

УДК 535.218

©1995

## ИЗУЧЕНИЕ ТЕМПЕРАТУРНОГО ПОВЕДЕНИЯ ФОТОМАГНИТНОГО ЭФФЕКТА В КРИСТАЛЛАХ FeVO<sub>3</sub> НА СКВИД-МАГНИТОМЕТРЕ

*Г.С.Патрин, Д.А.Великанов, Г.А.Петраковский*

Институт физики им. Л.В.Киренского СО РАН, Красноярск  
(Поступила в Редакцию 12 декабря 1993 года)

Представлены результаты экспериментального и теоретического исследования оптически индуцированных изменений намагниченности при изменении температуры. Изучены относительные вклады от центров в различных кристаллографических позициях. Показано, что воздействие излучения на фоточувствительные центры, которые имеют малые расщепления между энергетическими уровнями, приводит к увеличению спиновой температуры, тогда как для фотоцентров с большими расщеплениями эффект аналогичен охлаждению этой группы центров. Установлена роль безызлучательных переходов в формировании фотоиндуцированного состояния.

После обнаружения фотомагнитного эффекта в кристаллах FeVO<sub>3</sub> [1] он постоянно находится в поле интересов исследователей. Изучение эффекта проводилось различными методами, при этом можно отметить ключевые моменты в понимании фотомагнитных свойств этих кристаллов. Методом магнитоакустического резонанса [2] было определено, что при оптическом облучении происходит изменение магнитной анизотропии в базисной плоскости; при изучении линейного оптического двулучепреломления [3] было обнаружено, что индуцируется поле анизотропии, перпендикулярной направлению намагниченности, а также была установлена зависимость периода полосовой доменной структуры от мощности оптического излучения; исследованиями антиферромагнитного резонанса [4] было показано, что при достаточно больших дозах оптического излучения происходит перенос заряда между разновалентными ионами железа. Изучение фотомагнитного эффекта в FeVO<sub>3</sub> при низких температурах на СКВИД-магнитометре [5] позволило выяснить образования фотоиндуцированных состояний. Установлено, что при облучении происходит перераспределение населенностей подуровней основного мультиплета примесного центра (предположительно Fe<sup>2+</sup>) таким образом, что в силу правил отбора для оптических переходов заселяется преимущественно уровень, имеющий более сильный анизотропный характер. Этот механизм позволяет понять образование поля фотоиндуцированной магнитной анизотропии, перпендикулярной направлению намагниченности, и объяснить анизотропные

свойства, включая спин-переориентационный фазовый переход в базисной плоскости. Однако до сих пор не было выяснено, чем определяются область существования фотомагнитного эффекта по температуре сверху и его поведение в зависимости от мощности оптического излучения.

В настоящей работе описаны эксперименты на СКВИД-магнитометре, снабженном оптической приставкой, позволившие прояснить эти вопросы.

Все детали и методика, включая геометрию эксперимента, были такими же, как в работе [5].

Измеряемой величиной было изменение магнитного момента кристалла, определяемое как разность намагниченностей при наличии и отсутствии оптического облучения ( $\delta m_{ex} = m_l - m_d$ ).

На рис. 1 представлена температурная зависимость  $\delta m_{ex}$ , снятая во внешнем магнитном поле  $H = 100$  Ое при плотности оптического излучения  $P = 0.1 \text{ W/cm}^2$ . На этом рисунке точки — эксперимент, кривая 2 — подгонка по методу наименьших квадратов полиномом 5-й степени. При получении экспериментальной зависимости  $\delta m_{ex}$  было замечено, что при  $T > 50$  К при включении и выключении света изменение намагниченности во времени происходит с более длинными временами, чем при низких температурах. С увеличением температуры доля медленной части растет, и при  $T > 150$  К практически все изменения  $\delta m_{ex}$  определяются ею. Поэтому можно считать, что измеряемые изменения намагниченности определяются суммой собственно светоиндуцированного вклада и вклада, связанного с нагревом образца при оптическом облучении, т.е.

$$\delta m_{ex} = \delta m_l + \delta m_T, \quad (1)$$

где

$$\delta m_T = \frac{\partial m}{\partial T} \Delta T, \quad (2)$$

а  $\delta m_l$  — определяется выражением (14) в [5]. Здесь  $\Delta T$  — изменение температуры образца за счет нагрева при облучении светом.

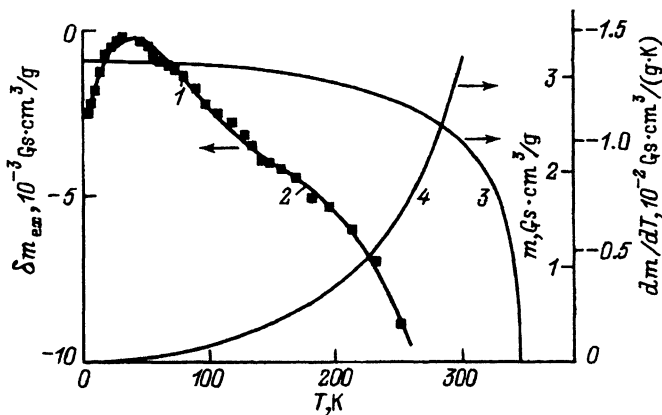


Рис. 1. Температурные зависимости фотоиндуцированного изменения магнитного момента (эксперимент 1 и подгонка полиномом 5-й степени (2)), намагниченности (3) и производной намагниченности по температуре (4).

Для отделения теплового вклада мы измерили температурную зависимость намагниченности  $m(T)$  (кривая 3 на рис. 1) данного кристалла  $\text{FeVO}_3$  и определили зависимость  $\delta m(T)/\partial T$  (кривая 4 на рис. 1). Для определения  $\Delta T$  были использованы результаты расчета [6]. Значения параметров для гелия были взяты из [7], а для бората железа заменялись на параметры для родственного окисла  $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$  [8]. Для теплового механизма воздействие оптического излучения рассматривалось как внутренний источник тепла, определяемый выражением  $q = P_0(1 - 10^{-\alpha z})/V$  [6], где  $P_0$  — падающая мощность оптического излучения,  $V$  — объем образца,  $z$  — его толщина,  $\alpha(T)$  — температурно-зависимый коэффициент оптического поглощения. При определении зависимости  $\alpha(T)$  (на  $\lambda = 0.63\mu\text{m}$ ) использовались данные работ [9,10]. Считаем, что после вычитания теплового вклада  $\delta m_T$  получившаяся кривая полностью определяется светоиндуцированными изменениями  $\delta m_l$ .

На рис. 2, а (кривая 7) приведен результат такой обработки. Там же (кривая 2) дана зависимость  $\delta m_l$ , рассчитанная в [5] в предположении, что вероятности оптических переходов и вероятности переходов, связанных с заселением уровней основного мультиплетта, одинаковы для различных центров и не зависят от температуры. Видно, что если при гелиевых температурах наблюдается качественное согласие, то при более высоких температурах на теоретической кривой не просматривается ожидаемая особенность. В действительности, как установлено ранее [5], эта особенность имеет место. Однако ее расчетная величина в использованном приближении на два порядка меньше полученной экспериментально.

По нашему мнению, несоответствие между расчетом и экспериментом разрешается следующим образом. Известно [1], что спектр фоточувствительности кристаллов  $\text{FeVO}_3$  повторяет его спектр оптического поглощения. Если принять, что ответственными за фотоиндуцированные изменения являются ионы двухвалентного железа, то следует также принять, что возбуждение ионов  $\text{Fe}^{2+}$  происходит путем безызлучательной передачи возбуждения от ионов  $\text{Fe}^{3+}$ . На рис. 3 изображены схема возможных переходов и энергетическая диаграмма уровней  $\text{Fe}^{2+}$  в зависимости от угла в базисной плоскости между намагниченностью и осью  $C_2$  для позиций  $t = 1, 4$  в обозначениях работы [5]. Для ионов  $\text{Fe}^{2+}$ , находящихся в других позициях (в случае геометрии, в которой был поставлен эксперимент), расщепления между энергетическими уровнями малы, поэтому эти ионы вносят вклад только в низкотемпературные ( $T < 30\text{ K}$ ) особенности фотоиндуцированного изменения магнитного момента, а при высоких температурах вклад от них не проявляется. Согласно ранее использованной модели [5], в результате оптического облучения происходит преимущественное опустошение уровней типа |1) и заселение уровней типа |2) (рис. 3). Значит, весь эффект определяется отклонением от равновесных значений заселенностей уровней |1) и |2), выражения для которых при учете оптического облучения имеют вид [11]

$$n_1 = (1 + A_1)/Q, \quad (3a)$$

$$n_2 = [\exp(-\Delta/k_B T) + A_2]/Q, \quad (3b)$$

где

$$Q = [\exp(-\Delta/k_B T) + 1](1 + B) + C,$$

$$C = \sum A_i, \quad i = 1, 2, 3,$$

а величины  $A_i$  и  $B$  выражаются через вероятности переходов.

Будем учитывать только преимущественное направление переходов при взаимодействии примесного центра с полем оптического излучения. Тогда, как изображено на рис. 3, отличными от нуля будут вероятности ( $d_{ij}$ ) только указанных переходов, т.е.  $d_{2\psi} = d_{\psi 1} = 0$ , что дает  $A_1 = 0$ . Пренебрегая заселенностью оптически возбужденного состояния  $|\psi\rangle$ , получим  $A_3 = 0$ . Тогда величина  $A_2$ , пропорциональная вероятности  $d_{1\psi}$ , будет определять скорость заселения состояний типа  $|2\rangle$ . Предполагаем, что  $A_2$  характеризует собой суммарную вероятность перехода примесного центра в оптически возбужденное состояние по

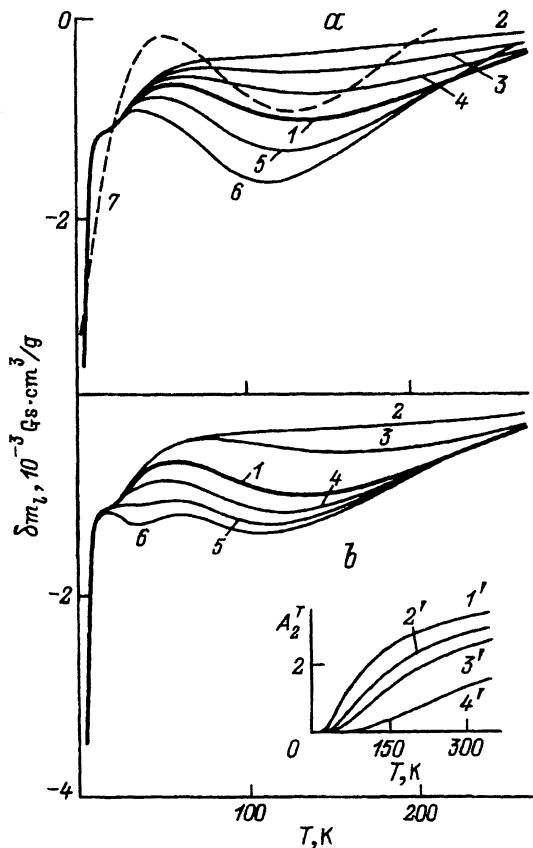


Рис. 2. Теоретический расчет температурных зависимостей  $\delta m_l$ .

а)  $\Omega_{ph}/k_B = 200$  K: 1 — 50, 2 — 0, 3 — 10, 4 — 25, 5 — 100, 6 — 200, 7 — обработка эксперимента.

б)  $\xi = 50$ .  $\Omega_{ph}/k_B$ : 1 — 800, 2 — 400, 3 — 200, 4 — 150, 5 — 120, 6 — 100. На вставке — температурная зависимость  $A_2^T$  при различных  $\Omega_{ph}/k_B$ : 1' — 100, 2' — 150, 3' — 200, 4' — 400.

всем возможным каналам. В случае передачи возбуждения через поле фононов вероятность безызлучательного перехода будет определяться формулой, приведенной в [12], и для  $A_2$  можно записать выражение

$$A_2 = A_2^0 + A_2^T, \quad (4a)$$

где

$$A_2^T = \frac{\xi}{1 + a(T) \exp(\Omega_{ph}/k_B T)}, \quad (4b)$$

$a(T)$  — функция, слабо зависящая от температуры (в дальнейшем будем считать ее константой),  $\xi$  — постоянная, определяющая максимальную величину вероятности и имеющая смысл числа переходов в единицу времени,  $\Omega_{ph}$  — эффективная энергия поля фононов, ответственных за перенос возбуждения,  $A_2^0$  — температурно-независимый вклад за счет других механизмов.

В используемом приближении наилучшая подгонка для  $\delta m_i(T)$  получались при значениях  $\xi = 50$ ,  $a = 10$  и  $\Omega_{ph}/k_B = 200$  К (кривая 1 на рис. 2), величины остальных параметров взяты из [5],  $A_2^0 = 0.318$ , что соответствует 20% отклонению заселенностей от равновесного для центров с малым расщеплением при  $T = 4.2$  К. На этом же рисунке (часть *a*) для сравнения приведены зависимости при  $\xi = 0, 10, 25, 100$  и  $200$  (кривые 2, 3, 4, 5 и 6 соответственно). Видно, что с увеличением  $\xi$  вклад от рассматриваемых позиций растет, однако имеется тенденция к насыщению, которое при неизменных остальных параметрах наступает при  $\xi \sim 10^3$ . Такое поведение становится понятным, если обратиться к рис. 3. Фотоиндуцированное изменение  $\delta m_i$  получается как результат конкуренции двух механизмов: 1) температурного заселения состояния |1> и 2) опустошения его при оптическом облучении и увеличения заселенности состояния |2>. Значит, воздействие оптического излучения приводит к охлаждению примесных центров в данных позициях.

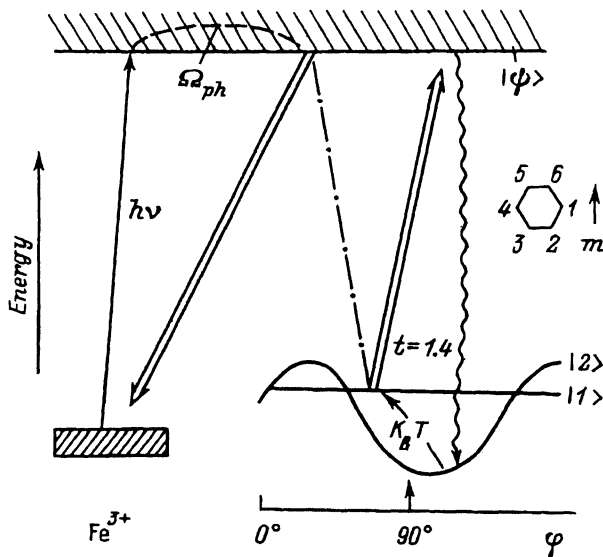


Рис. 3. Диаграмма энергетических уровней и схема переходов. Направление магнитного поля в эксперименте  $\varphi = 90^\circ$ .

При увеличении мощности оптического излучения скорость охлаждения начинает превышать скорость нагрева за счет гиббсовского механизма, и дальнейшего отклонения от термодинамически равновесного уже не происходит, чем и объясняется эффект насыщения.

На рис. 2, *b* приведены зависимости  $\delta t_1$ , полученные при  $\xi = 50$  и различных значениях  $\Omega_{ph}$ . Видно, что уменьшение энергии поля фоонов ведет к смещению провала в область более низких температур, и при  $\Omega_{ph}/k_B \sim 100$  К начинают вносить вклад позиции, имеющие меньшие энергетические расщепления. Вставка на рис. 2, *b*, где дана зависимость  $A_2^T$  от температуры при различных  $\Omega_{ph}$ , помогает понять этот факт. При малых значениях  $\Omega_{ph}$  безызлучательная передача возбуждения начинается ниже по температуре, поэтому центры с малыми расщеплениями раньше вовлекаются в процесс формирования фотоиндуцированного состояния. Это ведет к тому, что при увеличении температуры центры в разных позициях заселяются с одинаковыми скоростями, и их относительные вклады определяются факторами Гиббса.

Таким образом, в результате экспериментального и теоретического исследований температурного поведения фотоиндуцированного изменения магнитного момента установлено, что наблюдаемый эффект определяется совместным воздействием оптических и тепловых переходов. При низких температурах эффект связан с примесными центрами, для которых происходит эффективное увеличение спиновой температуры. При высоких температурах включается группа центров, для которых оптическое излучение опустошает термически заселенное состояние, т.е. имеет место снижение спиновой температуры. Показано, что вероятности переходов, относящихся к процессу создания индуцированного состояния, зависят от температуры и связаны с безызлучательным механизмом переноса возбуждения.

Более полное описание явления возможно на пути учета анизотропии оптических переходов и одновременного с внутриионным механизмом учета перераспределения центров, находящихся в разных кристаллографических позициях. Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект 93-02-2487).

#### Список литературы

- [1] Lacklison D.E., Chadwick J., Page J.L. J.Appl.Phys. **42**, 4, 1445 (1971); J.Phys.D **5**, 4, 810 (1972).
- [2] Seavy M.H. Solid State Commun. **12**, 1, 49 (1973).
- [3] Федоров Ю.М., Лексиков А.А., Аксенов А.Е. ЖЭТФ **89**, 6(12), 2099 (1985).
- [4] Patrin G.S., Petrakovskii G.A., Rudenko V.V. Phys.Stat.Sol.(a) **99**, 1, 619 (1987).
- [5] Патрин Г.С., Великанов Д.А., Петраковский Г.А. ЖЭТФ **103**, 1, 234 (1993).
- [6] Патрин Г.С., Овчинников В.В., Кулиев С.Н. Магнитные, электрические и резонансные свойства магнитодиэлектриков. Красноярск (1982), С. 169.
- [7] Роуз-Инс А. Техника низкотемпературного эксперимента. М. (1966), 214 с.
- [8] Физико-химические свойства окислов: Справочник / Под ред. Г.В. Сомсонова М. (1978), 471 с.
- [9] Kurtzig A.J., Wolf R., LeCraw R.C., Nielsen J.W. Appl.Phys.Lett. **14**, 11, 350 (1969).
- [10] Заблуда В.Н., Малаховский А.В., Эдельман И.С. ФТТ **27**, 1, 133 (1985).
- [11] Петраковский Г.А., Патрин Г.С. ЖЭТФ **90**, 5, 1769 (1986).
- [12] Лубченко А.Ф. Квантовые переходы в примесных центрах твердых тел. Киев (1978), 292 с.