Письма в ЖЭТФ, том 22, вып. 10, стр. 506 – 510 *20 ноября 1975г.*

ДВУЛУЧЕПРЕЛОМЛЕНИЕ СВЕТА В АНТИФЕРРОМАГНЕТИКАХ ВБЛИЗИ ТЕМПЕРАТУРЫ НЕЕЛЯ

Ю.Г. Пейсахович

На основании механизма прямого спин-электронного взаимодействия рассматривается проявление эффектов ближнего порядка в показателе преломления для двухподрешеточных антиферромагнетиков.

В последние годы обнаружено, что в ряде прозрачных ферри- и антиферромагнетиков [1 – 3], вблизи температуры магнитного упорядочения T_N происходит сильное изменение двойного лучепреломления света, при этом ниже T_N появляется добавка к величине эффекта, пропорциональная $< S >^2$ – квадрату намагниченности подрешеток. Интересным обстоятельством является то, что и выше T_N из-за наличия ближнего магнитного порядка магнитное двулучепреломление может составлять заметную долю от естественного двупреломления [1 – 4], медленно спадая при увеличении температуры. Авторы работ [3, 4] связывают такое поведение двупреломления с обменно-стрикционным механизмом, который, как известно, приводит к тому, что у показателя преломления света n возникает добавка, пропорциональная средней магнитной энергии атома $\epsilon_M(T)$ [1, 3]. Однако функция $\epsilon_M(T)$ не отражает

достаточно хорошо [4] температурный ход эффекта. В настоящем сообщении мы обсудим другой механизм прямого спин-электронного взаимодействия и покажем, что этот механизм может в принципе объяснить наблюдаемые на эксперименте аномалии.

Рассмотрим систему блоховских электронов в кристалле. Эти электроны взаимодействуют с системой спинов S_{n_i}, локализованных на узлах решетки $\mathbf{r}_{n_i}$, и совершают межзонные переходы под действием электрического поля световой волны. Для расчета магнитной добавки Δn_M^{xy} к показателю преломления, воспользуемся методикой, изложенной в работе [5], т. е. найдем, с учетом электрон-спинового взаимодействия, линейную по электрическому полю $\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 e^{i\omega t}$ добавку $\rho^{(1)}$ к матрице плотности

$$\rho_{\mathbf{p}\alpha s, \mathbf{p}'\alpha' s'}(t) = \langle a^+_{\mathbf{p}\alpha s}(t) a_{\mathbf{p}'\alpha' s'}(t) \rangle \tag{1}$$

где $a^+_{\mathbf{p}\alpha s}(t)$ и $a_{\mathbf{p}\alpha s}(t)$ – гейзенберговские операторы рождения и уничтожения электрона с квазиимпульсом $\mathbf{p}$ и спином $s = \pm 1/2$ в энергетической зоне α. Имея в виду приложение результатов в первую очередь к фторидам переходных металлов [2, 3] (MnF_2 CoF_2, FeF_2, NiF_2), которые являются двухподрешеточными антиферромагнетиками с двумя магнитными ионами в элементарной кристаллической ячейке, полный гамильтониан системы запишем в виде

$$H = \sum_{\mathbf{p}\alpha s} \epsilon_\alpha(\mathbf{p}) a^+_{\mathbf{p}\alpha s} a_{\mathbf{p}\alpha s} - \frac{e}{c} \mathbf{A} \sum_{\mathbf{p}\alpha_1\alpha_2} \mathbf{v}_{\alpha_1\alpha_2}(\mathbf{p}) a^+_{\mathbf{p}\alpha_1 s} a_{\mathbf{p}\alpha_2 s} + H_1, \tag{2}$$

$$H_1 = -\frac{1}{N} \sum_{\substack{\mathbf{p}\alpha \\ \mathbf{p}'\alpha' n_i}} I_i(\mathbf{p}\alpha, \mathbf{p}'\alpha') \exp[i(\mathbf{p}-\mathbf{p}')\mathbf{r}_{n_i}] \{ (a^+_{\mathbf{p}\alpha+} a_{\mathbf{p}'\alpha'+} - a^+_{\mathbf{p}\alpha-} a_{\mathbf{p}'\alpha'-}) S^z_{n_i} + a^+_{\mathbf{p}\alpha+} a_{\mathbf{p}'\alpha'-} S^+_{n_i} + a^+_{\mathbf{p}\alpha-} a_{\mathbf{p}'\alpha'+} S^-_{n_i} \} \tag{3}$$

здесь $\mathbf{A} = (ic/\omega)\mathbf{E}$, $\epsilon_\alpha(\mathbf{p})$ – закон дисперсии в зоне α, $i = 1, 2$ – номер магнитной подрешетки, сумма по n_i берется во всем N узлам решетки, в которых имеются магнитные ионы. В силу того, что локальное окружение неэквивалентных магнитных ионов различно в смысле симметрии, а симметрия блоховской волновой функции определяется полной пространственной симметрией кристалла, то для данной пары блоховских состояний $\mathbf{p}\alpha$ и $\mathbf{p}'\alpha'$ матричные элементы интеграла обмена с первой и второй подрешетками различны: $I_1(\mathbf{p}\alpha, \mathbf{p}'\alpha') \neq I_2(\mathbf{p}\alpha, \mathbf{p}'\alpha')$.

Уравнение для $\rho^{(1)}$ можно получить и решить по теории возмущений, используя малость параметра $\eta = |I / \beta_\mathbf{p}| \ll 1$, где

$$\beta_\mathbf{p} = \epsilon_{\alpha_1}(\mathbf{p}) - \epsilon_{\alpha_2}(\mathbf{p}) - \hbar\omega. \tag{4}$$

Поскольку в антиферромагнетиках $\langle S_{n_1} \rangle = -\langle S_{n_2} \rangle = \langle S \rangle$, то магнитная добавка к n_0 появится во втором порядке и, кроме части

пропорциональной $< S >^2$, будет также содержать флуктуационную часть Δn^{xy}_{Φ}.

$$\Delta n^{xy}_{M} = A^{xy} < S >^2 + \Delta n^{xy}_{\Phi} \quad , \quad A^{xy} \sim \eta^2 e^2 v^2 / \beta\omega^2 . \tag{5}$$

Если $|\tau| >> \eta$, где $\tau = (T - T_N)/T_N$, то в последней можно ограничиться учетом только парных корреляторов величин $\delta S_n = S_n - < S >$. В соответствии с теорией фазовых переходов, основанной на гипотезе подобия корреляций, предположим, что свойства этих корреляторов таковы, что

$$\sum_{n_1'} < \delta S_{n_1} \delta S_{n_1'} > e^{i\mathbf{k}(\mathbf{r}_{n_1} - \mathbf{r}_{n_1'})} = - \sum_{n_2} < \delta S_{n_1} \delta S_{n_2} > e^{i\mathbf{k}(\mathbf{r}_{n_1} - \mathbf{r}_{n_2})} \cong$$

$$\cong \frac{4\pi a^2}{k^2 + r_c^{-2}} . \tag{6}$$

В (6) мы пренебрегли отличием критического индекса спинового коррелятора от единицы. При $\tau \to 0$ корреляционный радиус $r_c \sim a\,|\tau|^{-\mu}$ растет, a – характерное межатомное расстояние. Можно предположить, что основной вклад в Δn^{xy}_{Φ} вносит пара зон, энергетическая щель между которыми наиболее близка к $\hbar\omega$. Вблизи порога поглощения, который обычно бывает связан с точкой высокой симметрии $\mathbf{p}_0$ в зоне Бриллюэна, пренебрегая анизотропией, можно записать

$$\epsilon_{a_j}(\mathbf{p}) = \epsilon_{a_j}(\mathbf{p}_0) + \frac{(\mathbf{p} - \mathbf{p}_0)^2}{m_j} ; \qquad \beta_{\mathbf{p}} = \beta + \frac{(\mathbf{p} - \mathbf{p}_0)^2}{M} . \tag{7}$$

Вычисление приводит к результату

$$\Delta n^{xy}_{\Phi} = A_1^{xy} \left[B \frac{\kappa}{1 + \kappa} + F(\kappa, C) \right] , \tag{8}$$

$$A_1^{xy} = - \frac{e^2 v^x_{12} v^y_{21} (l_1 m_1 - l_2 m_2)^2}{2^5 \omega^2 n_0 \beta} , \qquad B = \frac{2M(l_1^2 m_1 - l_2^2 m_2)}{(l_1 m_1 - l_2 m_2)^2} ,$$

$$C = 4M^2 / |m_1 m_2| , \quad \kappa = 2\sqrt{M\beta}\, r_c \sim |\tau|^{-\mu} ,$$

$$l_{a_j} = l_1(\mathbf{p}_0 a_j, \mathbf{p}_0 a_j) - l_2(\mathbf{p}_0 a_j, \mathbf{p}_0 a_j) .$$

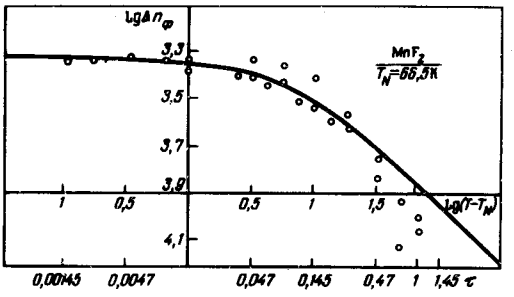
Для порога типа $m_1 m_2 > 0$

$$F(\kappa, C) = \frac{\kappa^2}{1 + \kappa} - \frac{\kappa^2}{(1 + C)^{1/2} + (\kappa^2 + C)^{1/2}} . \tag{9}$$

Для порога типа $m_1 m_2 < 0$ функция $F(\kappa, C)$ имеет более громоздкий вид. Однако в обоих случаях при $\kappa << 1$, т. е. близко к линии поглощения, должна наблюдаться сильная температурная аномалия $\Delta n_{\text{ф}}^{xy} \sim \kappa/\beta \sim \sim r_c \sim |\tau|^{-\mu}$. О структуре зон фторидов переходных металлов в настоящее время известно мало [6]; если предположить, что $|m_1| << |m_2|$, т. е. верхняя зона значительно шире нижней, то $C << 1$ и

$$\Delta n_{\text{ф}}^{xy} = A_1^{xy}\left(B + \frac{C}{2}\right)\frac{\kappa}{1+\kappa}. \qquad (10)$$

В соответствии с (5), (10) Δn_{M}^{xy} должно иметь излом вблизи T_N, такой излом наблюдался в работах [2,3]. В экспериментах [2,3] использовался свет с $\lambda = 6328$Å, в MnF_2 это соответствует расстоянию $\beta \sim 0{,}2$ *эв* до ближайшего порога линии поглощения [7]. В области $\eta \lesssim |\tau| \lesssim 0{,}5$ где разумна аппроксимация $r_c \sim |\tau|^{-2/3}$ при этом на зависимость (10) неплохо накладываются экспериментальные точки из [2], если принять, что межзонная масса M такова, что $(Ma^2)^{-1} = 4{,}5$ *эв* (рисунок).



В соответствии с результатом (8), характер температурной зависимости $\Delta n_{\text{ф}}^{xy}$ должен сильно меняться с частотой. С другой стороны для обменнострикционного вклада такое изменение не является характерным, поэтому вариация частоты света в экспериментах типа [1–3] на наш взгляд, может оказаться полезной при выяснении механизма магнитного двулучепреломления в антиферромагнетиках.

Автор глубоко благодарен академику И.М.Лифшицу за внимание к работе, В.М.Набутовскому за многочисленные обсуждения и Н.М.Крейнес за предоставленные экспериментальные данные по MnF_2.

Институт неорганической химии
Академии наук СССР
Сибирское отделение

Поступила в редакцию
6 октября 1975г.

Литература

[1] Г.А.Смоленский, Р.В.Писарев. И.Г.Синий. УФН, 116, 231, 1975.

[2] А.С.Боровик-Романов, Н.М.Крейнес, М.А.Талалаев. Письма в ЖЭТФ, 13, 80, 1971; А.С.Боровик-Романов, Н.М.Крейнес, А.А.Панков, М.А. Талалаев. ЖЭТФ, 64, 1762, 1973.

[3] I.R.Jahn, H.Dachs. Sol. St. Comm., 9, 1617, 1971; I.R.Jahn. Phys. Stat. Sol., 57, 681, 1973.

[4] W.Jauch, H.Dachs. Sol. St. Comm., 14, 657, 1974.

[5] В.М.Набутовский, Ю.Г.Пейсахович. ЖЭТФ, 68, 164, 1975.

[6] A.Matsiu, W.C.Walker. JOSA, 60, 358, 1970.

[7] J.W.Stout. J. Chem. Phys., 31, 709, 1959; D.M.Finlauson, I.R.Robertson, T.Smith, R.W.H.Stewenson. Pros. Phys. Soc., 76, 355, 1960.