

УДК 537.632; 538.615

© 1991

МАГНИТНЫЙ ЛИНЕЙНЫЙ ДИХРОИЗМ ИОНА Yb^{3+} В ИТТЕРБИЕВОМ ФЕРРИТЕ-ГРАНАТЕ

*Н. П. Колмакова, С. В. Копчик, Г. С. Кринчик,
А. Я. Саранцев*

Исследована анизотропия магнитного линейного дихроизма в области полосы поглощения ${}^2F_{7/2} - {}^2F_{5/2}$ иона Yb^{3+} в $\text{Yb}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ при температурах 50—150 К. В схеме кристаллического поля определены величины анизотропных $\text{Fe}^{3+} - \text{Yb}^{3+}$ обменных взаимодействий. Показана справедливость приближения Джадда—Офельта для расчета сил осцилляторов переходов между отдельными компонентами штарковских уровней иона Yb^{3+} . Впервые найдены значения параметров, определяющих интенсивности спектров магнитного линейного дихроизма в магнитоупорядоченном кристалле. Слабые дополнительные линии в полосе поглощения Yb^{3+} идентифицированы как магнитные спутники.

Для большинства редкоземельных (РЗ) ионов в парамагнитных гранатах четная составляющая кристаллического поля (КП), ответственная за расщепление мультиплетов на отдельные штарковские уровни, считается хорошо установленной (см., например, [1]). В магнитоупорядоченных гранатах КП, действующее на РЗ ионы, известно плохо. Чаще всего оно полагается равным КП для РЗ иона в парамагнитных галлиевых гранатах. Нечетная составляющая КП в гранатах, ответственная за смешивание возбужденных конфигураций к основной и снятие запрета по четности для $f-f$ электродипольных переходов, практически неизвестна. Нечетное КП в гранатах определено лишь для иона Nd^{3+} ; например, в [2] в рамках модели обменных зарядов вычислены 3 из 6 параметров нецентросимметричного КП для иона Nd^{3+} в $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$. В магнитоупорядоченных кристаллах (и не только в гранатах), насколько нам известно, задача определения нечетного КП вообще не ставилась.

Гранаты имеют сложную структуру (пространственная группа $Ia3d$), в элементарной ячейке РЗ ионы занимают 24 низкосимметричные (222) эквивалентные позиции с различными направлениями локальных осей симметрии. В отличие от парамагнитных гранатов, где получение спектральной информации о КП затруднено вследствие изотропии, в магнитоупорядоченных кристаллах полосы поглощения расщеплены и спектры поляризационно чувствительны (магнитный линейный дихроизм — МЛД). Действительно, как было показано в [3], исследование МЛД в области полосы поглощения иона Eu^{3+} позволяет получать богатую информацию об электронной структуре РЗ иона и изучать симметричные особенности кристаллооптики магнитоупорядоченного граната.

Ион Yb^{3+} характеризуется самой простой электронной конфигурацией в ряду РЗ ионов, и, казалось бы, описание его физических свойств должно быть наиболее простым. Однако из-за существования интенсивных электронно-колебательных переходов определение структуры верхнего мультиплета ${}^2F_{5/2}$ иона Yb^{3+} в гранатах неоднозначно [4]. Известно также, что во всех парамагнитных гранатах параметры четного КП для иона Yb^{3+} существенно отличаются от непрерывно меняющихся по ряду РЗ ионов [5]. Кроме того, неочевидно, можно ли применять для описания

интенсивностей переходов между отдельными штарковскими компонентами иона Yb^{3+} приближение Джадда—Офельта (возбужденные конфигурации считаются вырожденными) [6, 7], поскольку установлено, что это приближение, широко используемое также в теории двухфотонных процессов, для иона Yb^{3+} не работает [8].

Целью работы является экспериментальное и теоретическое исследование анизотропии спектра МЛД РЗ подсистемы в магнитоупорядоченном гранате $\text{Yb}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$.

1. Методика измерений и образцы

Спектры поглощения линейно-поляризованного света исследованы с аппаратным разрешением $\sim 1 \text{ см}^{-1}$ в области $10\,250\text{--}10\,350 \text{ см}^{-1}$ полосы поглощения ${}^2F_{7/2}\text{--}{}^2F_{5/2}$ иона Yb^{3+} при температурах $50\text{--}150 \text{ К}$ на установке [9], собранной на базе спектрометра ДФС-12. Для уменьшения нагрева образца светом использован теплозащитный водяной фильтр. Охлаждение образца достигалось обдуванием его струей газообразного гелия; температура отходящего газа измерялась термопарой непосредственно за образцом. Нижняя граница температур, при которых проводились измерения, выбрана так, чтобы образцы можно было намагнитить вдоль любого направления магнитным полем $H \leq 10 \text{ кЭ}$ [10]. Деполаризация света на холодных окнах криостата не превышала 0.05% .

Измерения проведены при распространении света вдоль направления $[011]$. Магнитное поле было перпендикулярно направлению распространения света и прикладывалось параллельно осям $[100]$, $[111]$, $[011]$. Точность установки осей контролировалась рентгенографически и была не хуже 3° . Образцы были вырезаны по плоскости (011) , их толщина составляла $25\text{--}140 \text{ мкм}$. Монокристаллы $\text{Yb}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ были выращены методом спонтанной кристаллизации из раствора в расплаве.

2. Результаты эксперимента

Для иона Yb^{3+} в парамагнитной фазе в области $\hbar\omega \sim 10\,300 \text{ см}^{-1}$ должна была бы наблюдаться одноэлектронная линия поглощения, соответствующая переходу между двумя нижними кramerсовскими дублетами основного ${}^2F_{7/2}$ и возбужденного ${}^2F_{5/2}$ мультиплетов. В магнитоупорядоченном состоянии при $T \leq 150 \text{ К}$ при энергии кванта света $\hbar\omega = 10\,250\text{--}10\,350 \text{ см}^{-1}$ наблюдается ряд относительно узких полос поглощения; расщепление обусловлено обменными взаимодействиями железной и РЗ подсистем. При уменьшении температуры ширина полос поглощения уменьшается и к 50 К становится практически постоянной, центры тяжести спектров сдвигаются в сторону больших энергий и наблюдается небольшое увеличение расщепления, связанное с ростом обменных взаимодействий.

Спектры поглощения π - и σ -поляризованного света ($\mathbf{E} \parallel \mathbf{H}$ и $\mathbf{E} \perp \mathbf{H}$, где \mathbf{E} — электрический вектор световой волны) в магнитном поле $H = 8 \text{ кЭ}$ приведены на рис. 1 для направлений намагничивания $[100]$ (а), $[111]$ (б) и $[011]$ (в). На фоне плато, обусловленного поглощением железной подсистемы в области перехода ${}^6A_{1g}\text{--}{}^4T_{1g}$ (ширина полосы составляет $\sim 2000 \text{ см}^{-1}$), в узкой области энергий для высокосимметричных направлений намагничивания наблюдается соответственно 6, 7 и 8 полос поглощения РЗ подсистемы. Спектры поглощения π - и σ -поляризованного света сильно различаются для различных направлений намагничивания и между собой при любом направлении \mathbf{H} . Как и для иона Eu^{3+} [3], значительно различаются спектры поглощения, условия наблюдения которых связаны заменой взаимно перпендикулярных векторов \mathbf{E} и \mathbf{H} (ср. σ -спектры на рис. 1, а и в).

Кроме рассмотренных полос, наблюдаются более широкие и значительно более слабые полосы поглощения, смещенные в область больших энергий для всех направлений намагничивания, а также в область мень-

ших частот при $H \parallel [111]$. Вклад РЗ. подсистемы в области этих полос в растянутом в 10 раз масштабе на рис. 1, б показан штрихом. Эти полосы сдвинуты в область больших энергий на 25 см^{-1} относительно крайней справа полосы при $H \parallel [100]$, на 23.5 см^{-1} в область больших и на 20.5 см^{-1} в область меньших энергий относительно вторых от края полос поглощения при $H \parallel [111]$ и на $21 (25) \text{ см}^{-1}$ в область больших энергий относительно второй (третьей) справа полосы при $H \parallel [011]$.

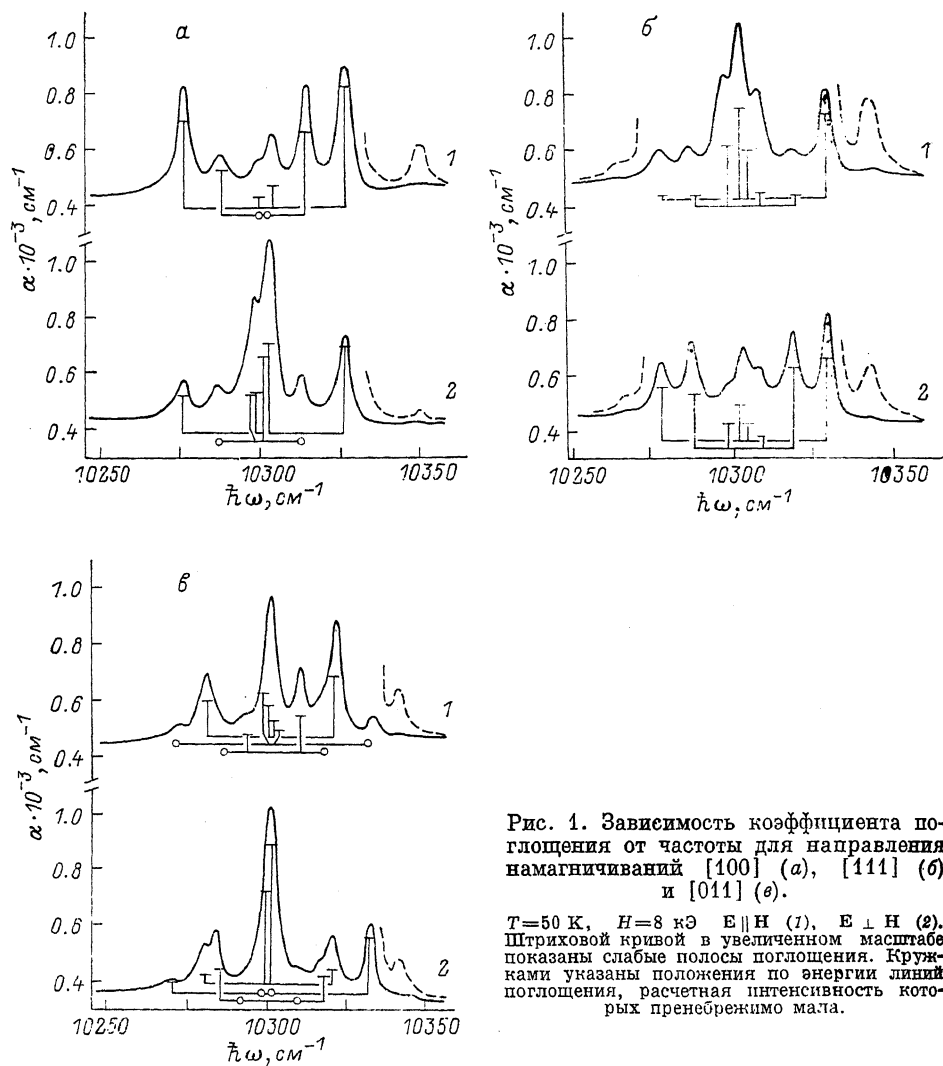


Рис. 1. Зависимость коэффициента поглощения от частоты для направления намагничиваний $[100]$ (а), $[111]$ (б) и $[011]$ (в).

$T=50 \text{ К}$, $H=8 \text{ кЭ}$ $E \parallel H$ (1), $E \perp H$ (2). Штриховой кривой в увеличенном масштабе показаны слабые полосы поглощения. Кружками указаны положения по энергии линий поглощения, расчетная интенсивность которых пренебрежимо мала.

3. Обсуждение результатов

а) Обменные расщепления. Идентификация линий в спектрах $\text{Yb}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$, соответствующих переходам между уровнями компонент нижних дублетов мультиплетов ${}^2F_{7/2}$ и ${}^2F_{5/2}$, была проведена в работах [11]. Авторы [11] из анализа неполяризованных спектров в простейшей двухуровневой модели сделали вывод о сильной анизотропии обменного $\text{Fe}^{3+}-\text{Yb}^{3+}$ взаимодействия. Поскольку при расшифровке спектров существенным было модельное предположение о совпадении в неэквивалентных позициях центров тяжести дублетов, а в положениях по энергии полос поглощения наблюдается некоторое отличие от зеркальной симметрии, мы заново определили обменные расщепления в общей схеме КП. Как стало ясно из наших расчетов, различие смещений центров

тяжести дублетов хотя и невелико по сравнению с общим расщеплением полосы поглощения, однако сопоставимо с шириной полос и его необходимо учитывать при расшифровке спектров. Отметим, что вследствие занятия ионом Yb^{3+} в магнитоупорядоченных гранатах различных неэквивалентных позиций (для произвольного направления намагниченности в плоскости $(01\bar{1})$ таких позиций 4) задача расшифровки спектров весьма запутана. К тому же образование в $\text{Yb}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ при низких температурах неколлинеарной фазы [12] приводит к тому, что экспериментальное исследование спектров в условиях, когда возможны переходы лишь с нижнего уровня основного дублета, не вносит дополнительной ясности, так как при этом исследуется другое магнитное состояние.

Расщепления штарковских уровней рассчитывались исходя из гамильтониана, содержащего член четного КП $\hat{H}_{\text{КП}}$ с девятью параметрами для 222 симметрии и обменное взаимодействие, рассматриваемое в приближении молекулярного поля

$$\hat{H}^{(n)} = \hat{H}_{\text{КП}} + g_{\mu_B} \mathbf{H}_{\Phi}^{(n)} \mathbf{J}^{(n)}. \quad (1)$$

В этом выражении $\mathbf{J}^{(n)}$ — оператор углового момента РЗ иона, $\mathbf{H}_{\Phi}^{(n)}$ — эффективное поле в n -й позиции. Значения 9 параметров КП для Yb^{3+} в $\text{Yb}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ были взяты как для $\text{Er}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ [13], т. е. по сути использовался интерполированный по ряду РЗ ионов набор параметров КП (как стало ясно из расчетов интенсивности, этот набор параметров предпочтителен). Результаты расчетов расщеплений, проведенных с существенно другими параметрами КП, например, для $\text{Yb}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ [5] или $\text{Yb} : \text{Y}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ [14] отличаются незначительно.

Перебирая все возможные варианты идентификации линий спектра из условия наилучшего совпадения экспериментальных и теоретических значений энергий переходов, мы установили, что при условии объяснения экспериментальных данных [15] по теплоемкости идентификация однозначна, и определили величины обменных расщеплений. На рис. 1, а—в под спектрами отмечены расчетные значения энергий переходов для разных неэквивалентных позиций. Видно, что расчетные значения хорошо согласуются с экспериментальными данными, в том числе описывают асимметрию в положении линий, наиболее сильно проявляющуюся при $\mathbf{H} \parallel [100]$ (рис. 1, а). Идентификация одиночных линий поглощения совпадает с результатами работ [11], качественные отличия от модели [11] проявляются лишь в области неразрешенной центральной полосы поглощения.

Из наших экспериментальных данных главные значения расщеплений в локальной системе координат равны $\Delta E_x = 25.5$, $\Delta E_y = 29$, $\Delta E_z = 12 \text{ см}^{-1}$ для нижнего дублета мультиплета ${}^2F_{7/2}$ и $\Delta E_x = 7.5$, $\Delta E_y = 32$, $\Delta E_z = 14 \text{ см}^{-1}$ для нижнего дублета мультиплета ${}^2F_{5/2}$. Расчетные расщепления равны $\Delta E_x = 24.5$, $\Delta E_y = 28.5$, $\Delta E_z = 11.9 \text{ см}^{-1}$ (${}^2F_{7/2}$) и $\Delta E_x = 7.4$, $\Delta E_y = 30.9$, $\Delta E_z = 14.1 \text{ см}^{-1}$ (${}^2F_{5/2}$). Так как анизотропия обменных расщеплений значительно превышает анизотропию g -фактора, мы подтверждаем вывод работ [11] об анизотропии обменного взаимодействия РЗ и железной подсистем в $\text{Yb}_3\text{Fe}_5\text{O}_{13}$.

Расщепления нижних дублетов мультиплета ${}^2F_{7/2}$ равны 27 см^{-1} при $\mathbf{H} \parallel [100]$ для одного из двух неэквивалентных мест, 21 и 24 см^{-1} при $\mathbf{H} \parallel [111]$ и 21 и 24.5 см^{-1} при $\mathbf{H} \parallel [011]$ для двух из трех неэквивалентных мест. Сдвиги слабых полос поглощения (25 см^{-1} при $\mathbf{H} \parallel [100]$, 20.5 и 23.5 см^{-1} при $\mathbf{H} \parallel [111]$, 21 и 25 см^{-1} при $\mathbf{H} \parallel [011]$) близки к соответствующим расщеплениям нижних дублетов, и, следовательно, эти полосы поглощения обусловлены, по всей вероятности, оптическими переходами с одновременным переворотом спинов на ближайших РЗ ионах. Таким образом, мы идентифицируем эти полосы как обусловленные экситон-магнитными процессами. Заметим, что слабая дополнительная полоса поглощения, связанная с двухчастичным процессом поглощения, с одновременным переворотом спинов на РЗ ионах, ранее наблюдалась для иона Yb^{3+} в слабом ферромагнетике YbCrO_3 [16].

б) Магнитный линейный диализм. Вероятности электродипольных переходов между компонентами расщепленных эффективным магнитным полем нижних дублетов мультиплетов ${}^2F_{7/2}$ и ${}^2F_{5/2}$ иона Yb^{3+} в $\text{Yb}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ в локальной системе координат определяются квадратами модулей матричных элементов оператора электрического дипольного момента $\hat{P}^{(1)}$, которые отличны от нуля вследствие примешивания к состояниям основной конфигурации $4f^{13}$ иона Yb^{3+} возбужденных конфигураций нечетными компонентами КП. Нецентросимметричная часть гамильтониана КП для симметрии окружения 222 иона Yb^{3+} в гранате содержит шесть параметров КП B_p^t

$$H_{\text{КП}}^{\text{н}} = B_2^3 [C_2^{(3)} + C_{-2}^{(3)}] + B_2^5 [C_2^{(5)} + C_{-2}^{(5)}] + B_4^5 [C_4^{(5)} + C_{-4}^{(5)}] + B_2^7 [C_2^{(7)} + C_{-2}^{(7)}] + B_4^7 [C_4^{(7)} + C_{-4}^{(7)}] + B_6^7 [C_6^{(7)} + C_{-6}^{(7)}], \quad (2)$$

где $C_p^{(t)}$ — неприводимые тензорные операторы. Матричный элемент q -й компоненты оператора $\hat{P}^{(1)}$ в формализме Джадда—Офельта [6, 7] между собственными состояниями гамильтониана (1)

$$|i\rangle = \sum_M a_M^{(i)} |J, M\rangle,$$

$$|j\rangle = \sum_{M'} b_{M'}^{(j)} |J', M'\rangle \quad (3)$$

без учета J -смешивания, которое, как известно, для иона Yb^{3+} в структуре граната несущественно (см., например, [5]), задается выражением ($q=0, \pm 1$)

$$P_q \equiv \langle i | P_q^{(1)} | j \rangle = \sum_{t=3, 5, 7} \sum_{\rho=2, 4, 6 < t} \sum_{M, M'} a_M^{(i)} b_{M'}^{(j)} (-1)^{J-M} \sum_{\lambda=2, 4, 6} (2\lambda + 1) \times \\ \times B_p^t S(t, \lambda) \Gamma^{(\lambda)} \left[\begin{pmatrix} J' & J & \lambda \\ M' & -M & \rho + q \end{pmatrix} \begin{pmatrix} t & 1 & \lambda \\ \rho & q & -(\rho + q) \end{pmatrix} + \right. \\ \left. + \begin{pmatrix} J' & J & \lambda \\ M' & -M & q - \rho \end{pmatrix} \begin{pmatrix} t & 1 & \lambda \\ -\rho & q & \rho - q \end{pmatrix} \right], \quad (4)$$

где $S(t, \lambda)$ определяется формулой (14) из [6] и представляет собой комбинацию радиальных интегралов и энергетических расстояний до возбужденных конфигураций, значения которых неизвестны. $\Gamma^{(\lambda)}$ в отсутствие LS -смешивания для иона Yb^{3+} являются приведенными матричными элементами $\langle SLJ \| U^{(\lambda)} \| SLJ' \rangle$, которые при вычислении дают $\Gamma^{(2)} = 0.34993$, $\Gamma^{(4)} = 0.63888$, $\Gamma^{(6)} = 0.92582$.

В дальнейшем неизвестные произведения параметров нечетного КП B_p^t и величины $S(t, \lambda)$ рассматриваются как параметры $X(t, \rho, \lambda) = B_p^t S(t, \lambda)$, величины которых могут быть определены из сравнения экспериментальных и теоретических значений интенсивностей переходов между компонентами нижних дублетов. Можно показать, пользуясь правилами отбора, вытекающими из свойств $3j$ -символов в (4), что таких независимых параметров восемь. Пять существенных в этой задаче параметров $X(t, \rho, \lambda)$ перечислено в таблице. Для переходов с верхних компонент основ-

Параметры, определяющие интенсивности спектров МЛД иона Yb^{3+} в YbIG (в 10^{-11} см)

	$X(3, 2, 2)$	$X(3, 2, 4)$	$X(5, 2, 4)$	$X(5, 2, 6)$	$X(5, 4, 4)$
1	18.7	2.7	0.27	0.54	2.62
2	16.5	-0.44	0.63	-0.92	0.70

Примечание. Оба набора соответствуют среднеквадратичному отклонению 11%.

ных дублетов интенсивности линий умножались на больцмановский фактор с соответствующим для данной позиции расщеплением основного дублета.

Наблюдаемая интенсивность линии определенной поляризации складывается из переходов на РЗ ионах, расположенных в разных позициях в структуре граната (число неэквивалентных позиций разное для разных направлений магнитных моментов ионов Fe^{3+})

$$f = \sum_n \left(\sum_q e_{q^n}^* P_{q^n} \right). \quad (5)$$

В этом выражении e_n — единичный вектор поляризации фотона [17] в n -й позиции. Суммирование производится по всем возникающим в магнитоупорядоченном состоянии группам эквивалентных позиций РЗ иона. Система координат выбрана так, что ось z совпадает с направлением \mathbf{H} , а ось y — с направлением распространения света. Выделяя в данном выражении интенсивности линий с поляризациями e_x (π) и e_x (σ), получаем для разных направлений \mathbf{H} следующее.

$\mathbf{H} \parallel [100]$ (2 типа неэквивалентных мест)

$$1) f_{\pi} = 2P_0^2,$$

$$f_{\sigma} = P_{+1}^2 + P_{-1}^2,$$

$$2) f_{\pi} = (\text{Re } P_{+1} - \text{Re } P_{-1} + \text{Im } P_{+1} + \text{Im } P_{-1})^2 + \\ + (\text{Re } P_{+1} + \text{Re } P_{-1} - \text{Im } P_{+1} + \text{Im } P_{-1})^2,$$

$$f_{\sigma} = (\text{Re } P_{+1} - \text{Im } P_{-1})^2 + (\text{Re } P_{-1} + \text{Im } P_{+1})^2 + 2(\text{Re } P_0)^2 + 2(\text{Im } P_0)^2, \quad (6)$$

$\mathbf{H} \parallel [011]$ (3 типа неэквивалентных мест)

$$1) f_{\pi} = \frac{1}{2} (P_{+1} - P_{-1})^2,$$

$$f_{\sigma} = P_0^2,$$

$$2) f_{\pi} = \frac{1}{2} (\text{Re } P_{+1} + \text{Re } P_{-1})^2 + \frac{1}{2} (\text{Im } P_{+1} + \text{Im } P_{-1})^2,$$

$$f_{\sigma} = (\text{Re } P_0)^2 + (\text{Im } P_0)^2,$$

$$3) f_{\pi} = (\text{Re } P_{+1} - \text{Re } P_{-1} + \text{Im } P_{+1} + \text{Im } P_{-1})^2 + (\text{Re } P_{+1} + \text{Re } P_{-1} - \\ - \text{Im } P_{+1} + \text{Im } P_{-1})^2 + 4(\text{Re } P_0)^2 + 4(\text{Im } P_0)^2 + \text{Re } P_0 (\text{Re } P_{+1} - \text{Re } P_{-1} + \\ + \text{Im } P_{+1} + \text{Im } P_{-1}) + \text{Im } P_0 (\text{Im } P_{+1} - \text{Im } P_{-1} - \text{Re } P_{+1} - \text{Re } P_{-1}),$$

$$f_{\sigma} = (\text{Re } P_{+1} - \text{Re } P_{-1} - \text{Im } P_{+1} - \text{Im } P_{-1})^2 +$$

$$+ (\text{Re } P_{+1} + \text{Re } P_{-1} + \text{Im } P_{+1} - \text{Im } P_{-1})^2, \quad (7)$$

$\mathbf{H} \parallel [111]$ (2 типа неэквивалентных мест)

$$1) f_{\pi} = (P_{+1} - P_{-1} + P_0)^2,$$

$$f_{\sigma} = \frac{3}{4} (P_{+1} + P_{-1})^2 + P_0^2 + \frac{5}{36} (P_{+1} - P_{-1})^2 + \frac{2 + \sqrt{3}}{3\sqrt{3}} P_0 (P_{-1} - P_{+1}),$$

$$2) f_{\pi} = (\text{Re } P_{+1} + \text{Re } P_{-1} - \text{Im } P_0)^2 + (\text{Im } P_{+1} + \text{Im } P_{-1} + \text{Re } P_0)^2,$$

$$f_{\sigma} = \frac{3}{4} [(\text{Re } P_{+1} - \text{Re } P_{-1})^2 + (\text{Im } P_{+1} - \text{Im } P_{-1})^2] + (\text{Re } P_0)^2 + (\text{Im } P_0)^2 +$$

$$+ \frac{1}{3} [(\text{Re } P_{+1} + \text{Re } P_{-1})^2 + (\text{Im } P_{+1} + \text{Im } P_{-1})^2] +$$

$$+ \frac{1 + \sqrt{6}}{3} [(\text{Re } P_{+1} + \text{Re } P_{-1}) \text{Im } P_0 - (\text{Im } P_{+1} + \text{Im } P_{-1}) \text{Re } P_0]. \quad (8)$$

Восемь параметров $X(t, \rho, \lambda)$ определялось из условия наилучшего согласия вычисленных значений с их экспериментальными величинами, при этом использовался массив из 39 величин, включающий 33 интенсивности разрешенных линий и 6 суммарных интенсивностей для неразрешенных линий. Оптимизация проводилась для экспериментальных и расчетных спектров, нормированных на значение интенсивности самой высокочастотной линии с π -поляризацией при $\mathbf{H} \parallel [100]$ (сила осциллятора $f=7.5 \cdot 10^{-8}$), которая соответствует переходу с нижней компоненты основного дублета в ${}^2F_{7/2}$ на верхнюю компоненту основного дублета в ${}^2F_{5/2}$.

Оптимизационная процедура показала, что описание интенсивностей в рассматриваемой схеме может быть осуществлено в пределах экспериментальных ошибок не для любого набора параметров четного КП. Расчеты с использованием волновых функций (3), полученных при параметрах четного КП $\text{Yb}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ [5] и $\text{Yb} : \text{Y}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ [14], приводят к существенно худшему описанию МЛД. Наилучшие результаты получаются при наборе параметров [13] (сумма квадратов отклонений расчетных и экспериментальных значений в 5 раз меньше). Результирующее среднее отклонение составляет 10%. Более того, оказывается возможным подобрать не единственный набор восьми параметров $X(t, \rho, \lambda)$. Примерно одинаковое качество описания распределения интенсивностей достигается для нескольких наборов параметров, при этом некоторые параметры близки между собой для этих наборов, а $X(t, \rho, \lambda)$, включающие параметры КП с $t=7$ ($B_2^7 \cdot S(7, 6)$, $B_4^7 \cdot S(7, 6)$, $B_6^7 \cdot S(7, 6)$), сильно различаются, т. е. определяются в данной задаче плохо. Поэтому мы исключили их из рассмотрения и повторили процедуру оптимизации по пяти параметрам. В результате мы получили, что практически одинаково хорошее (среднеквадратичное отклонение составляет 11%) описание распределения интенсивностей в спектрах МЛД возможно для двух наборов параметров, которые приведены в таблице. Все параметры определены с точностью до общего множителя +1 или -1. Параметр $X(5, 4, 6)$, также определяющий интенсивности, может быть вычислен как комбинация параметров, приведенных в таблице.

Имеющийся экспериментальный материал не дает нам оснований считать какой-нибудь из этих наборов более предпочтительным, хотя между ними есть принципиальная разница. Для второго набора параметры $S(3, 2)$ и $S(3, 4)$ и величины $S(5, 4)$ и $S(5, 6)$ имеют разные знаки. Если истинным является этот набор, то для иона Yb^{3+} в $\text{Yb}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ примешивание возбужденных конфигураций $nd^9 4f^{14}$ ($n=3, 4$) дает больший вклад, чем примешивание конфигураций $4f^{12}nd$ ($n \geq 5$). (В рамках приближения Джадда—Офельта два этих вклада отличаются фазовым множителем, что выражается в разных знаках $S(3, 2)$ и $S(3, 4)$, $S(5, 4)$ и $S(5, 6)$). Действительно, несмотря на разницу в энергетических расстояниях до этих конфигураций, соотношение величин соответствующих радикальных интегралов [18, табл. 4⁵] позволяет предположить такое соотношение вкладов (см. также [19, 20]).

На рис. 1, a — c отрезками показаны вычисленные относительные интенсивности линий. Видно, что для сильных линий наблюдается хорошее согласие с экспериментальными спектрами. Заметим, что, хотя при оптимизации спектров [011] накладывались только требования на суммарную интенсивность центральной полосы, которая для этого направления намагничивания определяется наложением четырех линий, распределение интенсивностей этих линий таково, что расчетный контур σ -полосы оказался в соответствии с экспериментом более широким и сдвинутым в высокоэнергетическую область по сравнению с π -полосой. Таким образом, предположив электродипольную природу наблюдаемых переходов, удастся количественно объяснить МЛД иона Yb^{3+} в $\text{Yb}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$. Это служит доказательством применимости приближения Джадда—Офельта для объяснения f — f спектров иона Yb^{3+} . Немногочисленные несовпадения для слабых линий, по-видимому, связаны с принятыми модельными предположениями и (или) с несовершенством образцов.

Кратко формулируем основные результаты работы.

1. Показано, что МЛД РЗ подрешетки в $Yb_3Fe_5O_{12}$ может быть описан в рамках приближения Дика—Оффельта.

2. Найдены значения пяти параметров, содержащих параметры нечетного кристаллического поля, которые определяют интенсивности поляризованных $f \rightarrow f$ спектров иона Yb^{3+} в $Yb_3Fe_5O_{12}$ и позволяют рассчитать спектр для любого направления намагниченности и произвольной поляризации. Показано, что спектры МЛД более чувствительны к параметрам четного кристаллического поля, чем обменные расщепления штарковских уровней.

3. При расчетах в модели кристаллического поля подтвержден вывод работы [11] о значительной анизотропии $Fe^{3+}—Yb^{3+}$ обменного взаимодействия в $Yb_3Fe_5O_{12}$ и уточнены величины обменных расщеплений для нижних дублетов основного $^2F_{7/2}$ и возбужденного $^2F_{5/2}$, мультиплетов.

4. Слабые дополнительные полосы поглощения, не описываемые в однопериодной схеме, идентифицированы как магнитные спутники.

В заключение благодарим А. И. Попова за полезные обсуждения и А. С. Маркосяна за предоставление монокристаллов для исследования.

Список литературы

- [1] Morrison C. A., Leavitt R. P. // Handbook on the Physics and Chemistry of Rare Earths. V. 5. North-Holland, Publ. Co., 1982. V. 5. P. 461—692.
- [2] Каминский А. А., Малкин Б. З., Бумагина Л. Л. // Изв. АН СССР, сер. физ. 1982. Т. 46. № 5. С. 979—984.
- [3] Криничик Г. С., Горбунова В. Д., Гушин В. С., Костюрин А. А. // ЖЭТФ. 1980. Т. 78. № 2. С. 869—879; 1981. Т. 81. № 3. С. 1037—1047.
- [4] Багдасаров Х. С., Богомолова Г. А., Вылегжанин Д. Н. и др. // ДАН СССР. 1974. Т. 216. № 6. С. 1247—1249.
- [5] Nekvasil V. // Phys. Stat. Sol. (b). 1982. V. 109. N 1. P. 67—74.
- [6] Judd B. R. // Phys. Rev. 1962. V. 127. N 3. P. 750—761.
- [7] Ofelt G. S. // J. Chem. Phys. 1962. V. 37. N 3. P. 511—520.
- [8] Kolmakova N. P., Levitin R. Z., Popov A. I. et al. // Phys. Rev. B. 1990. V. 41. N 10—A. P. 6170—6178.
- [9] Колмакова Н. П., Кошчик С. В., Криничик Г. С. и др. // ФТТ. 1990. Т. 32. № 5. С. 1406—1411.
- [10] Alben R. // Phys. Rev. 1961. V. 122. N 5. P. 1376—1381.
- [11] Wickersheim K. A. // Phys. Rev. 1961. V. 122. N 5. P. 1376—1381; Wickersheim K. A., White R. L. // Phys. Rev. Lett. 1962. V. 8. N 12. P. 483—485.
- [12] Buchanan R. A., Clark A. E. // Solid State Commun. 1969. V. 7. N 15. P. 1087—1090.
- [13] Orlich E., Hufner S., Grunberg P. // Z. Phys. 1970. V. 231. N 2. P. 144—153.
- [14] Pearson J. J., Herrman G. F., Wickersheim K. A., Buchanan R. A. // Phys. Rev. 1967. V. 159. N 2. P. 251—261.
- [15] Harris A. B., Meyer H. // Phys. Rev. 1962. V. 127. N 1. P. 101—118.
- [16] Kojima N., Tsushima K., Tsukawa I. // J. Phys. Soc. Jap. 1980. V. 49. N 4. P. 1449—1455.
- [17] Собельман И. И. Введение в теорию атомных спектров. М.: Наука, 1977. § 31.
- [18] Condon E. U., Shortley G. H. The Theory of Atomic Spectra. Cambridge: University Press, 1964. P. 441; Кондон Е., Шортли Г. Теория атомных спектров. М.: ИЛ, 1949. С. 440. Табл. 8.
- [19] Krupke W. F., Gruber J. B. // Phys. Rev. 1965. V. 139. N 6A. P. 2008—2016.
- [20] Becker P.-J. // Phys. Stat. Sol. (b). 1971. V 43. N 2. P. 583—590.

Московский государственный университет
им. М. В. Ломоносова

Поступило в Редакцию
4 апреля 1991 г.