

УДК 539.21;537.632

## НОВЫЕ T-НЕЧЕТНЫЕ ОПТИЧЕСКИЕ ЭФФЕКТЫ В АНТИФЕРРОМАГНЕТИКАХ

А. К. Звездин

*Рассмотрены T-нечетные, т.е. изменяющие знак на обратный при обращении времени, оптические эффекты в антиферромагнитных кристаллах, магнитная структура которых допускает существование тороидного момента, изменяющего знак при отражении времени и инверсии пространства.*

Проблемы, связанные с нарушенной пространственной четностью и временной симметрией, привлекают внимание специалистов из разных разделов физики. Из недавних результатов отметим обнаружение анапольного момента у ядра атома  $^{133}\text{Ce}$  [1]. Напомним, что представление об анапольном моменте было введено в физику в связи с проблемой нарушения четности в физике слабых взаимодействий Я. Б. Зельдовичем в 1957 году [2]. Аналогичные объекты – тороидальные моменты – были исследованы в [3 – 6, 9 – 13] применительно к задачам электродинамики, физики твердого тела и химии. В последние годы выполнены теоретические и экспериментальные исследования так называемых спиновых тороинов [14, 15]. Последние представляют собой магнитоупорядоченные кристаллы, магнитная структура которых описывается при помощи вектора  $T$ , изменяющего знак при отражении времени и инверсии пространства. Другими словами, магнитная структура описывается неприводимым представлением  $\Gamma_4$  пространственно-временной группы [16, 8].

Наличие тороидного момента в соответствующем классе антиферромагнетиков может рассматриваться как характерный признак этого класса, поэтому их и называют спиновыми тороиками. Представляется интересным рассмотреть характерные физические эффекты, обязанные своим существованием наличию в структуре тороидного момента  $T$ . В настоящей работе рассматриваются некоторые именно такие T-нечетные оптические эффекты.

Общепринятый метод описания антиферромагнетизма основан на использовании понятия о "векторе антиферромагнетизма  $\mathbf{L}$ ". Такой подход, по мнению автора, безупречен, однако следует помнить, что "вектор антиферромагнетизма  $\mathbf{L}$ " не является вектором в том смысле, как математика определяет векторы. "Вектор  $\mathbf{L}$ " характеризует распределение спиновой плотности в элементарной ячейке кристалла и для его однозначного использования нужно для каждого кристалла задать свои правила преобразования  $\mathbf{L}$  по действиям операций пространственной группы кристалла. Существует другой метод описания распределения спиновой плотности (или плотности тока) – метод мультипольных разложений, в котором спиновая плотность описывается при помощи вполне универсальных в математическом смысле векторных и тензорных величин, определение которых не зависит от симметрии того или иного кристалла. Известно, что в мультипольном разложении статической плотности тока или спиновой плотности кристалла после усреднения по физически малому объему возникает бесконечный ряд мультиполей, который можно разделить на два семейства: магнитное и тороидное [3, 4]. Как правило, для макроскопического описания кристалла бывает важным знание лишь низших членов мультипольного разложения. Поэтому мы ограничимся описанием кристалла, учитывая лишь низшие члены каждого из этих семейств, а именно, магнитный ( $M$ ) и тороидный ( $T$ ) моменты, которые определяются с помощью известных формул

$$\mathbf{M} = \frac{1}{2c} \int [\mathbf{r}\mathbf{j}(r)]dV, \quad (1)$$

$$\mathbf{T} = \frac{1}{10c} \int (\mathbf{r}(\mathbf{r}\mathbf{j}) - 2r^2\mathbf{j})dV, \quad (2)$$

где  $\mathbf{j}(\mathbf{r})$  – плотность тока:

$$\mathbf{j}(\mathbf{r}) = cg\mu_B[\vec{\nabla}, S(\mathbf{r})], \quad (3)$$

$S(\mathbf{r})$  – спиновая плотность,  $c$  – скорость света,  $g$  –  $g$ -фактор электрона,  $\mu_B$  – магнетон Бора; интегрирование в (1), (2) ведется по элементарной ячейке.

Заметим, что и магнитные и тороидные мультиполи дают вклад в векторный потенциал  $\mathbf{A}(\mathbf{r})$ , однако в магнитном поле вне образца, после взятия операции ротора  $\mathbf{B} = \text{rot}\mathbf{A}$ , тороидная составляющая отсутствует. Подставляя (3) в формулы (1), (2), получаем выражения для магнитного и тороидного моментов элементарной ячейки кристалла [10]

$$M = 2\mu_B \sum_{\alpha} S_{\alpha}, \quad (4)$$

$$T = \frac{\mu_B}{2} \sum_{\alpha} [\mathbf{r}_{\alpha} S_{\alpha}], \quad (5)$$

где  $S_\alpha$  и  $r_\alpha$  – спиновый момент и радиус-вектор иона  $\alpha$  в элементарной ячейке кристалла, отсчитываемые от центра элементарной ячейки, и суммирование ведется по всем ионам элементарной ячейки. Для полноты описания нужно было бы ввести также квадрупольный тороидный момент

$$D_{ij} = \frac{\mu_B}{2} \sum_{\alpha} (r_{\alpha i} S_{\alpha j} + r_{\alpha j} S_{\alpha i}), \quad (6)$$

который в принципе того же порядка, что и  $T$ , но здесь мы не будем акцентировать внимание на этой величине, поскольку наша цель – выявить новые эффекты, связанные с вектором  $T$ .

По мнению автора, метод мультиполей не следует рассматривать как альтернативу методу, основанному на "векторе  $L$ ". Лучше говорить здесь о дополнении такого описания, так как мультиполи лишь акцентируют характерные признаки того или иного антиферромагнетика.

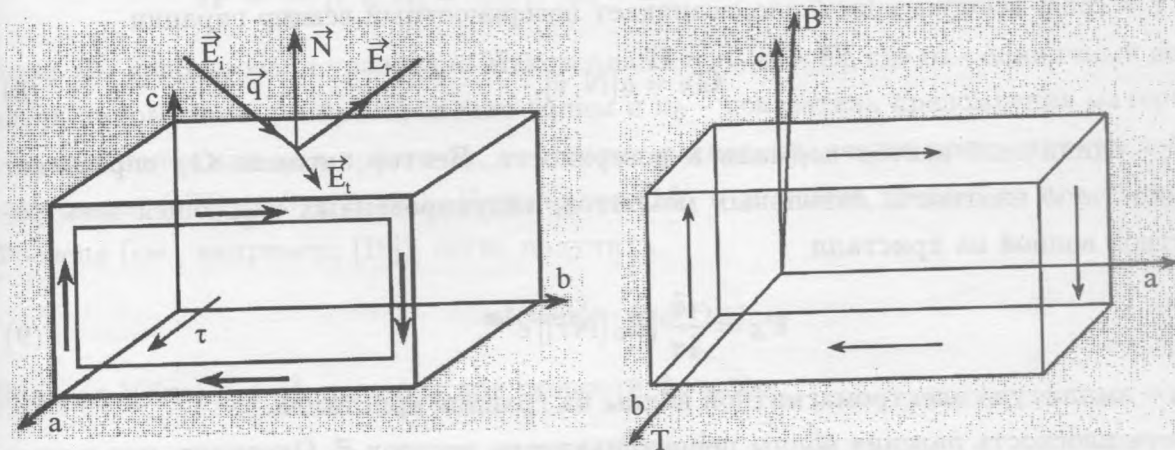


Рис. 1. Кристалл, обладающий плотностью тороидного момента  $\vec{\tau} = (T, 0, 0)$  (схематически). Аналогичной структурой обладает соединение  $Ga_{1+x}Fe_{1-x}O_3$ .

Рис. 2. Индуцированный магнитным полем тороидный момент в  $Cr_2O_3$  (схематически). Тороидный момент в  $Cr_2O_3$  возникает в поле  $B \geq 5T$ , направленном под углом порядка  $5^\circ$  к оси  $c$  [10].

Перейдем к рассмотрению оптических эффектов, связанных с наличием в кристалле спинового тороидного момента. На рис. 1 и 2 схематически изображены кристаллы, обладающие плотностью тороидного момента  $\tau$ . Физически наличие плотности тороидного момента проявляется в возникновении поверхностного слоя, охватывающего

тороидный момент, в котором возникает поверхностное магнитное поле. Из рис. 1 и 2 качественно очевидна возможность двух типов новых Т-нечетных эффектов в оптике. К первому из них относятся поверхностные эффекты Керра (меридиональный и экваториальный), ко второму – зависимость фазовой скорости фотонов, распространяющихся внутри кристалла, от направления их движения относительно тороидного момента (точнее от косинуса угла между волновым вектором и тороидным моментом). Этот эффект относится к типу невзаимных эффектов.

Поверхностные магнитооптические эффекты могут в данном случае быть характеризованы следующим образом: согласно симметрии, вклад тороидного момента в величину вектора гирации материала, в случае когда его плотность неоднородна, можно представить как

$$\mathbf{G} = a[\vec{\nabla}\vec{\tau}], \quad (7)$$

где  $a$  – константа материала; в общем случае эта величина является полярным тензором второго ранга, вид которого определяется конкретной симметрией кристалла. В случае, когда  $\vec{\tau} = \text{const}$  всюду в кристалле, возникает поверхностный вектор гирации

$$\mathbf{G}_S = a[\mathbf{N}, \vec{\tau}], \quad (8)$$

где  $\mathbf{N}$  – единичный вектор нормали к поверхности. Вектор гирации  $\mathbf{G}_S$  определяет поверхностную плотность дипольных моментов, индуцированных падающей электромагнитной волной на кристалл

$$\mathbf{P}_S = \frac{i\tilde{a}}{4\pi} [\mathbf{E}_0 [\mathbf{N}\vec{\tau}]] e^{i\omega t}, \quad (9)$$

где  $\mathbf{E}_0$  – амплитуда электромагнитной волны на границе кристалла.

Пусть плоскость падения волны перпендикулярна вектору  $\vec{\tau}$ . Очевидно, что в этом случае учет  $\mathbf{P}_S(t)$  в уравнении Максвелла приводит к дополнительному повороту плоскости поляризации и эллиптичности отраженной и преломленной волн. Проще всего в этом убедиться, если предположить, что падающая плоская волна имеет  $s$ -поляризацию (т.е.  $\mathbf{E}_0 \perp \mathbf{N}$ ). Тогда  $\mathbf{P}_S = ia/4\pi(E_0\tau)\mathbf{N}e^{i\omega t}$ , что приводит к возникновению  $p$ -компоненты (т.е. к повороту плоскости поляризации) в отраженной и преломленной волнах. Величину дополнительного ("поверхностного") угла вращения можно оценить, если принять во внимание, что оно создается практически поверхностным слоем, толщина которого порядка одного монослоя, т.е. порядка 0.1 – 0.2 нм. Полагая, что типичное значение угла фарадеевского вращения в магнетике порядка  $10^3 - 10^6$  град/см (см., например, [19]), получим для амплитуды поверхностного вращения величину



$\sim 10^{-5} - 10^{-2}$  град. Этот эффект естественно обозначить как поверхностный меридиональный эффект Керра. В другой геометрии, когда плоскость падения волны содержит в себе вектор  $\vec{\tau}$ , возникает поверхностный экваториальный эффект Керра, который проявляется в изменении интенсивности отраженной волны и также является  $T$ -нечетным.

В общем случае, для расчета поверхностных эффектов Керра нужно изменить максвелловские граничные условия, учитывая в них (9). Однако, в линейном приближении по  $P_S$  (что является достаточным в большинстве случаев), детальный анализ поверхностных эффектов Керра и их зависимости от  $\mathbf{N}$ ,  $\mathbf{E}_0$  и  $\vec{\tau}$  может быть произведен при помощи функций Грина уравнения для кристалла и окружающего пространства (см., например, [17]).

Невзаимный оптический эффект. Пусть  $\mathbf{H}(t)$  есть магнитное поле электромагнитной волны, распространяющейся в кристалле. Это поле индуцирует объемную плотность дипольного момента

$$\delta \mathbf{P} = \frac{b}{4\pi} [\vec{\tau} \times \mathbf{H}] = \frac{bn_0}{4\pi} [\vec{\tau} [\mathbf{m} \times \mathbf{E}]] = \frac{bn_0}{4\pi} (\mathbf{m}(\vec{\tau}\mathbf{E}) - \mathbf{E}(\mathbf{m}\vec{\tau})). \quad (10)$$

Здесь мы использовали уравнение Максвелла  $\mathbf{H} = n_0[\mathbf{m} \times \mathbf{E}]$ , где  $\mathbf{m}$  – единичный вектор вдоль направления распространения волны и  $n_0$  – показатель преломления материала. Мы предположили для простоты, что волна распространяется вдоль оптической оси кристалла,  $(\vec{\tau}\mathbf{E}) = 0$  и  $\mu = 1$ . Подставляя (10) в волновое уравнение и в уравнение Френеля (см., например, [19]), легко получить

$$n^2 = n_0^2 - bn_0(\vec{\tau}\mathbf{m}). \quad (11)$$

Полагая  $b(\vec{\tau}\mathbf{m}) \ll n_0^2$ , получим для скорости фотонов

$$v(\alpha) = \frac{c}{n} = \frac{c}{n_0} \left( 1 + \frac{b\tau}{2n_0} \cos \alpha \right), \quad (12)$$

где  $\alpha$  – угол между  $\vec{\tau}$  и  $\mathbf{m}$ , что и представляет собой искомый невзаимный эффект. Относительная величина невзаимного эффекта –  $(b\tau/n_0)$  имеет такой же порядок, как и характерная величина магнитного двупреломления в антиферромагнетиках, т.е.  $10^{-4} - 10^{-2}$ . Невзаимный эффект (12) следует отнести к эффектам типа линейного гиротропного двулучепреломления [20]. Новым здесь является его проявление в spin-flor фазе классического магнитоэлектрика  $Cr_2O_3$  и непосредственная связь с тороидным моментом. Следует подчеркнуть, что формулы (9), (12) лишь определяют влияние тороидного эффекта в соответствующих эффектах. Для количественного описания последних нужно учитывать также квадрупольный тороидный момент (см. выше).

Следует заметить, что "обычный" эффект Фарадея также является взаимным  $T$ -нечетным эффектом. Различие между эффектом Фарадея и взаимным эффектом, рассмотренным в этом параграфе, заключается в том, что в первом речь идет о циркулярном двулучепреломлении, т.е. о различии фазовых скоростей право- и левополяризованных циркулярных волн, распространяющихся вдоль вектора намагниченности (которое, в конечном счете, проявляется как вращение плоскости поляризации линейно поляризованной волны), в то время как во втором речь идет о зависимости фазовой скорости линейно поляризованной волны от направления ее распространения относительно  $\vec{\tau}$ -вектора.

Согласно теории симметрии, тороидный момент может существовать в антиферромагнетиках, принадлежащих 31 классам магнитной симметрии [8, 10].

К настоящему времени тороидное спиновое упорядочение экспериментально обнаружено в  $Ga_{1.15}Fe_{0.85}O_3$  [14] и в spin-флор фазе  $Cr_2O_3$  [15], поэтому целесообразно проанализировать рассмотренные выше эффекты применительно к этим материалам.

Кристаллы  $Ga_{1.15}Fe_{0.85}O_3$  принадлежат к ромбическому классу  $m2m$ . В них, согласно [14],  $\mathbf{T} = (T_1, 0, 0)$ , где  $T_1 = 24.155\mu_B \text{ \AA}$  на элементарную ячейку. Соединение  $Ga_{1.15}Fe_{0.85}O_3$  является ферромагнетиком:  $\mathbf{M} = (0, 0, M_c)$ , где  $M_c = 3.84\mu_B$  на элементарную ячейку. В данном случае наличие  $M$  мешает наблюдению поверхностных эффектов Керра, так как дает объемный вклад в магнитооптические эффекты, однако из рис. 1 видно, что нетрудно отделить эти эффекты друг от друга, комбинируя векторы  $\mathbf{N}$ ,  $\mathbf{M}$  и волновой вектор  $\mathbf{q}$  падающей волны. Кроме того, для уменьшения влияния объема можно "работать" в полосе поглощения материала, где электромагнитная волна слабо проникает в объем кристалла. Что касается взаимного эффекта, то его геометрия ясна из рис. 1. Наличие магнитного момента в объеме кристалла, очевидно, не влияет на различие скоростей фотонов, распространяющихся вдоль и против тороидного момента.

В  $Cr_2O_3$  тороидный момент возникает в spin-флор фазе во внешнем магнитном поле  $B \gtrsim 6T$  [15]. На рис. 2 изображена характерная геометрия эксперимента и ориентация индуцированного тороидного момента:  $\mathbf{T} = (0, T, 0)$ . Геометрия оптических экспериментов здесь практически не отличается от таковой в случае  $Ga_{1.15}Fe_{0.85}O_3$ . Объемный магнитный индуцированный момент, пропорциональный внешнему магнитному полю, не должен мешать наблюдению обсуждаемых эффектов, так как его вклад (если таковой существует) может быть легко отделен от тороидных эффектов.

Нужно отметить, что существует некая неоднозначность в определении плотности

тороидного момента (5), связанная с неоднозначным выбором элементарной ячейки кристалла. Ситуация здесь весьма аналогична той, которая хорошо известна в случае сегнетоэлектриков [18]. Мы полагаем, что форма кристалла и его поверхность являются таковыми, что при определенном (стандартном) выборе элементарной ячейки на поверхности кристалла не содержатся "лишние" ионы, т.е. "не охваченные" разделением кристалла на элементарные ячейки. В противном случае нужно учитывать эффекты от ансамбля "лишних" поверхностных ионов.

Таким образом, в антиферромагнитных кристаллах определенных кристаллографических классов с нарушенной пространственно-временной симметрией (четностью) возникают специфические Т-нечетные магнитооптические эффекты: поверхностные эффекты Керра и невзаимный эффект, обязанные своим происхождением существованию в таких материалах спинового тороидного упорядочения.

Работа поддержана РФФИ (проект N 99-02-17830), и ИНТАС (проект N 97-705), ФЦП "Интеграция" (N К-0573).

#### ЛИТЕРАТУРА

- [1] Wood C. S., Bennett S. C., Cho D., et al. *Science*, **275**, 1759 (1997).
- [2] Зельдович Я. Б. *ЖЭТФ*, **33**, 1531 (1957).
- [3] Дубовик В. М., Чешков А. А. *ЭЧАЯ*, **5**, 791 (1974).
- [4] Дубовик В. М., Тосунян Л. А. *ЭЧАЯ*, **14**, 1191 (1983).
- [5] Шубников А. В. *Избранные труды по кристаллографии*, М., Наука, 1975.
- [6] Шувалов Л. А., Белов Н. В. *Кристаллография*, **7**, 192 (1962).
- [7] Schmid H. *Int. J. Magn.*, **4**, 337 (1973).
- [8] Дубовик В. Н., Кротов С. С., Тугушев В. В. *Кристаллография*, **32**, 540 (1987).
- [9] Ginzburg V. L., Gorbatsevich A. A., Kopaev Yu. V., and Volkov B. A. *Solid State Comm.*, **50**, 339 (1987).
- [10] Gorbatsevich A. A. and Kopaev Yu. V. *Ferroelectrics*, **161**, 321 (1994).
- [11] Тугушев В. В., Фурса Т. Н. *ФТТ*, **28**, 1805 (1986).
- [12] Sannikov D. G. and Zheludev I. S. *Sov. Phys. Sol. State*, **27**, 826 (1985).
- [13] Ceulemans A., Chibotaru L. F., Fowler P. W. *PRL*, **80**, 1861 (1998).

- [14] Р о р о в Ю. Ф., Z v e z d i n А. К., К а д о м т с е в а А. М., et al. JETP, **87**, 146 (1998).
- [15] Р о р о в Ю. Ф., К а д о м т с е в а А. М., B e l o v D. V., et al. JETP Lett., **69(4)**, 330 (1999).
- [16] A s h e r E. in *Magnetoelectric Interaction Phenomena in Crystals*, ed. by A. Freeman and H. Schmid, New York, 1975, p. 69.
- [17] Б е л о т е л о в В. И., П я т а к о в А. П., Е р е м и н С., и др. ФТТ (2000) (в печати).
- [18] Т а г а н ц е в А. К. УФН, **152**, 423 (1987).
- [19] Z v e z d i n А. К., К о т о в V. A. *Modern Magneto-optics and Magneto-optical Materials*, IOP Publishing, Bristol and Philadelphia, 1997.
- [20] Т у р о в Е. А. *Кинетические, оптические и акустические свойства антиферромагнетиков*, УРО АН СССР, Свердловск, 1990.

Институт общей физики РАН

Поступила в редакцию 26 апреля 2000 г.