

УДК 535.343.2

©1994

МАГНИТООПТИЧЕСКАЯ АКТИВНОСТЬ РЕДКОЗЕМЕЛЬНЫХ ИОНОВ В ГРАНАТАХ ПРИ НИЗКОЙ ТЕМПЕРАТУРЕ

Н.Ф.Ведерников, Г.П.Сигал, Б.Ю.Соколов

Исследованы полевая и температурная зависимости эффекта Фарадея в гранатах $\text{Nd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$, $\text{Er}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ и $\text{Yb}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$. Измерения фарадеевского вращения проводились вдоль разных кристаллографических направлений на лазерной длине волны 0.63μ в магнитном поле до 17 кОе в температурном интервале 4.2–60 К. Из сравнения полученных результатов с данными магнитных измерений показано, что в исследованном интервале температур и магнитных полей эффект Фарадея в гранатах $\text{Nd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$, $\text{Er}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ и $\text{Yb}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ описывается теорией, основывающейся на приближении Джада-Офельта.

Известно, что в видимой области спектра магнитооптическая активность (МОА) соединений, содержащих трехвалентные редкоземельные (РЗ) ионы, определяется главным образом разрешенными электродипольными переходами в РЗ ионах типа $4f^n \rightarrow 4f^{n-1}5d$ с энергиями $10^4 - 10^5 \text{ см}^{-1}$. Традиционно считается, что при описании эффекта Фарадея на длинноволновом крыле этих переходов можно пренебречь расщеплением уровней $4f^{n-1}5d$ конфигурации РЗ иона (приближение Джада-Офельта). В рамках этого приближения эффект Фарадея для РЗ ионов, у которых в основном состоянии $S, L, J \neq 0$, может быть представлен в виде суммы вкладов трех механизмов МОА — «диамагнитного», «смешивания» и «парамагнитного» (так называемые A, B, C -члены эффекта Фарадея соответственно [1]). Первые два вклада в эффект Фарадея РЗ ионов обычно значительно меньше «парамагнитного» и при температуре $T < 100 \text{ К}$ ими можно пренебречь [2,3]. «Парамагнитный» вклад пропорционален намагниченности M , поэтому при низких температурах полевая, ориентационная и температурные независимости фарадеевского вращения в РЗ соединениях полностью определяются соответствующими зависимостями M .

Альтернативный приближению Джада-Офельта подход обсуждается в [4]: сильное расщепление кристаллическим полем возбужденной $4f^{n-1}5d$ конфигурации РЗ иона приводит к появлению значительно по величине кристаллополевого «диамагнитного» вклада в эффект Фарадея. Проведенное в [4] теоретическое рассмотрение показало, что кристаллополевой вклад в общем случае анизотропен для разных кристаллографических направлений и изменяется с температурой по закону $\sim 1/T^2$, что делает его наиболее существенным при низких температурах. Здесь укажем, что сильная анизотропия эффекта Фарадея

и различие в поведении температурных зависимостей фарадеевского вращения и магнитной восприимчивости кристалла $\text{Yb}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ наблюдались для температур $T < 100$ К в [5].

За исключением работы [5], нам не известно о каких-либо систематических экспериментальных исследованиях МОА парамагнитных РЗ соединений, выполненных для температур ниже азотной. Имеющиеся же в литературе результаты по эффекту Фарадея в РЗ ферритах-гранатах трудно интерпретировать однозначно из-за сложной магнитной структуры этих ферримангнетиков [2]. Поэтому вопрос об актуальности кристаллополюсового вклада в эффект Фарадея РЗ соединений в настоящее время остается открытым.

С целью выяснения природы МОА РЗ ионов были проведены исследования фарадеевского вращения в относительно простых, с точки зрения их магнитных и оптических свойств, кристаллах-гранатах $\text{Nd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ (NdGG), $\text{Er}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ (ErAG) и $\text{Yb}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ (YbAG), результаты которых представлены в данной работе.

1. Образцы и методика измерений

Исследования эффекта Фарадея проводились на монокристаллических образцах гранатов NdGG, ErAG и YbAG, выращенных методом спонтанной кристаллизации из раствора в расплаве. Образцы представляли собой пластинки размерами $\sim 6 \times 5 \times 1$ мм, плоскости которых были параллельны кристаллографическим плоскостям (111), (110), (100) для NdGG, ErAG и (110), (100) для YbAG. Ошибка в ориентации образцов относительно заданного кристаллографического направления составляла $\sim 1.5^\circ$.

Измерения эффекта Фарадея проводились на длине волны 0.63μ излучения гелий-неонового лазера в постоянном магнитном поле напряженностью до 17 кОе в обычной продольной геометрии (магнитное поле ориентировано вдоль направления распространения света) по методике с использованием непрерывно вращающегося анализатора с чувствительностью по углу поворота плоскости поляризации света $\sim 0.02^\circ$ [6].

Образец размещался в проточном оптическом криостате и охлаждался потоком газообразного гелия заданной температуры в интервале 4.2–60 К.

Погрешность измерений эффекта Фарадея определялась главным образом ошибкой в измерениях температуры и во всех экспериментах не превышала 5%.

2. Экспериментальные результаты

Поскольку ниже результаты исследований эффекта Фарадея в NdGG, ErAG и YbAG будут сравниваться с данными магнитных измерений, опубликованных ранее в [7,8], в начале этого раздела кратко остановимся на основных магнитных свойствах этих гранатов.

Гранаты NdGG, ErAG и YbAG парамагнитны вплоть до температур $T \lesssim 0.5$ К [9]. Магнитный момент NdGG имеет слабо выраженную анизотропию с осью легкого намагничивания, параллельной кристаллографическому направлению [111]. Намагниченности ErAG и YbAG

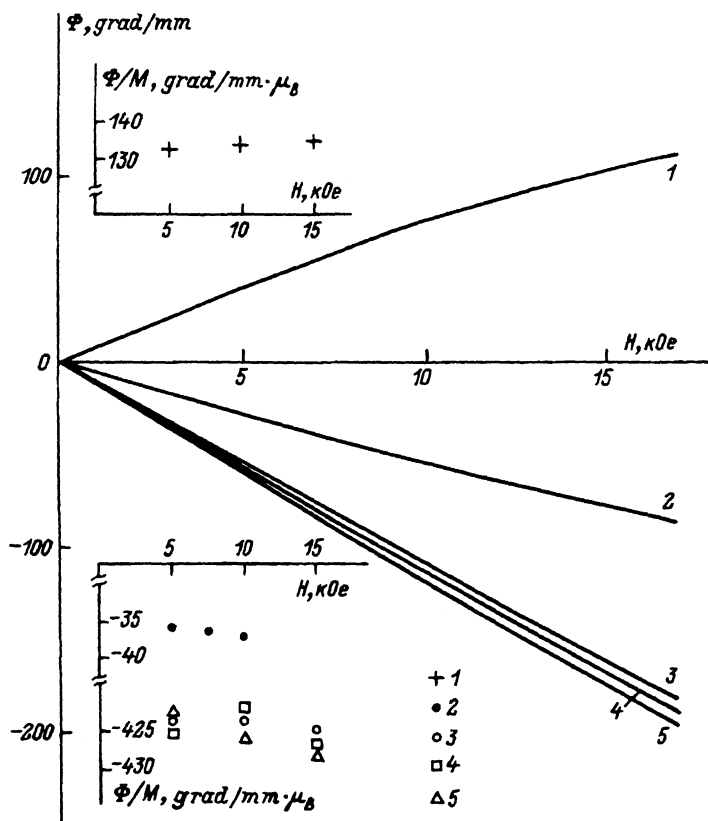


Рис. 1. Полевые зависимости эффекта Фарадея исследованных гранатов при $T = 4.2$ К.

YbAG, $H \parallel [100]$ (1); ErAG, $H \parallel [100]$ (2); NdGG, $H \parallel [100]$ (3), $H \parallel [110]$ (4), $H \parallel [111]$ (5).
 На вставках — зависимости Φ/M от H при 4.2 К. YbAG, $H \parallel [100]$ (1); ErAG, $H \parallel [100]$ (2);
 NdGG, $H \parallel [100]$ (3), $H \parallel [110]$ (4), $H \parallel [111]$ (5).

практически изотропны. При температуре $T = 4.2$ К намагниченности NdGG, ErAG и YbAG насыщаются в магнитном поле $H \approx 60$ кОе и достигают значений 1.24, 4.55 и 1.78 μ_B /ион соответственно [7,8]. В парамагнитной области температур магнитная восприимчивость этих гранатов уменьшается с ростом температуры приблизительно по закону Кюри-Вейсса [3].

Как показали измерения, полевые зависимости фарадеевского вращения исследованных гранатов коррелируют с поведением их намагниченностей. Эффект Фарадея в NdGG имеет слабую анизотропию с наибольшим значением вдоль направления [111]. В ErAG и YbAG фарадеевское вращение в пределах точности эксперимента не зависит от ориентации магнитного поля относительно кристаллографических осей.

Зависимости эффекта Фарадея NdGG, ErAG и YbAG от величины внешнего магнитного поля при температуре $T = 4.2$ К показаны на рис. 1. Температурные зависимости эффекта Фарадея этих гранатов, полученные в магнитном поле $H = 17$ кОе, приведены на рис. 2.

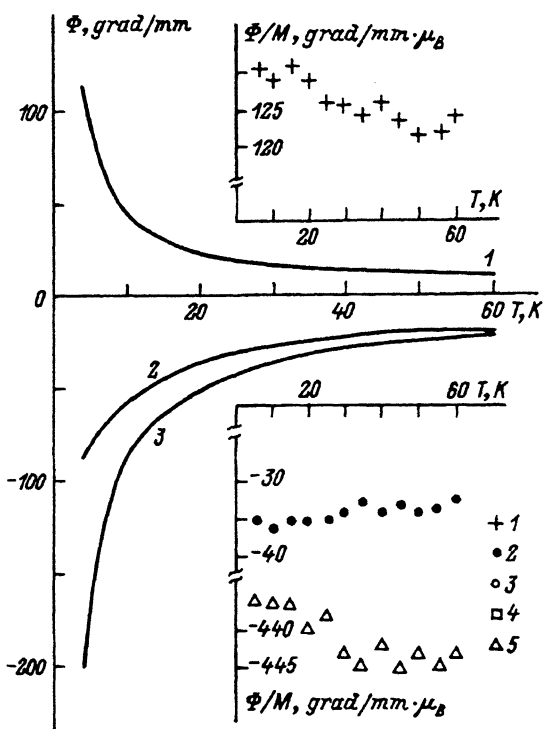


Рис. 2. Температурные зависимости фарадеевского вращения исследованных гранатов при $H = 17$ кОе. YbAG, $H \parallel [100]$ (1); ErAG, $H \parallel [100]$ (2); NdGG, $H \parallel [111]$ (3). На вставках — зависимости Φ/M от T при $H = 17$ кОе гранатов YbAG, ErAG и NdGG (обозначения те же, что и на рис. 1).

Строго говоря, в гранатах как в кубических кристаллах эффект Фарадея в чистом виде (т.е. явление магнитного кругового дупреломления) может наблюдаться лишь вдоль направлений, эквивалентных [100] и [111]. При произвольном направлении вектора M относительно кристаллографических осей происходит эллиптическое дупреломление, связанное с появлением вклада, квадратично зависящего от намагниченности [10]. Однако, как следует из наших измерений, для гранатов NdGG, ErAG и YbAG в исследованном интервале магнитных полей и температур вклад $\sim M^2$, по-видимому, незначителен, поскольку ход полевых и температурных зависимостей их фарадеевского вращения, наблюдаемых при H , параллельном оси [110], аналогичен соответствующим зависимостям, полученным для ориентации поля вдоль направлений [100] и [111] (с оговоркой, что в NdGG величина эффекта Фарадея различается для разных направлений в кристалле).

Для сопоставления полученных результатов с данными магнитных измерений из [7,8] на вставках к рис. 1,2 представлены полевые и температурные зависимости отношения угла фарадеевского вращения Φ исследованных гранатов к их намагниченности. При расчете приведенных на графиках значений Φ/M учитывался вклад в Φ от вращения диамагнитной матрицы граната, который считался равным эффекту

Гранат	C_T	C_H	$C^{[3]}$	D_T	D_H	$D^{[3]}$
	grad / mm · μB			grad / mm · kOe		
NdGG	430 ± 30	415 ± 32	470 ± 60	0.07 ± 0.02	0.3 ± 0.1	-0.15 ± 0.005
ErGG	42 ± 4	48 ± 6	35 ± 12	-0.3 ± 0.1	-2 ± 1	-3 ± 3
YbGG	-134 ± 10	-132 ± 13	-98 ± 8	0.1 ± 0.1	0.7 ± 0.3	0 ± 1.5

Фарадея в YGG для NdGG и YAG для ErAG и YbAG [11], а также вводилась поправка на размагничивающее поле NM с размагничивающим фактором $N = 10$.¹

Видно, что для исследованных гранатов полученные величины отношений Φ/M (T , H) практически не зависят от магнитного поля и температуры, т.е. в фарадеевском вращении этих гранатов не содержится сколько-нибудь существенного вклада, имеющего отличную от намагниченности полевую, ориентационную или температурную зависимость.

3. Обсуждение результатов

Проведенные измерения фарадеевского вращения в NdGG, ErAG и YbAG позволяют заключить, что в соответствии с результатами работ [2,3] определяющий вклад в формирование эффекта Фарадея этих гранатов при низких температурах вносит «парамагнитный» механизм МОА, обусловленный разной термической заселенностью уровней основного состояния РЗ иона. Следуя [2], запишем выражение для эффекта Фарадея в виде, удобном для анализа его полевой и температурной зависимостей

$$\Phi = CM + DH. \quad (1)$$

Здесь первое слагаемое описывает «парамагнитный» вклад в эффект Фарадея, а второе слагаемое — вклад «диамагнитного» механизма и механизма «смешивания». Коэффициенты C и D в первом приближении можно считать не зависящими от температуры и магнитного поля.

Величины коэффициентов C и D , полученные из расчета по формуле (1) с использованием результатов измерений полевых (C_H , D_H) и температурных (C_T , D_T) зависимостей эффекта Фарадея и намагниченности исследованных гранатов, представлены в таблице. Там же для сравнения приведены значения C и D , определенные из результатов измерений в температурном интервале 80–300 К [3]. Обращает на себя внимание тот факт, что значения коэффициентов C_H и D_T в пределах точности эксперимента для всех исследованных гранатов совпадают между собой и согласуются с данными из [3]. В то же время для всех гранатов наблюдается значительное систематическое завышение значений D_H по сравнению с величинами D_T .

¹ Измерения намагниченности в [7,8] были проведены на образцах сферической формы с $N = 4\pi/3$.

Существенное различие (превышающее ошибку измерений) в величинах коэффициентов D , определенных из результатов разных экспериментов, можно связать с тем, что условие температурной независимости этого коэффициента является строгим только в области достаточно высоких температур, где термически заселены все уровни основного мультиплета РЗ иона [2]. При температурах, близких к гелиевым, для более корректного сопоставления выражения (1) с экспериментом необходимо учитывать температурную зависимость D . В целом же можно заключить, что теория эффекта Фарадея, основывающаяся на приближении Джада-Офельта, непротиворечиво описывает поведение фарадеевского вращения в РЗ гранатах при низких температурах. Что же касается кристаллополевого «диамагнитного» механизма МОА, обсуждавшегося в [4], то, вероятно, его роль в формировании эффекта Фарадея РЗ соединений более существенна в спектральной области вблизи резонансов с оптическими переходами, определяющими наблюдаемое магнитооптическое вращение.

В заключение считаем своим приятным долгом поблагодарить Б.В.Милля за предоставленные кристаллы гранатов.

Список литературы

- [1] Buckingham A.D., Stephans P.J. // *Ann. Rev. Phys. Chem.* 1966. V. 17. P. 399–427.
- [2] Валиев У.В., Звездин А.К., Кринчик Г.С., Левитин Р.З., Мукимов К.М., Попов А.И. // *ЖЭТФ*. 1983. Т. 85. № 1(7). С.311–327.
- [3] Mukimov K.M., Sokolov B.Yu., Valiev U.V. // *Phys. Stat. Sol. (a)*. 1990. V. 119. P. 307–315.
- [4] Москвин А.С., Плещеев В.М. // *Опт. и спектр.* 1990. Т. 69. № 3. С. 592–596.
- [5] Guillot M., H.Le Gall, Ostorero J., Artiniun M., Marchand A. // *J. Appl. Phys.* 1987. V. 8. P. 3265–3267.
- [6] Гольдштейн С.Ш., Мукимов К.М., Сигал Г.П., Соколов Б.Ю. // *ПТЭ*. 1992. № 6. С. 113–117.
- [7] Ведерников Н.Ф. // *Автореф. канд. дис. М.*, 1988.
- [8] Kolmakova N.P., Levitin R.Z., Popov A.I., Vedernikov N.F., Zvezdin A.K. // *Phys. Rev. B*. 1990. V. 41. N 10. P. 6170–6178.
- [9] Белов К.П., Соколов В.И. // *УФН*. 1977. Т. 121. № 2. С. 285–317.
- [10] Лисовский Ф.В. // *Опт. и спектр.* 1973. Т. 34. № 5. С. 947–953.
- [11] Валиев У.В., Клочков А.А., Попов А.И., Соколов Б.Ю. // *Опт. и спектр.* 1989. Т. 66. № 3. С. 613–617.

Ташкентский государственный
университет

Поступило в Редакцию
5 октября 1993 г.