

ОБМЕННО-РЕЛЯТИВИСТСКИЕ ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ И АНИЗОТРОПИЯ ЦИРКУЛЯРНОЙ МАГНИТООПТИКИ ОРТОФЕРРИТОВ Er И Ho

*Е. А. Ганьшина, А. В. Зенков, Г. С. Кринчик,
А. С. Москвин, М. М. Нишанова*

УДК 537.632

© 1992

Из спектров экваториального эффекта Керра определены спектральные зависимости компонент вектора гирации в Γ_4 - и Γ_2 -фазах ортоферритов ErFeO_3 , HoFeO_3 в диапазоне 2—5.6 эВ. Теоретический анализ результатов проведен в рамках представления о доминирующем вкладе переходов типа ${}^6A_{1g} \rightarrow {}^6T_{1u}$ с переносом заряда в комплексе FeO_6^{9-} . Показана определяющая роль антисимметричных обменно-релятивистских взаимодействий — спин-орбитальных аналогов спин-спинового взаимодействия Дзялошинского—Мория — в циркулярной магнитооптике ортоферритов. Соответствующие эффективные орбитальные поля достигают величин порядка 100 Тл.

1. Циркулярные магнитооптические эффекты (МОЭ) в ортоферритах (ОФ) RFeO_3 , являющихся слабыми ферромагнетиками, велики, несмотря на малость слабоферромагнитного момента, и отличаются сильной анизотропией в зависимости от его ориентации [1]. В настоящей работе в рамках концепции переходов типа ${}^6A_{1g} \rightarrow {}^6T_{1u}$ с переносом заряда (ПЗ) лиганд—центральный ион Fe^{3+} в октаэдрических комплексах FeO_6^{9-} (основных магнитооптически активных центрах ОФ в ближнем ультрафиолете) проведен экспериментальный и теоретический анализ циркулярных МОЭ в ОФ Er и Ho в спектральном диапазоне 2—5.6 эВ при температурах выше и ниже спиновой переориентации $\Gamma_4 \rightarrow \Gamma_2$. По сравнению с [1] здесь уточнены экспериментальные спектры; расширенный диапазон измерений охватывает теперь практически всю полосу переходов с ПЗ, что позволило сделать более определенные теоретические выводы.

2. С помощью методики, описанной в [1], получены спектральные зависимости вектора гирации \mathbf{g} [2] в ОФ ErFeO_3 , HoFeO_3 , в высокотемпературной фазе Γ_4 ($\mathbf{g} = (0, 0, g_z)$) и в низкотемпературной фазе Γ_2 ($\mathbf{g} = (g_x, 0, 0)$) (рис. 1, 2). Спектры $g_{x,z}(\omega)$ были обработаны путем визуального моделирования на ЭВМ линейной комбинацией лоренцевых кривых $F(\omega, \omega_{0j}, \Gamma_j)$ и их производных, позволяющей учесть основные механизмы циркулярных МОЭ в ОФ [1]

$$g_{x,z}(\omega) = \sum_j \left[A_j F(\omega, \omega_{0j}, \Gamma_j) + B_j \frac{\partial F}{\partial \omega_{0j}} + C_j \frac{\partial^2 F}{\partial \omega_{0j}^2} \right], \quad (1)$$

причем первое слагаемое в скобках учитывает смешивание ${}^6T_{1u}$ -состояний с ПЗ за счет различных взаимодействий (вклад смешивания [1]); остальные слагаемые обусловлены орбитальным расщеплением ${}^6T_{1u}$ -термов (вклады расщепления [1]). Σ_j учитывает как разрешенные, так и ряд запрещенных переходов с ПЗ (образец подгонки показан на рис. 1).

Отметим очень хорошее согласие «модельных» значений частот переходов ω_{0j} с теоретическими, полученными в рамках концепции переходов с ПЗ из

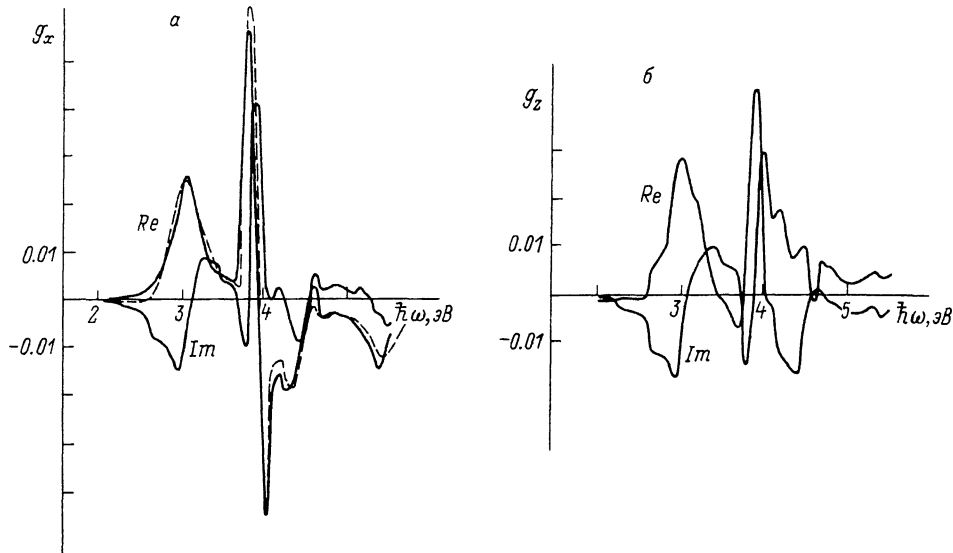


Рис. 1. Экспериментальные спектральные зависимости компонент вектора гирации \mathbf{g} в ортоферрите ErFeO_3 .

$a - \text{Re, Im } g_x (T = 80 \text{ K})$, штриховой линией изображена модельная зависимость $\text{Re } g_x$; $b - \text{Re, Im } g_z (T = 170 \text{ K})$.

данных СП- X_x ДВ-расчета энергетической структуры комплекса FeO_6^{9-} [³] (см. таблицу), и с аналогичными значениями, найденными ранее для других ОФ [¹]. Это указывает на незначительность R -вклада в магнитооптику ОФ в ближнем ультрафиолете. Моделирование показывает, что МОЭ на длинноволновом «хвосте»

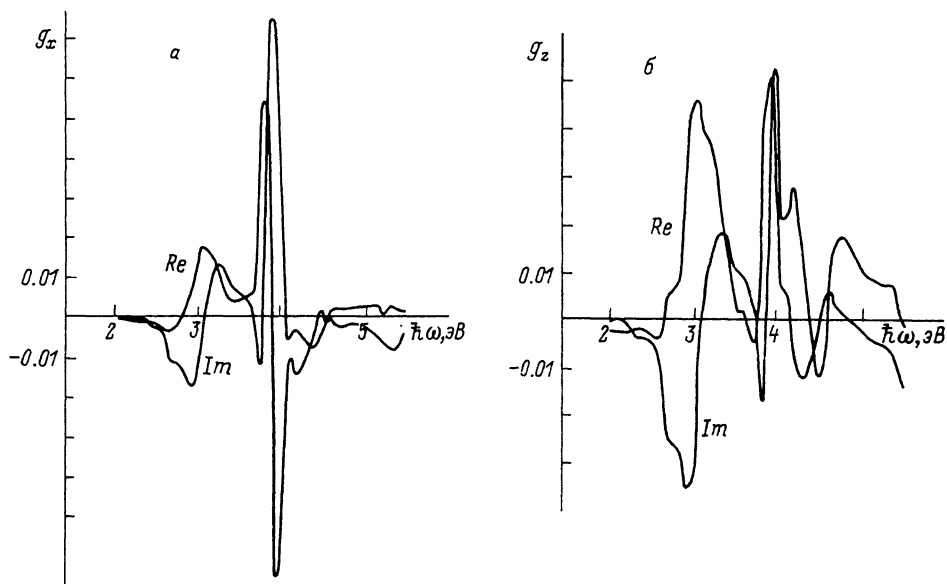


Рис. 2. Экспериментальные спектральные зависимости компонент вектора гирации \mathbf{g} в ортоферрите HoFeO_3 .

$a - \text{Re, Im } g_x (T = 45 \text{ K})$; $b - \text{Re, Im } g_z (T = 80 \text{ K})$.

Характеристики состояний и переходов с переносом заряда в комплексах $\text{FeO } \bar{g}$ -ортоферрита ErFeO_3 и параметры V_{SO} , $V_{SO}^{\text{обм}}$ в ${}^6T_{1u}$ -состояниях с переносом заряда

Переход с переносом заряда *	Энергия, эВ, согласно СП-Х _α ДВ-расчету [3]	Эффективная константа спин-орбитальной связи λ ^{теор} [4]	Эффективный орбитальный фактор Ланде g _L [4]	Результаты теоретической обработки спектров циркулярных МОЭ в ErFeO_3						
				Энергия λω ₀ , эВ	λ, см ⁻¹ , абс. величина		Компонента обменно-релятивистского тензора $\hat{\Lambda}$ см ⁻¹ , абс. величина		Эффективное орбитальное поле H _L , T _L , абс. величина	
					фаза Γ ₄	фаза Γ ₂	фаза Γ ₄	фаза Γ ₂	фаза Γ ₄	фаза Γ ₂
$t_{2u}-t_{2g}$	3.1	$\zeta_{2p}/20 + \zeta_{3d}/10$	-3/4	3.05	1600	1060	16.0	10.6	115	76
$t_{1u}(\pi)-t_{2g}$	3.9	$\zeta_{2p}/20 + \zeta_{3d}/10$	1/4	3.93	770	400	7.7	4.0	165	87
$t_{2u}-e_g$	4.4	$-\zeta_{2p}/20$	1/4	4.36	160	260	1.6	2.6	34	55
$t_{1u}(\sigma)-t_{2g}$	5.1	$-\zeta_{3d}/10$	1/2	5.05	70	70	0.7	0.7	8	7
$t_{1u}(\pi)-e_g$	5.3	$\zeta_{2p}/20$	-1/4	5.43	140	510	1.4	5.1	30	110

* Переход $t_{1u}(\sigma)-e_g$ (λω₀ = 6.4 эВ) [4] лежит за пределами области измерений и здесь не рассматривается.

полосы с ПЗ в основном определяются низкоэнергетическим $t_{2u}-t_{2g}$ -переходом с ПЗ, причем вклады смешивания ($\sim F$) и расщепления ($\sim F'$) в (1) сравнимы по величине.

3. Моделирование позволяет получить информацию о взаимодействиях, обуславливающих циркулярные МОЭ в ОФ. Традиционно в качестве такового рассматривают спин-орбитальное взаимодействие, записывающееся для определенной ${}^6T_{1u}$ -терма комплекса в виде $V_{SO} = \lambda LS$, где λ — константа спин-орбитальной связи комплекса, слагающаяся из лигандных O^{2-} -вкладов и (преобладающего по величине) Fe^{3+} -вклада; в таблице представлены теоретические, рассчитанные для разных ${}^6T_{1u}$ -состояний с ПЗ, значения λ^{теор}, выраженные через одноэлектронные константы $\zeta_{2p} \approx 100 \text{ см}^{-1}$ и $\zeta_{3d} \approx 400 \text{ см}^{-1}$. Вклад V_{SO} в g изотропен и в механизме расщепления (второе слагаемое в (1)) имеет вид [4]

$$g = 2 \sum_{j = {}^6T_{1u}} \frac{\pi e^2 LN}{\hbar m \omega_{0j}} \lambda_j f_j \langle S \rangle \frac{\partial F(\omega, \omega_{0j}, \Gamma_j)}{\partial \omega_{0j}}, \quad (2)$$

где L — фактор Лорентц—Лоренца, N — концентрация ионов Fe^{3+} в ОФ, f_j — сила осциллятора j-го перехода ${}^6A_{1g}-{}^6T_{1u}$ с ПЗ. Применение этой формулы для обработки модельных спектров $g_z(\omega)$ в ОФ Er и Ho с учетом характерного для ОФ соотношения $\langle S_z \rangle = (S/2) \cdot 10^{-2}$ позволяет вычислить λ для ${}^6T_{1u}$ -термов (см. таблицу). Полученные значения λ находятся, однако, в резком противоречии с теоретическими, зачастую многократно превышая их. Не менее важна и сильная анизотропия циркулярных МОЭ, не объяснимая в рамках данного механизма и эффективно выражающаяся в различии λ для Γ₄- и Γ₂-фазы. Между тем λ есть величина, специфическая для каждого ${}^6T_{1u}$ -терма и складывающаяся на уровне отдельного комплекса, и такая макрохарактеристика феррита, как тип магнитного упорядочения, не может столь существенно влиять на величину λ.

4. Оба указанных обстоятельства находят естественное объяснение при учете вклада в g обменно-релятивистских взаимодействий [1]

$$V_{SO}^{\text{обм}} = \sum_{mn} \{ \lambda(mn) [L(m) S(n)] + \lambda(mn) [L(m) \times S(n)] + L(m) \hat{\lambda}(mn) S(n) \}, \quad (3)$$

представленных в виде суммы изотропного, антисимметричного и симметричного анизотропного вкладов типа «спин—своя орбита» ($m = n$) и «спин—чужая орбита» ($m \neq n$). Будучи анизотропным, $V_{SO}^{обм}$ связывает z -компоненту g с x -компонентой среднего спина. При $|\langle S_x \rangle| \approx 5/2$ компоненты эффективного обменно-релятивистского тензора $\hat{\Lambda}$ ($\Lambda_{ij} = \epsilon_{ijk}\lambda + \lambda_{ij}$) — аналога константы λ — имеют в 100 раз меньшую величину по сравнению с λ . Исходя из соотношения $\mu_B g_L H_L L = \lambda LS$ (g_L — орбитальный фактор Ланде для ${}^6T_{1u}$ -терма), можно сопоставить орбитальному по природе $V_{SO}^{обм}$ эффективное орбитальное поле H_L , действующее в ${}^6T_{1u}$ -состояниях. Величина H_L для Γ_2 -, Γ_4 -фаз в разных ${}^6T_{1u}$ -состояниях нередко на порядок превышает значения поля Дзялошинского в ОФ ($H_D = 14$ Тл в $YFeO_3$ [5]), что объяснимо при учете сильного обмена $3d$ -электронов соседних Fe^{3+} ионов с $2p$ -дырками в конфигурациях с ПЗ. Отметим, что для двух низкоэнергетических переходов ($\hbar\omega_0 \approx 3.1$ и 3.9 эВ), определяющих МОЭ в ближнем ультрафиолете, конечные ${}^6T_{1u}$ -состояния с ПЗ характеризуются особенно большими H_L . Заметим также, что для всех ${}^6T_{1u}$ -термов «антисимметричное» поле $H_L^a = (H_L(\Gamma_4) - H_L(\Gamma_2))/2$, характеризующее величину второго слагаемого в (3), значительно превосходит «симметричное» поле $H_L^s = (H_L(\Gamma_4) + H_L(\Gamma_2))/2$, связанное с третьим слагаемым в (3). Это согласуется с данными [4, 6], свидетельствующими о преобладании в ОФ антиферромагнитного вклада в g , связанного в основном с антисимметричными $V_{SO}^{обм}$ типа «спин—своя орбита» и «спин—чужая орбита» в состояниях с ПЗ. Отметим, что именно представление об антиферромагнитном вкладе позволяет разрешить вопрос о природе больших МОЭ в ОФ [4].

5. Таким образом, проведенный теоретический анализ 1) подтверждает справедливость и плодотворность концепции переходов с ПЗ, позволяющей объяснить практически все особенности МОЭ в ОФ в широком спектральном диапазоне; 2) указывает на определяющую роль обменно-релятивистских взаимодействий $V_{SO}^{обм}$ в циркулярной магнитооптике ОФ; 3) свидетельствует о преобладании в $V_{SO}^{обм}$ антисимметричных составляющих типа «спин—своя орбита» и «спин—чужая орбита»; 4) позволяет оценить эффективные орбитальные поля обменно-релятивистской природы — аналоги спинового поля Дзялошинского — величиной ~ 100 Тл для различных ${}^6T_{1u}$ -термов с ПЗ в комплексе FeO_6^9- в ОФ.

Список литературы

- [1] Ганьшина Е. А., Зенков А. В., Кринчик Г. С., Москвин А. С., Трифонов А. Ю. // ФТТ. 1991. Т. 33. № 4. С. 1122—1133.
- [2] Ландау Л. Д., Лифшиц Е. М. Электродинамика сплошных сред. М.: Наука, 1982. 624 с.
- [3] Лихтенштейн А. И., Москвин А. С., Губанов В. А. // ФТТ. 1982. Т. 24. № 12. С. 3596—3605.
- [4] Зенков А. В. // Автореф. канд. дис. Свердловск, 1990. 173 с.
- [5] Jacobs I. S., Burne H. F., Levinson L. M. // J. Appl. Phys. 1971. V. 42. N 4. P. 1631—1633.
- [6] Зенков А. В., Кричевцов Б. Б., Москвин А. С., Мукимов К. М., Писарев Р. В., Рувинштейн М. М. // ЖЭТФ. 1989. Т. 96. № 4(10). С. 1397—1405.

Уральский государственный университет
им. А. М. Горького
Екатеринбург

Поступило в Редакцию
13 февраля 1992 г.