

УДК 532.221

©1993

## МАГНИТНОЕ ЛИНЕЙНОЕ ДВУПРЕЛОМЛЕНИЕ ФЕРРИТА-ГРАНАТА САМАРИЯ

*О.А.Дорофеев, А.И.Попов*

Теоретически исследовано магнитное линейное двупреломление самариевого феррита-граната. Расчет проводился в приближении Джада-Офельта с использованием параметров кристаллического поля, найденных в [3]. Показано, что механизм смешивания в поле мультиплетов ионов самария играет важную роль в формировании температурной зависимости двупреломления. Теоретические результаты сопоставлены с экспериментальными данными. Установлено их хорошее согласие.

Интерес к изучению магнитного линейного двулучепреломления (МЛДп) редкоземельных (РЗ) кристаллов обусловлен весьма большой его величиной и наличием ряда свойств, качественно отличных от реализуемых в кристаллах с магнитными ионами, обладающими нулевым или замороженным орбитальным моментом (см., например, [1,2]). Особенности поведения МЛДп в РЗ соединениях определяются электронной структурой РЗ ионов. Поэтому исследование МЛДп может дать ценную информацию как о происходящих в веществах процессах, так и о микропараметрах взаимодействий, формирующих электронный спектр РЗ ионов в кристаллах, а также служить критерием адекватности соответствующих теоретических построений. Последнее обстоятельство весьма актуально для  $\text{Sm}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ , в котором параметры кристаллического поля (КП), действующего на  $\text{Sm}^{3+}$ , были определены в [3] путем сопоставления теоретических значений намагниченности насыщения самариевой подрешетки и температур ориентационных фазовых переходов с экспериментальными данными.

Самариевый феррит-гранат обладает интересными магнитными свойствами [4,5]: двумя спонтанными ориентационными переходами и аномально малым значением намагниченности насыщения самариевой подрешетки. Весьма интересным образом ведет себя и МЛДп в  $\text{Sm}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ : оно резко анизотропно и значение эффекта при изменении ориентации намагниченности от осей  $\langle 111 \rangle$  к  $\langle 100 \rangle$  меняет знак. Отметим здесь также и тот факт, что вклад ионов  $\text{Sm}^{3+}$  в МЛДп самариевого феррита-граната оказывается заметно бóльшим, чем вклад в намагниченность. В [3] был определен набор параметров кристаллического поля, действующего на ионы  $\text{Sm}^{3+}$  в  $\text{Sm}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ , удовлетворяющий экспериментальным данным по намагниченности и ориентационным фазовым переходам. Однако вопрос о пригодности этих параметров для объяснения опытных данных по МЛДп самариевого феррита-граната остается открытым. Выяснение

этого вопроса совместно с выявлением механизмов формирования четных магнитооптических эффектов и являлось целью настоящей работы.

## 1. Гамильтониан иона $\text{Sm}^{3+}$

РЗ гранаты обладают кубической симметрией, причем в их структуре РЗ ионы располагаются по шести неэквивалентным узлам, симметрия окружения которых описывается точечной группой  $D_2(222)$ . Ориентация локальных осей симметрии всех шести узлов соответствует принятой в [3]. Магнитная структура РЗ ферритов-гранатов образована локализованными магнитными моментами РЗ ионов и ионов  $\text{Fe}^{3+}$  в  $a$ - и  $d$ -подрешетках. Магнитные свойства РЗ подсистемы формируются главным образом антиферромагнитным обменным взаимодействием РЗ ионов с ионами  $\text{Fe}^{3+}$  в  $d$ -подрешетке, которое мы будем рассматривать в изотропном приближении, а также взаимодействием РЗ ионов с кристаллическим полем. Обменным взаимодействием между РЗ ионами мы будем пренебрегать, так как его величина значительно меньше R-Fe взаимодействия. Запишем гамильтониан иона  $\text{Sm}^{3+}$  в локальных осях симметрии данного неэквивалентного места

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_{SO} + \mathcal{H}_{cr} + \mathcal{H}_z, \quad (1)$$

где  $\mathcal{H}_{SO} = ALS$  — гамильтониан спин-орбитального взаимодействия;  $A \approx 300 \text{ см}^{-1}$  — константа спин-орбитальной связи;  $\mathcal{H}_z = \mu_B(\mathbf{L} + 2\mathbf{S})\mathbf{H} + 2\mu_B\mathbf{S}\mathbf{H}_{ex}$  — гамильтониан взаимодействия иона  $\text{Sm}^{3+}$  с внешним  $\mathbf{H}$  и обменным  $\mathbf{H}_{ex}$  полями; зависимость  $H_{ex}$  от температуры  $T$  с достаточной степенью точности описывается выражением  $H_{ex}(T) = H_{ex}(0) M_d(T)/M_d(0)$ ,  $M_d$  — намагниченность  $d$ -подрешетки ионов  $\text{Fe}^{3+}$ ;  $\mu_B H_{ex}(0)/k_B = 29 \text{ К}$  [6];  $\mathcal{H}_{cr}$  — гамильтониан кристаллического поля [7]

$$\mathcal{H}_{cr} = \sum_{kq} B_k^q (C_q^k + C_q^{-k}), \quad (2)$$

где  $C_q^k$  — неприводимые тензорные операторы;  $B_k^q$  — параметры кристаллического поля, значения которых были определены в работе [3].

## 2. Волновые функции и уровни энергии

Нас будут интересовать два случая:  $\mathbf{M}_{\text{Fe}} \parallel [111]$  и  $\mathbf{M}_{\text{Fe}} \parallel [100]$ . Для иона  $\text{Sm}^{3+}$  в  $i$ -м неэквивалентном узле собственные функции основного мультиплета ( $L = 5$ ,  $S = 5/2$ ,  $J = 5/2$ ), расщепленного кристаллическим, обменным и внешним полями, можно представить (в лабораторной системе координат с осью  $z \parallel \mathbf{M}_{\text{Fe}}$  в виде

$$|\psi_{no}^i\rangle = \sum_m C_{nm}^i |LSJm\rangle. \quad (3)$$

Соответствующие уровни энергии обозначены как  $E_n^i$ . В данной работе значения  $E_n^i$  и  $C_{nm}^i$  определялись путем решения секулярного уравнения  $\det \|\mathcal{H}_{cr} + \mathcal{H}_z - \lambda E\| = 0$  для каждой из шести позиций с последующим

переходом от локальной системы координат к лабораторной. При выявлении вклада ионов  $\text{Sm}^{3+}$  (в отличие от большинства других РЗ ионов) в магнитные свойства кристаллов недостаточно ограничиваться рассмотрением только основного мультиплета ( $J = 5/2$ ). Поэтому учтем примешивание в поле волновых функций возбужденных мультиплетов ( $J + 1$  и  $J + 2$ ) к состояниям (3). С точностью до членов второго порядка малости по  $\|\mathcal{H}_z\|/\Delta \ll 1$  ( $\Delta$  — расстояние между мультиплетами) найдем

$$|\psi_n^i\rangle = \sum_m C_{nm}^i \left\{ \left[ 1 - 1/2 \left( \mu_B H_{\text{эф}}^1 / \Delta_1 \right)^2 (S_m^J)^2 \right] |LSJm\rangle + \right. \\ \left. + S_m^J \left( \mu_B H_{\text{эф}}^1 / \Delta_1 \right) |LSJ+1m\rangle + \left( \mu_B H_{\text{эф}}^1 \right)^2 (\Delta_1 \Delta_2)^{-1} S_m^J S_m^{J+1} |LSJ+2m\rangle \right\}, \quad (4)$$

где

$$H_{\text{эф}}^1 = H - 2H_{ex}, \quad \Delta_1 = A(J+1) \simeq 10^3 \text{ см}^{-1},$$

$$\Delta_2 = A(2J+3) \simeq 2.2 \cdot 10^3 \text{ см}^{-1}, \quad S_m^J = g_J' [1 - m^2 / (J+1)^2]^{1/2},$$

$$g_J' = \left\{ \frac{(L+S+J+2)(L+S-J)(L-S+J+1)(S-L+J+1)}{4(2J+1)(2J+3)(J+1)} \right\}^{1/2}.$$

Перейдем теперь к рассмотрению МЛДп  $\text{Sm}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ .

### 3. МЛДп феррита-граната самария

Двойное лучепреломление приводит к сдвигу фаз  $\beta = 2\pi\Delta n/\lambda$ , где  $\lambda$  — длина волны света в вакууме,  $\Delta n = n_{\parallel} - n_{\perp}$  — разность показателей преломления световых волн, распространяющихся перпендикулярно намагниченности и поляризованных вдоль и поперек намагниченности. Для того чтобы найти  $\beta$ , необходимо определить магнитные поправки к тензору поляризуемости РЗ иона, рассчитать компоненты тензора диэлектрической проницаемости  $\delta\epsilon_{ij}$  и из уравнений Френеля (см., например, [8]) вычислить значения  $n_{\parallel}$  и  $n_{\perp}$ . В видимой области спектра формирование вклада РЗ ионов в магнитооптические свойства кристаллов в основном обусловлено разрешенными электродипольными переходами  $4f^n - 4f^{n-1}5d$  в РЗ ионах. На длинноволновом крыле разрешенных оптических переходов в первом приближении можно пренебречь расщеплением уровней  $4f^{n-1}5d$  конфигурации (приближение Джада-Оффельта). В этом случае поправки к тензору поляризуемости РЗ иона с  $L \neq 0$  можно представить в виде [9]

$$\delta\alpha_{ij} = a(Q_{ij}(\hat{L})), \quad (5)$$

где  $Q_{ij}(L) = (1/2)(L_i L_j + L_j L_i) - (1/3)L(L+1)$  — компонента квадрупольного момента  $f$ -оболочки РЗ иона,  $L_k$  — оператор углового момента РЗ иона,

$$a = 1/(2L+1) \left[ 2\omega_0 / (\hbar(\omega_0^2 - \omega_L^2)) \right] (er_{fd})^2 \sum_{L'} \langle L \| d^1 \| L' \rangle^2 F(L', L), \quad (6)$$

где  $\omega_0$  — средняя частота  $f-d$  переходов ( $\hbar\omega_0 = 10^5$  см $^{-1}$ ),  $r_{fd} = \langle 4f|r|5d \rangle$  — радиальный интеграл (для  $\text{Sm}^{3+}$   $r_{fd} = 0.4$  Å [10]),  $L'$  — орбитальные квантовые числа термов  $4f^{n-1}5d$  конфигурации,

$$\langle L \| d^1 \| L' \rangle^2 = \sum_{L_1} 3n (G_{S_1 L_1}^{SL})^2 (2L+1)(2L'+1) \left\{ \begin{matrix} 3 & L & L_1 \\ L' & 2 & 1 \end{matrix} \right\}^2,$$

$$F(L', L) = -\frac{\delta_{L'L-1}}{L(2L-1)} + \frac{\delta_{L'L}}{L(L+1)} - \frac{\delta_{L'L+1}}{(L+1)(2L+3)},$$

$G_{S_1 L_1}^{SL}$  — генеалогические коэффициенты;  $S_1, L_1$  — квантовые числа термина исходного иона. Вклад (5) в диэлектрическую проницаемость кристалла равен [9]

$$\delta\varepsilon_{\alpha\beta} = ab \sum_i \langle Q_{\alpha\beta}^i \rangle, \quad (7)$$

где  $b = 2/3\pi N[(n_0^2 + 2)/3]^2$  ( $n_0$  — показатель преломления,  $N$  — число РЗ ионов в единице объема), а суммирование ведется по всем шести неэквивалентным узлам.

В оптическом диапазоне частот падающего света вкладом гиротропных составляющих тензора  $\varepsilon_{\alpha\beta}$  в МЛДп можно пренебречь [11]. В этом случае в системе координат с осью  $\mathbf{z} \parallel \mathbf{M}_{\text{Fe}}$  ( $\Delta n = (3/4)n_0^{-1}\delta\varepsilon_{zz}$ ) выражение для сдвига фазы примет вид

$$\beta = (3/2)(n_0\lambda)^{-1}ab \sum_i \langle Q_{zz}^{(i)} \rangle = C \sum_i \langle Q_{zz}^i \rangle, \quad (8)$$

где  $C = (3/2)(\lambda n_0)^{-1}ab$ .

Усреднив оператор  $Q_{zz}$  по состояниям (4), получим

$$\beta = \beta_0 + \beta_1 + \beta_2 + \beta_3, \quad (9)$$

где

$$\beta_0 = C \langle L \| d^1 \| L \rangle^2 \sum_m \beta'_m(J),$$

$$\beta_1 = C \frac{2\mu_B H_{\Phi} \langle L \| d^1 \| \rangle^2}{\Delta_1} (-1)^{L+S+J} \left\{ \begin{matrix} L & S & J \\ 2J+1 & L & \end{matrix} \right\} \sum_{\min} \left[ \frac{(J+1)^2 - m^2}{J(J+1)(J+2)} \right]^{1/2} \times \\ \times S_m^J |C_{mn}^i|^2 m \rho_n^i,$$

$$\beta_2 = C \langle L \| d^1 \| \rangle^2 \left[ \frac{\mu_B H_{\Phi}}{\Delta_1} \right]^2 \sum_m [\beta'_m(J+1) - \beta'_m(J)] (S_m^J)^2,$$

$$\beta_3 = 2C \frac{(\mu_B H'_{\Phi})^2 \langle L \| d^1 \| L \rangle^2}{\Delta_1 \Delta_2} (-1)^{L+S+J} \left\{ \begin{matrix} L & S & J \\ 2J+2 & L & \end{matrix} \right\} \sum_{\min} \times$$

$$\times S_m^J S_m^{J+1} \left\{ \frac{3[(J+1)^2 - m^2][(J+2)^2 - m^2]}{(J+2)(2J+2)(2J+3)} \right\}^{1/2} \rho_n^i,$$

$$\beta'_m(J) = (2J+1)^{1/2} (-1)^{L+S+J} \left\{ \begin{matrix} L & S & J \\ 2 & J & L \end{matrix} \right\} \sum_{in} \times$$

$$\times |C_{nm}^i|^2 \frac{3m^2 - J(J+1)}{[(2J-1)J(J+1)(2J+3)]^{1/2}} \rho_n^i,$$

$$\rho_n^i = \frac{\exp(-E_n^i/kT)}{\sum_p \exp(-E_p^i/kT)}.$$

Слагаемое  $\beta_0$  представляет собой сдвиг фазы при отсутствии смешивания мультиплетов.  $\beta_1$  — слагаемое первого порядка малости по параметру  $\chi = \mu_B H_{ex}^1 / \Delta \ll 1$ . С ростом температуры по мере заселения уровней основного мультиплета  $\beta_1 \rightarrow 0$ . Слагаемые же второго порядка малости по  $\chi \ll 1$   $\beta_{2,3}$  при этом меняются слабо. Известно, что температурно-независящая составляющая магнитного момента возникает при учете примешивания по теории возмущений к основному состоянию возбужденных состояний и является величиной первого порядка малости по  $\chi \ll 1$  (механизм Ван Флека). Различие состоит в том, что температурно-независящие магнитные составляющие квадрупольного момента ( $\beta_{2,3}$ ) возникают лишь во втором порядке теории возмущений по  $\chi \ll 1$ .

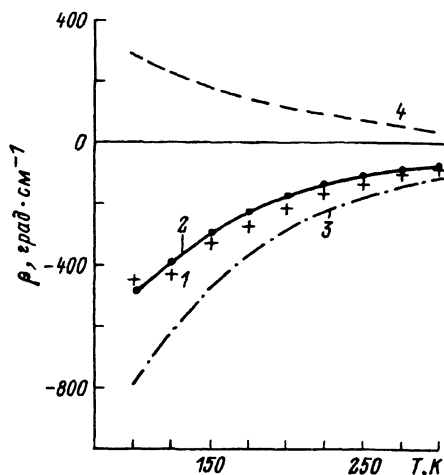
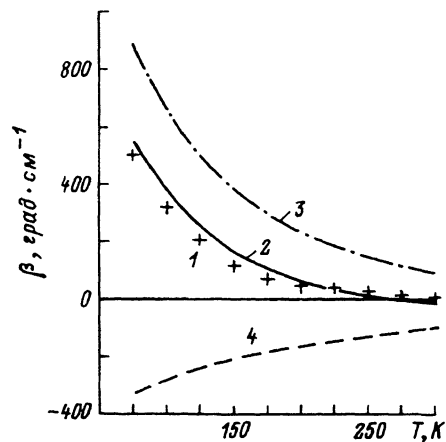
Перейдем теперь к количественному анализу МЛДп в  $\text{Sm}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ . Ограничимся рассмотрением двух направлений магнитного поля:  $\mathbf{H} \parallel [111]$  и  $\mathbf{H} \parallel [100]$ , области температур выше температуры кипения азота  $T \geq 78$  К и слабых полей. Именно при таких условиях проводились опыты [1,2].

Результаты численного анализа величины  $\beta$  (см. (9)) приведены на рис. 1, 2. На этих же рисунках приведены и экспериментальные зависимости  $\beta(T)$ . Видно, что имеется весьма хорошее согласие теоретических данных с экспериментальными. Обращает на себя внимание важность влияния смешивания мультиплетов на поведение МЛДп. Учет примешивания в поле состояний возбужденных мультиплетов к состояниям основного мультиплета иона  $\text{Sm}^{3+}$  позволил значительно улучшить согласие теоретических и экспериментальных величин  $\beta$ , а также и соответствующих зависимостей  $\beta(T)$  в случае  $\text{M}_{\text{Fe}} \parallel [111]$  (рис. 3).

#### 4. Обсуждение результатов и заключение

Таким образом, использование предложенных в [3] параметров кристаллического поля, действующего на ионы  $\text{Sm}^{3+}$  в  $\text{Sm}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ , позволило в приближении Джада-Офельта объяснить не только различие знаков МЛДп в случаях  $\mathbf{H} \parallel [111]$  и  $\mathbf{H} \parallel [100]$ , но и добиться хорошего количественного согласия теоретических и экспериментальных значений  $\beta$  при  $T > 100$  К.

Незначительное отклонение рассчитанных величин  $\beta(T)$  от опытных при  $78 \text{ К} < T < 100 \text{ К}$  в случае  $\mathbf{H} \parallel [100]$ , по-видимому, обусловлено тем, что при  $T < 100 \text{ К}$  значения поля  $H = 17$  кЭ, использованного при



**Рис. 1.** Температурная зависимость магнитного линейного двупреломления  $\text{Sm}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  для  $\mathbf{H} \parallel [111]$  ( $H = 17$  кЭ,  $\lambda = 1.15$  мкм).

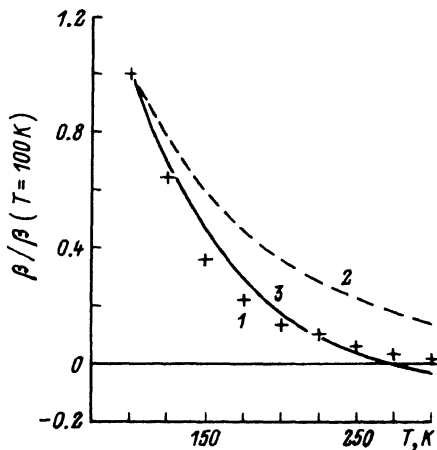
- 1 — экспериментальные данные [2],
- 2 — расчет по формуле (9),
- 3 — вклад в  $\beta(T)$  основного мультиплета,
- 4 — вклад в  $\beta(T)$  от смешивания мультиплетов.

**Рис. 2.** Температурная зависимость магнитного линейного двупреломления  $\text{Sm}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  для  $\mathbf{H} \parallel [100]$  ( $H = 17$  кЭ,  $\lambda = 1.15$  мкм).

- 1 — экспериментальные данные [2],
- 2 — расчет по формуле (9),
- 3 — вклад в  $\beta(T)$  основного мультиплета,
- 4 — вклад в  $\beta(T)$  от смешивания мультиплетов.

проведении опытов, недостаточно для реализации состояния  $M_{\text{Fe}} \parallel \mathbf{H}$ , поскольку в [12] установлено, что при 78 К критическое значение поля в случае  $\mathbf{H} \parallel [100]$  равно  $H_{\text{кр}} = 21$  кЭ.

Известно, что для объяснения температурной зависимости намагниченности подсистемы принципиальную роль играет учет примешивания в поле к состояниям основного мультиплета состояний первого возбужденного мультиплета [13]. Характерно, что данный механизм также играет весьма важную роль и для объяснения температурной зависимости линейного магнитного двупреломления  $\text{Sm}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ .



**Рис. 3.** Нормированная температурная зависимость магнитного линейного двупреломления  $\text{Sm}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  для  $\mathbf{H} \parallel [111]$  ( $H = 17$  кЭ,  $\lambda = 1.15$  мкм).

- 1 — экспериментальные данные [2], расчет с использованием (9);
- 2 — вклад в  $\beta(T)$  основного мультиплета;
- 3 — вклад с учетом примешивания в поле состояний возбужденных мультиплетов.

## Список литературы

- [1] Dillon J.F., Remeika J.P., Staton C.R. // J. Appl. Phys. 1970. V. 41. P. 4613-4619.
- [2] Смоленский Г.А., Писарев Р.В., Синий И.Г., Колпакова Н.Н., Титова А.Г. // Изв. АН СССР. 1972. Т. 36. В. 6. С. 1219-1229.
- [3] Дорофеев О.А., Попов А.И. // ФТТ. 1989. Т. 31. № 11. С. 124-126.
- [4] Бабушкин Г.А., Бородин В.А., Дорошев В.Д., Звездин А.К., Левитин Р.З., Попов А.И. // Письма в ЖЭТФ. 1982. Т. 35. № 1. С. 28-31.
- [5] Gulliot M., Le Gall H., Marchand A. // IEEE Trans. Magn. 1986. V. MAG-22. N 5. P. 1239-1241.
- [6] White J.A. // Proc. Phys. Soc. 1967. V. 90. N 570. P. 1095-1109.
- [7] Wyborne B.G. Spectroscopic properties of rare earths. N.Y., 1965. 236 p.
- [8] Звездин А.К., Котов В.А. Магнитооптика тонких пленок. М.: Наука, 1988. 192 с.
- [9] Звездин А.К., Попов А.И., Туркменов Х.И. // ФТТ. 1986. Т. 28. № 6. С. 1760-1767.
- [10] Judd B.R. // Phys. Rev. 1963. V. 127. P. 750-752.
- [11] Ведерников Н.Ф., Звездин А.К., Левитин Р.З., Попов А.И. // ЖЭТФ. 1987. Т. 39. № 6. С. 2161-2177.
- [12] Орлов В.Н. // Автореф. канд. дис. М., МГУ, 1985.
- [13] Дорофеев О.А., Попов А.И. // ФТТ. 1990. Т. 32. № 11. С. 3425-3427.

Институт электронной техники  
Москва

Поступило в Редакцию  
3 декабря 1992 г.