

Фарадеевское вращение и магнитокалорический эффект в тербиевом галлат-гранате $Tb_3Ga_5O_{12}$ при низких температурах в сильных магнитных полях

© В.И. Плис, А.И. Попов

Московский государственный институт электронной техники,
124498 Москва, Россия

(Поступила в Редакцию 15 марта 2004 г.)

Проведены теоретические расчеты магнитокалорического эффекта и фарадеевского вращения в парамагнитном кубическом кристалле галлат-граната тербия в сильных магнитных полях, ориентированных вдоль различных кристаллографических направлений. Показано, что в области сильных магнитных полей магнитокалорический эффект и эффект Фарадея обладают большой анизотропией, исчезающей в слабых полях.

Работа выполнена при поддержке гранта Российского фонда фундаментальных исследований № 03-02-17166 и гранта Минобразования РФ по фундаментальным исследованиям в области естественных наук № E02-3.4-116.

Редкоземельные кристаллы со структурой граната обладают кубической симметрией. Их кристаллографическая структура является весьма сложной и описывается пространственной группой O_h^{10} [1,2]. Элементарная ячейка граната содержит 160 атомов. Важно, что редкоземельные ионы в структуре граната располагаются в шести неэквивалентных додекаэдрических позициях с более низкой, чем кубическая, — орторомбической — симметрией окружения (точечная группа D_2). Ориентацию локальных осей симметрии для всех неэквивалентных позиций можно получить поворотами кристаллографической системы координат относительно кристаллографических осей на углы $\pm\pi/4$, отсчитываемые от осей [100], [010], [001]. Данное обстоятельство обусловило ряд особенностей поведения магнитных, магнитоупругих и магнитооптических свойств этих соединений [2], качественно отличающихся от таковых в кристаллах с кубической симметрией окружения магнитных ионов. Наиболее ярко эти отличия проявляются в ориентационных зависимостях магнитострикции и магнитного линейного двупреломления редкоземельных галлат-гранатов и алюминат-гранатов в присутствии сильных магнитных полей [2,3].

Низкая симметрия кристаллического окружения редкоземельного некрамерсовского иона Tb^{3+} в структуре граната приводит к полному снятию вырождения уровней. Низкоэнергетическая часть спектра Tb^{3+} состоит из квазидублетов: основным состоянием является квазидублет со щелью 2.5 см^{-1} ; первый возбужденный квазидублет лежит выше основного на 34 см^{-1} , третий — на 43 см^{-1} [4]. Обменное взаимодействие между редкоземельными ионами в галлат-гранатах весьма мало (температура Нееля галлата тербия равна $T_N = 0.25\text{ К}$ [5]), поэтому при анализе поведения этих соединений в сильных магнитных полях его можно не учитывать.

В настоящее время существует несколько наборов параметров кристаллического поля, действующего на

ион Tb^{3+} в галлат-гранате [6,7]. С нашей точки зрения, наиболее адекватным является набор параметров, приведенный в [6] (см. таблицу). Этот набор параметров позволяет количественно описать явление пересечения нижних энергетических уровней в спектре иона Tb^{3+} , экспериментально наблюдаемое в $Tb_3Ga_5O_{12}$ в поле, параллельном направлению $\langle 110 \rangle$, а также кривые намагничивания [6] и кривые эффекта Фарадея вдоль этого направления в полях до 75 Т [8].

Параметры кристаллического поля галлат-граната тербия [6] (в см^{-1})

B_{20}	B_{22}	B_{40}	B_{42}	B_{44}	B_{60}	B_{62}	B_{64}	B_{66}
-81	169	-2163	249	945	677	-155	1045	-4

Необходимо отметить, что сверхсильные магнитные поля, представляющие наибольший интерес для экспериментов, генерируются только в импульсном режиме. В процессе подобных измерений реализуется адиабатический режим, вследствие чего возникает большой магнитокалорический эффект. В настоящей работе ставилось целью выявление особенностей поведения магнитокалорических и магнитооптических свойств $Tb_3Ga_5O_{12}$ в сильных полях при ориентациях магнитного поля \mathbf{B} вдоль осей типа [111] и [100]. Для этого необходимо знать электронную структуру ионов Tb^{3+} , которая формируется под воздействием окружения ионов, описываемым гамильтонианом кристаллического поля, и магнитного поля. Актуальным гамильтонианом задачи является

$$H = H_{cr} + H_z, \quad (1)$$

где

$$H_{cr} = \sum_{kqi} B_{kq} (C_q^k(i) + C_{-q}^k(i)), \quad (2)$$

C_q^k — неприводимые тензорные операторы [9] ($k = 2, 4, 6; q \leq k$); суммирование по i проводится по

всем $4f$ -электронам иона Tb^{3+} . В (1) H_z представляет собой гамильтониан взаимодействия иона с магнитным полем

$$H_z = \mu_B(\mathbf{L} + 2\mathbf{S})\mathbf{B}. \quad (3)$$

При расчетах мы, как уже указывалось, использовали набор параметров кристаллического поля из работы [6] (см. таблицу).

По этой схеме были рассчитаны уровни энергии E_n и определены собственные функции ионов Tb^{3+} в широком интервале магнитных полей, ориентированных вдоль осей [111] и [100], при учете наличия неэквивалентных мест, занимаемых ионами Tb^{3+} в структуре граната.

1. Магнитокалорический эффект

Изменение температуры при адиабатическом намагничивании можно рассчитать, решая уравнение адиабаты

$$S_M(T_0, 0) + S_P(T_0) = S_M(T, B) + S_P(T), \quad (4)$$

где $S_P = \int_0^T \frac{C_V dT}{T}$ представляет собой фононный вклад в энтропию, C_V — молярная теплоемкость, которую при низких температурах можно приближенно представить в виде

$$C_V = \frac{12}{5} R \pi^4 n (T/\Theta_D)^3, \quad (5)$$

$n = 20$ — число атомов в молекуле $Tb_3Ga_5O_{12}$, R — универсальная газовая постоянная, Θ_D — температура Дебая, строгое значение которой для $Tb_3Ga_5O_{12}$ в настоящее время нам неизвестно, однако сопоставление имеющихся данных по температуре Дебая для алюминат-гранатов [10] позволяет оценить ее величину

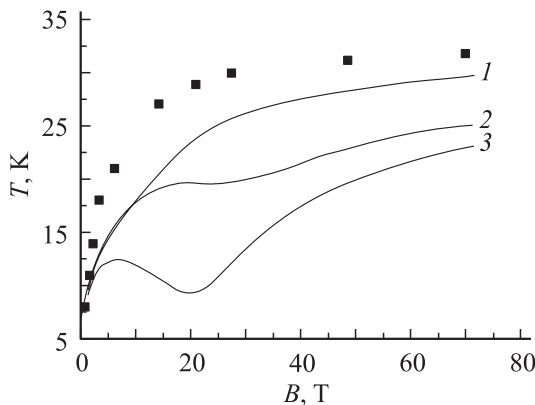


Рис. 1. Зависимость температуры образца $Tb_3Ga_5O_{12}$ от магнитного поля при $T_0 = 6$ К. Точки — экспериментальные значения при $\mathbf{B} \parallel \langle 110 \rangle$ [8]. Сплошные линии — теоретические зависимости $T(B)$, рассчитанные при $\Theta_D = 500$ К: 1 — $\mathbf{B} \parallel \langle 110 \rangle$, 2 — $\mathbf{B} \parallel \langle 111 \rangle$, 3 — $\mathbf{B} \parallel \langle 001 \rangle$.

как $\Theta_D \approx 500$ К [8]. В выражении (4)

$$S_M = -\frac{R}{2} \sum_{m=1}^6 \sum_n \left(\exp\left(-\frac{E_n(m)}{T}\right) Z_m^{-1} \right) \times \ln \left(\exp\left(-\frac{E_n(m)}{T}\right) Z_m^{-1} \right), \quad (6)$$

где

$$Z_m = \sum_n \exp\left(-\frac{E_n(m)}{T}\right),$$

является усредненным по неэквивалентным местам (индекс m) магнитным вкладом в энтропию. Решение уравнения (4) дает магнитокалорический эффект.

На рис. 1 приведены вычисленные таким образом зависимости $T(B)$ для $\mathbf{B} \parallel \langle 110 \rangle$, $\mathbf{B} \parallel \langle 111 \rangle$, $\mathbf{B} \parallel \langle 001 \rangle$ при $T_0 = 6$ К и $\Theta_D = 500$ К. Обращает на себя внимание сильная анизотропия магнитокалорического эффекта для $Tb_3Ga_5O_{12}$ в сильных магнитных полях.

2. Эффект Фарадея

Угол поворота плоскости поляризации света в $Tb_3Ga_5O_{12}$ содержит два вклада

$$\alpha_F = \alpha(Tb) + \alpha_D, \quad (7)$$

где $\alpha(Tb)$ представляет собой вклад парамагнитных ионов Tb^{3+} , а α_D — вклад матрицы, образованной диамагнитными ионами галлия и кислорода. Слагаемое α_D не зависит от температуры и пропорционально магнитному полю B вплоть до $B \approx 10^9$ Ое

$$\alpha_D = VB. \quad (8)$$

В качестве V в первом приближении можно использовать постоянную Верде иттриевого галлат-граната $V(YGG) = 0.043 \text{ min}/(\text{cm} \cdot \text{Oe})$ [11].

В видимой и ультрафиолетовой областях спектра вклад редкоземельных ионов в фарадеевское вращение определяется в основном $f-d$ -электродипольными переходами (исключение составляют узкие спектральные области вблизи резонансных частот запрещенных $f-f$ -переходов). В общем случае величина $\alpha(Tb)$ включает в себя три слагаемых: парамагнитный вклад, вклад смешивания и диамагнитный вклад. Диамагнитный вклад линейен по магнитному полю B , существен только в узком спектральном диапазоне вблизи резонансных частот оптических переходов и сводится к перенормировке константы V в (2). Парамагнитный вклад и вклад смешивания, согласно [12], имеют вид

$$\alpha(Tb) = A \left(M_0 - \frac{gJ_0}{2 - gJ_0} M_{VV} \right), \quad (9)$$

где M_0 — намагниченность, связанная с расщеплением уровней основного мультиплета 7F_6 ; M_{VV} — вклад

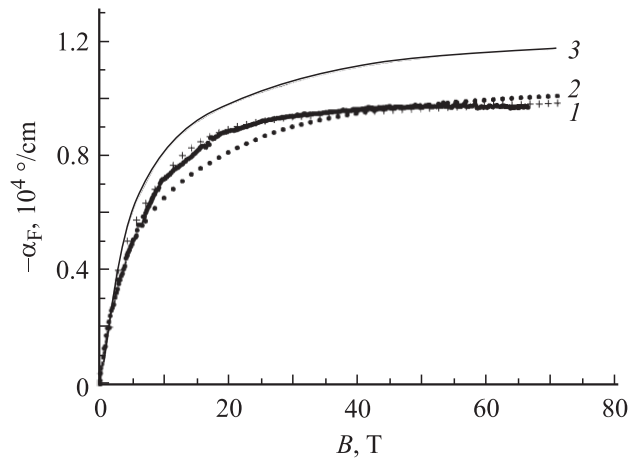


Рис. 2. Адиабаты эффекта Фарадея при $T_0 = 6$ К. Жирная линия — экспериментальная кривая при $\mathbf{B} \parallel \langle 110 \rangle$ [8]. 1 — расчет для $\mathbf{B} \parallel \langle 110 \rangle$, 2 — расчет для $\mathbf{B} \parallel \langle 001 \rangle$, 3 — расчет для $\mathbf{B} \parallel \langle 111 \rangle$.

в намагниченность, обусловленный примешиванием в магнитном поле первого возбужденного мультиплета 7F_5 иона Tb^{3+} к основному; $g_{J_0} = 3/2$ — фактор Ланде основного мультиплета этого иона; A — константа, зависящая от частоты падающего излучения и сил осциллятора $f-d$ -переходов. На рис. 2 представлены теоретически рассчитанные адиабаты эффекта Фарадея, полученные при использовании величин магнитокалорического эффекта, найденного из решения уравнения (8) (рис. 1) для $\mathbf{B} \parallel \langle 110 \rangle$, $\mathbf{B} \parallel \langle 111 \rangle$, $\mathbf{B} \parallel \langle 001 \rangle$ при $T_0 = 6$ К. На этом же рисунке приведена экспериментальная зависимость $\alpha_F(B)$ при $\mathbf{B} \parallel \langle 110 \rangle$ и $T_0 = 6$ К [8]. Отметим прежде всего наличие существенной анизотропии эффекта Фарадея для $\text{Tb}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ в сильных магнитных полях, хотя она и не столь велика, как в случае магнитокалорического эффекта.

Таким образом, в настоящей работе показано, что в кубическом кристалле $\text{Tb}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ в области сильных магнитных полей фарадеевское вращение и магнитокалорический эффект обладают существенной анизотропией, исчезающей в слабых полях.

Список литературы

- [1] С. Крупичка. Физика ферритов и родственных им магнитных оксидов. Мир, М. (1976). Т. 2. С. 504.
- [2] А.К. Звездин, В.М. Матвеев, А.А. Мухин, А.И. Попов. Редкоземельные ионы в магнитоупорядоченных кристаллах. Наука, М. (1985). С. 296.
- [3] Н.Ф. Ведерников, А.К. Звездин, Р.З. Левитин, А.И. Попов. ЖЭТФ **93**, 6, 2161 (1987); Нейтронография магнетиков. Атомиздат, М. (1981). С. 312.
- [4] J.A. Koningstein, C.J. Kaue-Maguire. Can J. Chem. **52**, 3445 (1974).
- [5] F. Harbus, H.E. Stanly. Phys. Rev. B **8**, 3, 1156 (1973).
- [6] A. Guillot, A. Marchand, V. Nekvasil, F. Tcheou. J. Phys. C **18**, 3547 (1985).
- [7] V. Nekvasil, I. Veltruski. J. Magn. Magn. Mater. **86**, 315 (1990).
- [8] Р.З. Левитин, А.К. Звездин, М. фон Ортенберг, В.В. Платонов, В.И. Плис, А.И. Попов, Н. Пульман, О.М. Таценко. ФТТ **44**, 11, 2013 (2002).
- [9] V.G. Wybourne. Spectroscopic Properties of Rare Earth. Wiley, N.Y. (1965).
- [10] V. Nagaian, M. Pam Babu, D.B. Sirdeshmukh. Ind. J. Pure Appl. Phys. **17**, 838 (1979).
- [11] У.В. Валиев, А.А. Клочков, А.И. Попов, Б.Ю. Соколов. Опт. и спектр. **66**, 3, 613 (1989).
- [12] У.В. Валиев, А.К. Звездин, Г.С. Кринчик, Р.З. Левитин, К.М. Мукимов, А.И. Попов. ЖЭТФ **85**, 1(7), 311 (1983).