

## Эффект Фарадея европиевого органического стекла в мегагауссных магнитных полях

© М.И. Долотенко\*\*, А.К. Звездин\*, Г.Г. Мусаев\*, В.В. Платонов\*\*, В.И. Плис, А.И. Попов, В.Н. Попов\*, О.М. Таценко\*\*, А.В. Филиппов\*\*

Московский государственный институт электронной техники (технический университет), 103498 Москва, Россия

\* Институт общей физики Российской академии наук,

117942 Москва, Россия

\*\* ВНИИЭФ Саров, Россия

(Поступила в Редакцию 16 июля 1999 г.)

В окончательной редакции 13 сентября 1999 г.)

Проведено экспериментальное и теоретическое исследование фарадеевского вращения европиевого органического стекла на основе полиметилметакрилата в мегагауссных полях. Эксперимент проводился с использованием взрывомагнитного генератора МК-1, лазерного излучения с длиной волны  $\lambda = 0.85 \mu\text{m}$  при температуре  $T = 30 \text{ K}$ . Установлено, что зависимость угла поворота плоскости поляризации от магнитного поля имеет нелинейный характер. Проведено сопоставление теоретических результатов с опытными. Выделен вклад в эффект Фарадея от орбитального момента ионов европия. Сделан вывод о том, что обнаруженные ранее аномалии эффекта Фарадея в случае лазерного излучения с длиной волны  $\lambda = 0.63 \mu\text{m}$ , обусловлены индуцированным ультрасильным полем магнитооптическим резонансом.

Работа поддержана грантом № 97-02-17-972 Российского фонда фундаментальных исследований, а также грантом № 97-0-7.036 по исследованиям в области фундаментального естествознания в системе Минобразования РФ, а также МНТП (проект № 97-1071) и ФЦП Интеграция (проект № К-0573).

В работе [1] было предсказано и теоретически исследовано новое явление, а именно индуцированная сверхсильным (мегагауссным) магнитным полем существенная перестройка спиновой и орбитальной структуры легких редкоземельных атомов. Известно, что в легких редкоземельных ионах под влиянием спин-орбитального взаимодействия реализуется основное состояние (основной мультиплет) с низким значением полного углового момента (например, в  $\text{Eu}^{3+}$   $J = 0$ , в  $\text{Sm}^{3+}$   $J = 5/2$  и т.д.), в то время как мультиплеты с большими значениями углового момента являются возбужденными. Используя квазиклассическую терминологию, можно считать, что в основном состоянии спин и орбитальный момент антипараллельны, а в самом верхнем мультиплете основного терма они параллельны. В работе [1] было показано, что сильное магнитное поле, конкурируя со спин-орбитальным взаимодействием, изменяет взаимную ориентацию спина и орбитального момента от антипараллельной до параллельной и этот процесс взаимной переориентации происходит не непрерывно, а посредством серии квантовых скачков. Исследование этого явления представляется перспективным, так как дает непосредственно информацию о таких сложных многоэлектронных объектах, как редкоземельные атомы, актиниды, высокоспиновые органические молекулы и др. Кроме того, наблюдение и изучение квантовых скачков интересно и для физики сверхсильных магнитных полей, и в особенности для развития техники измерений в них, так как такие скачки могут рассматриваться как атомные стандарты мегагауссных полей. Весьма перспективным для изучения квантовой переориентации магнитных мо-

ментов является измерение фарадеевского вращения в ультрасильных магнитных полях в оптическом и ультрафиолетовом диапазонах, поскольку, согласно [1–5], эффект Фарадея, обусловленный ионами с отличным от нуля орбитальным моментом, реагирует не на полный магнитный момент иона, а только на его орбитальный момент (исключая узкие спектральные области вблизи резонансных частот запрещенных  $f-f$ -переходов).

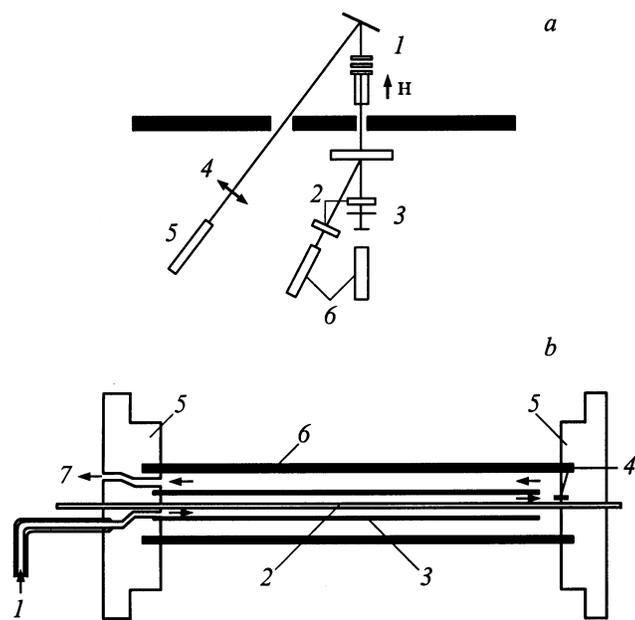
Обычно при исследовании магнитных и магнитооптических свойств редкоземельных материалов ограничиваются учетом одного основного мультиплета редкоземельных ионов [5,6]. В этом случае средний орбитальный момент пропорционален суммарному магнитному моменту иона (если  $J \neq 0$ ). Учет смешивания мультиплетов ( $J-J$ -mixing) приводит к дополнительному вкладу в орбитальный момент, а, следовательно, и в фарадеевское вращение, которое в относительно слабых полях линейно зависит от величины магнитного поля [2–5]. В сверхсильных магнитных полях, в которых величина расщепления уровней иона становится сравнимой с величиной спин-орбитального взаимодействия, зависимость среднего орбитального момента от магнитного поля становится существенно нелинейной [1]. Среди редкоземельных ионов большой интерес представляют ионы  $\text{Eu}^{3+}$  ( $L = 3$ ,  $S = 3$ ). Основное состояние этих ионов представляет собой синглет с нулевым полным угловым моментом. Поэтому парамагнитный вклад в фарадеевское вращение, обусловленный различием заселенностей уровней основного мультиплета, расщепленного магнитным полем, отсутствует.

В работе [7] проводились измерения эффекта Фарадея в органическом стекле, содержащем ионы  $\text{Eu}^{3+}$ , в полях вплоть до 11 МОе при использовании лазерного излучения с длиной волны  $\lambda = 0.63 \mu\text{m}$ , что весьма близко к линии поглощения в этом ионе [8]. Данное обстоятельство существенно затрудняет интерпретацию результатов опыта, поскольку в этом случае необходим учет резонансного вклада в эффект Фарадея.

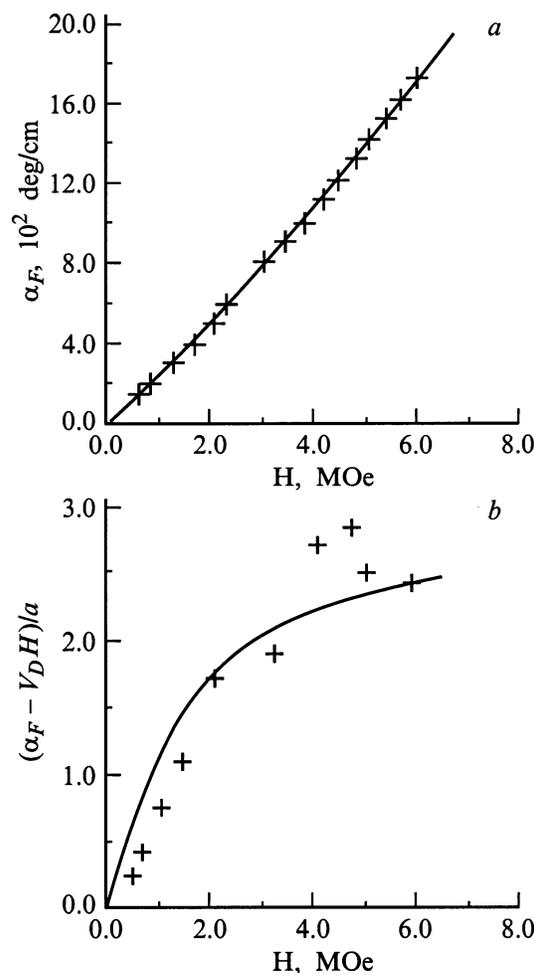
Поэтому для изучения явления разворота угловых моментов иона  $\text{Eu}^{3+}$  необходимо провести исследование эффекта Фарадея европийсодержащих сред при использовании излучения с частотой, удаленной от резонансных частот, что и было сделано в настоящей работе.

## 1. Эксперимент

В данной работе было проведено измерение фарадеевского вращения оргстекла на основе полиметилметакрилата, содержащего 5% (весовых) ионов  $\text{Eu}^{3+}$ . Измерения проводились в полях вплоть до 6 МОе при  $T \sim 30 \text{ K}$ . Схема эксперимента представлена на рис. 1, *a*. Образец оргстекла толщиной 18 мм был помещен в продувной гелиевый криостат (рис. 1, *b*). Измерения эффекта Фарадея проводились при использовании лазерного излучения



**Рис. 1.** *a* — схема измерения фарадеевского вращения в сверхсильных магнитных полях, создаваемых взрывомагнитным генератором. Цифрами обозначены: 1 — криостат и образец, 2 — интерференционный фильтр ( $\lambda = 0.85 \mu\text{m}$ ), 3 — анализатор, 4 — поляризатор, 5 — лазер ( $\lambda = 0.85 \mu\text{m}$ ), 6 — фотоэлектрические умножители. *b* — схема продувного гелиевого криостата. Цифрами обозначены: 1 — впуск He, 2 — оптический датчик для измерения фарадеевского вращения, 3 — стеклянная трубка, 4 — датчик температуры, 5 — пластиковые фланцы, 6 — внутренний каскад МК генератора, 7 — выпуск He.



**Рис. 2.** *a* — зависимость угла поворота плоскости поляризации органического стекла, содержащего ионы европия (5% весовых), при  $T = 30 \text{ K}$ ; крестиками обозначены экспериментальные данные, полученные при использовании лазерного излучения с длиной волны  $\lambda = 0.85 \mu\text{m}$ ; сплошная линия — линейная аппроксимация зависимости фарадеевского вращения от величины магнитного поля. *b* — зависимость вклада смешивания ( $J$ - $J$ -mixing) в эффект Фарадея ионов европия от величины поля, крестики — обработка экспериментальных данных, сплошная линия — рассчитанная численными методами полевая зависимость среднего орбитального момента ионов европия при  $T = 30 \text{ K}$ .

длиной волны  $\lambda = 0.85 \mu\text{m}$ . Свет проходил через поляризатор, образец, анализаторы и два фотоумножителя. Один из фотоумножителей регистрировал фарадеевское вращение, второй — зависимость поглощения от магнитного поля. Поглощение образца во всей области магнитных полей было постоянным. Сверхвысокие магнитные поля создавались взрывомагнитным генератором типа МК-1 [9]. Погрешность измерения поля не превышала 5%. Экспериментальная зависимость фарадеевского вращения образца приведена на рис. 2, *a*. Обращает на себя внимание ее резкое отличие от соответствующей зависимости, реализующейся при использовании

излучения с длиной волны  $\lambda = 0.63 \mu\text{m}$  [7]. Отметим тот факт, что, несмотря на малое содержание ионов европия в образце, зависимость фарадеевского вращения от магнитного поля имеет заметно нелинейный характер.

## 2. Теория

Величина эффекта Фарадея в исследуемой системе представляет собой сумму вкладов от матрицы (оргстекло) и оптических переходов в ионах  $\text{Eu}^{3+}$ . Вклад от матрицы имеет диамагнитный характер и линейно зависит от магнитного поля вплоть до полей порядка  $10^2 \text{МОе}$  [10].

Удельное вращение плоскости поляризации (эффект Фарадея) может быть представлено следующей формулой (см., например, [5,6]):

$$\alpha_F = \frac{\pi N e^2 L}{m c n} \sum_{a,b} \rho_a \frac{f_{ab}^+ - f_{ab}^-}{\omega_{ab}} \varphi(\omega, \omega_{ab}),$$

где

$$f^+, f^- = (\hbar e^2)^{-1} m \omega_{ab} (d_{ab}^x \pm i d_{ab}^y)^2$$

— силы осцилляторов,  $|a\rangle$  и  $|b\rangle$  — основное и возбужденное состояния,  $\omega_{ab} = \frac{1}{\hbar}(E_b - E_a)$ ,  $\rho_{ab}$  — заселенность основного состояния,  $L = [(n^2 + 2)/3]^2$ ,  $n$  — показатель преломления среды,  $N$  — число ионов,

$$\varphi(\omega, \omega_{ab}) = \frac{\omega_{ab} \omega (\omega_{ab}^2 - \omega^2 - \Gamma_{ab}^2)}{(\omega_{ab}^2 - \omega^2 - \Gamma_{ab}^2)^2 + 4\omega^2 \Gamma_{ab}^2},$$

$\Gamma_{ab}$  — полуширина  $a$ - $b$ -перехода.

Рассмотрим более подробно вклад ионов  $\text{Eu}^{3+}$  в эффект Фарадея. Основное состояние  $\text{Eu}^{3+}$  является синглетом  ${}^7F_0$  с  $J = 0$ , энергии возбужденных мультиплетов  $E({}^7F_1) = 310$ ,  $E({}^7F_2) = 925$  и  $E({}^7F_3) = 2 \cdot 10^3 \text{ см}^{-1}$ . В общем случае вклад магнитных ионов в эффект Фарадея складывается из частотно независящего гиромангнитного вращения плоскости поляризации, пропорционального намагниченности ионов  $\alpha_F^M = C_M M$  и зависящего от частоты падающей волны гироэлектрического вращения. В видимой и ультрафиолетовой областях спектра величина угла поворота плоскости поляризации в основном определяется гироэлектрическим вкладом, обусловленным электрической восприимчивостью среды. В случае редкоземельных ионов, находящихся в диэлектрических средах, гироэлектрический эффект Фарадея формируется в основном  $4f^N - 4f^{N-1}5d$  электродипольными переходами, исключая узкие спектральные области вблизи резонансных частот запрещенных  $f-f$ -переходов. В [2,4] (см. также [5]) было показано, что вклад в эффект Фарадея  $4f^N - 4f^{N-1}5d$ -переходов для магнитных ионов с отличным от нуля орбитальным моментом равен

$$\alpha_F = a \langle L_Z \rangle + V_D H. \quad (1)$$

Первое слагаемое представляет собой совокупность парамагнитного вклада и вклада смешивания, т.е. вклада, обусловленного межмультиплетным взаимодействием

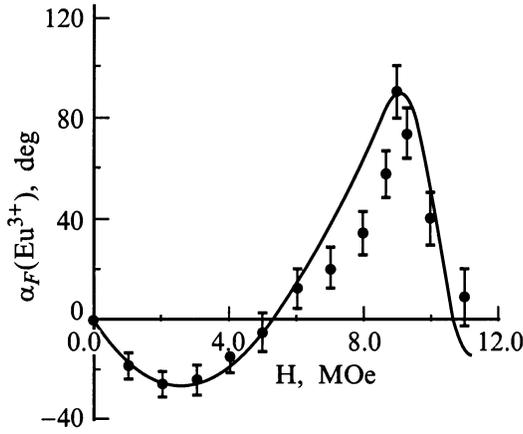
( $J-J$ -mixing), а второе — диамагнитный вклад. Таким образом, в этом случае для анализа эффекта Фарадея органического стекла, содержащего ионы  $\text{Eu}^{3+}$ , можно воспользоваться соотношением (1), в котором второе слагаемое представляет собой совокупность диамагнитных вкладов ионов европия и матрицы. При этом важным является то, что отклонение фарадеевского вращения от линейной зависимости с ростом внешнего магнитного поля  $H$  определяется только нелинейным характером поведения среднего орбитального момента иона  $\text{Eu}^{3+}$  в зависимости от  $H$ .

В настоящей работе рассчитано поведение среднего орбитального момента  $\langle L_Z \rangle$  иона  $\text{Eu}^{3+}$  в сверхсильных магнитных полях при  $T = 30 \text{ К}$  и сопоставлена полученная при  $\lambda = 0.85 \mu\text{m}$  экспериментальная кривая  $\alpha_F(H)$  с теоретической, описываемой формулой (1). Видно (рис. 2, а), что теоретические результаты, рассчитанные при  $V_D = 3.14 \cdot 10^4 \text{ deg/cm} \cdot \text{Ое}$ ,  $a = 75.67 \text{ deg/cm}$ , находятся в хорошем согласии с опытными данными. Для четкого выявления вклада в эффект Фарадея орбитального момента ионов европия мы вычли из  $\alpha_F$  линейно зависящее от магнитного поля диамагнитное слагаемое ( $V_D H$ ) и определили тем самым зависимость вклада смешивания ( $J-J$ -mixing) от величины поля. Затем мы сравнили ее с рассчитанной в данной работе полевой зависимостью среднего орбитального момента ионов европия (рис. 2, б). Видно, что теоретические результаты в целом находятся в согласии с опытными данными. Следует отметить, что данная обработка результатов требует высокой степени точности измерения  $H$  и  $\alpha_F$  в случае малой концентрации ионов  $\text{Eu}^{3+}$ . При  $\delta = \Delta h/h = \Delta \alpha_F/\alpha_F = 2\%$  значения  $\langle L_Z \rangle$ , полученные из обработки экспериментальных данных (рис. 2, б), в пределах погрешностей совпадают с рассчитанными.

Для описания поведения эффекта Фарадея в сверхсильных полях вблизи резонансных частот запрещенных  $f-f$ -переходов, что, по-видимому, реализуется при использовании лазерного излучения с длиной волны  $\lambda = 0.63 \mu\text{m}$ , необходимо к (1) добавить вклад близко расположенной запрещенной линии поглощения  $\alpha_R$ . Таким образом,

$$\alpha_F = a \langle L_Z \rangle + V_D H + \alpha_R(H). \quad (2)$$

Резонансная частота актуального запрещенного оптического перехода  $\omega_0$  зависит от напряженности магнитного поля  $H$  и при некотором значении поля может достигать величины частоты используемого лазерного излучения. Другими словами, можно считать, что в этом случае имеет место индуцированный магнитным полем оптический резонанс. Для качественного описания вклада индуцированного полем оптического резонанса в фарадеевское вращение воспользуемся линейной аппроксимацией зависимости резонансной частоты от магнитного поля  $\omega(H) = \omega_0 + \gamma H$ , где  $\gamma$  — скорость



**Рис. 3.** Зависимость фарадеевского вращения ионов европия от магнитного поля при комнатных температурах. Точки — экспериментальные данные, полученные в [7] при использовании лазерного излучения с длиной волны  $\lambda = 0.63 \mu\text{m}$ , сплошная линия — результат расчетов по формулам (2)–(5) при  $H_1 = 8.8$ ,  $H_2 = 10.2 \text{ MOe}$ ;  $a = 55$ ,  $A = 74 \text{ deg/cm}$ ;  $V_D = 13 \text{ deg/(cm MOe)}$ .

изменения частоты. В этом случае из (1) следует, что

$$\alpha_R(H) = f(H) - f(-H), \quad (3)$$

где

$$f(H) = \frac{C(\omega_0^2(H) - \omega_1^2 - \Gamma^2)\omega_1^2}{(\omega_0^2(H) - \omega_1^2 + \Gamma^2)^2 + 4\omega_1^2\Gamma^2}, \quad (4)$$

здесь  $\Gamma$  — ширина запрещенной линии (в случае редкоземельных ионов спектральные линии являются весьма узкими  $\Gamma \sim 10^{13} \text{ s}^{-1}$ ),  $\omega_1$  — частота лазерного излучения (для излучения с длиной волны  $\lambda = 0.63 \mu\text{m}$ ,  $\omega_1 = 3 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1}$ ),  $C$  — коэффициент, пропорциональный силе осциллятора данного перехода. Параметры  $\gamma$  и  $\Delta\omega = \omega_0 - \omega_1$  можно выразить через значения полей  $H_1$  и  $H_2$ , где  $H_1$  — величина поля, при которой  $f(H) = 0$  (согласно [7],  $H_1 = 10 \text{ MOe}$ ),  $H_2$  — величина поля, при которой  $f(H)$  достигает максимального значения (согласно [8],  $H_2 = 9 \text{ MOe}$ ), следующим образом:

$$\Delta\omega = \Gamma H_1 / (H_1 - H_2),$$

$$\gamma = \Gamma / (H_1 - H_2).$$

При этом  $f(H)$  (см. (4)) примет вид

$$f(H) = A \frac{2(H_1 - H_2)(H_1 - H)}{(H_1 - H)^2 + (H_1 - H_2)^2}, \quad (5)$$

где  $A = C\omega_0/4\Gamma$ .

Выражения (2)–(5) позволяют описать опытную полевую зависимость вклада ионов  $\text{Eu}^{3+}$  в фарадеевское вращение. Так на рис. 3 приведено сопоставление опытных данных, полученных в [7], с результатами расчетов при  $H_1 = 8.8$ ,  $H_2 = 10.2 \text{ MOe}$ ;  $a = 55$ ,  $A = 74 \text{ deg/cm}$ ;  $V_D = 13 \text{ deg/(cm MOe)}$ .

Таким образом, аномалии  $\alpha_F$ , обнаруженные в [7], при использовании лазерного излучения с длиной волны  $\lambda = 0.63 \mu\text{m}$  обусловлены, по всей видимости, индуцированным ультрасильным полем магнитооптическим резонансом.

Исследование таких индуцированных магнитным полем оптических резонансов представляет интерес для разработки реперных точек на шкале магнитных полей, которые необходимы для совершенствования техники измерения мегагауссных полей.

Существенным результатом данной работы является то, что в ней впервые однозначно выделен вклад в эффект Фарадея от среднего орбитального момента ионов  $\text{Eu}^{3+}$ . Это является выжым шагом на пути экспериментального обнаружения квантовых магнитооптических скачков за счет индуцированной магнитным полем переориентации орбитального и спинового моментов иона  $\text{Eu}^{3+}$  от антипараллельного к параллельному взаимному их расположению.

## Список литературы

- [1] А.К. Звездин, А.С. Овчинников, В.И. Плис, А.И. Попов. *ЖЭТФ* **109**, 1742 (1996).
- [2] У.В. Валиев, А.К. Звездин, Г.С. Кринчик, Р.З. Левитин, К.М. Мукимов, А.И. Попов. *ЖЭТФ* **85**, 311 (1983).
- [3] У.В. Валиев, А.И. Попов. *ФТТ* **27**, 2729 (1985).
- [4] А.К. Звездин, А.И. Попов, Х.Н. Туркменов. *ЖЭТФ* **28**, 1760 (1986).
- [5] A.K. Zvezdin, V.A. Kotov. *Modern magneto-optics and magneto-optical materials*. IOP Publishing, UK (1997).
- [6] А.К. Звездин, В.А. Котов. *Магнитооптика тонких пленок*. Наука, М. (1988).
- [7] А.И. Павловский, В.В. Дружинин, О.М. Таценко, Н.П. Колокольчиков, А.И. Быков, М.И. Долотенко. *Письма в ЖЭТФ* **31**, 659 (1980).
- [8] П. Герлих, Х. Каррас, Г. Кетитц. *Спектроскопические свойства активированных лазерных кристаллов*. Наука, М. (1966). С. 207.
- [9] А.Д. Сахаров. *УФН* **88**, 725 (1966).
- [10] В.В. Дружинин, О.М. Таценко. *Оптика и спектроскопия* **36**, 733 (1974).