа на классический нелинейный резонанс для ангармонического осциллятора <sup>8</sup>.

В духе такого подхода мы провели изучение параметров, характеризующих форму линии нелинейного резонанса при разных уровнях СВЧ излучения и температурах. На рис.2 приведены кривые, поля срыва СВЧ поглощения,  $H_1$ , и ширины гистерезиса,  $\delta H$ , в зависимости от мощности электромагнитного излучения. Установлено, что при мощностях  $P/P_{max} = q > 0,25$  связь между  $q$  и  $H_1$  дается формулой  $q = q_0 + bH_1^m$  ( $m = 3/2$ ), где  $q_0$  и  $b$  – подгоночные величины. Такая зависимость как известно <sup>8</sup>, характеризует степень жесткости системы и определяется видом нелинейности.

На рис.3 представлена зависимость критической мощности  $q_c = P_c/P_{max}$  ( $P_c$  разделяет гистерезисную и безгистерезисную области) от температуры. Здесь неожиданным является то, что гистерезис существует до  $T^* \approx 15$  К, которая существенно превышает значение  $T_c$ . Выше  $T^* = 15$  К гистерезис исчезает, однако форма линии остается асимметричной. Симметрия линии поглощения восстанавливается лишь при температурах выше 30 К.

В настоящее время данных по кристаллу  $C_2Mn_{0,5}Cu_{0,5}Cl_4$  явно недостаточно для того, чтобы можно было однозначно установить магнитную структуру и характер взаимодействий между магнитными ионами. Однако из температурного поведения резонансного поглощения и сравнения с чисто марганцевым и медным соединениями следует, что существенную роль в таком нелинейном характере поведения магнитного резонанса играет связь между марганцевой и медной подсистемами.

В заключение авторы выражают благодарность Р.С.Исхакову и Г.А.Петраковскому за полезные дискуссии.

- 
1. Н.В.Федосеева, В.К.Королев, А.Ф.Бовина, А.П.Перепелица, В сб.: Физические свойства магнетиков, ИФ СО АН СССР, Красноярск, 1990, с.61.
  2. А.А.Степанов, В.А.Пашенко, М.И.Кобец, ФНТ **14**, 550 (1988).
  3. С.О.Демокритов, Н.М.Крейнес, В.И.Кудинюв, С.В.Петров, ЖЭТФ **95**, 2211 (1989).

4. H. Yamazaki, M. Nino, H. Nagashima, and M. Warden, *J. Phys. Soc. Jap.* **56**, 742 (1987).
5. Н.В.Волков, Г.С.Патрин, Препринт №635Ф, ИФ СО АН СССР, Красноярск, 1990.
6. А.Абрагам, Б.Блини, *Электронный парамагнитный резонанс переходных ионов*. М.: Мир, 1972, 1, гл.3.
7. С.У. Huang, *JMMM* **51**, 1 (1985).
8. В.В.Мигулин, В.И.Медведев, Е.Р.Мустель, В.Н.Парыгин, *Основы теории колебаний*. М.: Наука 1978, гл.3.