Антиферромагнитный фотогальванический эффект в ортоалюминатах

© В.В. Меньшенин

Институт физики металлов Уральского отделения Российской академии наук, 620219 Екатеринбург, Россия

E-mail: menshenin@imp.uran.ru

(Поступила в Редакцию 12 января 2004 г. В окончательной редакции 19 марта 2004 г.)

На основе феноменологического подхода дано описание антиферромагнитного фотогальванического эффекта в ортоалюминатах Gd, Dy, Tb. Рассмотрены случаи линейной и циркулярной поляризации света.

1. Введение

Антиферромагнитный фотогальванический эффект (АФФЭ) представляет собой генерацию светом постоянного электрического тока в центроантисимметричных (ЦАС) антиферромагнетиках в отсутствие постоянного электрического поля и пространственных неоднородностей. Феноменологическая теория этого эффекта для антиферромагнетиков тетрагональной и тригональной сингоний построена в [1]. Микроскопический фононный механизм этого явления предложен в [2].

С позиций феноменологического подхода особенностью АФФЭ является то, что в ЦАС антиферромагнетиках преобразование вектора антиферромагнетизма L под действием операций симметрии среды может приводить к смене его знака. Это происходит в том случае, когда все магнитные атомы в решетке занимают одну и ту же позицию, а операции кристаллохимической симметрии переводят атомы одной магнитной подрешетки в атомы другой подрешетки. Такая перестановка, в частности, имеет место в ЦАС антиферромагнетиках, где после магнитного упорядочения центр симметрии становится центром антисимметрии и справедливо равенство

$$\bar{1}\mathbf{L} = -\mathbf{L}.$$
 (1)

Поэтому только в ЦАС антиферромагнетиках плотность фотогальванического тока может быть записана в виде

$$j_i = \beta_{i\,jkl} L_j e_k e_l^* J,\tag{2}$$

где β_{ijkl} — антиферромагнитный фотогальванический тензор, **е** — вектор поляризации света, J — интенсивность света.

В работе [1] проведен анализ линейного АФФЭ в трирутилах, ортофосфатах и ортованадатах, а также в Cr_2O_3 . В этом случае ток может генерироваться линейно поляризованным светом. Антиферромагнитный фотогальванический тензор β_{ijkl}^L , равный

$$\beta_{ijkl}^{L} = \operatorname{Re}\beta_{ijkl},\tag{3}$$

определяет связь между направлением фототока, ориентацией вектора L и направлением поляризации электромагнитной волны. Его симметрия совпадает с симметрией тензора пьезомагнетизма.

Обратим также внимание на особенности фононного механизма АФФЭ. Дело в том, что в отличие от немагнитных сред, где экспериментально наблюдался фотогальванический ток, в ЦАС антиферромагнетиках нет пьезоэффекта, однако имеется магнитоэлектрический эффект (МЭ). Поэтому дальнодействующая часть электрон-фононного взаимодействия в ЦАС антиферромагнетиках может быть обусловлена поляризацией среды, вызванной внешним магнитным полем за счет МЭ, и ее модуляцией фононами.

Представляет интерес расширить список материалов, в которых АФФЭ возможен для экспериментального наблюдения. К таким материалам относятся ортоалюминаты. Магнитные свойства и МЭ в них подробно исследованы, поэтому имеется обширная информация, касающаяся их магнитных и магнитоэлектрических свойств. Ввиду низкой кристаллохимической симметрии ортоалюминатов условия возбуждения линейного фототока в них не столь разнообразны, как в тетрагональных антиферромагнетиках. Поэтому в ортоалюминатах необходимо исследовать не только линейный, но и циркулярный АФФЭ.

2. Обменные магнитные структуры

Рассмотрим соединения типа RA1O₃ с кристаллохимической симметрией $Pbnm(D_{2h}^{16})$. Здесь R — ионы редкоземельного металла (Gd³⁺, Dy³⁺, Tb³⁺), занимающие кристаллохимические позиции 4c. Кристаллографические оси будем считать ориентированными вдоль осей второго порядка. В табл. 1 приведены перестановочные соотношения для ионов в позиции 4c. С помощью этой таблицы можно легко установить, что в ортоалюминатах имеются две обменные магнитные структуры (OMC) (взаимная ориентация намагниченностей подрешеток), нечетные относительно инверсии. Первая из них четна относительно винтовой оси 2_{1x} и называется структурой типа *a*, а вторая четна относительно оси 2_{1y} и обозначается символом *g*. Для этих структур имеем

Таблица 1. Перестановочные соотношения для ионов в позиции 4*c*

g	Ī	2 _{1x}	2 _{1y}
1	2	3	4
2	1	4	3
3	4	1	2
4	3	2	1

Таблица 2. Неприводимые представления группы Рbnm

Г	ī	2 _{1<i>x</i>}	2 _{1y}	2 _{1z}	Комбинации базисных векторов	Магнитная точечная группа
Γ_1	+1	+1	+1	+1		$m_x m_y m_z$
Γ_2	+1	+1	-1	-1		$m_x m'_y m'_z$
Γ_3	+1	-1	+1	-1		$m'_x m_y m'_z$
Γ_4	+1	-1	-1	+1		$m'_x m'_y m_z$
Γ_5	-1	+1	+1	+1	a_x, g_y	$m'_x m'_y m'_z$
Γ_6	-1	-1	-1	+1	g_x, a_y	$m_x m_y m_z'$
Γ_7	-1	-1	+1	-1	a_z	$m_x m'_y m_z$
Γ_8	-1	+1	-1	-1	g_z	$m'_x m_y m_z$

соотношения [3]

OMC $\bar{1}(-)2_x(+)2_y(-)$, $\mathbf{a} = M_1 - M_2 + M_3 - M_4$, OMC $\bar{1}(-)2_y(+)2_z(-)$, $\mathbf{g} = M_1 - M_2 - M_3 + M_4$, (4)

где M_i (i = 1, ..., 4) — локальные подрешеточные намагниченности. В табл. 2 содержатся неприводимые представления группы *Pbnm* с указанием компонент базисных векторов **a** и **g**, преобразующихся по этим представлениям. Отметим, что две другие возможные ОМС являются четными относительно инверсии и не представляют для нас интереса.

3. Ортоалюминат гадолиния

В GdAlO₃ в основном состоянии реализуется представление Γ_5 . Результаты, полученные при исследовании МЭ, указывают на наличие у GdAlO₃ ориентационного состояния $a_x g_y$ типа "крест" в плоскости xy [3]. Однако, поскольку компонента χ_{xx} магнитной восприимчивости стремится к нулю при $T \rightarrow 0$, а во внешнем магнитном поле **H**, параллельном оси x, наблюдается спин-флоппереход, наибольшим вектором антиферромагнетизма является вектор **a** || Ox, а компонента g_y если и присутствует, то только в виде малой добавки [3].

Рассмотрим сначала случай, когда компонента g_y отсутствует. В этом случае имеем следующие выражения для компонент плотности линейного фотогальванического тока:

$$j_x = 2\beta_{xxyz}^{L(a)} e_y e_z a_x J, \quad j_y = 2\beta_{yxzx}^{L(a)} e_z e_x a_x J,$$
$$j_z = 2\beta_{zxxy}^{L(a)} e_x e_y a_x J, \tag{5}$$

где $\beta_{ijkl}^{L(a)} = \text{Re}\beta_{ijkl}^{(a)}$ — компоненты вещественной части антиферромагнитного фотогальванического тензора. Как

уже отмечалось, тензор $\beta_{ijkl}^{L(a)}$ совпадает по симметрии с тензором пьезомагнетизма. Индекс *a* в круглых скобках указывает на то, что тензоры относятся к ОМС $\bar{1}(-)2_x(+)2_y(-)$. Из равенств (5) следует, что направление распространения фототока в GdAlO₃ перпендикулярно поляризации света, если одна из компонент вектора поляризации равна нулю, а две другие отличны от нуля. Ток может генерироваться вдоль любой из осей кристалла при соответствующем выборе направления поляризации электромагнитной волны.

Выясним теперь, к каким изменениям в выражении для тока приведет наличие компоненты g_y . ОМС типа gпредставлена вторым равенством в (4). Она отличается от ОМС типа a четностью винтовой оси 2_y . Поэтому в вещественной части фотогальванического тензора отличны от нуля другие компоненты. Плотность фотогальванического тока, связанная с вектором **g** || Oy, равна

$$j_{x} = 2\beta_{xyzy}^{L(g)}e_{z}e_{y}g_{y}J, \quad j_{y} = 2\beta_{yyzx}^{L(g)}e_{z}e_{x}g_{y}J,$$

$$j_{z} = \left(\beta_{zyxx}^{L(g)}e_{x}^{2} + \beta_{zyyy}^{L(g)}e_{y}^{2} + \beta_{zyzz}^{L(g)}e_{z}^{2}\right)g_{y}J.$$
(6)

Сравнивая равенства (5) и (6), видим, что имеется существенное различие для компоненты j_z фотогальванического тока. Действительно, если магнитная структура не содержит вклада от g_y , фототок вдоль оси z появляется при поляризации света $\mathbf{e} = (e_x, e_y, 0)$, тогда как при наличии g_y составляющая j_z фототока генерируется при поляризации света вдоль любой из осей координат. Таким образом, АФФЭ может прямо подтвердить наличие или отсутствие составляющей g_y в магнитном упорядочении CdAlO₃.

4. Ортоалюминаты диспрозия и тербия

Нейтронографические данные и исследования оптических переходов между уровнями мультиплетов [4–6] позволяют утверждать, что в этих ортоалюминатах имеется неколлинеарная ОМС с четырьмя магнитными подрешетками в ориентационном состоянии a_xg_y , т.е. снова реализуется представление Γ_5 . В [3] показано, что в этих ортоалюминатах структуру a_xg_y можно представить в виде двух антиферромагнитных конфигураций с векторами антиферромагнетизма

$$L_1 = M_1 - M_2, \quad L_2 = M_3 - M_4,$$
 (7)

вставленных друг в друга. При этом векторы L_1 и L_2 ориентированы по главным осям *g*-тензоров ионов, связанных инверсией. Тогда

$$\mathbf{a} = \mathbf{L}_1 + \mathbf{L}_2, \quad \mathbf{g} = \mathbf{L}_1 - \mathbf{L}_2. \tag{8}$$

В этом случае в основном состоянии $\mathbf{L}_1 + \mathbf{L}_2 \parallel x$, а $\mathbf{L}_1 - \mathbf{L}_2 \parallel y$. Ясно, что в DyAlO₃ и TbAlO₃ выражения для компонент фотогальванического тока представляют собой сумму равенств (5) и (6), где теперь под a_x и g_y нужно понимать соответственно $(\mathbf{L}_1 + \mathbf{L}_2)_x$, $(\mathbf{L}_1 - \mathbf{L}_2)_y$.

5. Циркулярный антиферромагнитный фотогальванический ток

Выше проанализирована ситуация, когда свет поляризован линейно. Обратимся теперь к случаю, когда он имеет циркулярную поляризацию. Для этой поляризации света в выражение для фототока входит только мнимая часть антиферромагнитного фотогальванического тензора

$$\operatorname{Im}\beta_{i\,jkl} = \beta_{i\,js}\varepsilon_{skl},\tag{9}$$

где тензор β_{ijs} не обладает какими-либо свойствами при перестановке его индексов. Воспользуемся для определения отличных от нуля компонент тензора β_{ijs} выражением для циркулярного фототока

$$j_{i} = \left(\beta_{ijs}^{(a)} \{\mathbf{L}_{1} + \mathbf{L}_{2}\}_{j} [\mathbf{e}, \mathbf{e}^{*}]_{s} + \beta_{ijs}^{(g)} \{\mathbf{L}_{1} - \mathbf{L}_{2}\}_{j} [\mathbf{e}, \mathbf{e}^{*}]_{s}\right) J$$
(10)

и правилом, согласно которому каждый материальный тензор преобразуется под действием операций симметрии среды в соответствии с правилом преобразования тех величин, которые он связывает, а именно как их произведение. Таким образом, под действием операций кристаллохимической симметрии β_{ijs} преобразуется как произведение $j_i L_j [\mathbf{e}, \mathbf{e}^*]_s$. В равенстве (10) индексы (*a*) и (*g*) связаны с ОМС, описываемыми векторами $\mathbf{L}_1 + \mathbf{L}_2$ и $\mathbf{L}_1 - \mathbf{L}_2$.

Выясним, какие компоненты для тензора $\beta_{ijs}^{(a)}$ отличны от нуля. Поскольку сумма векторов $L_1 + L_2$ имеет неравную нулю проекцию только на ось *x*, нам необходимо рассмотреть только величины $\beta_{ixs}^{(a)}$. Непосредственная проверка с учетом того, что ОМС является четной относительно оси 2_x , показывает, что отличны от нуля следующие компоненты:

$$\beta_{xxx}^{(a)}, \quad \beta_{yxy}^{(a)}, \quad \beta_{zxz}^{(a)}.$$

Для структуры типа *g* не равны нулю

$$\beta_{xyx}^{(g)}, \quad \beta_{yyy}^{(g)}, \quad \beta_{zyz}^{(g)}.$$

В результате для циркулярно поляризованного света плотность фотогальванического тока равна

$$j_{x} = \left(\beta_{xxx}^{(a)} \{\mathbf{L}_{1} + \mathbf{L}_{2}\}_{x} + \beta_{xyx}^{(g)} \{\mathbf{L}_{1} - \mathbf{L}_{2}\}_{y}\right) \left(e_{y}e_{z}^{*} - e_{z}e_{y}^{*}\right) J,$$

$$j_{y} = \left(\beta_{yxy}^{(a)} \{\mathbf{L}_{1} + \mathbf{L}_{2}\}_{x} + \beta_{yyy}^{(g)} \{\mathbf{L}_{1} - \mathbf{L}_{2}\}_{y}\right) \left(e_{z}e_{x}^{*} - e_{x}e_{z}^{*}\right) J,$$

$$j_{z} = \left(\beta_{zxz}^{(a)} \{\mathbf{L}_{1} + \mathbf{L}_{2}\}_{x} + \beta_{zyz}^{(g)} \{\mathbf{L}_{1} - \mathbf{L}_{2}\}_{y}\right) \left(e_{x}e_{y}^{*} - e_{y}e_{x}^{*}\right) J.$$
(11)

В ортоалюминате Gd при выполнении условия $g_y = 0$ в равенствах (11) остаются лишь слагаемые, пропорциональные $\beta_{xxx}^{(a)}$, $\beta_{yxy}^{(a)}$, $\beta_{zxz}^{(a)}$. Направление распространения фотогальванического тока, как следует из (11), при циркулярной поляризации электромагнитной волны перпендикулярно плоскости ее поляризации. Последнее замечание справедливо, если отличны от нуля только две компоненты поляризации света.

Остановимся теперь на существенном отличии АФФЭ от фотогальванического эффекта в немагнитных кристаллах. Рассмотрим для этого действие операции инверсии времени на правую и левую части равенства (2). Поскольку при замене $t \rightarrow -t$ плотность тока **j** и вектор антиферромагнетизма **L** меняют знак, а $\mathbf{e} \rightarrow \mathbf{e}^*$, тензор β_{ijkl}^L не должен менять знак, а Im β_{ijkl} изменит знак. Следовательно, антисимметричная часть антиферромагнитного фотогальванического тензора должна обращаться в нуль, если пренебречь диссипацией света. Поэтому для АФФЭ бездиссипативные токи могут генерироваться только линейно поляризованным светом, тогда как в немагнитных средах они генерируются циркулярно поляризованным светом.

6. Заключение

Выше на основе феноменологического подхода проведен анализ как линейного, так и циркулярного фотогальванического тока в ортоалюминатах Gd, Dy, Tb.

Отметим прежде всего, что для ортоалюмината Gd остается открытым вопрос о наличии в основном состоянии ОМС $\overline{1}(-)2_y(+)2_z(-)$. В принципе ответ на него можно получить с помощью АФФЭ, а именно: если для линейно поляризованного вдоль любой из осей координат света генерируется фототок вдоль оси *z* кристалла, то такая ОМС присутствует. Распространение линейного фототока в GdAlO₃ в отсутствие ОМС всегда происходит в направлении, перпендикулярном поляризации света.

В DyAlO₃ и TbAlO₃ имеются обе возможные ЦАС обменные магнитные структуры. Поэтому одной из наиболее удобных для наблюдения фототока в этих ортоалюминатах является ситуация, при которой поляризация электромагнитной волны и генерируемый фототок направлены вдоль одной и той же оси — z. Направление распространения фототока при любой другой поляризации света ортогонально последней и определяется из равенств (5) и (6) с учетом указанной ранее замены (8).

Приведем теперь некоторые соображения относительно порядка величины генерируемых фототоков. Поскольку фононный механизм реализуется и здесь, приведенная в [2] качественная оценка величины тока справедлива и в ортоалюминатах Dy и Tb, когда он распространяется вдоль оси *z* кристалла. Действительно, метамагнитный переход от антиферромагнитной к ферромагнитной OMC происходит в DyAlO₃ и TbAlO₃ в магнитных полях $H \sim 5$ kOe, поэтому используемая в работе [2] величина поля $H \sim 1$ kOe применима и в этом случае. Температурный интервал существования антиферромагнитного порядка в ортоалюминатах Dy и Tb совпадает с использованным при оценке фототока в [2]. Таким образом, *j*(CGS) $\sim 10^{-5}J$ (erg/cm² · s), где J — интенсивность света.

В работах [7-9] изучались токовые состояния и, в частности, фотогальванический эффект в "экситонных" диэлектриках. Появление этих состояний вызвано неустойчивостью системы относительно электрондырочного спаривания в процессах рассеяния электронов на дырках. Было показано, что объемный фотогальванический эффект связан с наличием межзонных переходов, приводящих к появлению мнимой части синглетного параметра порядка. Макроскопически ее появление эквивалентно наличию у среды антисимметричных компонент магнитоэлектрического тензора. Указанный механизм фотогальванического эффекта в орторомбических кристаллах может реализоваться, если магнитная точечная симметрия основного состояния есть $mmm'(D_{2h}(C_{2v}))$. Однако в рассматриваемых ортоалюминатах основное состояние имеет симметрию $m'm'm'(D_{2h}(D_2))$, т.е. в этом состоянии существует только симметричный магнитоэлектрический тензор. Поэтому описанные в работах [7-9] причины, приводящие к фотогальваническому эффекту, не действуют в ортоалюминатах до тех пор, пока не изменится магнитное состояние кристалла.

Заметим теперь, что в GdAlO₃ спин-флоп-переход во внешнем магнитном поле происходит в состояние a_{z} , которое характеризуется точечной магнитной симметрией $mm'm(D_{2h}(C_{2v}))$. В этом случае, если магнитное поле не слишком сильно влияет на электрон-дырочное спаривание, по-видимому, возможна реализация механизма фотогальванического эффекта, предложенного в [7-9]. В ортоалюминатах DyAlO₃ и TbAlO₃ во внешнем магнитном поле имеет место переход в промежуточное состояние, в котором появляются недиагональные компоненты магнитоэлектрического тензора α_{13} и α_{31} [3]. Поэтому если на основании экспериментальных данных будет получено, что $\alpha_{13} = -\alpha_{31}$, то можно считать, что в этих ортоалюминатах в промежуточном состоянии картина появления фотогальванического эффекта, найденная в [7–9], также может иметь место.

Список литературы

- [1] В.В. Меньшенин, Е.А. Туров. Письма в ЖЭТФ **72**, *1*, 23 (2000).
- [2] В.В. Меньшенин. ФТТ 45, 11, 2028 (2003).
- [3] Е.А. Туров, А.В. Колчанов, В.В. Меньшенин, И.Ф. Мирсаев, В.В. Николаев. Симметрия и физические свойства антиферромагнетиков. Физматлит, М. (2001).
- [4] L. Schuchert, S. Hufner, R. Faulhaber. Z. Phys. **222**, *1*, 105 (1969).
- [5] R. Bidaux, P. Meriel. J. Phys. (Paris) 29, 2-3, 220 (1968).
- [6] J. Bielen, J. Mareschal, J. Sivardiere. Z. Angew. Phys 23, 4, 243 (1967).
- [7] А.А. Горбацевич, Ю.В. Копаев, В.В. Тугушев. ЖЭТФ 85, 3 (9), 1107 (1983).
- [8] Ю.А.Артамонов, А.А. Горбацевич, Ю.В. Копаев. ЖЭТФ 101, 2, 557 (1992).
- [9] Ю.А. Артамонов, А.А. Горбацевич. ЖЭТФ 89, 3 (9), 1078 (1985).