

**НЕЧЕТНОЕ ПО НАМАГНИЧЕННОСТИ НЕВЗАИМНОЕ
ОТРАЖЕНИЕ СВЕТА ОТ
МАГНИТОЭЛЕКТРИКА-ФЕРРИМАГНЕТИКА LiFe_5O_8**

В.Н.Гриднев, Б.Б.Кричевцов, В.В.Павлов, Р.В.Писарев

Физико-технический институт им. А.Ф.Иоффе РАН

194021 Санкт-Петербург, Россия

Поступила в редакцию 28 ноября 1996 г.

При отражении света от плоскости (111) нецентросимметричного кристалла LiFe_5O_8 в поперечной геометрии $\mathbf{k} \perp \mathbf{M}$, когда линейный эффект Керра запрещен, обнаружен круговой дихроизм, изменяющий знак при перемагничивании и обладающий 120°-ной периодичностью. Показано, что это явление связано с проявлением оптической магнитоэлектрической восприимчивости и эффектом Керра, третьего порядка по намагниченности. Спектральные зависимости кругового дихроизма в диапазоне $1.4 \div 3.1$ эВ показывают резонансный характер этого явления.

PACS: 75.50.Gg, 75.80.+q, 78.20.Ls

Известно, что в кристаллах с нарушенной инвариантностью по отношению к операции обращения времени возможно существование так называемых не взаимных оптических явлений [1]. Хорошо известны не взаимные эффекты Фарадея и Керра, наблюдаемые в прохождении и отражении света, соответственно [2, 3]. Эти эффекты широко используются для изучения электронных состояний и магнитных структур магнетиков, полупроводников, сверхпроводников и металлов. Однако симметричный анализ показывает [4–6], что спектр возможных не взаимных эффектов может быть значительно шире и не должен ограничиваться эффектами Фарадея и Керра. Так, до недавнего времени предполагалось, что необходимым условием возникновения не взаимных оптических эффектов является наличие спонтанной или индуцированной внешним магнитным полем намагниченности M . Но теперь очевидно, что это условие является достаточным, но не необходимым. Не взаимные эффекты в прохождении и отражении света возможны, например, в кристаллах с нулевым магнитным моментом и с нецентросимметричной магнитной структурой, как это было показано недавно в антиферромагнитном кристалле Cr_2O_3 [6–8]. Интерес к изучению нетрадиционных не взаимных эффектов связан с тем, что их величина и знак определяются микроскопическими механизмами, принципиально отличными от механизмов традиционных магнитооптических эффектов [4, 5, 8, 9].

В настоящей работе мы сообщаем о новом явлении не взаимного отражения света от нецентросимметричного кристалла со спонтанной намагниченностью M при нормальном падении в поперечной геометрии $\mathbf{k} \perp \mathbf{M}$, то есть при условиях, когда линейный по намагниченности эффект Керра обращается в нуль. Мы покажем, что наблюдаемый эффект связан с магнитоэлектрической (МЭ) восприимчивостью и с эффектом Керра третьего порядка по намагниченности.

Эксперимент. Объектом исследования был выбран хорошо известный литиевый феррит LiFe_5O_8 [10], имеющий структуру шпинели. При температурах $T > 1020$ К его структура описывается кубической группой O_h^7 . Ниже 1020 К при медленном охлаждении кристалла вследствие упорядочения иона Li^+ и

трех ионов Fe^{3+} в элементарной ячейке вдоль направлений типа (110) симметрия кристалла понижается и описывается нецентросимметричной группой O^6 . При температурах $T_C < 943$ К литиевый феррит обладает ферромагнитным упорядочением с осью легкого намагничивания вдоль направлений типа (111). Магнитные моменты тетраэдрической (А) и октаэдрической (В) подрешеток Fe^{3+} направлены антипараллельно вследствие антиферромагнитного А-В взаимодействия. Линейный МЭ эффект в LiFe_5O_8 по измерению ферромагнитного резонанса исследовался в [11]. Магнитооптический эффект Керра в LiFe_5O_8 изучался в [12, 13].

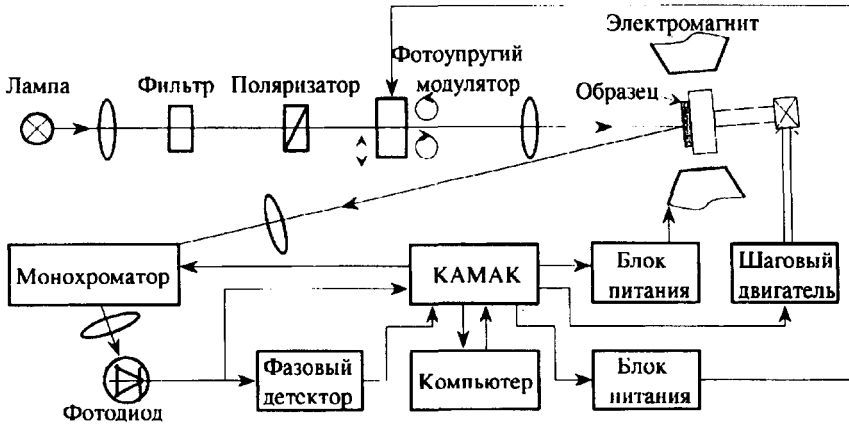


Рис.1. Схема экспериментальной установки для изучения кругового дихроизма в отражении света

В данной работе исследовался круговой дихроизм (КД), изменяющий знак при перемагничивании кристалла $+M \rightarrow -M$, в поперечной геометрии $k \perp M$ при отражении света от плоскости типа (111). Экспериментальная установка показана на рис. 1. Луч света от лампы накаливания мощностью 300 Вт проходил через конденсор, водяной фильтр, поляризатор, фотоупругий модулятор и фокусировался на образец. Водяной фильтр служил для предотвращения нагрева образца. Образец на держателе мог поворачиваться с помощью шагового двигателя вокруг нормали к его поверхности на угол $\phi = 0 \div 360^\circ$. Образец находился в зазоре электромагнита, создававшего в плоскости образца магнитное поле величиной до $H = \pm 1$ Тл, что значительно превышало поле магнитной анизотропии $H_A = 0.029$ Тл. Отраженный луч фокусировался на щель монохроматора. Свет, вышедший из монохроматора, фокусировался на кремниевый фотодиод. Переменная составляющая предварительно усиленного электрического сигнала с фотодиода подавалась на фазовый детектор. Обработка экспериментальных данных осуществлялась компьютером и интерфейсом типа КАМАК. Постоянная составляющая сигнала фотоприемника измерялась аналого-цифровым преобразователем. Амплитуда и знак магнитного поля, величина полуволнового напряжения на модуляторе, длина волны света и угол поворота кристалла могли меняться по специальной программе. Величина КД определялась как относительная разность интенсивностей $(I^+ - I^-)/(I^+ + I^-)$ отраженного от кристалла света с правой (I^+) и левой (I^-) круговой поляри-

заций. Измерения проводились при температуре $T = 294$ К в спектральном диапазоне $1.4 \div 3.1$ эВ. Угол между волновым вектором света \mathbf{k} и нормалью к поверхности образца не превышал 10° . Его наличие было обусловлено необходимостью разведения падающего и отраженного лучей. Чувствительность измерения КД составляла $\sim 10^{-5}$. Образцы представляли собой пластинки типа (111) с размерами $5 \times 4 \times 1$ мм³, ориентированные рентгенографическим методом с точностью определения положения осей $\sim 1^\circ$.

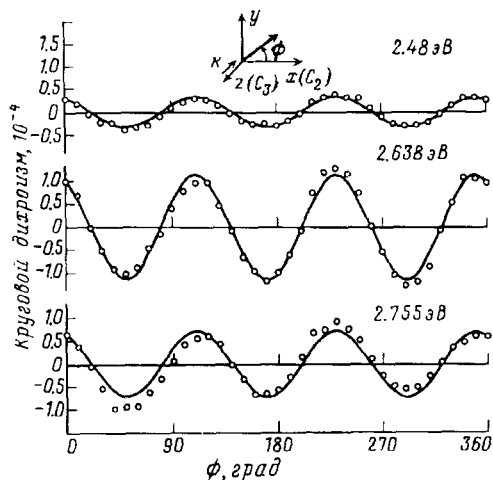


Рис.2. Угловые зависимости кругового дихроизма при вращении намагнитченности в плоскости типа (111) в LiFe_5O_8 . $\phi = 0$ соответствует $\mathbf{M} \parallel \mathbf{C}_2$. Точки – экспериментальные данные, сплошные кривые – результаты расчета. На вставке показана геометрия эксперимента

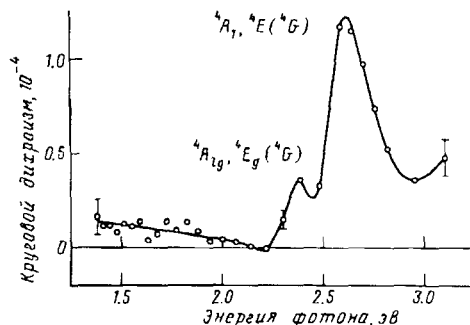


Рис.3 Спектральная зависимость кругового дихроизма в отражении в LiFe_5O_8

Результаты. На рис.2 приведены угловые зависимости КД света, отраженного от образца LiFe_5O_8 . Вращение образца осуществлялось вокруг оси [111], являющейся нормалью к его поверхности. Зависимости приведены для трех значений энергии фотонов (2.48, 2.638, 2.755 эВ) и величины магнитного поля 0.7 Тл. Все угловые зависимости КД идентичны и обладают 120° -ной периодичностью. Угол $\phi = 0^\circ$ соответствует направлению магнитного поля \mathbf{H} , параллельному оси \mathbf{C}_2 . Неточная ориентация \mathbf{H} относительно плоскости образца могла бы приводить к появлению полярного эффекта Керра, величина которого не зависела бы от угла ϕ . Этот нежелательный эффект исключался точной ориентацией \mathbf{H} параллельно плоскости образца.

На рис.3 приведена спектральная зависимость КД, соответствующая максимуму на угловой зависимости этого эффекта ($\phi = 110^\circ$). В спектре наблюдаются слабый максимум (2.4 эВ) и более сильный и широкий в области 2.6 эВ. Их положение соответствует электронным переходам, наблюдавшимся при спектральных измерениях эффекта Керра в LiFe_5O_8 [13]. Однако необходимо отметить, что в нашей работе измерялся КД в поперечном магнитном поле, в то время как в [13] измерялось вращение плоскости поляризации отраженного света в продольном поле.

Анализ результатов. Проанализируем экспериментальные результаты в рамках феноменологической теории. Пусть свет распространяется вдоль оси z лабораторной системы координат, совпадающей с осью C_3 ([111]), а ось x совпадает с осью C_2 ([110]) (см. вставку на рис. 2). Рассчитаем недиагональный элемент r_{xy} матрицы коэффициентов отражения света, который связан с эллиптичностью ϵ и поворотом плоскости поляризации θ отраженного света соотношением $\theta + i\epsilon = r_{xy}/R_0$, где R_0 - коэффициент отражения без учета намагниченности. Отметим, что КД в отражении пропорционален эллиптичности ϵ . Так как в оптике МЭ эффект проявляется только при учете пространственной дисперсии тензора диэлектрической проницаемости ϵ_{ij} , анализ отражения требует учета неоднородности среды из-за наличия границы [14]. Материальные соотношения при учете нечетных относительно обращения времени вкладов имеют вид [15]

$$D_i(\mathbf{r}) = [\epsilon_{ik}^s + \epsilon_{ik}^a + \frac{1}{2} \frac{\partial(\gamma_{ikl}^s - \gamma_{ikl}^a)}{\partial r_l}] E_k + \gamma_{ikl}^s \frac{\partial E_k}{\partial r_l}, \quad (1)$$

где индексы s и a обозначают симметричные и антисимметричные части материальных тензоров по отношению к перестановкам индексов i и k . Все слагаемые в (1), кроме первого, описывают интересующие нас невзаимные эффекты, а именно, тензор ϵ_{ik}^a описывает магнитооптический эффект Керра, а γ_{ikl} - линейную пространственную дисперсию, включающую МЭ вклад. Используя метод, предложенный в [16], для r_{xy} получаем:

$$r_{xy} = \frac{2k}{n_0(n_0 + 1)^2} \left[\frac{\epsilon_{xy}^a}{k} + i\gamma_{xyz}^a \right], \quad (2)$$

где $k = \omega n_0/c$.

Интересной особенностью LiFe_5O_8 является отсутствие линейных по намагниченности членов в (2) в поперечной геометрии $\mathbf{k} \perp \mathbf{M}$ при нормальном падении света. Для линейного по намагниченности эффекта Керра этот факт хорошо известен, и здесь мы приведем доказательство для МЭ эффекта. Вследствие антисимметричности γ_{xyz}^a по x и y и благодаря соотношениям дуальности, наиболее общее выражение для компоненты γ_{xyz}^a имеет вид $\gamma_{xyz}^a = e_{xyz} \beta_{zzk} M_k$, где $e_{xyz} = 1$ - компонента полностью антисимметричного тензора 3-го ранга, а β_{zzk} - компоненты материального тензора 3-го ранга. Однако в группе O компоненты $\beta_{zzk} = 0$. Следовательно, при нормальном падении света невзаимные эффекты в отражении от кристалла LiFe_5O_8 , намагниченного в плоскости (111), могут быть кубическими или более высокой нечетной степени по намагниченности. Учет кубических по M вкладов в ϵ_{xy}^a приводит к тому, что как в отражении, так и в прохождении света могут наблюдаться нечетные по M невзаимные эффекты в поперечной геометрии $\mathbf{k} \perp \mathbf{M}$ при нормальном падении. В кубических кристаллах эти эффекты отсутствуют, если свет распространяется вдоль четных осей симметрии 2-го и 4-го порядков, но могут проявляться вдоль любых других направлений, например, вдоль оси 3-го порядка типа (111). Вклад членов 3-го порядка по M в γ_{xyz}^a также приводит к появлению невзаимных эффектов, причем для ориентации кристалла с осью (111), перпендикулярной поверхности образца, он будет проявляться в виде 120° -ной периодичности эффектов, связанных как с ϵ_{xy}^a , так и с γ_{xyz}^a . Поэтому практически очень важно иметь критерии, позволяющие разделить

эти вклады. Мы укажем симметричный критерий, основанный на различных трансформационных свойствах тензоров ϵ_{ik}^a и γ_{ikl}^a .

Если $M \parallel x$, то компоненту ϵ_{xy}^a можно записать в виде $\epsilon_{xy}^a = e_{xyz} A_{zzzz} M_x^3$, где A_{zzzz} - компонента тензора 4-го ранга. При повороте кристалла вокруг оси x на 180° $A_{zzzz} \rightarrow -A_{zzzz}$ и компонента ϵ_{xy}^a меняет знак. Это означает, что эффект Керра отсутствует. Если $M \parallel y$, то при повороте на 180° вокруг оси x компонента ϵ_{xy}^a остается неизменной. Таким образом, угловая зависимость эффекта Керра 3-го порядка по M и связанного с ним КД в отражении имеет вид $KD = A \sin 3\phi$, где ϕ - угол между намагниченностью и осью C_2 в плоскости (111). Компонента γ_{xyz}^a имеет дополнительный индекс z по сравнению с ϵ_{xy}^a поэтому угловая зависимость КД, связанного с γ_{xyz}^a , описывается выражением $KD = B \cos 3\phi$, то есть эффект отличен от нуля, когда $M \parallel C_2$, и равен нулю, когда $M \perp C_2$.

Экспериментальные зависимости КД, изменяющего знак при перемагничивании кристалла, описываются гармоникой 3-го порядка $\sin(3\phi + \phi_0)$, где $\phi_0 = 10^\circ$ (рис. 2). Такие угловые зависимости не могут быть связаны с продольным эффектом Керра из-за наличия небольшого угла между падающим и отраженным лучами, так как этот эффект не должен зависеть от угла ϕ . Таким образом, наблюдаемый КД можно связать только с проявлением эффекта Керра 3-го порядка и МЭ вкладом. Поскольку угол $\phi_0 \simeq 10^\circ$, $A/B = \text{tg} 10^\circ \sim 0.2$, мы можем заключить, что МЭ вклад в КД в исследованном спектральном диапазоне существенно больше.

Спектральная зависимость КД в LiFe_5O_8 (рис.3) имеет выраженный резонансный характер и характеризуется наличием двух полос при энергиях $E = 2.4$ эВ и $E = 2.6$ эВ, относимых к переходам в ионах Fe^{3+} соответственно в октаэдрических и тетраэдрических позициях [13]. Важно отметить, однако, что измеренный КД пропорционален эллиптичности ϵ отраженного света, которая в случае эффекта Керра имеет в области электронных переходов спектральную зависимость дисперсионного типа [2]. В то же время спектр КД, обусловленный МЭ механизмом, характеризуется в области электронных переходов зависимостью резонансного типа [8, 9], как это и наблюдается в эксперименте.

Основной результат данной работы заключается в обнаружении спонтанного невязимного кругового дихроизма в нецентросимметричном кубическом кристалле. Необычность этого явления состоит в том, что невязимость наблюдается при нормальном падении в поперечной геометрии $k \perp M$, то есть когда линейный магнитооптический эффект Керра обращается в нуль. Симметричный анализ показал, что обнаруженный эффект определяется двумя различными механизмами, в большей степени оптической МЭ восприимчивостью и частично эффектом Керра третьего порядка по намагниченности. Большая величина эффекта в LiFe_5O_8 связана, по нашему мнению, с тем, что она определяется спонтанной намагниченностью, а также резонансным усилением эффекта в области электронных переходов. В принципе эффекты такого типа должны существовать в нецентросимметричных диа- и парамагнитных кристаллах в магнитном поле, но в этом случае вопрос об их величине может быть решен только в дальнейших экспериментах.

Авторы благодарят Н.Ф.Картенко за ориентацию образцов. Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований и программы "Фундаментальная спектроскопия".

-
1. Л.Д.Ландау, Е.М.Лифшиц, *Электродинамика сплошных сред*, 3 изд., М.: Наука, 1992.
 2. J.F.Dillon, Jr., In: *Physics of Magnetic Garnets*. Ed. A.Paoletti, North-Holland, Amsterdam, 1978, p.379.
 3. J.Schoenes, In: *Materials Science and Technology*, vol.3A. Ed. K.H.J.Buschow, VCH, Weinheim, 1992, p.147.
 4. L.D.Baron, *Molecular Light Scattering and Optical Activity*. Cambridge University Press, Cambridge, 1982.
 5. E.B.Graham and R.E.Raab, *Phil. Mag.* B **64**, 267 (1991); **66**, 269 (1992).
 6. A.L.Shelankov and G.E.Pikus, *Phys. Rev. B* **46**, 3326 (1992).
 7. R.V.Pisarev, B.B.Krichevstov, and V.V.Pavlov, *Phase Transitions* **37**, 63 (1991).
 8. B.B.Krichevstov, V.V.Pavlov, R.V.Pisarev, and V.N.Gridnev, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 4628 (1996).
 9. Б.Б.Кричевцов, В.В.Павлов, Р.В.Писарев, В.Н.Гриднев, *ЖЭТФ* **110**, 1505 (1996).
 10. Landolt-Boernstein, *Zahlenwerte und Funktionen*, 9. teil, Magnetic Properties I, Springer-Verlag, Berlin, 1962.
 11. G.T.Rado, *J. Magn. Magn. Mat.* **15-18**, 542 (1980).
 12. А.В.Малаховский, И.С.Эдельман, В.П.Гаврилин, Г.И.Баринов, *ФТТ* **16**, 410 (1974).
 13. S.Visnovsky and R.Krishnan, *Appl. Phys.* **18**, 243 (1979).
 14. В.М.Агранович, В.Л.Гинзбург, *Кристаллооптика с учетом пространственной дисперсии и теория экситонов*, М.: Наука, 1979.
 15. B.B.Krichevstov, V.V.Pavlov, R.V.Pisarev, and V.N.Gridnev, *J. Phys.: Condens. Matter* **5**, 8233 (1993).
 16. V.N.Gridnev, *Phys. Rev. B* **51**, 13079 (1995).