

## *d-f*-ОБМЕННЫЙ РЕЗОНАНС И "j - ПОЛЯРОН" В МЕТАЛЛИЧЕСКОМ ГАДОЛИНИИ

А.Б.Безносков, В.П.Гнездилов, В.В.Еременко

Экспериментально и теоретически исследованы температурные зависимости спектров динамической проводимости монокристаллического гадолиния в области *d-f*-обменного резонанса. Согласие с экспериментом достигнуто путем введения в теорию квазилокализованных электронных состояний *d*-типа с индивидуальными осями квантования на каждом атоме – *j*-поляронов.

В общепринятой в настоящее время модели электронной структуры редкоземельных металлов (РЗМ) коллективизированные (*c*) электроны обладают при произвольной температуре определенной *z*-проекцией спина в системе координат кристалла. В ферромагнитных РЗМ обменное взаимодействие с локализованными 4*f*-электронами приводит к раздвижке подзон *c*-электронов с противоположными спинами (поляризация Вонсовского – Зинера<sup>1</sup>). При этом возникает возможность резонансного поглощения света на частоте

$$\omega_{cf} \approx I_{cf} S M, \quad (1)$$

где  $I_{cf}$  – обменный параметр,  $S = 7/2$  – спин 4*f*-оболочки РЗ иона,  $M$  – магнитный параметр порядка. Интенсивность поглощения определяется законом дисперсии *c*-электронов и не зависит от ориентации осей легкого намагничивания.

Нами, однако, получены экспериментальные данные, опровергающие мнение об универсальности картины применительно к РЗМ. Исследованные с помощью оптической эллипсометрической методики на монокристаллическом образце Gd с высоким качеством отражающей поверхности температурные зависимости компонент  $\sigma^{zz}(\omega)$  и  $\sigma^{yy}(\omega)$  тензора динамической проводимости позволили установить, что в магнитоупорядоченном состоянии зависимости  $\sigma(\omega)$  содержат "неподвижные" магнитные мультиплетные полосы в областях  $0,55 < \hbar\omega < 0,8$  эВ и  $0,5 < \hbar\omega < 0,9$  эВ соответственно для  $\sigma^{zz}(\omega)$  и  $\sigma^{yy}(\omega)$  (ось *Z* соответствует направлению  $\langle 0001 \rangle$ , а ось *Y* – направлению  $\langle 10\bar{1}0 \rangle$  в ГПУ решетке кристалла). Температурное семейство зависимостей  $\sigma^{zz}(\omega)$  в интервале энергий вблизи центра магнитной полосы поглощения представлено на рис. 1. На рис. 2 представлены температурные зависимости  $\sigma_{0,6}^{zz}$  и  $\sigma_{0,71}^{yy}$  в точках, соответствующих одному из пиков (для определенности, наибольшему) этих мультиплетов, и температурная зависимость угла  $\varphi$  между направлением спонтанного магнитного момента и осью *C* кристалла из<sup>2</sup>. Как видно из рисунков, магнитные полосы оптического поглощения с центрами на частотах, близких к частоте

$$\omega_{df} = \hbar^{-1} 2I_{df} S = \hbar^{-1} 0,7 \text{ эВ} \quad (2)$$

$d$ - $f$ -обменного резонанса в свободном атоме Gd ( $I_{df} = 0,1$  эВ —  $5d$ - $4f$ -обменный интеграл в РЗМ), появляются ниже точки Кюри  $\theta_C$  и растут вместе со спонтанным магнитным моментом, не смещаясь, как того следовало бы ожидать на основании соотношения (1), по частоте, что весьма точно устанавливается по положению максимумов тонкой структуры полос. Подбор простых степенных зависимостей  $\sigma(M)$  при  $\omega = \omega_{df}$  показал, что наиболее близка к эксперименту зависимость  $\sigma(M) - \sigma(0) \propto M^2$  (пунктир на рис. 2). Наблюдаемое для  $\sigma^{zz}$  отклонение от этой зависимости коррелирует с изменением угла  $\varphi$ . В целом, зависимости  $\sigma^{zz}(\omega_{df})$  и  $\sigma^{yy}(\omega_{df})$  удовлетворительно описываются простыми формулами (в единицах  $10^{14} \text{ c}^{-1}$ )

$$\sigma^{zz} = (10,59 \pm 3,40)M^2 \cos^2 \varphi + (23,53 \pm 1,18), \quad (3a)$$

$$\sigma^{yy} = (2,13 \pm 0,03)M^2 + (20,28 \pm 0,01). \quad (3b)$$

Большая интенсивность полос и поляризация отраженного от образца света указывают на электродипольный характер оптического поглощения на частоте  $\omega_{df}$ . Поэтому представляется довольно загадочной, в той же мере, что и выполнение в кристалле соотношения (2) взамен (1), сильная зависимость  $\sigma(\omega_{df})$  от  $\varphi$  типа (3a).

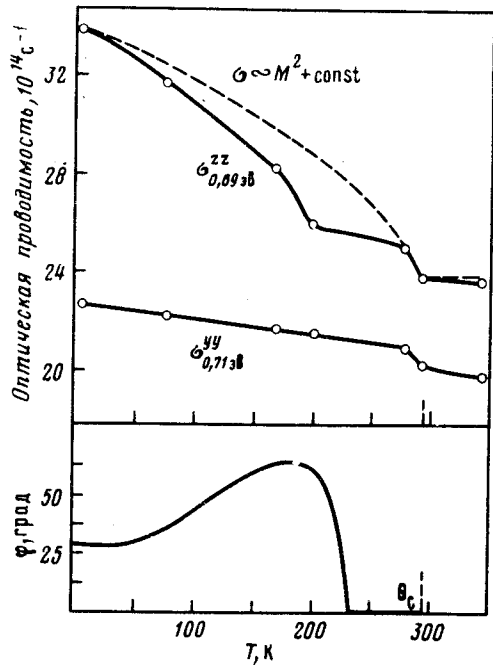
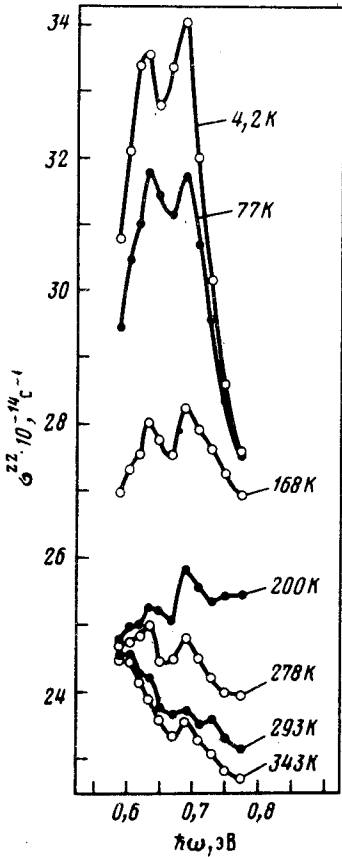


Рис. 2. Температурные зависимости резонансных проводимостей  $\sigma_{0,69}^{zz}$  и  $\sigma_{0,71}^{yy}$ , а также угла  $\varphi$  между направлением спонтанного магнитного момента и осью  $C$  в массивном кристалле гадолиния

Рис. 1. Температурное семейство спектральных зависимостей компоненты  $\sigma^{zz}$  тензора динамической проводимости гадолиния вблизи центра мультиплетной полосы  $d$ - $f$ -обменного резонанса

Зависимости (2) и (3) естественным образом возникают в модели квазисвязанных  $5d$ -электронов РЗМ с индивидуальной осью квантования на каждом атоме. Обоснование для такой модели может быть получено из следующего рассуждения. Будем различать внутриатомные ("оптические") колебания спиновых и орбитальных моментов, при которых изменяется конфигурация системы  $4f$ - и  $5d$ -электронов внутри атома, и межатомные ("тепловые")

колебания, при которых изменяется магнитный момент пары атомов, в каждом из которых он остается неизменным. Частоты первых равны, соответственно,  $\hbar\omega_{df} = 2I_{df}S = 0,7$  эВ и  $\hbar\omega_{SL} = \zeta s(2L + 1) = 0,325$  эВ, частоты вторых  $\hbar\omega_q \lesssim 2ZIS = 1,2 \cdot 10^{-2}$  эВ. Здесь  $\zeta = 0,13$  эВ — константа спинорбитальной связи с  $Gd^3$ ,  $s = 1/2$  и  $L = 2$  — соответственно спин и орбитальный момент  $5d$ -электрона,  $I = 1,43 \cdot 10^{-4}$  эВ — межатомный обменный интеграл в РЗМ,  $Z = 12$  — число ближайших соседей. Поскольку  $\omega_{df} \sim \omega_{SL} \gg \omega_q$ , оптические колебания будут подстраиваться под значительно более медленные тепловые колебания полного момента  $J$   $4f$ -оболочки, задающего направление локальной оси квантования как спиновых, так и орбитальных состояний  $5d$ -электронов. Таким образом, мы приходим к состояниям, аналогичным спинполяронам Нагаева в магнитных полупроводниках<sup>4</sup>, однако в данном случае соответствующую квазичастицу следовало бы называть "j-поляроном". Пользуясь терминологией<sup>4</sup>, можно сказать, что в такой модели РЗМ движение электрона проводимости по кристаллу эквивалентно движению "неправильного" полного момента  $j$   $5d$ -электрона по решетке "правильных" моментов  $J$   $4f$ -оболочек. Разумеется, для существования  $j$ -полярона оказываются весьма благоприятными небольшие значения интегралов перескока  $5d$ -электронов, которые эффективно реализуются в РЗМ, имеющих обширные плоские участки зон как под, так и над уровнем Ферми.

В  $j$ -поляронной модели на частоте  $\omega_{df}$  с внешним электрическим полем  $E$  взаимодействует в ферромагнитном случае вектор  $D$  эффективного дипольного момента кристалла, представляющий собой среднее от локальных дипольных моментов  $5d\uparrow - 5d\downarrow$ -переходов и связанный по величине и направлению с намагниченностью  $M$ . Это сразу приводит к зависимости  $\sigma \propto |DE|^2 = f(\alpha)M^2 \cos^2 \alpha$ , где  $\alpha = \hat{ME}$ , а  $f(\alpha)$  — определяется механизмом снятия запрета на  $5d\uparrow - 5d\downarrow$ -переход. Вычисляя  $\sigma(\omega)$ , мы упростили задачу — рассматривался один  $5d$ -электрон и один канал электродипольного  $5d\uparrow - 5d\downarrow$ -перехода, запрет на который снимался за счет спин-орбитальной связи и нечетной составляющей кристаллического поля. Это упрощение облегчило расчет, но загрузило результат, особенно в отношении  $\sigma^{yy}$ . Рассчитанные значения  $\sigma^{zz}$  и  $\sigma^{yy}$  (работа с подробностями расчета готовится к публикации) удовлетворяют условию (2), проявляют квадратичную зависимость от  $M$  и дают правильное соотношение числовых коэффициентов при  $M^2$ :

$$\sigma^{zz}(\omega_{df}) \approx 13,5AM^2 \cos^2 \varphi, \quad \sigma^{yy}(\omega_{df}) \approx 2,9AM^2 \sin^2 2\varphi,$$

$A$  — константа. Как видим,  $\sigma^{zz}$  соответствует (3а),  $\sigma^{yy}$  содержит "лишнюю" зависимость от  $\varphi$ . Эта зависимость может быть ослаблена включением дополнительных механизмов снятия запрета на  $5d\uparrow - 5d\downarrow$ -переход, например, учетом динамической нечетной составляющей кристаллического поля.

Как следует из полученных результатов, в своих основных чертах введенная в работе  $j$ -поляронная модель согласуется с экспериментом и может поэтому являться основой для поиска адекватной картины электронной структуры РЗМ и других переходных металлов.

Авторы выражают благодарность И.С.Сандалову и Г.С.Никольскому за полезные обсуждения проблемы.

#### Литература

1. *Вонсовский С.В.* Магнетизм. М.: Наука, 1971.
2. *Cable J.W., Wollan E.O.* Phys. Rev., 1968, 165, 733.
3. *Callahan W.R.* J. Opt. Soc. Amer., 1963, 53, 659, 695.
4. *Нагаев Э.Л.* Физика магнитных полупроводников. М.: Наука, 1979.