

НЕЛИНЕЙНАЯ ОПТИЧЕСКАЯ СПЕКТРОСКОПИЯ ЭЛЕКТРОННЫХ СОСТОЯНИЙ В ИТТРИЕВОМ ФЕРРИТЕ-ГРАНАТЕ $Y_3Fe_5O_{12}$

С.И.Шаблаев, Р.В.Писарев

Впервые изучены спектры двухфотонного поглощения $Y_3Fe_5O_{12}$. Установлено, что существенную роль в образовании нелинейных спектров магнитодиэлектриков могут играть реальные промежуточные электронные состояния. Получено точное значение межзонного зазора между $2p$ -валентной зоной и $3d$ -зоной проводимости.

Структура электронных состояний магнитоупорядоченных диэлектриков уже в течение длительного времени является предметом интенсивных экспериментальных и теоретических исследований, но, несмотря на это, многие принципиальные вопросы этой проблемы не получили однозначных ответов ^{1, 2}. К их числу относятся такие вопросы как величина энергетического зазора между валентной зоной и зоной проводимости, структура краевых зон и характер соответствующих оптических переходов, энергетическое положение и механизмы переходов между d - состояниями и др. Задача еще более усложняется для кристаллов, в которых магнитные ионы могут находиться в неэквивалентных подрешетках. Решению этих вопросов может помочь применение к магнитным диэлектрикам новых экспериментальных методов, и в настоящей работе мы сообщаем об исследовании электронных состояний в модельном ферримагнетике $Y_3Fe_5O_{12}$ (YIG) методом двухфотонной спектроскопии (ДФС).

В этом методе ³ исследуется спектральная зависимость "дополнительного" поглощения (ΔI) света в момент прохождения через кристалл лазерного импульса света $I_{\text{л}}$. Двухфотонные переходы отличаются от однофотонных более сложными правилами отбора, что позволяет получать принципиально новую информацию об электронных состояниях. Метод ДФС применяется к исследованиям полупроводниковых ³ и прозрачных диэлектрических кристаллов ⁴, но не применялся к магнитоупорядоченным диэлектрикам, имеющим обычно невысокую прозрачность из-за наличия в запрещенной зоне переходов между незаполненной d -оболочкой.

Исследование проводилось на установке, описанной в ⁴. В ней использовался импульсный лазер с энергией квантов $\hbar\omega_{\text{л}} = 1,17$ эВ и ксеноновая импульсная лампа; спектральный диапазон установки составлял 2,5 – 4,5 эВ. Высокая чувствительность ($1 \div 2 \cdot 10^{-7}$ см/МВт) и точность ($\sim 2\%$) нашей установки впервые позволила провести исследование двухфотонного поглощения (ДФП) на очень тонких образцах YIG.

Результаты исследования ДФП на монокристаллической пластинке YIG толщиной 32 мкм, параллельной плоскости (100), показаны на рис. 1. Спектр ДФП начинается от 2,5 эВ и монотонно возрастает до значений $\beta = 0,3$ см/МВт при энергии 3,51 эВ. При больших энергиях наблюдалось сильное поглощение зондирующего света. При комнатной температуре спектр ДФП состоит из 3-х участков с хорошо выраженными перегибами при энергиях 2,66; 2,80, и 3,14 эВ. Абсолютные значения β примерно на порядок больше тех, которые обычно наблюдаются в случае прямых межзонных переходов для материалов с близкими значениями ширины запрещенной зоны (например, для CdS и ZnSe ⁵).

Необычным явилось также сильное (\sim в 13 раз) и равномерное по всему спектру уменьшение абсолютных значений β в эквивалентных точках при понижении температуры от комнатной до 110 К (рис. 1). Температурная зависимость β ($\hbar\omega_{\text{л}} + \hbar\omega_{\text{з}} = 3,107$ эВ) показана на рис. 2. При понижении температуры до 140 К происходит монотонное уменьшение коэффициента β , а в интервале температур от 140 до 90 К β практически не меняется. Последнее характерно для прямых двухфотонных переходов.

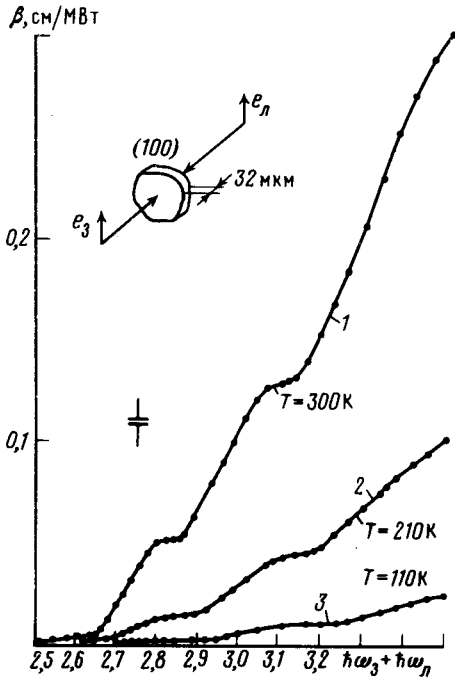


Рис. 1. Спектры ДФП β при температурах: 1 – 298 К; 2 – 210 К; 3 – 110 К. На вставке показана поляризационная конфигурация опыта. $e_{\text{л}}$ – орт поляризации лазера, $e_{\text{з}}$ – орт поляризации импульсной лампы

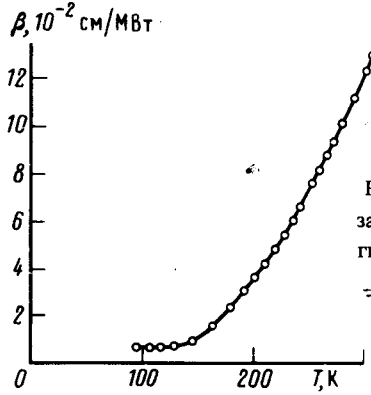


Рис. 2. Температурная зависимость β для энергии $(\hbar\omega_{\text{л}} + \hbar\omega_{\text{з}}) = 3,107$ эВ

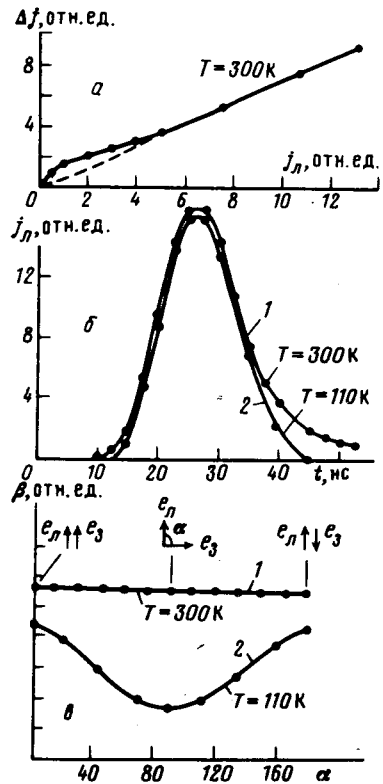


Рис. 3. Светоинтенсивностные, временные и поляризационные зависимости нелинейного поглощения. а – Зависимость модуляционного сигнала ΔI от интенсивности лазерного света $I_{\text{л}}$; б – форма сигнала ΔI . Кривая 1 – 300 К, кривая 2 – 110 К; в – зависимость β от взаимной ориентации ортов поляризации $e_{\text{л}}$ и $e_{\text{з}}$. Кривая 1 – 300 К; кривая 2 – 110 К

Для выявления механизмов столь необычного температурного поведения ДФП в YIG были проведены исследования зависимости спектров от интенсивности лазерного света $I_{\text{л}}$ и от взаимной ориентации поляризаций зондирующего и лазерного света (рис. 3). Было установлено, что модуляционный сигнал ΔI нелинейно зависит от интенсивности $I_{\text{л}}$ (рис. 3, а). Форма этого сигнала отличается от формы лазерного импульса затянутым задним фронтом при

мерно на 5 нс по уровню $0,1 \Delta I^{\text{макс}}$ (см.рис. 3, б кривая 1). Кроме того, коэффициент β не зависел от взаимной ориентации ортов поляризации лучей лазера и лампы, (см.рис. 3, в кривая 1). Эти результаты говорят о том, что при комнатной температуре спектр ДФП в доминирующей степени определяется двухступенчатыми переходами через некое реальное электронное состояние, расположенное в запрещенной зоне. При низких же температурах форма модуляционного сигнала (рис. 3, б кривая 2) и поляризационные зависимости (рис.3, в кривая 2) говорят о преобладании двухфотонных переходов в формировании спектра.

Из спектров однофотонного поглощения YIG известно ², что в области энергий от $\sim 1,15$ до $\sim 1,60$ эВ наблюдается широкая полоса поглощения, которую можно однозначно связать с электронным переходом ${}^6A_{1g} \rightarrow {}^4T_{1g}$ между основным и первым возбужденным состоянием иона Fe^{3+} в октаэдрической подрешетке ^{2,6}. Таким образом, лазерный импульс с энергией $\hbar\omega_{\text{л}} = 1,17$ эВ может вызвать реальную заселенность промежуточного состояния ${}^4T_{1g}$ и это будет способствовать увеличению абсолютного значения β ³. Однако при понижении температуры коэффициент однофотонного поглощения при энергии 1,17 эВ быстро уменьшается ⁷, степень реальной заселенности состояния ${}^4T_{1g}$ также уменьшается, что и приводит к сильной температурной зависимости (рис.1,2) и к изменению характера ДФП от двухступенчатого к двухфотонному.

Несмотря на сильные температурные изменения значений β , характер спектральной зависимости β в целом сохраняет свою структуру, состоящую из трех участков (рис.1). Аналогичная структура спектров ДФП в области прямого поглощения наблюдалась ранее в кристаллах со структурой перовскита (например в $BaTiO_3$ и в $SrTiO_3$) ⁴. В этих кристаллах структура края ДФП связана с переходами из валентных подзон $2p$ -зоны кислорода в $3d$ -зону проводимости титана. Исходя из этой аналогии спектров ДФП в YIG и в перовскитах и учитывая, что при энергиях $\sim 2,9$ эВ в YIG наблюдается фотопроводимость ⁸, можно сделать вывод, что спектр нелинейного поглощения в YIG соответствует собственным прямым переходам между валентной $2p$ -зоной кислорода и $3d$ -зоной проводимости железа в октаэдрической подрешетке.

Таким образом, проведенное исследование позволило впервые отделить в YIG область $2p-3d$ переходов от переходов в ионах Fe^{3+} между $3d$ -состояниями в кристаллическом поле и точно определить величину межзонного зазора $E_g = 2,66$ эВ (при 298 К). Было обнаружено, что в формировании ДФП в магнитоупорядоченных кристаллах большую роль могут играть промежуточные электронные состояния $3d$ -ионов, а изменение формы модуляционного сигнала может быть использовано для определения времени жизни этих состояний. Дальнейшие исследования YIG и других магнитоупорядоченных диэлектриков методами нелинейной спектроскопии позволят, по нашему мнению, решить многие важные вопросы их электронной структуры.

Литература

1. *Zaanan J., Sawatzky G.A., Allen J.W.* Phys.Rev.Lett., 1985, 55, 418.
2. *Scott G.B.* in Physics of Magnetics, Edited by A.Paoletti, North-Holland, Amsterdam, 1978, p. 445.
3. *Mahr H.* in Quantum Electronics, Edited by Herbert Rabin, C.L.Tang, Academic Press, London, 1975, p. 286.
4. *Шаблаев С.И.* Автореферат кандидатской диссертации. Л., 1984.
5. *Балтрамеюнас Р., Вайткус Ю., Вицакас Ю., Гаврюшин В., Кубертавичюс В., Рачюкайтис Г.* Изв.АН СССР, сер. физ., 1982, 46, 1442.
6. *Кричевцов Б.Б., Очиллов О., Писарев Р.В.* ФТТ, 1983, 25, 2204.
7. *Wood D.L., Remeika J.P.* J.Appl.Phys., 1967, 38, 1038.
8. *Metselar R., Larsen P.K.* Sol.St. Comm., 1974, 15, 291.