

ЛИНЕЙНАЯ ПОЛЕВАЯ ЗАВИСИМОСТЬ МАГНИТНОГО ЛИНЕЙНОГО ДВУПРЕЛОМЛЕНИЯ РЕДКОЗЕМЕЛЬНЫХ СОЕДИНЕНИЙ ПРИ НИЗКИХ ТЕМПЕРАТУРАХ.

*Н.Ф.Ведерников, А.К.Звездин, С.В.Копцик, Р.З.Левитин,
К.М.Мукумов, А.П.Перов, А.И.Попов, Х.И.Туркменов*

Теоретически показано, что в парамагнитных редкоземельных соединениях, в которых основное состояние редкоземельного иона (РЗИ) представляет собой изолированный дублет, в сильных магнитных полях магнитное линейное двупреломление (МЛДП) линейно зависит от поля. Эксперименты на гранате – алюминате эрбия подтверждают выводы теории.

При феноменологическом описании магнитооптической анизотропии и, в частности, магнитного линейного двупреломления (МЛДП) тензор диэлектрической проницаемости ϵ_{ij} обычно разлагают по степеням компонент намагниченности M^{1-4} . При этом предполагается, что величина магнитного момента не зависит от его ориентации в кристалле. Это разложение, как и подобное разложение термодинамического потенциала в теории магнитной анизотропии ориентационных фазовых переходов, основано на релятивистском малом параметре v/c (подробнее см. ⁵).

С микроскопической точки зрения такое представление МЛДП должно выполняться для слабоанизотропных магнитных ионов таких, как Gd^{3+} , Cr^{3+} , Fe^{3+} и т. д., когда расщепление энергетических уровней основного состояния в кристаллическом поле много меньше зеемановского расщепления во внешнем (или эффективном обменном) поле, и энергетический спектр иона является почти эквидистантным.

Возможна, однако, и другая ситуация (она, как правило, осуществляется для редкоземельных ионов (РЗИ)), когда расщепление основного мультиплета в кристаллическом поле много больше зеемановского расщепления и величина магнитного момента может зависеть от его ориентации. В этом случае выбор малого параметра разложения ϵ_{ij} по M и H и сама форма этого разложения неочевидны и для их определения целесообразно привлечь микроскопическое рассмотрение.

Редкоземельный вклад в тензор диэлектрической проницаемости ϵ_{ij} имеет вид

$$\Delta\epsilon_{ij} = 4\pi \left(\frac{n^2 + 2}{3} \right)^2 \sum \alpha'_{ij} \quad (1)$$

где n – средний показатель преломления, α'_{ij} – тензор поляризуемости, суммирование ведется по всем РЗИ в единице объема. Тензор α'_{ij} можно представить как:

$$\alpha'_{ij} = a_0 \delta_{ij} + ia_1 e_{ijk} m_k + a_2 Q_{ij} \quad (2)$$

где m_k , Q_{ij} – компоненты среднего магнитного и квадрупольного моментов РЗИ, a_i – коэффициенты, пропорциональные силам осцилляторов разрешенных оптических переходов. Первое слагаемое в (2) определяет поляризуемость свободного иона, второе – гиротропию, третье – эффекты оптической анизотропии. Квадрупольный момент РЗИ можно выразить в виде двух слагаемых: $Q_{ij} = Q_{ij}^0 + \Delta Q_{ij}$, где Q_{ij}^0 – спонтанный квадрупольный момент (при $H = 0$), ΔQ_{ij} – индуцированный магнитным полем квадрупольный момент. Эффекты магнитооптической анизотропии и, в частности, зависимость МЛДП от ориентации и величины поля и от температуры полностью определяется индуцированным квадрупольным моментом.

Рассмотрим, в качестве примера, крамерсовский РЗИ (Er^{3+} , Dy^{3+} ...), основное состояние которого в кристаллическом поле представляет дублет, определенный от вышележащих

(возбужденных) уровней достаточно большим энергетическим интервалом ΔE . Если температура достаточно низка ($\Delta E \ll T$) и можно не учитывать заселенность возбужденных уровней, система описывается эффективным спином $S_{\text{эфф}} = 1/2$. Внешнее магнитное поле расщепляет дублет и перемешивает его волновые функции $\psi_1 \psi_2$. Иными словами оно производит вращение спинора $(\psi_1 \psi_2)$ в спиновом пространстве. Важным является то, что среднее значение Q_{ij} не изменяется при таком вращении, т. е. индуцированный квадрупольный момент равен нулю и, следовательно, МЛДП в этом приближении не возникает. Для получения конечного значения МЛДП нужно учесть возбужденные уровни РЗИ. Иными словами в дублетной системе МЛДП и другие четные эффекты определяются не основным состоянием, а взаимодействием основного состояния с возбужденными уровнями. Примешивание возбужденных состояний к основному дает в низшем порядке теории возмущений:

$$\Delta Q_{ij} = \sum_{kl} G_{ijkl} H_l \frac{m_k}{g_k}, \quad (3)$$

где g_k — компонента g -тензора основного дублета иона в его локальной системе координат, G_{ijkl} — действительные численные коэффициенты, конкретные выражения для которых мы здесь не приводим.

Направим магнитное поле вдоль осей симметрии кристалла. В этом случае, суммируя соотношение (3) по всем РЗИ кристалла и используя (1) и (2), получаем формулу для МЛДП:

$$\Delta n = AMH, \quad (4)$$

где M — намагниченность РЗ подсистемы кристалла при данной ориентации магнитного поля коэффициент A является известной функцией ориентации поля и направления распространения света.

Имеется близкая аналогия механизма возникновения МЛДП для РЗИ с дублетным основным состоянием и механизма ванфлековской намагниченности ионов с синглетным основным состоянием. В последнем случае при учете только основного состояния магнитный момент иона равен нулю и лишь примешивание возбужденных состояний к основному определяет магнитный момент и восприимчивость синглетного состояния. Для дублета среднее значение индуцированного квадрупольного момента равно нулю, поэтому для его вычисления необходимо учитывать примешивание к основному дублету возбужденных состояний, т. е. тот же эффект, который определяет ванфлековскую намагниченность.

Как показывают расчеты, формула (4) описывает МЛДП некрамерсовских РЗИ (Tb^{3+} , Ho^{3+} ...), если их основным состоянием является хорошо изолированный квазидублет. Для ионов, у которых в основном состоянии $S_{\text{эфф}} > 1/2$ (триплет, квартет и т. д.) и, в частности, для ионов в S -состоянии МЛДП описывается выражением

$$\Delta n = \Delta n_0 \hat{I}_{5/2} [L^{-1}(m)], \quad (5)$$

где $\hat{I}_{5/2}$ — приведенная функция Бесселя, L^{-1} — обратная функция Ланжевена, m — относительная намагниченность. Формула (5) аналогична выражению для магнитострикции, полученному в рамках теории четных эффектов Акулова⁶.

Высказанные выше соображения наиболее просто можно проверить, исследовав МЛДП парамагнетиков с дублетным основным состоянием в сильных магнитных полях при низких температурах. Если они верны, то в области парамагнитного насыщения, когда перестает меняться намагниченность, МЛДП должно быть линейной функцией поля, в то время как в "классической" модели в области полей парамагнитного насыщения должно наблюдаться и насыщение МЛДП.

Удобными объектами для экспериментальной проверки полевой зависимости МЛДП являются редкоземельные галлаты и алюминаты со структурой граната, в которых во многих

случаях основное состояние РЗИ представляет собой дублет, хорошо отделенный от вышележащих уровней ⁷. В частности, в алюминате-гранате эрбия $\text{Er}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ основной дублет лежит ниже первого возбужденного уровня на 27 см^{-1} ⁸.

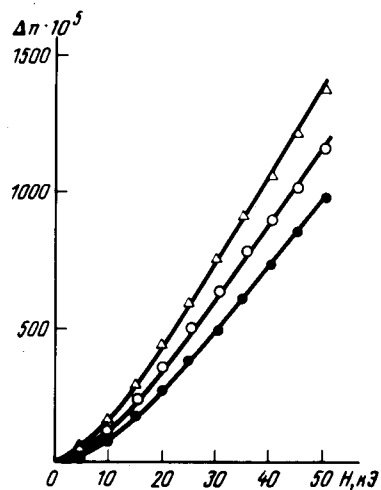


Рис. 1. Зависимость МЛДП $\text{Er}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ от магнитного поля при 4,2 К. Вектор распространения света ⊥ плоскости 110 кристалла. ● — $H \parallel [100]$, ○ — $H \parallel [110]$, ▲ — $H \parallel [111]$ — эксперимент, сплошная линия — теоретическая зависимость (формула (4))

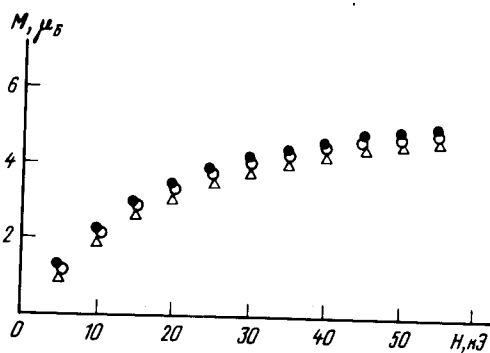


Рис. 2. Зависимость намагниченности $\text{Er}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ от магнитного поля. В расчете на один РЗИ при 4,2 К: ● — $H \parallel [100]$, ○ — $H \parallel [110]$, ▲ — $H \parallel [111]$

На рис. 1 показаны полученные нами зависимости МЛДП, а на рис. 2 зависимость намагниченности монокристалла $\text{Er}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ от магнитного поля при температуре 4,2К. Видно, что в слабых полях, когда намагниченность пропорциональна полю, имеет место квадратичная зависимость МЛДП от поля, а в сильных полях, когда намагниченность стремится к парамагнитному насыщению, МЛДП не насыщается, а линейно возрастает с полем. Таким образом, в алюминате-гранате эрбия, который является высокоанизотропным парамагнетиком с дублетным основным состоянием, для МЛДП выполняется соотношение (4), т. е. этот магнитооптический эффект не может быть выражен только через намагниченность, как в "классическом" случае.

В заключение отметим, что по предварительным экспериментальным данным линейная зависимость МЛДП от поля наблюдается во многих РЗ галлатах и алюминатах — гранатах с дублетным или квазидублетным основным состоянием РЗИ.

Литература

1. Писарев Р.В. Кн. Физика магнитных диэлектриков. Л.:Наука. 1974, с. 356.
2. Криччик Г.С. Физика магнитных явлений. Изд. МГУ, 1976.
3. Feere J., Gehring G.A Rep. Prog. Phys., 1984, 47, 513.
4. Кричевцов Б.Б., Писарев Р.В. ЖЭТФ, 1978, 75, 2167.
5. Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. Электродинамика сплошных сред. М.: Наука, 1957.
6. Callen E.R., Callen H.V. Phys., Rev., 1963, 129, 517; 1965, 139, 455.
7. Franklin Wang F. Y. Treatise on Mater. Sei. Technol. 1973, 2, 279.
8. Hellwege K.H., Hufner S., Schinkman M., Schmidt H. Phys. Kondens. Mater., 1966, 4, 396.