

УДК 537.611.3

МАГНИТНЫЕ СВОЙСТВА ErFeO_3 В ОБЛАСТИ СПИН- ПЕРЕОРИЕНТАЦИОННОГО ФАЗОВОГО ПЕРЕХОДА (ОДНОИОННАЯ МОДЕЛЬ)

Беляева А.И.¹, Баранова Е.В.²

¹Национальный технический университет «Харьковский политехнический институт»,
Харьков, Украина

²Институт электрофизики и радиационных технологий НАН Украины, Харьков,
Украина

E-mail: belyaeva@kharkov.com, BaranovaKate@mail.ru

Представлены результаты прямого наблюдения 90° переориентации спинов Er^{3+} в ErFeO_3 с помощью оптической спектроскопии. Изучены особенности спектра поглощения ErFeO_3 в районе перехода $^4\text{I}_{15/2} \rightarrow ^4\text{F}_{9/2}$ иона Er^{3+} в области температур (ас)- спиновой переориентации. Показано, что спин-переориентационный фазовый переход (СПФП) сопровождается расщеплением основного и возбужденных состояний на крамерсовы дублеты в обменном поле железа, что является прямым доказательством его чисто магнитной природы. Экспериментальные результаты использованы для анализа магнитных свойств ErFeO_3 , который показал, что порядок величины магнитного момента, его изменение в области СПФП и наличие T_{room} можно понять в рамках одноионной модели с учетом влияния кристаллического поля и молекулярного поля, создаваемого ионами железной подсистемы.

Ключевые слова: ортоферрит эрбия, спин-переориентационный фазовый переход, спектроскопия.

ВВЕДЕНИЕ

Повышенный интерес в последние годы к особенностям энергетического спектра редкоземельных ортоферритов [1] и их магнитных свойств, прежде всего в области фазовых переходов (ФП) [2, 3], связан с появлением работ [4, 5], в которых обнаружены уникальные особенности спиновой динамики этих систем, позволяющие рассматривать их в качестве перспективных материалов для устройств спинтроники.

Настоящая работа посвящена изучению роли иона Er^{3+} в формировании магнитных свойств ErFeO_3 в области спин-переориентационного фазового перехода (СПФП). Для этого изучен спектр поглощения этого иона в зависимости от температуры. Магнитные свойства ErFeO_3 можно разделить на те, которые не зависят от ионов Er^{3+} , и те, в которых он играет ключевую роль. Оптическая спектроскопия дает четкую информацию о локальных свойствах редкоземельного иона.

ErFeO_3 в тонких слоях прозрачен для видимого диапазона длин волн. Это дает возможность изучать энергетический спектр иона Er^{3+} , который определяется переходами между уровнями незаполненной $4f^{11}$ оболочки и состоит из достаточно узких полос поглощения для того, чтобы наблюдать их расщепление в обменном поле, созданном ионами Fe^{3+} . Магнитные свойства редкоземельных ионов в кристаллах зависят от того, имеет ли этот ион четное или нечетное число $4f$ -

электронов. В случае, если это число нечетное (для эрбия $4f^{11}$), энергетические уровни такого иона даже в кристаллическом поле самой низкой симметрии представляют собой крамеровские дублеты. Это вырождение может быть снято только магнитным полем. Поэтому такие ионы могут служить индикаторами внутренних полей магнитной природы.

При 636 К (T_{N1}) спины ионов железа ErFeO_3 антиферромагнитно упорядочиваются по моде $G_x F_z$ (в обозначении Bertaut [6]), со слабым ферромагнитным моментом $\mathbf{F}$ вдоль оси c ромбического кристалла ($c||z$). Эта фаза известна как главная фаза. В интервале температур от 90 до 100 К происходит спонтанная переориентация (СП) спинов ионов железа, в результате которой система достигает другой симметричной конфигурации $\mathbf{F}||a$ ($a||x$).

Для анализа спектра ионов эрбия в ортоферрите эрбия и связи этих результатов с его макроскопическими магнитными свойствами в данной работе использовано приближение молекулярного поля. В контексте предыдущих работ по ортоферритам этот анализ означает новый шаг. В большинстве современной литературы квантово-механическая структура редкой земли игнорируется. Это понятно по двум причинам: 1) коммерчески важные свойства ортоферритов в большинстве ограничены свойствами при комнатной температуре, где редкая земля играет малую роль; 2) большинство методик, используемых для изучения свойств ортоферрита, дают данные, в которых влияния Er^{3+} и Fe^{3+} трудно разделить, и таким образом легче анализировать данные на чисто феноменологических принципах. Тем не менее, более детальное понимание роли редкой земли имеет не меньший практический и значительный теоретический интерес.

Цель настоящей работы – использовать оптическую спектроскопию для изучения энергетического спектра иона Er^{3+} в ErFeO_3 , а ее результаты для моделирования магнитных свойств ErFeO_3 в диапазоне СПФП.

1. МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА И ОБРАЗЦЫ

ErFeO_3 прозрачен в видимой области спектра. Для изучения спектра поглощения использовался дифракционный спектрометр ДФС-8 с дисперсией $2 \text{ \AA mm}^{-1}$. Положения линий калибровались по спектру излучения железной дуги.

Все измерения были выполнены на образце, изготовленном из монокристалла, который был выращен методом бестигельной зонной плавки с радиационным нагревом с использованием ультра-чистых компонентов. Исследуемый образец был вырезан в виде тонкой пластины, параллельной кристаллографической (ac) – плоскости. Толщина образца составляла ≈ 50 мкм. Размеры образца в плоскости – 3-4 мм. Направления кристаллических осей определялись методом Лауэ. Точность ориентации осей a (или c) не хуже 0.5° . Образец был полирован механически с помощью алмазного порошка с размером крупинки 0.3 мкм. Деформированные слои, вызванные механической полировкой, удалялись химической полировкой, благодаря которой обе развитые плоскости пластины образца были свободны от напряженного слоя.

Для исследования в интервале температур 300-5 К образец был помещен в проточный криостат [7] с жидким гелием в качестве хладагента. Точность измерения температуры была не хуже 0.01К. Образец устанавливался в специальном держателе для предотвращения неконтролируемых деформаций. Особое внимание уделялось уменьшению градиента температуры и напряжений в образце [8]. Для получения спектра при $T=2\text{K}$ образец был погружен непосредственно в жидкий гелий. Температура $T=2\text{K}$ определялась по давлению паров над жидкостью.

2. АНАЛИЗ ОПТИЧЕСКОГО СПЕКТРА ПОГЛОЩЕНИЯ ErFeO_3

В спектре поглощения ErFeO_3 имеется «окно» для наблюдения перехода $^4I_{15/2} \rightarrow ^4F_{9/2}$ в видимой области ($\sim 15000\text{cm}^{-1}$), которое не маскируется более сильными поглощениями железа или решетки. Спектры были получены для температур ниже и выше спиновой переориентации, а также в температурном диапазоне СПФП.

Настоящая работа не имеет своей целью детальный анализ структуры и поляризационных особенностей выбранного для анализа спектра. Этот спектр в отдельных температурных точках [1.2÷4.2К, при 20К и 77К] идентифицирован ранее [9]. Мы выбрали для анализа одну поляризацию ($E||a$), для которой влияние внутреннего эффективного поля железа на энергетический спектр иона Er^{3+} проявилось наиболее четко для всех выбранных полос.

На рис.1 показан спектр поглощения в области перехода $^4I_{15/2} \rightarrow ^4F_{9/2}$ при $T=120\text{K}$ ($T>T_{\text{SR}}$), $T=77\text{K}$ ($T<T_{\text{SR}}$) и при низкой температуре $T=2\text{K}$. Вектор напряжённости электрического поля света был параллелен оси a ($E||a$). Состояния основного мультиплета обозначены как I, II, III, и т.д. и состояния возбужденных мультиплетов как a, b, c, и т.д. в соответствии с ранее предложенными в [9]. Например, переход обозначается как IIa, если он осуществляется с нижнего состояния основного мультиплета II на высшее состояние возбужденного мультиплета a.

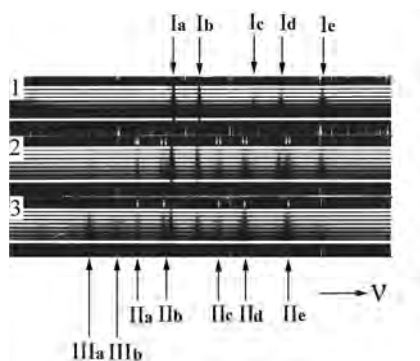


Рис.1. Спектры поглощения в области перехода $^4I_{15/2} \rightarrow ^4F_{9/2}$ иона Er^{3+} в ErFeO_3 для вектора напряжённости электрического поля $E||a$ при различных температурах T : 1) 2К ($T<<T_{\text{SR}}$); 2) 77К ($T<T_{\text{SR}}$); 3) 120К ($T>T_{\text{SR}}$).

При анализе ортоферритов весьма удобно приближение молекулярного поля, которое описывает магнитное поле в узле одиночного иона, пропорциональное усредненной по времени величине магнитных моментов в соседних узлах. Такое приближение может быть использовано вблизи температур СПФП вследствие того, что критические явления, подобные большим флуктуациям в результирующей намагниченности, в этом случае не важны. Большие отклонения от приближения молекулярного поля происходят вблизи температур упорядочения из-за больших флуктуаций результирующей намагниченности. В ортоферрите эрбия железная подрешетка упорядочивается при $\sim 600\text{K}$, а эрбиевая – при гелиевых температурах. Анализ данной работы ограничивается областью от $\sim 80\text{K}$ до $\sim 120\text{K}$, в которой приближение молекулярного поля является достаточно корректным.

Для интерпретации экспериментальных результатов и анализа природы поведения ионов Er^{3+} использована квантово-механическая модель. ErFeO_3 имеет орторомбическую структуру перовскита (пространственная группа D_{2h}^{16}). Точечная симметрия узла Er^{3+} моноклинная C_{2h} [10]. Взаимодействия со спинами Fe^{3+} можно рассматривать в терминах эффективных полей в узлах Er^{3+} . Так как ион Er^{3+} обладает конфигурацией $4f^{11}$, квантовое число полного углового момента мультиплета J принимает значения, равные половине нечетных целых. Каждый мультиплет с полным угловым моментом J будет расщепляться на $J+1/2$ крамеровских дублетов в кристаллическом поле C_{2h} . Таким образом $^4I_{15/2}$ расщепится на 8 и $^4F_{9/2}$ – на 5 крамеровских дублетов. Эффективные поля магнитной природы, действующие на спин иона Er^{3+} вследствие взаимодействия со спинами ионов Fe^{3+} , должны проявляться в расщеплении крамеровских мультиплетов Er^{3+} .

Первый шаг в анализе спектра эрбия – рассмотреть группу простейших мультиплетов $^4I_{15/2} \rightarrow ^4F_{9/2}$. Спектр при $T=2\text{K}$ (рис.1.1) состоит из пяти полос, соответствующих переходам с основного состояния I к пяти электронным уровням мультиплета $^4F_{9/2}$ (a, b, c, d, e). Эти переходы обозначены Ia, Ib, Ic, Id и Ie в порядке увеличения энергии, соответственно.

При более высоких температурах (рис.1.3) видны новые полосы, которые можно связать с переходами, происходящими с возбужденных уровней основного мультиплета $^4I_{15/2}$. Пять более слабых полос можно обозначить как IIa, IIb, IIc, IId и IId, поскольку они отстоят на $\sim 45.3\text{ cm}^{-1}$ от соответствующих полос I ($T=120\text{K}$, $T>T_{\text{SR}}$). Они отмечены сверху одиночными белыми стрелками. В спектре при 120K (рис.1.3) появляются две еще более слабые полосы (IIIa и IIIb), которые отстоят на 106 cm^{-1} от полос Ia и Ib, связанных с основным уровнем I. Эти полосы связаны с переходами с уровней III основного состояния. Таким образом, все полосы перехода $^4I_{15/2} \rightarrow ^4F_{9/2}$ определены в терминах уровней основного и возбужденного мультиплетов иона Er^{3+} . Частоты полос определены с точностью $\pm 0.01\text{ cm}^{-1}$ и совпадают с данными [9].

Процесс спиновой переориентации, в котором антиферромагнитная система спинов Fe^{3+} переориентируется от кристаллической оси a к c , связан с расщеплением IIa, IIb, IIc, IId, и IId полос на дублеты (рис.1.2 отмечены двойными светлыми стрелками). Детально исследована полоса поглощения IIb $\nu=15178.5\text{ cm}^{-1}$

($T=120\text{K}$) в температурном диапазоне $T=80\div 120\text{K}$ (Рис.2). Полоса начинает расщепляться при $T_1=(97\pm 1)\text{K}$, далее величина расщепления плавно растет вплоть до $T_2=(87\pm 1)\text{K}$. При $T\leq T_2$ полоса $\nu=15178.5\text{cm}^{-1}$ расщепляется на две: $\nu=15182.00\text{cm}^{-1}$ и $\nu=15175.23\text{cm}^{-1}$. Все другие полосы перехода $^4I_{15/2}\rightarrow^4F_{9/2}$, которые связаны с уровнем II (Рис.1.2), обнаруживают качественно такое же поведение. Температуры начала T_1 и конца T_2 спиновой переориентации определены как температуры, при которых скорость изменения частот полос поглощения начинает изменяться. Эти температуры совпадают с граничными температурами спиновой переориентации [11]. Дальнейшее поведение крамеровских дублетов проследить нет возможности, так как интенсивность полос, связанных с возбужденными мультиплетами II и III основного состояния, с понижением температуры быстро падает для данной толщины образца.

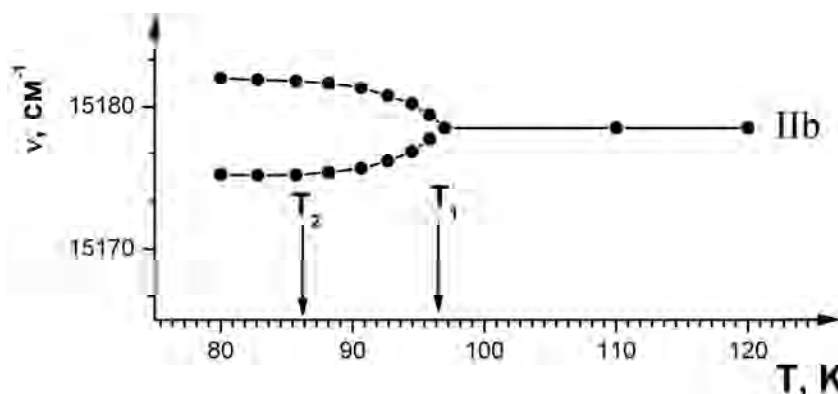


Рис.2. Температурная зависимость частоты поглощения полосы Pb $\nu=15178.5\text{cm}^{-1}$ ($T=120\text{K}$) перехода $^4I_{15/2}\rightarrow^4F_{9/2}$ иона Er^{3+} в ErFeO_3 .

Основные особенности спектров: 1) вне интервала переориентации, для $T>T_1$ наблюдаются одиночные полосы Па – Пе (Рис.1.3); 2) внутри интервала спиновой переориентации полосы расщепляются на дублеты; температурная зависимость расщепления частот непрерывна и симметрична относительно центра (Рис.2); наибольшее изменение частот наблюдается при $T_1\leq 97\text{K}$; 3) в области СП заселен не только дублет основного состояния иона Er^{3+} , но II (45.3 cm^{-1}) и III (106 cm^{-1}) уровни, которые вносят свой вклад в изменение магнитного момента в температурном диапазоне СПФП.

В модели молекулярного поля тонкая структура полос связана с внутренним магнитным полем ионов Fe^{3+} , которое приводит к расщеплению крамеровских вырожденных уровней Er^{3+} . Увеличение расщепления происходит только вследствие роста эффективного поля, влияющего на Er^{3+} вследствие обменного взаимодействия эрбий-железо. Непрерывное изменение с температурой эффекта Зеемана во внутреннем поле отражает непрерывное вращение спинов в процессе СП в ErFeO_3 или проявление анизотропии обменного взаимодействия. Изменения спектра поглощения в диапазоне температур СП в ErFeO_3 не обнаруживает гистерезиса.

Рис.3 схематически иллюстрирует расщепление энергетических уровней свободного иона Er^{3+} в ErFeO_3 при $T > T_{\text{SR}}$ (расщепление кристаллическим полем) и при $T < T_{\text{SR}}$ (расщепление в результате снятия крамерсова вырождения уровней Er^{3+} во внутреннем магнитном поле ионов Fe^{3+}).

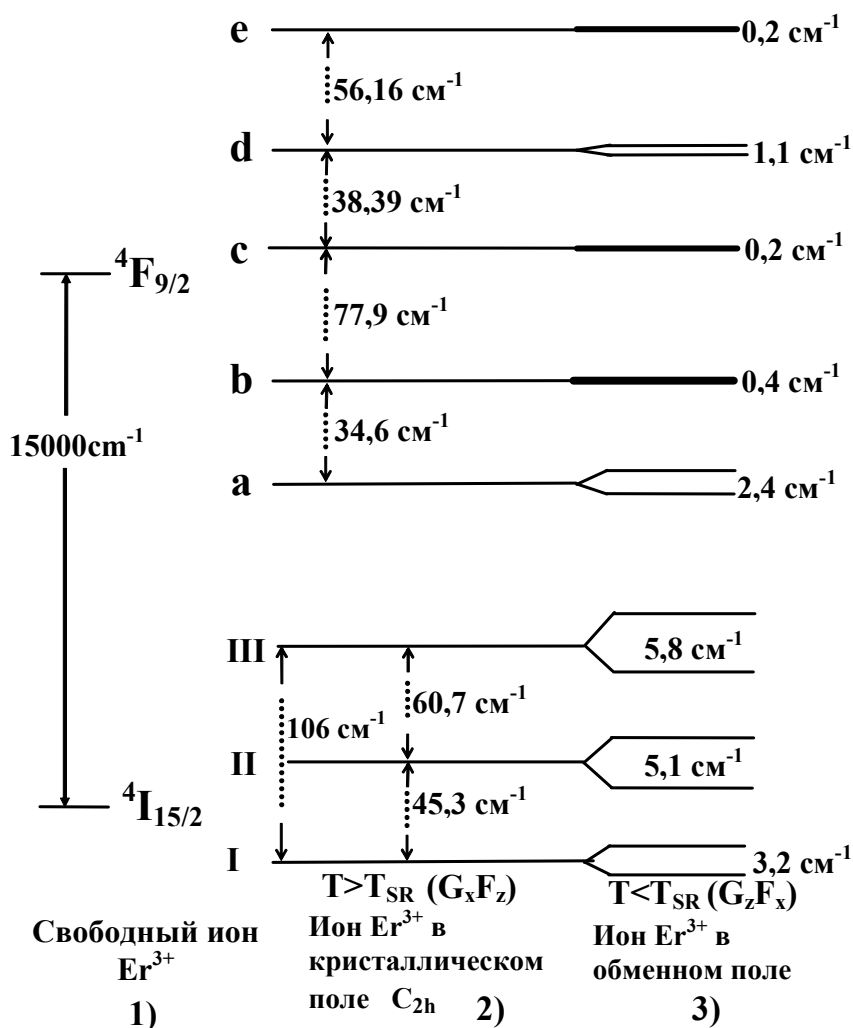


Рис.3. Схема энергетических уровней основного $4I_{15/2}$ и возбужденного $4F_{9/2}$ мультиплетов иона Er^{3+} : 1) для свободного иона; 2) в кристаллическом поле ортоферрита $T > T_{\text{SR}}$ и 3) в молекулярном эффективном поле Fe^{3+} подрешетки ($T < T_{\text{SR}}$).

При высоких температурах ($T > 77\text{K}$) расщепление Крамерса ($\sim$ нескольких cm^{-1}) много меньше kT ($\sim 54 \text{ cm}^{-1}$) и основные состояния I и II могут быть заняты практически с равной вероятностью. Но основное состояние III практически не занято при $T < T_{\text{SR}}$ (Рис.1.2).

3. ФЕНОМЕНОЛОГИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ СПИН-ПЕРЕОРИЕНТАЦИОННОГО ФАЗОВОГО ПЕРЕХОДА

Мы использовали термодинамический потенциал, инвариантный относительно всех преобразований группы симметрии кристалла D_{2h}^{16} в парамагнитном состоянии [11]. При известных из эксперимента температурах СПФП ($T_1=97\text{K}$, $T_2=87\text{K}$ для ErFeO_3) уравнение (9) из [11] для температурной зависимости угла θ между осью c и слабым ферромагнитным моментом $\mathbf{F}$ не содержит подгоночных параметров. Оно подразумевает плавную зависимость $\theta(T)$ в области переориентации, что соответствует экспериментальным данным настоящего исследования и [11].

В рассмотренном приближении вращение спинов является типичным примером теории фазовых переходов Ландау, в рамках которой можно понять существование и природу двух переходов второго рода и температурную зависимость угла поворота. Теория Ландау в предположении постоянства величины намагниченности и слабого ферромагнитного момента Fe^{3+} подрешетки $\mathbf{F}=0.05\pm 0.01\mu_B/\text{молекулу}$, которая не изменяется до самых низких температур [12], дает зависимости проекции слабого ферромагнитного момента на оси a и c в области СПФП, показанные на рис.4.

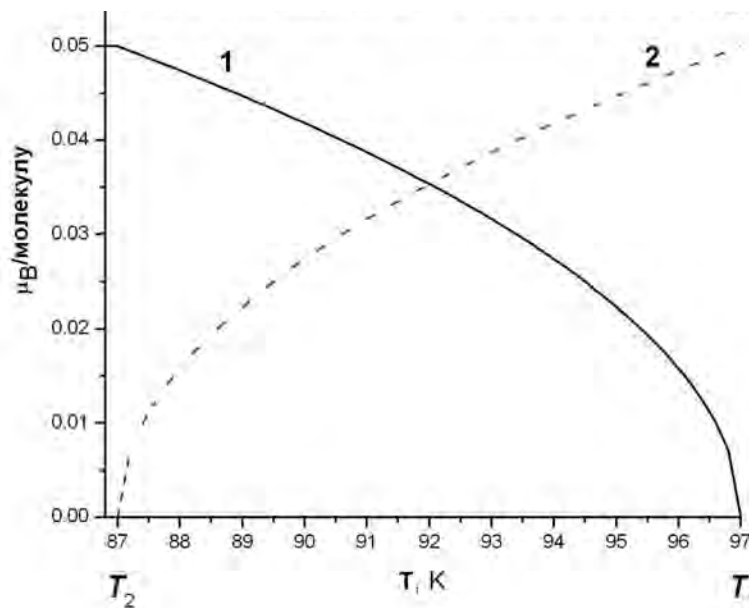


Рис.4. Температурная зависимость проекции слабоферромагнитного момента $\mathbf{F}=0.05\mu_B/\text{молекулу}$ ErFeO_3 на оси: a (сплошная кривая – 1) и c (пунктирная кривая – 2), полученные по формуле (9) из [11].

В рамках этой модели $\mathbf{F}_c(T \geq T_1) = \mathbf{F}_a(T \leq T_2)$ и понятна физика явления спонтанной спиновой переориентации, связанного с тем, что при изменении

температуры магнитная конфигурация с результирующим моментом в одном направлении становится неустойчивой относительно другой. Железные подрешетки обладают слабой одноосной анизотропией (основное S-состояние) $\sim 0.1 \text{ см}^{-1}$ /формулу [12]. Результирующий момент лежит в направлении $c \parallel z$. ОЛН ионов Er^{3+} направлена вдоль оси $a \parallel x$ (анизотропия сильная, основное состояние $^4I_{15/2}$). С понижением температуры анизотропия ионов Er^{3+} растет и преодолевает слабую анизотропию подрешетки Fe^{3+} за счет увеличения обменного взаимодействия $\text{Fe}^{3+}\text{-Er}^{3+}$, вызывая СПФП.

Однако детальное исследование доменной структуры (ДС) в диапазоне СПФП показало, что период ДС при $T < T_2$ больше, чем при $T > T_1$ и плавно увеличивается в диапазоне $T_2 < T < T_1$ [11]. А это значит, что слабоферромагнитный момент Fe^{3+} в конце спиновой переориентации (T_2) оказывается меньше, чем для $T \geq T_1$, т.е. $\mathbf{F}_a < \mathbf{F}_c$. Далее суммарный момент ErFeO_3 продолжает уменьшаться вплоть до температуры компенсации. Этот результат нельзя получить в рамках рассмотренного приближения и требует учета влияния иона Er^{3+} . Для выяснения физической причины этого результата в следующем разделе рассмотрена роль иона Er^{3+} в формировании макроскопических магнитных свойств ErFeO_3 в диапазоне СПФП в рамках одноионной модели.

4. МАГНИТНЫЕ СВОЙСТВА ErFeO_3 В ОБЛАСТИ СПФП (ОДНОИОННАЯ МОДЕЛЬ)

Анализ оптического спектра иона Er^{3+} послужил основой для интерпретации макроскопических магнитных свойств ErFeO_3 в области СПФП в рамках одноионной модели.

Предполагается, что парамагнитная подрешетка, в узлах которой располагаются ионы Er^{3+} , находится в поле подрешетки ионов Fe^{3+} . Спин иона Er^{3+} равен $7/2$, т.е. в основном состоянии это восьмиуровневая система. Заселение уровней при изменении температуры происходит в соответствии с фактором Больцмана, т.е. пропорционально

$$P_i \sim e^{-\frac{E_i}{kT}} / \sum_j e^{-\frac{E_j}{kT}}, \quad (1)$$

где E_i – энергия $i^{\text{го}}$ состояния иона Er^{3+} . Анализ с использованием (1) показал, что фактор заселенности уровней IV-VIII основного мультиплета существенно меньше, чем уровней I-III. Для упрощения задачи мы учли в расчете вклад только уровней I-III. Экспериментально установлено, что в диапазоне температур СПФП заселены только нижайшие три уровня, энергия которых $E_0=0$, $E_1=45.3$ и $E_2=106 \text{ см}^{-1}$ превышает энергии между дублетами Крамерса. Поэтому для простоты вычислений удобно считать, что эффективный спин иона Er^{3+} равен 1. Как уже отмечалось ранее, парамагнитный ион Er^{3+} находится в эффективном поле железной подрешетки, которое параллельно оси a кристалла. Поэтому, для

удобства вычислений ось a кристалла совмещена с осью OZ . Тогда гамильтониан парамагнитного иона Er^{3+} в эффективном поле Fe^{3+} можно представить в виде:

$$\mathbf{H}_0 = -\overline{H} \sum_n \tilde{s}_n^z - K_1(T) \sum_n (\tilde{s}_n^z)^2 + K_2 \sum_n (\tilde{s}_n^z)^4, \quad (2)$$

где $\overline{H} = J_{Fe} \langle S_{Fe} \rangle$ – эффективное поле, создаваемое подрешеткой Fe; J_{Fe} – обменный интеграл Fe^{3+} - Er^{3+} ; $\langle S_{Fe} \rangle$ – намагниченность подрешетки Fe на один атом; $K_1(T)$ и K_2 – константы анизотропии; $\tilde{s}_n^i$ – i -я компонента спинового оператора эрбиевой подрешетки в узле n .

Решая с гамильтонианом (2) стационарное уравнение Шредингера

$$\mathbf{H}_0 |\Psi\rangle = E |\Psi\rangle,$$

найдем собственные функции $|\Psi\rangle$ парамагнитной подрешетки, которые в данном случае имеют вид:

$$\begin{aligned} |\Psi(0)\rangle &= \cos \delta |1\rangle + \sin \delta |-1\rangle, \\ |\Psi(1)\rangle &= |0\rangle, \\ |\Psi(2)\rangle &= -\sin \delta |1\rangle + \cos \delta |-1\rangle, \end{aligned} \quad (3)$$

где $\Psi|i\rangle$ ($i=0,1,2$) – собственные функции оператора $\tilde{s}^z$ парамагнитного атома;

$$\begin{aligned} \cos \delta &= \frac{K_1(T) - K_2}{\sqrt{4(J_{Fe} \langle S_{Fe} \rangle - \chi)^2 + (K_1(T) - K_2)^2}}, \\ \chi^2 &= (J_{Fe} \langle S_{Fe} \rangle)^2 + \frac{1}{4} (K_1(T) - K_2)^2 \end{aligned}$$

На базисе собственных функций (3) гамильтониана построим операторы Хаббарда [13]:

$$X^{MM'} \equiv |\Psi(M')\rangle \langle \Psi(M)|,$$

которые описывают переход парамагнитного иона из состояния M в состояние M' . В данном случае эти операторы связаны со спиновыми операторами парамагнитной подрешетки следующим образом:

$$\begin{aligned} \tilde{s}^z &= \cos 2\delta (X^{00} - X^{22}) - \sin 2\delta (X^{20} + X^{02}), \\ \tilde{s}^+ &= \sqrt{2} \{ \sin \delta (X^{10} - X^{21}) + \cos \delta (X^{12} + X^{01}) \}, \\ \tilde{s}^- &= (\tilde{s}^+)^+. \end{aligned}$$

Проводя усреднение оператора $\tilde{s}^z$ по нулевому гамильтониану (2), можно найти намагниченность парамагнитного иона на один узел:

$$\langle \tilde{s}^z \rangle = \cos 2\delta [\langle X^{00} \rangle - \langle X^{22} \rangle],$$

где $\langle X^{00} \rangle = \frac{\exp(-E_0/kT)}{Z}$, $\langle X^{22} \rangle = \frac{\exp(-E_2/kT)}{Z}$, $Z = \exp(-E_0/kT) + \exp(-E_1/kT) + \exp(-E_2/kT)$

– статистическая сумма, $\cos 2\delta = \frac{J_{Fe} \langle S_{Fe} \rangle}{\chi}$

Окончательно получаем:

$$\langle \tilde{s}^z \rangle (\mu_B) = 1\mu_B \frac{J_{Fe} \langle S_{Fe} \rangle}{\sqrt{(J_{Fe} \langle S_{Fe} \rangle)^2 + \frac{1}{4}(K_1(T) - K_2)^2}} \frac{\exp(-E_0/kT) - \exp(-E_2/kT)}{Z} \quad (4)$$

Таким образом, получаем уравнение, описывающее зависимость одноионной намагниченности Er^{3+} от температуры.

Температуру компенсации можно найти, используя $\langle \tilde{s}^z \rangle = \langle S_{Fe} \rangle$. График зависимости намагниченности парамагнитного атома Er^{3+} на один узел от температуры, полученный для значений магнитных постоянных, собранных в табл.1, приведен на рис.5 (кривая 1). Здесь же дана зависимость суммарной намагниченности $\mathbf{M} = \mathbf{F}_{Fe} - \langle \tilde{s}_{Er}^z \rangle$ (кривая 2).

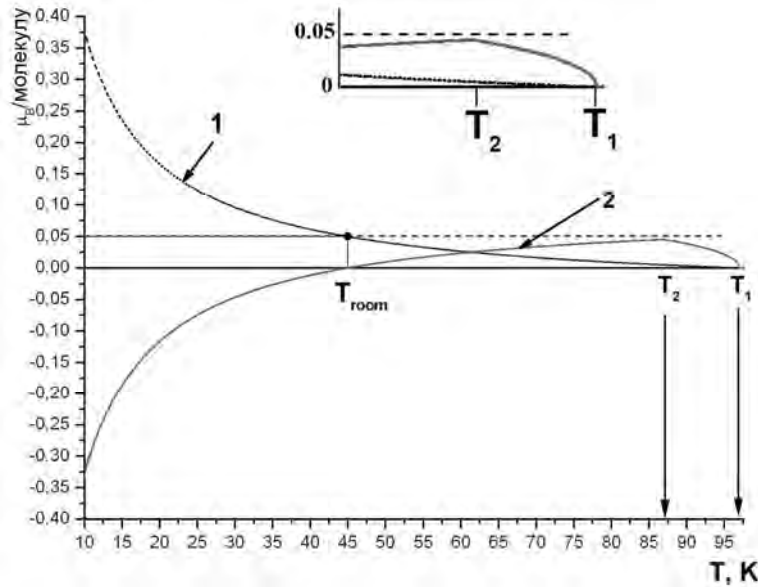


Рис.5. График зависимости от температуры на один узел: 1) составляющей момента эрбия $\langle \tilde{s}_{Er}^z \rangle$ на ось a и 2) составляющей суммарного момента $\mathbf{M} = \mathbf{F}_{Fe} - \langle \tilde{s}_{Er}^z \rangle$ на ось a . Вставка: в увеличенном масштабе область СПФП.

Таблица 1
Магнитные константы для ErFeO_3 , используемые для анализа [12]

Суммарный момент подрешетки Fe^{3+}	$F=0.05$ μ_B /молекулу
Обменная энергия $\text{Fe}^{3+}\text{-Fe}^{3+}$	$E=22 \cdot 10^8$ эрг/см ³
Энергия анизотропии	Второго порядка $K_1(T)=2.8 \cdot 10^5 - 3 \cdot 10^3 \cdot T$ эрг/см ³ (T в К)
	Четвертого порядка $K_2=1.8 \cdot 10^3$ эрг/см ³

Из рис.5 следует, что в области СПФП:

- 1) спонтанная намагниченность иона Er^{3+} $\langle \tilde{s}_{Er}^z \rangle$ растет в поле Fe^{3+} с понижением температуры;
- 2) суммарная намагниченность $\mathbf{M}||a$ ErFeO_3 увеличивается с понижением температуры; однако при $T=T_2$ она меньше $\mathbf{M}||c=F_c=0.05\mu_B$ /молекулу (см. вставку на рис.5) за счет антиферромагнитного взаимодействия $\text{Er} - \text{Fe}$, обращается в нуль в T_{room} и изменяет знак при дальнейшем понижении температуры;
- 3) Суммарная намагниченность $\mathbf{M}||a$ обращается в нуль при $T_{\text{room}}=45\text{K}$, которая соответствует литературным данным [12].

ВЫВОДЫ

Впервые представлен анализ, который детально и последовательно объясняет магнитные свойства ErFeO_3 в области СПФП.

1. Прямое наблюдение СПФП в ортоферрите эрбия с помощью спектроскопического исследования показало, что оптический спектр поглощения позволяет с высокой точностью измерить температуры $T_{1,2}$, сделать однозначный вывод о магнитной природе СПФП.
2. Расщепление полос поглощения в области СПФП означает, что обменное взаимодействие $\text{Er}^{3+}\text{-Fe}^{3+}$ существенно уже при $T \leq 100\text{K}$ при том, что ионы Er^{3+} в ErFeO_3 остаются парамагнитными вплоть до гелиевых температур. Ион Er^{3+} играет критическую роль в возникновении СПФП, который определяется анизотропным магнитным взаимодействием $\text{Fe}^{3+} - \text{Er}^{3+}$.
3. Анализ магнитных свойств ErFeO_3 показал, что порядок величины магнитного момента, явление СПФП и наличие $T_{\text{комп}}$ можно понять в рамках одноионной модели с учетом влияния кристаллического поля и молекулярного поля, создаваемого ионами железной подсистемы.
4. В рамках простой одноионной модели показано, что свойства одного иона определяют свойства достаточно сложной системы.

Авторы благодарны Фридману Ю.А. за плодотворные дискуссии, неоценимую помощь при построении одноионной модели и критические замечания при обсуждении рукописи.

Список литературы

1. Усачев П.А., Писарев Р.В., Балбашов А.М., Кимель А.В., Rasing Th., Оптические свойства ортоферрита тулия TmFeO_3 // ФТТ – 2005. – №612 (47) – С.2200-2206.
2. Belyaeva A.I. and Baranova K.V., Visual investigation of the intermediate state in region of metamagnetic phase transition in ErFeO_3 // JMMM – 2007. – № 2(312). – P. 331-336.
3. Беляева А.И. и Баранова Е.В., Влияние поверхностного магнитожесткого слоя на доменные структуры пластин эрбиевого ортоферрита в области плавной спиновой переориентации // Известия РАН серия физическая – 2008. – №8 (72). С.1153-1158.
4. Kimel A. V., Kirilyuk A., Tsvetkov A., Pisarev R. V., and Rasing Th., Laser-induced ultrafast spin reorientation in the antiferromagnet TmFeO_3 // Nature. – 2004. – № 6994(429). – P.850-853.
5. Kimel A.V., Kirilyuk A., Usachev P.A., Pisarev P.V., Balbashov A.M., Rasing Th., Ultrafast non-thermal control of magnetization by instantaneous photomagnetic pulses // Nature. – 2005. – №2(435). – P.655-657.
6. Bertaut E. F., // Magnetism III: eds G.T.Rado and H.Suhl. – NY: Academic Press. – 1963.
7. Беляева А. И., Силаев В. И. и Стеценко Ю. Е., Проточные криостаты для лабораторных исследований. – Киев: Наукова Думка, 1987. – 232 с.
8. Belyaeva A. I., Litvishkova T. G., Marushko S. N., Silaev R. V. and Yuriyev V. P., Problems of cooling and temperature measurement on object in cryogenic optical studies // Cryogenics. – 1990. – (30). – С. 56-64.
9. Faulhaber R., Hüfner S., Orlich E., and Schuchert H., Optical Investigation of ErFeO_3 // Zeitschrift für Physik – 1967. – (204). – P.101.
10. Geller S. and Wood E.A., Crystallographic studies of perovskite-like compounds. I.Rare earth orthoferrites and YFeO_3 , YCrO_3 , YAlO_3 // Acta Crist – 1956. – (9). – P.563- 568.
11. Беляева А.И., Баранова Е.В., Доменная структура ортоферрита эрбия в области спонтанного спин-переориентационного фазового перехода // Ученые записки ТНУ, Серия «Физика» – 2008. – 21 (60). №1. – С.9-18.
12. Белов К.П., Звездин А.К., Кадомцева А.М., Левитин Р.З., Ориентационные переходы в редкоземельных магнетиках. – Москва: Наука, 1979. – 436с.
13. Зайцев Р.О., Обобщенная диаграммная техника и спиновые волны в анизотропном ферромагнетике // ЖЭТФ – 1975. –(68). – P.207.

Беляева А. И., Баранова К. В. Магнітні властивості ErFeO_3 в області спин-переорієнтаційного фазового переходу (одноіонна модель). // Учені записки Таврійського національного університету ім. В.І. Вернадського. - 2008. - Серія «Фізика». - Т. 21 (60). - № 1. - С. 34-46.

Наведено результати прямого спостереження 90° переорієнтації спінів Er^{3+} в ErFeO_3 за допомогою оптичної спектроскопії. Вивчено особливості спектру поглинання ErFeO_3 в районі переходу $^4\text{I}_{15/2} \rightarrow ^4\text{F}_{9/2}$ іону Er^{3+} в області температур (ас)-спінової переорієнтації. Показано, що спин-переорієнтаційний фазовий перехід (СПФП) супроводжується розщепленням основного та збуджених станів на кramerсові дублети в обмінному полі заліза, що є прямим доказом його чисто магнітної природи. Експериментальні результати використано для аналізу магнітних властивостей ErFeO_3 , який показав, що порядок величини магнітного моменту, його зміна в області СПФП і наявність T_{room} можна зрозуміти в рамках одноіонної моделі з урахуванням впливу кристалічного поля і молекулярного поля, що створюється іонами залізної підсистеми.

Ключові слова: ортоферит ербію, спин-переорієнтаційний фазовий перехід, спектроскопія.

Belyaeva A. I., Baranova K. Magnetic properties of ErFeO_3 in the region of spin-reorientation phase transition (single-ion model). // Uchenye zapiski Tavricheskogo Natsionalnogo Universiteta im. V.I. Vernadskogo. – 2008. – Series «Fizika». – V. 21 (60). - № 1. – P. 34-46.

Results of direct observation of 90° spin reorientation of Er^{3+} spins in ErFeO_3 by means of optical spectroscopy are presented. Absorption spectrum peculiarities of ErFeO_3 are examined in region of $^4\text{I}_{15/2} \rightarrow ^4\text{F}_{9/2}$ transition for Er^{3+} ion in temperature range of (ac)-spin reorientation. It is shown that spin reorientation phase transition (SRPT) is followed by ground and excited states splitting into Kramers doublets in iron exchange field. This fact is direct evidence that the SRPT has the purely magnetic origin. Experimental

results were used for magnetic properties analysis of ErFeO_3 . The analysis showed that order of magnetic moment value, its modification in region of SRPT and existence of T_{room} can be explained on the quantum mechanics single-ion model, in which the Er^{3+} ion is treated as a system of 4f-electrons whose energy levels are determined by electrostatic and spin-orbit coupling by the crystal field of the site, and by magnetic perturbations.

Keywords: erbium orthoferrite, spin-reorientation phase transition, spectroscopy.

Поступила в редакцию 21.08.2008 г.