

## НАБЛЮДЕНИЕ В $TmFeO_3$ ПРЯМЫХ ЭЛЕКТРОННЫХ ПЕРЕХОДОВ ВНУТРИ ОСНОВНОГО МУЛЬТИПЛЕТА РЕДКОЗЕМЕЛЬНОГО ИОНА

А.М.Балбашов, А.А.Волков, Г.В.Козлов, С.П.Лебедев,  
А.А.Мухин, А.Ю.Пронин, А.С.Прохоров, А.М.Прохоров

В субмиллиметровых спектрах поглощения  $TmFeO_3$ , измеренных при  $\nu = 100 - 1000$  ГГц,  $T = 4,2 - 300$  К, обнаружены пять линий магнитного резонанса. Две из них связаны с антиферромагнитным резонансом (АФМР) в Fe-подсистеме, а три другие – с электронными переходами между нижними синглетами основного мультиплетта иона  $Tm^{3+}$ .

В кристаллах редкоземельных ортоферритов  $RFeO_3$  основной мультиплет редкоземельного иона  $R^{3+}$  расщепляется в кристаллическом поле, либо на дублеты (крамерсовские ионы), либо на синглеты (некрамерсовские ионы)<sup>1</sup>. Электронные переходы внутри крамерсовских дублетов, расщепленных во внешнем (обменном) полях, исследовались в работах<sup>2-4</sup>. Наблюдения прямых переходов между синглетами в некрамерсовских ионах нам не известно.

Ориентируясь на оптические данные, согласно которым в некрамерсовском ионе  $Tm^{3+}$  в  $TmFeO_3$  расстояние между нижними синглетами соответствует энергии кванта субмиллиметрового диапазона, мы предприняли исследование субмиллиметровых спектров поглощения  $TmFeO_3$ .

Измерения выполнены на субмиллиметровом ЛОВ-спектрометре "Эпсилон"<sup>5</sup> в диапазоне частот 100 – 1000 ГГц и интервале температур 4,2 – 300 К. Изучались монокристаллы  $TmFeO_3$ , выращенные методом бестигельной зонной плавки с радиационным нагревом, вырезанные в виде плоскопараллельных пластинок  $a$ -среза с поперечными размерами  $10 \times 10$  мм<sup>2</sup> и толщиной  $\sim 1$  мм.

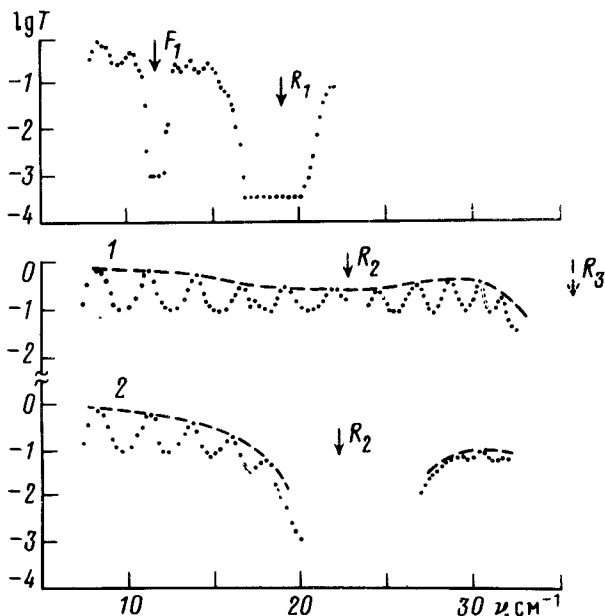


Рис. 1. Спектры пропускания плоскопараллельной пластинки  $TmFeO_3$  толщиной 0,279 мм при двух поляризациях высокочастотного магнитного поля:  $h \parallel c$ -оси,  $T = 4,2$  К (а);  $h \parallel b$ -оси, кривая 1 –  $T = 4,2$  К, 2 – 9,5 К (б)

В спектрах, измеренных при двух поляризациях высокочастотного поля ( $h \parallel c$ -оси и  $h \parallel b$ -оси) зарегистрировано пять линий поглощения. Среди них две достаточно узкие линии ( $\nu/\Delta\nu \sim 10^2$ ), наблюдаются во всем исследуемом интервале температур. Это известные ранее<sup>6-9</sup> моды АФМР – квазиферромагнитная –  $F_1$  с частотой  $\nu_1^{Fe}$  и квазиантиферромагнитная –  $F_2$  с частотой  $\nu_2^{Fe}$  (рис. 1, 2). В температурном поведении их параметров наблюдается аномалия в точках фазовых переходов  $T_{R1} \sim 90$  К и  $T_{R2} \sim 80$  К, связанных с переориентацией в кристалле слабоферромагнитного момента  $M$  от  $c$ -оси к  $a$ -оси.

Три другие существенно более широкие линии поглощения  $R_1$ ,  $R_2$  и  $R_3$  (см. рис. 1) проявляются в спектрах  $TmFeO_3$  только при низких температурах. Для выяснения природы этих линий мы провели сравнение их резонансных частот, условий возбуждения и температурных зависимостей интенсивностей с соответствующими данными работы <sup>10</sup>, в которой из оптических спектров  $TmFeO_3$  были найдены расстояния между синглетами основного мультиплета редкоземельного иона и определен тип их волновых функций.

1. Резонансные частоты. Из рис. 1 и 2 видно, что частота линии поглощения  $R_1$  ( $\nu_{01}^R$ ) соответствует энергии перехода с основного синглета  $E_0$  на первый возбужденный  $E_1$ , частота линии  $R_2$  ( $\nu_{12}^R$ ) с  $E_1$  на второй возбужденный синглет  $E_2$ , а частота линии  $R_3$  ( $\nu_{02}^R$ ) с  $E_0$  на  $E_2$ .

2. Условия возбуждения. Моды  $R_2$  и  $R_3$  возбуждаются при  $h \parallel b$ -оси, что согласуется с правилами отбора для матричных элементов переходов  $E_1 - E_2$  и  $E_0 - E_2$  <sup>10</sup>:

$$\langle \psi_{A_1}^{(0,1)} | \mu_{a,b} | \psi_{A_2}^{(2)} \rangle \neq 0, \quad \langle \psi_{A_1}^{(0,1)} | \mu_c | \psi_{A_2}^{(2)} \rangle = 0,$$

где  $\mu_i$  — компонента оператора магнитного момента иона  $Tm^{3+}$  ( $i = a, b, c$ ),  $\psi_{A_1}^{(n)}$ ,  $\psi_{A_2}^{(n)}$  — волновые функции, относящиеся к  $A_1^-$  и  $A_2^-$ -представлениями точечной группы  $C_S$ , описывающей симметрию кристаллического окружения иона  $Tm^{3+}$ , а индекс  $n$  нумерует синглеты.

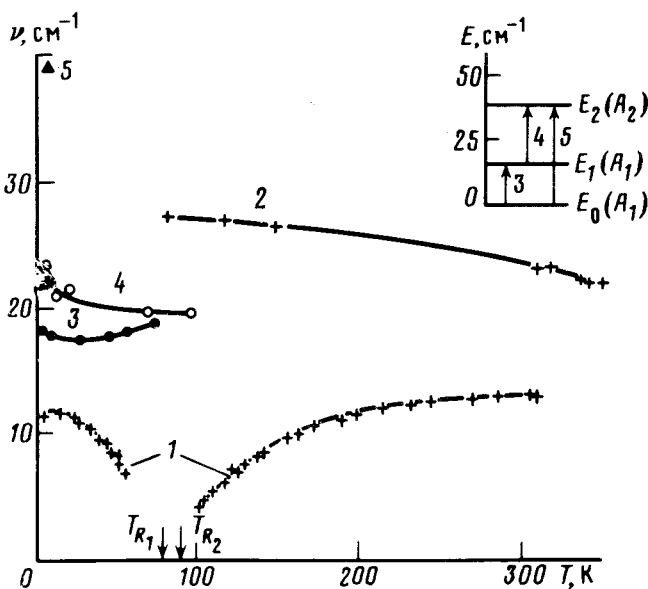


Рис. 2. Температурная зависимость частот АФМР и редкоземельных мод в  $TmFeO_3$ : 1 —  $\nu_1^Fe$ , 2 —  $\nu_2^Fe$ , 3 —  $\nu_{01}^R$ , 4 —  $\nu_{12}^R$ , 5 —  $\nu_{02}^R$ . На вставке показано расщепление нижних уровней иона  $Tm^{3+}$  в кристаллическом поле <sup>10</sup> и переходы между ними, которым соответствуют обнаруженные в субмиллиметровых спектрах линии поглощения  $R_{1,2,3}$ .

Условия возбуждения моды  $R_1$  ( $h \parallel c$ -оси) также согласуются с правилами отбора для матричных элементов перехода  $E_0 - E_1$  <sup>10</sup>:

$$\langle \psi_{A_1}^{(0)} | \mu_{a,b} | \psi_{A_1}^{(1)} \rangle = 0, \quad \langle \psi_{A_1}^{(0)} | \mu_c | \psi_{A_1}^{(1)} \rangle \neq 0.$$

3. Температурное поведение. С понижением температуры моды  $R_1$ ,  $R_3$  и  $R_2$  ведут себя по-разному, а именно: интенсивность первых двух возрастает, а третьей уменьшается (рис. 1). Такое поведение также соответствует идентификации мод  $R_1$ ,  $R_2$  и  $R_3$  с электронными переходами  $E_0 - E_1$ ,  $E_1 - E_2$ ,  $E_0 - E_2$ . Действительно, с понижением температуры заселенность основного уровня  $E_0$  растет, а возбужденных — падает, что и должно приводить, соответственно, к возрастанию интенсивностей мод  $R_1$ ,  $R_3$  и к уменьшению интенсивности моды  $R_2$ .

Таким образом, можно утверждать, что обнаруженные в субмиллиметровых спектрах поглощения  $TmFeO_3$  низкотемпературные линии являются модами электронного резонанса в редкоземельной подсистеме кристалла и связаны с прямыми переходами между тремя нижними синглетами основного мультиплета некрамеровского иона  $Tm^{3+}$ .

## Литература

1. *White R.L.* J. Appl. Phys., 1969, 40, 1061.
2. *Aring K.B., Sievers A.J.* J. Appl. Phys., 1970, 41, 1197.
3. *Головенциц Е.И., Санина В.А.* ЖЭТФ, 1975, 69, 1301.
4. *Даньшин Н.К., Ковтун Н.М., Сдвижков М.А.* ЖЭТФ, 1985, 89, 203.
5. *Волков А.А., Гончаров Ю.Г., Козлов Г.В., Лебедев С.П., Мальцев В.И.* ПТЭ, 1984, № 2, 236.
6. *Le Craw R.C., Wolf R., Georgy E.M., Hagedorn F.V., Hensel J.C., Remeika J.P.* J. Appl. Phys., 1968, 39, 1019.
7. *Shapiro S.M., Axe J.D., Remeika J.P.* Phys. Rev., 1974, B10, 2014.
8. *Wenigopalan S., Dutta M., Ramdas A.K., Remeika J.P.* Phys. Rev., 1983, B27, 3135.
9. *Балбашов А.М., Козлов Г.В., Лебедев С.П., Прохоров А.М., Прохоров А.С.* Письма в ЖЭТФ, 1984, 39, 461.
10. *Malozemoff A.P.* J. Phys. Chem. Solids, 1971, 32, 1669.

Институт общей физики  
Академии наук СССР

Поступила в редакцию  
28 октября 1985 г.