

## Нечетный магнитный дихроизм линейно поляризованного света в антиферромагнитном $\text{MnF}_2$

Н.Ф. Харченко<sup>1</sup>, О.В. Милославская<sup>1</sup>, А.А. Мильнер<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Физико-технический институт низких температур им. Б.И. Веркина НАН Украины  
пр. Ленина, 47, г. Харьков, 61103, Украина  
E-mail: kharchenko@ilt.kharkov.ua

<sup>2</sup>Weizmann Institute of Science, Rehovot 76100, Israel

Статья поступила в редакцию 11 июля 2005 г.

В двухподрешеточном тетрагональном антиферромагнитном кристалле фторида марганца обнаружен индуцированный магнитным полем  $H \parallel C_4 \parallel Z$  дихроизм линейно поляризованного света, распространяющегося также вдоль тетрагональной оси кристалла. Наблюдавшийся дихроизм нечетен по отношению к знаку  $z$ -проекции поля и операции изменения направлений подрешеточных магнитных моментов антиферромагнетика на противоположные. Эффект может быть использован для оптической визуализации 180-градусных (time-reversed) антиферромагнитных доменов в  $\text{MnF}_2$ .

В двохпідрешатковому тетрагональному антиферомагнітному кристалі фториді марганцю виявлено індукований магнітним полем  $H \parallel C_4 \parallel Z$  дихроїзм лінійно поляризованого світла, що розповсюджується також вздовж тетрагональної вісі кристала. Спостережений дихроїзм є непарним по відношенню до знака  $z$ -проекції поля та до операції зміни напрямків підрешаткових магнітних моментів антиферомагнетика на протилежні. Ефект може бути застосовано для оптичної візуалізації 180-градусних (time-reversed) антиферомагнітних доменів в  $\text{MnF}_2$ .

PACS: 78.20.Ls, 75.50.Ee, 75.70.Kw

### Введение

Фторид марганца является известным модельным чисто спиновым двухподрешеточным тетрагональным антиферромагнетиком (АФМ). Он уже давно служит полигоном для проверки теоретических представлений о магнитных и упругих [1–3] свойствах АФМ кристаллов, об их оптических свойствах, обусловленных взаимодействием фотонов с магнитной подсистемой антиферромагнетика и проявляющихся в области прозрачности [4,5], при поглощении [6–12] и рассеянии света [12–14].

Так как результирующий орбитальный момент пяти  $3d$ -электронов двухвалентного марганца в  $\text{MnF}_2$  равен нулю и спин иона  $\text{Mn}^{2+}$  максимальен, то все электродипольные переходы внутри  $3d^5$ -конфигурации запрещены дважды — по четности и по спину. Наиболее низкоэнергетичные разрешенные электродипольные переходы типа  $^6S(3d^5)-^6P(3d^44p)$  и переходы с переносом заряда с участием ионов фтора ле-

жат в вакуумном ультрафиолете [15]. Нулевое значение орбитального момента в основном состоянии иона и удаленность разрешенных электродипольных оптических переходов обуславливают чрезвычайно малую величину магнитооптического эффекта Фарадея. Даже в видимом диапазоне вклад в эффект магниторезонансных переходов превалирует над электродипольным вкладом [5].

Для внутренконфигурационных  $d-d$  переходов правила отбора по спину ослабляются спин-орбитальным взаимодействием. Запрет по четности снимается при локальных статических и динамических нарушениях инверсии, в частности при одновременном возбуждении экситона и магнона или экситона и нечетного фонона. При экситон-магнонных возбуждениях снимается запрет на электродипольный механизм перехода как по четности, так и по спину. Благодаря этим механизмам в спектрах поглощения  $\text{MnF}_2$  во всей видимой области видны и слабые экситонные магнитодипольные переходы, и их более сильные

электродипольные спутники — экситон-магнонные и экситон-фононные [6–12]. Отметим, что впервые экситон-магнонный спутник в спектре поглощения антиферромагнетика наблюдался в кристалле  $\text{MnF}_2$  [6].

Фторид марганца привлекает к себе внимание не только возможностями фундаментальных исследований [16, 17]. В последние годы интенсивно изучаются особенности магнитных гистерезисных свойств магнитных гетероструктур, характеризующихся обменно-сдвигнутой петлей магнитного гистерезиса и содержащих ферромагнитные нанослои или нанодоты, нанесенные на АФМ кристаллическую пластинку или монокристаллическую пленку. Изучаются механизмы обменного взаимодействия между соседними слоями и механизмы появления в ФМ слое однородной магнитной анизотропии. В качестве АФМ основы таких структур используется, в частности, и фторид марганца [17]. Наличие 180-градусных (time-reversed) АФМ доменов в АФМ слое существенно изменяет их однородные магнитные свойства. Поэтому при создании структур ФМ/АФМ с заданными гистерезисными свойствами, а также для создания структур с возможностями переключения этих свойств очень желательны визуальный контроль и целенаправленная манипуляция с 180-градусными АФМ доменами.

Магнитная симметрия АФМ фторидов переходных элементов разрешает эффекты, которые чувствительны к противоположным ориентациям АФМ вектора. Среди элементов симметрии этих кристаллов отсутствует операция антиинверсии  $\bar{1}'$ , что снижает запрет на нетрадиционные магнитооптические эффекты — линейное по магнитному полю двупреломление света, или линейный магнитооптический эффект (ЛМОЭ), и квадратичное по магнитному полю вращение (КМВ) плоскости поляризации света [18]. ЛМОЭ и КМВ были обнаружены в изоструктурных кристаллах  $\text{CoF}_2$  и  $\text{FeF}_2$  [19]. С их помощью были оптическим методом визуализированы 180-градусные, или коллинеарные антиферромагнитные домены [20], впервые наблюдавшиеся в этих же кристаллах несколько раньше с помощью топографического метода, использующего дифракцию поляризованных нейтронов [21].

Во фториде марганца ни ЛМОЭ, ни КМВ не наблюдались. Настоящая работа направлена на выявление ЛМОЭ в этом кристалле. В области прозрачности ожидаемый эффект слишком мал для его измерения стандартным методом. Однако можно было ожидать, что в районах оптических переходов ЛМОЭ может выявить себя в виде нечетных по полю как магнитного линейного двупреломления, так и магнитного линейного дихроизма (МЛД). Обнаружение ЛМОЭ могло бы дать принципиальную воз-

можность наблюдать оптическими методами коллинеарные АФМ домены в  $\text{MnF}_2$ , где они визуализировались лишь с помощью методов нейтронной топографии. Тестом для изучаемых эффектов могут быть характерные для ЛМОЭ свойства — нечетность относительно изменения направления поля на противоположное и нечетность относительно переключения антиферромагнитных состояний ( $\text{AFM}^+$  и  $\text{AFM}^- = I' \cdot \text{AFM}^+$ ), связанных друг с другом операцией инверсии времени  $I'$ . Наиболее отчетливо эффект может проявиться в продольной геометрии эксперимента,  $H \parallel k \parallel C_4$  ( $k$  — волновой вектор), при которой в отсутствие магнитного поля нет ни линейного двупреломления, ни линейного дихроизма.

Неизбежность появления ЛМОЭ в кристалле  $\text{MnF}_2$  при продольной геометрии опыта можно увидеть из следующего рассмотрения. Магнитная точечная группа АФМ кристалла  $4'/\text{mmm}'$  отличается от точечной группы парамагнитного кристалла  $4/\text{mmm}' \cdot I'$  тем, что ее тетрагональная ось является осью симметрии только в сочетании с операцией инверсии времени. Поскольку группа симметрии магнитного поля не содержит операции  $4'$ , то в магнитном поле  $H \parallel C_4$ , согласно симметрийному принципу Кюри–Неймана, тетрагональный кристалл должен понизить свою симметрию до ромбической  $mm'm'$  и стать оптически двухосным. Появление ЛМОЭ обусловливается снятием в магнитном поле энергетического квазивырождения магнитных подрешеток. Элементарная ячейка  $\text{MnF}_2$  содержит два магнитных иона  $\text{Mn}^{2+}(1)$  и  $\text{Mn}^{2+}(2)$ . Ионы фтора, окружающие ионы марганца, образуют искаженные октаэдры с симметрией  $\text{mmm}(D_{2h})$ . Октаэдры узлов  $\text{Mn}^{2+}(1)$  слегка вытянуты вдоль оси  $[110]$ , а октаэдры узлов  $\text{Mn}^{2+}(2)$  вытянуты вдоль оси  $[1\bar{1}0]$ . Можно считать, что узлы  $\text{Mn}^{2+}(1)$  и  $\text{Mn}^{2+}(2)$  образуют две проникающие друг в друга оптически двухосные подсистемы, обладающие двупреломлением в направлении кристаллографической оси  $C_4$ . Так как подсистемы развернуты вокруг  $C_4$  относительно друг друга на угол  $\pi/2$ , то в направлении этой оси их двупреломляющие свойства полностью компенсируются. При температурах ниже температуры Нееля  $T_N$  спиновые моменты магнитных ионов устанавливаются вдоль тетрагональной оси  $C_4$  антипараллельно друг другу. В магнитном поле  $H \parallel C_4$  подсистемы со спинами, направленными по полю, и подсистемы со спинами, направленными против поля, перестают быть эквивалентными и компенсация двупреломляющих свойств нарушается. Появляющиеся в магнитном поле дихроизм и двупреломление должны быть нечетными относительно изменения направления магнитного поля на противоположное и в слабых полях прямо пропорцио-

нальными напряженности поля, а их знаки для антиферромагнитных состояний кристалла  $\text{A}\Phi\text{M}^+$  и  $\text{A}\Phi\text{M}^-$  должны быть разными. Наряду с ожидаемым МЛД в продольной геометрии эксперимента появляется и обычный магнитный циркулярный дихроизм (МЦД), который наблюдался в работах [9,10]. Наличие двух видов дихроизма эквивалентно эллиптическому дихроизму, который всегда можно представить как суперпозицию циркулярного и линейного дихроизмов. МЛД, в отличие от МЦД, нечетен относительно изменения направлений магнитных моментов подрешеток на противоположные.

ЛМОЭ описывается симметричным относительно перестановки первых двух индексов аксиальным  $c$ -тензором  $q_{ija}$ , компоненты которого изменяют знаки под действием операции инверсии времени. Компоненты тензора тождественно обращаются в нуль во всех антиферромагнетиках, магнитная пространственная группа которых содержит антитрансляцию  $\tau \cdot I'$  или антиинверсию  $\bar{I}'$ . Тензор  $q_{ija}$  имеет ту же симметрию, что и тензор, описывающий пьезомагнитный эффект. Матрицы тензора для всех магнитных кристаллов, описывающих шубниковскими группами, приведены в [18]. Для кристалла с симметрией  $4'/mm'$  тензор  $q_{ija}$  имеет только три отличных от нуля компоненты  $q_{yxz} = q_{xzy}$  и  $q_{xyz}$ . При  $H \parallel C_4$  ЛМОЭ описывается добавками к компонентам диэлектрического тензора  $\Delta\epsilon_{xy} = \Delta\epsilon_{yx} = q_{xyz}H$ . Дихроизм линейно поляризованного света, индуцированный полем, определяется мнимой частью тензора  $q_{xyz}$ .

В данной работе сообщается о наблюдении индуцированного магнитным полем нечетного дихроизма линейно поляризованного света в области трех групп полос поглощения кристалла  $\text{MnF}_2$ , обозначаемых в литературе как  $A$ -,  $C$ - и  $D$ -группы. Эти группы сформированы внутриконфигурационными электронными переходами с основного состояния  ${}^6A_{1g}({}^6S_{5/2})$  иона  $\text{Mn}^{2+}$  на расщепленные кристаллическим полем и спин-орбитальным взаимодействием возбужденные состояния:

${}^6A_{1g}({}^6S_{5/2}) - {}^4T_{1g}({}^4G)$  –  $A$ -группа (в районе  $18480 \text{ см}^{-1}$ )

${}^6A_{1g}({}^6S_{5/2}) - {}^4A_{1g}, {}^4E_g, {}^4G$  –  $C$ -группа (в районе  $25300 \text{ см}^{-1}$ )

${}^6A_{1g}({}^6S_{5/2}) - {}^4T_{2g}({}^4D)$  –  $D$ -группа (в районе  $28050 \text{ см}^{-1}$ ).

## Эксперимент и обсуждение

Монокристаллы фторида марганца, из которых приготавливались образцы, были выращены в Институте физических проблем им. П.Л. Капицы. Образцы имели вид прямоугольных параллелепипедов

с основанием около  $2 \times 2 \text{ мм}$  и толщиной  $1,63 \text{ мм}$  (для спектральных измерений в области  $A$ -группы полос) и  $0,19 \text{ мм}$  (для измерений в области  $C$ - и  $D$ -групп). Двойной монохроматор позволял получить спектральное разрешение в спектрах МЛД не хуже чем  $2 \text{ см}^{-1}$ . Измерения проводили с помощью модуляционного метода с использованием пьезооптического модулятора фирмы Jobin Yvon. Частота модуляции поляризации светового пучка равнялась  $18 \text{ кГц}$ . Имелаась возможность поворачивать модулятор вокруг оптической оси установки для того, чтобы установить азимуты осей поляризации пучка света в моменты экстремальных фаз модуляции параллельно заданным ортогональным направлениям в кристалле. Образцы монтировали в капсуле, которую размещали в хладопроводе, находящемся в вакуумированной полости сверхпроводящего соленоида. Температуру образца варьировали от  $6$  до  $100 \text{ K}$  с помощью нагревателя, намотанного на хладопровод, и измеряли с помощью полупроводникового термометра, приклеенного к капсуле с образцом.

Угол между осью  $C_4$  кристалла и направлением светового пучка, а также угол между осью  $C_4$  и осью соленоида контролировали визуально путем наблюдения коноскопических фигур. Ось светового пучка составляла с тетрагональной осью образца угол, меньший  $1^\circ$ . Конус ограниченного диафрагмами светового луча не превышал  $1^\circ$ . Оптическая ось кристалла (она же  $C_4$ ) была отклонена от направления магнитного поля на угол, близкий к  $2^\circ$ . Составленная осью  $C_4$  и вектором  $\mathbf{H}$  плоскость была близка к плоскости  $(110)$ .

Наличие поперечных составляющих магнитного поля  $H_x$  и  $H_y$  позволяло надеяться, что вследствие индуцирования ими продольной намагниченности  $M_z = C_{zxy}H_xH_y$ , чувствительной к ориентации вектора антиферромагнетизма, в образце при охлаждении его в магнитном поле  $H_x, H_y, H_z$  до температур, меньших  $T_N$ , сформируется однородное антиферромагнитное состояние [22]. Контролировать меру однородности антиферромагнитного образца можно было только после обнаружения ЛМОЭ. Как показали последующие эксперименты, в образце действительно создавались антиферромагнитные состояния, близкие к монодоменным  $\text{A}\Phi\text{M}^+$  и  $\text{A}\Phi\text{M}^-$ . Образец нагревали до температуры около  $100 \text{ K}$ , т.е. выше температуры Нееля  $T_N = 67 \text{ K}$ , затем прикладывали магнитное поле ( $H_x \approx 1,5 \text{ кЭ}$ ,  $H_y \approx 1,5 \text{ кЭ}$ ,  $H_z = +50 \text{ кЭ}$  или  $H_z = -50 \text{ кЭ}$ ) и в этом поле образец охлаждали до температуры  $6 \text{ K}$ .

Спектральные измерения дихроизма  $\Delta D(\lambda) = (I_1 - I_2)/(I_1 + I_2)$  проводили при температуре  $6 \text{ K}$  (здесь  $I_1$  и  $I_2$  – интенсивности вышедших из образца световых пучков, которые были поляризо-

ваны вдоль кристаллографических направлений  $[110]$  и  $[1\bar{1}0]$  соответственно при падении света на образец). При измерениях циркулярного дихроизма  $I_1$  и  $I_2$  соответствуют правой и левой циркулярным поляризациям падающих пучков. Спектральное разрешение при измерениях было близко к  $2 \text{ см}^{-1}$ , ошибка определения абсолютных значений энергий фотонов составляла около  $5 \text{ см}^{-1}$ . Приведенные здесь значения энергий оптических переходов и сил осцилляторов взяты как стандарт из работ [8].

Величины МЦД и МЛД пропорциональны расщеплению полос поглощения в магнитном поле. Расщепление экситонной полосы поглощения мало отличается от расщепления полосы поглощения при внутриионном электронном переходе, которое равно

$$\Delta E_{\text{ex}} = 2\mu_B H(g_0 S_0 - g_{\text{ex}} S_{\text{ex}}) = \\ = 2\mu_B H[S_0(g_0 - g_{\text{ex}}) + g_{\text{ex}}].$$

Здесь  $g_0, S_0$  и  $g_{\text{ex}}, S_{\text{ex}} = S_0 - 1$  —  $g$ -факторы и спины основного и возбужденного состояний,  $\mu_B$  — магнетон Бора. Расщепление экситон-магнонной полосы

$$\Delta E_{\text{ex-m}} = 2\mu_B H(g_0 S_0 - g_{\text{ex}} S_{\text{ex}}) - 2\mu_B g_0 H = \\ = 2\mu_B H(g_0 - g_{\text{ex}})S_{\text{ex}}$$

гораздо меньше, так как  $g$ -факторы основного и возбужденных состояний иона  $\text{Mn}^{2+}$  близки между собой. В спектроскопических экспериментах расщепление экситон-магнонных полос не наблюдалось [7,8]. Оно определялось из величины МЦД в полосе [9,10]. Величина дихроизма пропорциональна не только расщеплению полосы, но и ее интенсивности, поэтому магнитные дихроизмы экситонных и экситон-магнонных полос могут быть близки. В экспериментах МЦД экситонной полосы в C-группе был примерно в 3 раза больше, чем МЦД экситон-магнонных спутников [10]. В A-группе МЦД экситон-магнонной полосы было больше, чем МЦД экситонной, а величины дихроизма различались меньше [9]. В наших экспериментах качественное соотношение величин МЦД в экситонных и экситон-магнонных полосах этих групп было таким же, хотя количественное различие для полос в C-группе было меньшим. Спектры измеренного в этой работе МЛД отражали структуру групп полос, но соотношение между вкладами экситонных и экситон-магнонных переходов было иным.

На рис. 1 показаны результаты измерения МЛД в C-группе при разных состояниях образца. Кривые 1 и 2 получены в поле  $H_z = +61 \text{ кЭ}$  при прохождении света через различные участки образца, который не подвергался термомагнитной обработке, и в нем существовали коллинеарные АФМ домены. Кривая 3 получена после того, как в образце создано монодоменное  $\text{AFM}^+$  состояние.

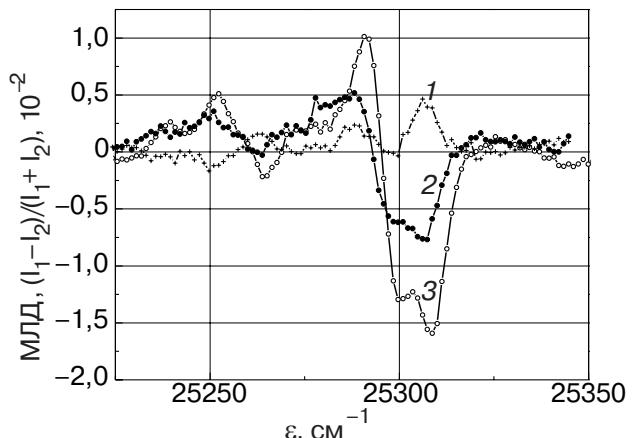


Рис. 1. Спектры магнитного линейного дихроизма  $\text{MnF}_2$  в области оптического перехода  ${}^6A_{1g}({}^6S_{5/2})-{}^4E_g, {}^4A_{1g}({}^4G)$  (C-группа полос), полученные при напряженности поля  $H_z = +61 \text{ кЭ}$  при различных состояниях образца. Кривые 1 и 2 получены для разных участков образца, образец не подвергался термомагнитной обработке, и в нем существовали коллинеарные АФМ домены. Кривая 3 получена после того, как в образце создано монодоменное  $\text{AFM}^+$  состояние.

в одном участке (кривая 1) МЛД ближе к нулю: свет проходит через домены обоих АФМ состояний, и путь света в домене  $\text{AFM}^-$  несколько больше, чем путь в домене  $\text{AFM}^+$ . В другом участке (кривая 2) преобладает домен  $\text{AFM}^+$ . Кривая 3 получена в таком же поле, но в образце было предварительно приготовлено однородное состояние  $\text{AFM}^+$ .

На рис. 2 приведены спектры МЛД этой же группы, полученные в монодоменном образце в магнитных полях разной напряженности. Обращает на себя внимание то, что в отсутствие поля линейный дихроизм фактически исчезает в области одних по-

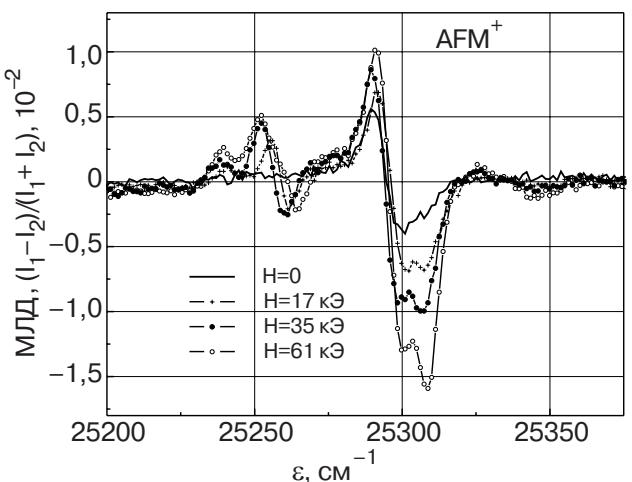


Рис. 2. Спектры магнитного линейного дихроизма  $\text{MnF}_2$  в области C-группы полос, измеренные при разных значениях напряженности магнитного поля. Образец находится в  $\text{AFM}^+$  состоянии.

лось поглощения, но остается хорошо заметным в области других полос. Причину такого поведения ЛД можно связать с различной чувствительностью оптических переходов к отклонению от идеальной ориентации образца  $C_4||k||H$  и к наличию в нем макроскопических деформаций. Изменения величины дихроизма в экстремумах спектра при увеличении поля близки к линейным.

На рис. 3 показаны спектры МЛД в области поглощения всех трех групп. Перед измерениями проводили соответствующую термомагнитную обработку образцов для приготовления в них однородного АФМ состояния. Спектры МЛД и спектр поглощения кристалла MnF<sub>2</sub> в районе  $A$ -группы полос, сформированных так называемыми  $\sigma_1$  и  $\sigma_2$  магнонными спутниками электронных магнитодипольных переходов  ${}^6A_{1g}({}^6S_{5/2}) - {}^4T_{1g}({}^4G)$ , приведены на рис. 3, а. Электронные переходы (в  $\alpha$ -спектре они не видны) происходят при поглощении фотонов с энергиями 18418 см<sup>-1</sup> и 18435 см<sup>-1</sup> и имеют близкие силы осцилляторов ( $3,4 \cdot 10^{-11}$  и  $3,0 \cdot 10^{-11}$ ). Электроны с почти нерасщепленного основного состояния  ${}^6A_{1g}(t_{2g}^3 e_g^2)$  иона марганца переходят на орбитальные компоненты  $B_2$  и  $B_3$  возбужденного состояния  ${}^4T_{1g}({}^4G)$ , расщепленного спин-орбитальным взаимодействием и орторомбическим кристаллическим полем. Электронная конфигурация возбужденных состояний близка к  $t_{2g}^4 e_g^1$ . Стрелками отмечены положения максимумов полос их электродипольных спутников (18476 и 18484 см<sup>-1</sup>). Эти полосы поглощения (их силы осцилляторов равны  $1 \cdot 10^{-9}$  и  $1,4 \cdot 10^{-9}$ ) обусловлены одновременным возбуждением экситона и магнона, которые распространяются по разным подрешеткам в противоположных направлениях вдоль кристаллографических осей [001] и [111]. При этом поглощении света возбуждаются преимущественно экситоны и магноны с максимальными импульсами, которым в зоне Бриллюэна соответствуют точки  $Z$  и  $A$ .

Наибольшей величины ( $2,5 \cdot 10^{-2}$  при напряженности поля  $H_z = 50$  кЭ) индуцированный линейный дихроизм в этой группе достигает в районе первого экситон-магнонного перехода. Знак индуцированного поля дихроизма изменяется при изменении направления магнитного поля на противоположное, но при сохранении направления АФМ вектора. Это свойство и продемонстрировано на рис. 3, а. Изменение знака МЛД происходит и при изменении антиферромагнитного состояния с АФМ<sup>+</sup> на АФМ<sup>-</sup>. Пerekлючение АФМ состояний происходило, как и ожидалось, после нагревания образца до температуры выше температуры Нееля и последующего его охлаждения в магнитном поле. Приготовленное АФМ состояние образца как метастабильное сохранялось в

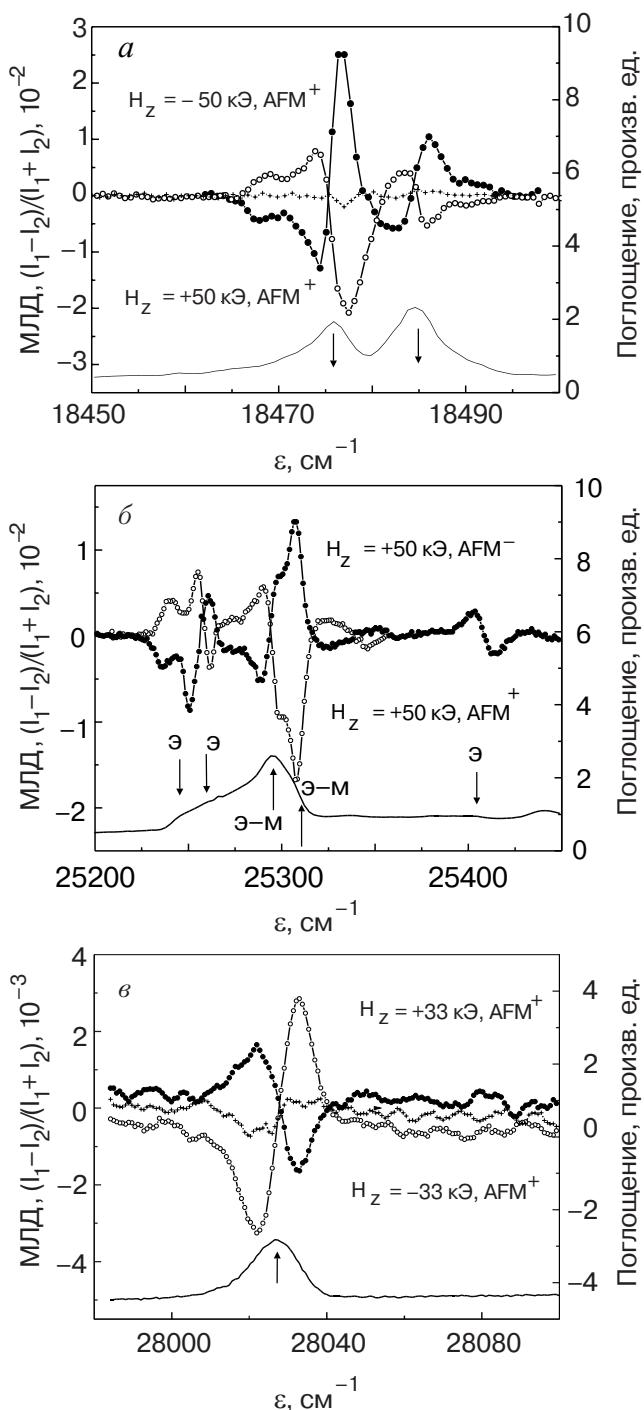


Рис. 3. Спектры магнитного линейного дихроизма, индуцированного продольным магнитным полем  $H||C_4||k$  в кристалле MnF<sub>2</sub> в области оптических переходов:  ${}^6A_{1g}({}^6S_{5/2}) - {}^4T_{1g}({}^4G)$  ( $A$ -группа полос) (а);  ${}^6A_{1g}({}^6S_{5/2}) - {}^4E_g, {}^4A_{1g}({}^4G)$  ( $C$ -группа полос) (б);  ${}^6A_{1g}({}^6S_{5/2}) - {}^4T_{2g}({}^4D)$  ( $D$ -группа полос) (в). В нижних частях рисунков представлены спектры поглощения. Перед измерениями в образцах создавалось однородное АФМ состояние. Зависимости с точками в виде крестиков получены при  $H = 0$ .

противоположно направленном поле напряженностью до 61 кЭ (максимальная напряженность поля в эксперименте), если температура образца была дос-

таточно низкой ( $T = 6$  К). Об этом свидетельствует почти полная идентичность (с точностью до знака) регистрируемых спектров МЛД для состояний АФМ<sup>+</sup> и АФМ<sup>-</sup> в одном и том же магнитном поле (см. рис. 3,б). Если же температура образца была достаточно высокой (25–30 К), то в используемой нами геометрии при увеличении поля происходило частичное переключение АФМ состояния — образовывались домены другого, перемагниченного (time-reversed) АФМ состояния и величина магнитного дихроизма уменьшалась.

На рис. 3,б приведены спектры МЛД и спектр поглощения С-группы полос, образованной переходами  ${}^6A_{1g}({}^6S_{5/2}) - {}^4E_g$ ,  ${}^4A_{1g}({}^4G)$ . Электронная конфигурация возбужденных электронных состояний близка к  $t_{2g}^3e_g^2$ . Отмечены энергии двух электронных (экспоненциальных) магнитодипольных переходов  $M_1$  и  $M_2$  (25245 и 25260 см<sup>-1</sup>) с силами осцилляторов  $0,5 \cdot 10^{-8}$  и  $0,9 \cdot 10^{-8}$  и их магнитных спутников (25295 см<sup>-1</sup> и 25311 см<sup>-1</sup>) с силами осцилляторов  $0,3 \cdot 10^{-7}$  и  $0,9 \cdot 10^{-7}$ . Отмечен переход  $M_3$  при 25404 см<sup>-1</sup>, который, по-видимому, также является чисто электронным [см. 8 и 10]. Возбужденные электронные состояния  $M_1$  и  $M_2$  являются, согласно [8], орбитальными компонентами состояния  ${}^4E_g$ , расщепленного  $z$ -составляющей орторомбического кристаллического поля, а состояние  $M_3$  происходит из  ${}^4A_g$  [10]. Наведенный полем дихроизм отчетливо виден не только в области сильных электродипольных экспоненциальных магнитных спутников, но и в области слабых магнитодипольных переходов, имеющих больший  $g$ -фактор. Отметим, что в  $\alpha$ -спектре поглощения эти переходы видны гораздо слабее, чем в спектрах дихроизма. Наибольшей величины МЛД достигает при энергии 25310 см<sup>-1</sup> в районе второй экспоненциальной полосы, где он близок к  $1,7 \cdot 10^{-2}$  в магнитном поле  $H = 50$  кЭ.

Спектральные зависимости МЛД в районе D-группы полос показаны на рис. 3,в. Эта часть спектра кристалла MnF<sub>2</sub> сформирована оптическими переходами между состояниями  ${}^6A_{1g}({}^6S_{5/2})$  и  ${}^4T_{2g}({}^4D)$ . Доля конфигурации  $t_{2g}^3e_g^2$  в конфигурациях возбужденных состояний иона значительна и близка к 0,83. Полоса поглощения с максимумом вблизи 28026 см<sup>-1</sup> связывается с экспоненциальным переходом [8]. Сила осциллятора этого перехода в  $\sigma$ -спектре составляет  $0,17 \cdot 10^{-7}$ . Нечетный МЛД был зарегистрирован в области этой полосы. На рисунке приведены спектры МЛД, полученные для АФМ состояния образца в магнитных полях противоположных направлений. Зависимости демонстрируют изменение знака МЛД для одного и того же АФМ состояния при изменении направления магнитного поля на противоположное. Максимальное значение

дихроизма в расчете на напряженность поля 50 кЭ в этой полосе близко к  $3,5 \cdot 10^{-3}$ . Отметим, что амплитуда аномалий кривых заметно отличается. Различие, скорее всего, связано не с частичным переключением АФМ<sup>+</sup> состояния и образованием доменов АФМ<sup>-</sup>, а с невыполнением в высокоэнергетической области спектра более жестких требований к допустимым отклонениям пучка света от тетрагональной оси, к величине допустимых внутренних макроскопических напряжений в образце. В спектрах С-группы также наблюдается подобная асимметрия, но она проявляется слабее.

Приведенные свойства МЛД — нечетность по отношению к изменению направления поля на противоположное и переключению АФМ состояний свидетельствуют о том, что наблюдаемый дихроизм действительно является проявлением линейного магнитооптического эффекта.

Величины МЛД во всех группах полос поглощения того же порядка, что и величина обычного магнитного циркулярного дихроизма. На рис. 4 приведены спектры МЦД в области A-, C-, и D-групп полос, полученные нами. Вид спектров МЦД в районе A- и C-групп близок к виду спектров МЦД, измеренных ранее в работах [9] (A-группа) и [10] (C-группа), но различия в деталях значительны. Дисперсионные кривые МЛД и МЦД близки для A- и D-групп, но заметно различаются для C-группы. В A-группе как в спектре МЛД, так и в спектре МЦД, кроме особенностей, соответствующих экспоненциальному переходам, видна особенность при 18465–18470 см<sup>-1</sup>, где находится предсказанный и обнаруженный в [6] магнитодипольный экспоненциальный переход. Вблизи 18456–18457 см<sup>-1</sup> в спектре МЦД (но не в спектре МЛД) видна особенность, которая наблюдалась и в [9].

МЛД в экспоненциальных полосах заметно больше МЦД, поэтому значения  $g$ -факторов для экспоненциальных спутников и для магнитных, которые были определены исходя из величин МЦД соответствующих полос поглощения [9,10], необходимо скорректировать с учетом МЛД. Вопрос о спонтанном магнитном циркулярном (и линейном) дихроизме, который обсуждается в работах [9,11], на наш взгляд, требует дополнительного тщательного экспериментального изучения.

## Заключение

В антиферромагнитном кристалле фторида марганца в полосах экспоненциального и экспоненциального поглощения наблюдался продольный магнитный линейный дихроизм — наведенное магнитным полем различное поглощение линейно поляризованного света, распространяющегося вдоль вектора магнитного поля параллельно тетрагональной оси кристал-

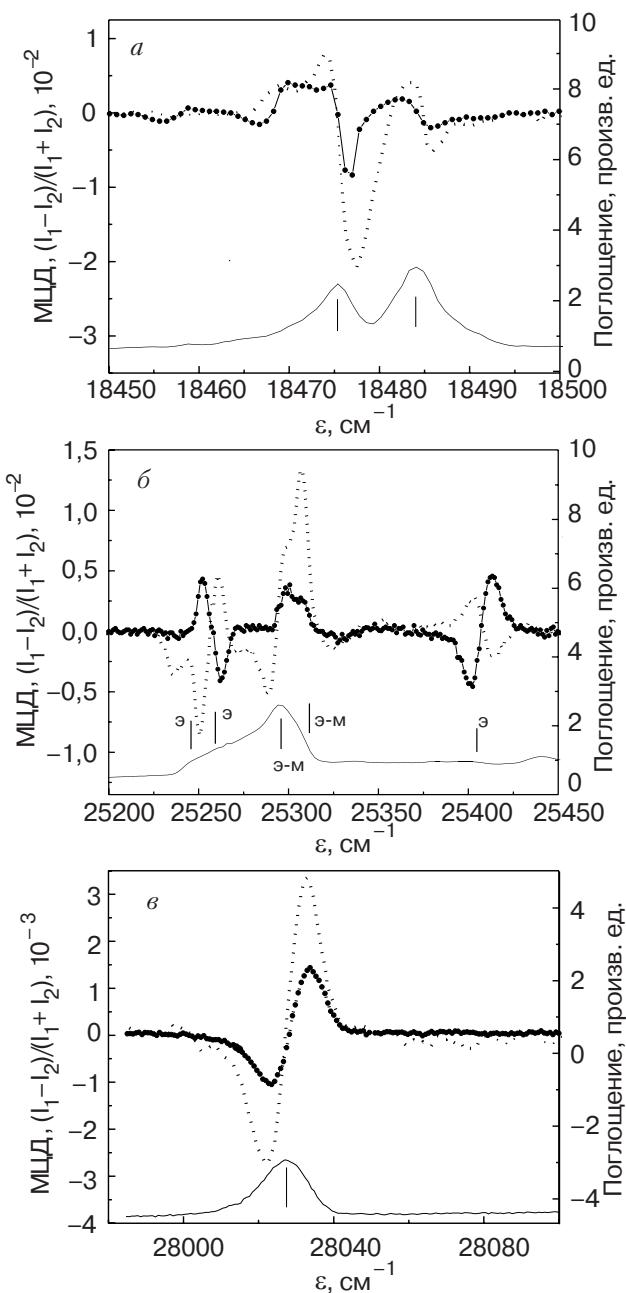


Рис. 4. Спектры магнитного циркулярного дихроизма (МЦД), индуцированного продольным магнитным полем в области оптических переходов. Кривые с заполненными точками — МЦД, пунктирные — МЛД:  ${}^6A_{1g}({}^6S_{5/2}) - {}^{-4}T_{1g}({}^4G)$  (*A*-группа),  $H = 50$  кЭ (а);  ${}^6A_{1g}({}^6S_{5/2}) - {}^4E_g$ ,  ${}^4A_{1g}({}^4G)$  (*C*-группа),  $H = 50$  кЭ (б);  ${}^6A_{1g}({}^6S_{5/2}) - {}^{-4}T_{2g}({}^4D)$  (*D*-группа),  $H = 33$  кЭ (в). В нижних частях рисунков представлены спектры поглощения.

ла. Обнаружено, что магнитный линейный дихроизм является нечетным по отношению к изменению направления магнитного поля на противоположное и к переключению антиферромагнитного состояния — изменению направлений магнитных моментов подрешеток антиферромагнитного кристалла на противоположные. Наибольший МЛД, близкий к  $0,5 \cdot 10^{-3}$  кЭ $^{-1}$ , наблюдался в области первого экситон-магнон-

ного спутника в *A*-группе полос спектра поглощения. Величина эффекта представляется достаточной для визуального наблюдения АФМ доменов в кристалле  $\text{MnF}_2$  с помощью современной техники оптической визуализации слабоконтрастных объектов с применением методов спектроскопии высокого разрешения.

Очевидно, что спектры МЛД и МЦД дополняют друг друга и могут быть полезными для определения волновых функций возбужденных состояний и выявления тонких различий в поведении экситонов и магнонов в магнитном поле.

1. R.A. Erickson, *Phys. Rev.* **90**, 779 (1953); A.S. Borovik-Romanov and H. Grimmer, *Magnetic Properties*, in: *International Tables for Crystallography*, A. Authier (ed.) *Physical Properties of Crystals*, **D**, 105 (2003).
2. Jimia Zhao, Andrea V. Bragas, David J. Lockwood, and Roberto Merlin, *LAArXiv cond-matter/0311329* (2003).
3. Y. Shapira, S. Foner, and A. Misetich, *Phys. Rev. Lett.* **23**, 98 (1969); R.L. Melcher, *Phys. Rev.* **2**, 733 (1970); К.Л. Дудко, В.В. Еременко, Л.М. Семененко, *ФНТ* **1**, 68 (1975).
4. А.С. Боровик-Романов, Н.М. Крейнес, А.А. Панков, М.А. Талалаев, *ЖЭТФ* **64**, 782 (1974); I.R. Jahn and H. Dachs, *Phys. Status Solidi* **B57**, 681 (1973).
5. Н.Ф. Харченко, В.В. Еременко, *ФТТ* **9**, 1655 (1967).
6. R.L. Greene, D.D. Sell, W.M. Yen, A.L. Schawlow, and R.M. White, *Phys. Rev. Lett.* **15**, 656 (1965).
7. V.V. Eremenko and Yu.A. Popkov, *Phys. Status Solidi* **12**, 627 (1965); Philip G. Russell, Donald S. McClure, and J.W. Stout, *Phys. Rev. Lett.* **16**, 176 (1966); D.D. Sell, R.L. Greene, and Robert M. White, *Phys. Rev.* **158**, 489 (1967); D.D. Sell, *J. Appl. Phys.* **39**, 1030 (1968); T. Tsuboi and P. Ahmet, *Phys. Rev.* **B45**, 468 (1992).
8. R.S. Meltzer and L.L. Lohr, *J. Chem. Phys.* **49**, 541 (1968); R.S. Meltzer, M. Lowe, and D.S. McClure, *Phys. Rev.* **180**, 561 (1969).
9. Y.H. Wong, F.L. Scarpace, C.D. Pfeifer, and W.M. Yen, *Phys. Rev.* **B9**, 3086 (1974); P.W. Seltzer, W.C. Egbert, D.L. Huber, and W.M. Yen, *Phys. Rev.* **B12**, 961 (1975).
10. R.W. Schwartz, J.A. Spencer, W.C. Yeakel, P.N. Schatz, and W.G. Maisch, *J. Chem. Phys.* **60**, 2598 (1974).
11. D.J. Lockwood, R.M. White, and W.M. Yen, *Phys. Rev.* **B69**, 174413 (2004).
12. В.В. Еременко, *Введение в оптическую спектроскопию магнетиков*, Киев, Наукова Думка (1975).
13. P.A. Fleury, S.P.S. Porto, R. Loudon, *Phys. Rev. Lett.* **18**, 658 (1967); D.J. Lockwood and M. Cottam, *Phys. Rev.* **B35**, 1973 (1987).
14. Michael Cottam and David J. Lockwood, *Light Scattering in Magnetic Solids*, A Wiley Interscience Publication John Wiley and Sons, N.-Y. (1986).

15. W. Parkinson and E.W. Williams, *J. Chem. Phys.* **18**, 534 (1950).
16. H. Mariette, F. Kany, and J.M. Hartman, *Appl. Surf. Sci.* **123/124**, 710 (1998); N.S. Sokolov, Y. Takeda, A.G. Banschikov, J. Harada, K. Inaba, H. Ofuchi, M. Tabuchi and N.L. Yakovlev, *Appl. Surf. Sci.* **162/163**, 469 (2000).
17. J. Nogues, I.K. Schuller, *J. Magn. Magn. Mater.* **192**, 203 (1999), Zhi-Pan Li, O. Petracic, J. Eisenmenger, and I.K. Schuller, *LAArXiv cond-matter/0501158* (2005).
18. V.V. Eremenko, N.F. Kharchenko, Yu.G. Litvinenko, and V.M. Naumenko, *Magneto-Optics and Spectroscopy of Antiferromagnets*, Springer-Verlag, New-York (1992); N.F. Kharchenko, *Ferroelectrics* **162**, 173 (1994).
19. N.F. Kharchenko, V.V. Eremenko, and L.I. Belyi, *JETF Lett.* **28**, 325 (1979); N.F. Kharchenko, A.V. Bibik, and V.V. Eremenko, *JETF Lett.* **42**, 553 (1985).
20. N.F. Kharchenko, V.V. Eremenko, and L.I. Belyi, *JETF Lett.* **29**, 392 (1979); V.V. Eremenko, N.F. Kharchenko, and L.I. Belyi, *J. App. Phys.* **50**, 7751 (1979).
21. M. Schlenker and J. Baruchel, *J. Appl. Phys.* **49**, 1996 (1978); M. Schlenker, J. Baruchel, and B. Barbara, *J. Magn. Magn. Mater.* **15-18**, (1980).
22. Н.Ф. Харченко, А.В. Бибик, С.В. Петров, *ФНТ* **15**, 1280 (1989).

Odd magnetic dichroism of linearly polarized light  
in the antiferromagnetic  $\text{MnF}_2$

N.F. Kharchenko, O.V. Miloslavskaya,  
and A.A. Milner

In the two-sublattice tetragonal antiferromagnetic crystal of manganese fluoride the magnetic field-induced dichroism of linearly polarized light was revealed in geometry  $H||C_4||Z$  with light propagating also along tetragonal crystal axis. The observed dichroism is odd to the sign of z-projection of magnetic field and to reversion of the sublattice magnetic moments of antiferromagnetic. The effect can be used for optical visualization of 180-degree (time-reversed) antiferromagnetic domains in  $\text{MnF}_2$ .