

05,04

Влияние электрического поля на намагниченность монокристалла $\text{SmFe}_3(\text{BO}_3)_4$

© А.Л. Фрейдман¹, А.Д. Балаев¹, А.А. Дубровский^{1,2}, Е.В. Еремин¹, К.А. Шайхутдинов^{1,2}, В.Л. Темеров¹, И.А. Гудим¹

¹ Институт физики им. Л.В. Киренского СО РАН, Красноярск, Россия

² Международная лаборатория сильных магнитных полей и низких температур, Вроцлав, Польша

E-mail: fss4@yandex.ru

(Поступила в Редакцию 12 января 2015 г.)

Впервые экспериментально зафиксировано изменение намагниченности монокристалла $\text{SmFe}_3(\text{BO}_3)_4$, вызванное приложением переменного электрического поля. Как показали измерения, намагниченность осциллирует не только с частотой прикладываемого электрического поля, но и с удвоенной частотой. Измерены зависимости магнитоэлектрического эффекта от магнитного и электрического полей и температуры. Мы полагаем, что за наличие второй гармоники магнитоэлектрического эффекта ответственна электрострикция.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (грант № 14-02-00307_а.)

1. Введение

Сосуществование магнитного порядка и спонтанной электрической поляризации в материалах, называемых мультиферроиками, является предметом интенсивных исследований в области физики конденсированного состояния вещества в последнее время. Мультиферроиками можно назвать те соединения, в которых присутствуют любые два или все три типа упорядочения: спонтанный магнитный момент, спонтанный дипольный момент и спонтанная деформация [1].

Среди мультиферроиков можно выделить два типа: вещества, в которых магнитный и сегнетоэлектрический фазовые переходы происходят независимо друг от друга, и вещества, в которых данные фазовые переходы происходят одновременно и являются взаимосвязанными. В последнем случае взаимодействие между магнитной и сегнетоэлектрической подсистемами может быть очень сильным [2].

Материалы, в которых наблюдается магнитоэлектрический эффект, показывают зависимость поляризации от приложенного магнитного поля (так называемый ME_H -эффект), либо изменение намагниченности при приложенном электрическом поле (так называемый ME_E -эффект) [3].

Среди веществ, в которых наблюдается магнитоэлектрический эффект, выделяется семейство боратов $\text{RM}_3(\text{BO}_3)_4$, где R — редкоземельный ион или Y, а M — ион Al, Fe, Ga, Sc, Cr. Кристаллы этого семейства имеют пространственную группу $R32$, см. например [4], что определяет отсутствие центра инверсии. Подрешетка из октаэдров MO_6 образует геликоидальную цепочку вдоль c -оси с обменным взаимодействием между $3d$ -элементами, ионы редкоземельного элемента, образуя призмы RO_6 , изолированы друг от друга треугольниками BO_3 , и, как следствие, взаимодействие типа R—O—R

отсутствует. Как треугольники BO_3 , так и RO_6 призмы связаны с тремя цепочками MO_6 .

В работе [5] показано, что в соединении $\text{SmFe}_3(\text{BO}_3)_4$ поляризация имеет несобственный характер и индуцируется антиферромагнитным упорядочением ($T_N \approx 40$ K) ионов Fe^{3+} , что указывает на сильную магнитоэлектрическую связь. На данном соединении проводились измерения величины магнитоиндуцированной поляризации $\Delta P(H)$ (ME_H -эффект) [5], так же проводилось исследование магнитоэлектрического эффекта $\varepsilon(H)$ [2], однако до сих пор не были опубликованы измерения ME_E -эффекта, т.е. измерения намагниченности как функции электрического поля $\Delta M(E)$, чему посвящена данная работа.

2. Эксперимент

Монокристалл ферробората самария $\text{SmFe}_3(\text{BO}_3)_4$ был выращен из раствора—расплава на основе $\text{Bi}_2\text{Mo}_3\text{O}_{12}$ [6]. Мы будем пользоваться ортогональной системой координат (x, y, z) , где x и z совпадают с кристаллографическими направлениями a и c соответственно, а направление y перпендикулярно плоскости xz . Образец для исследований вырезался в форме прямоугольной пластинки.

Для измерений ME_E -эффекта на грани yz образца наносился проводящий клей на эпоксидной основе. Прикладываемое к обкладкам образца переменное электрическое поле E за счет магнитоэлектрического эффекта (ME_E -эффект) приводит к осцилляции его намагниченности с амплитудой ΔM и частотой прикладываемого напряжения (первая гармоника), а также с частотой, в два раза превышающей частоту поля E . Измеряемая величина ΔM фиксируется синхронным детектором Stanford Research Systems Model SR830 DSP Lock-in

Amplifier, который обладает возможностью измерения сигнала на нескольких гармониках. Детально ознакомиться с методикой измерения ME_E -эффекта можно в работах [7,8].

3. Результаты

На рис. 1 приведены результаты измерений первой гармоники ME_E -эффекта как функции магнитного поля H и амплитуды переменного электрического поля E . Нами выведены обозначения $\Delta M'_{ij}$ (или $\Delta M''_{ij}$), где один штрих означает первую гармонику, а два штриха — вторую, i — направление, вдоль которого измерялась величина изменения намагниченности ΔM (направле-

ние H так же всегда совпадает с i из-за конструктивных особенностей установки), j — направление поля E . Как видно из рис. 1 для возникновения ME_E -эффекта необходимо, чтобы и магнитное и электрическое поле были отличны от нуля как для поперечного (рис. 1, *a*), так и для продольного (рис. 1, *b*) случаев. При этом функция $\Delta M(E, H)$ линейна относительно электрического поля E , но нелинейна и немонотонна относительно магнитного поля H . Эффекты отличаются по величине и имеют максимумы в магнитных полях 6.4 и 4.2 кОе для поперечного и продольного эффектов соответственно, максимальная величина $\Delta M'_{yx}$ примерно в 2 раза превосходит $\Delta M'_{xx}$.

Интересно заметить, что в случае ME_H -эффекта в районе 5 кОе наблюдается наибольшая кривизна функ-

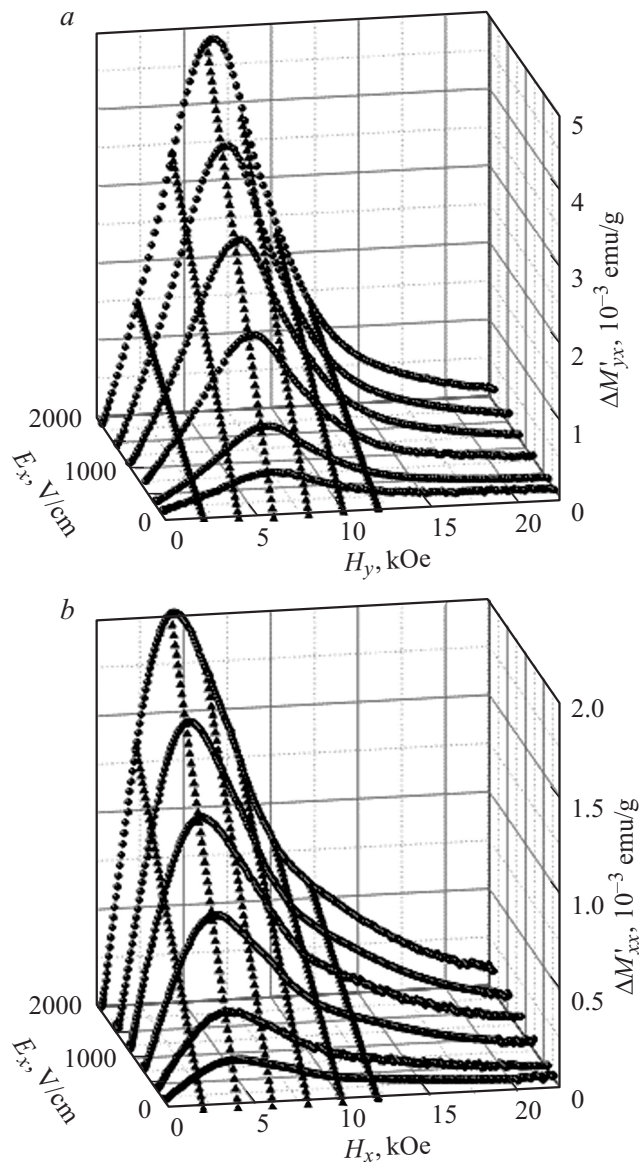


Рис. 1. Зависимость $\Delta M'_{yx}(E_x, H_y)$ (*a*) и $\Delta M'_{xx}(E_x, H_x)$ (*b*) при $T = 4.2$ К. Кружками обозначены экспериментальные данные, а треугольниками — точки, полученные линейной аппроксимацией.

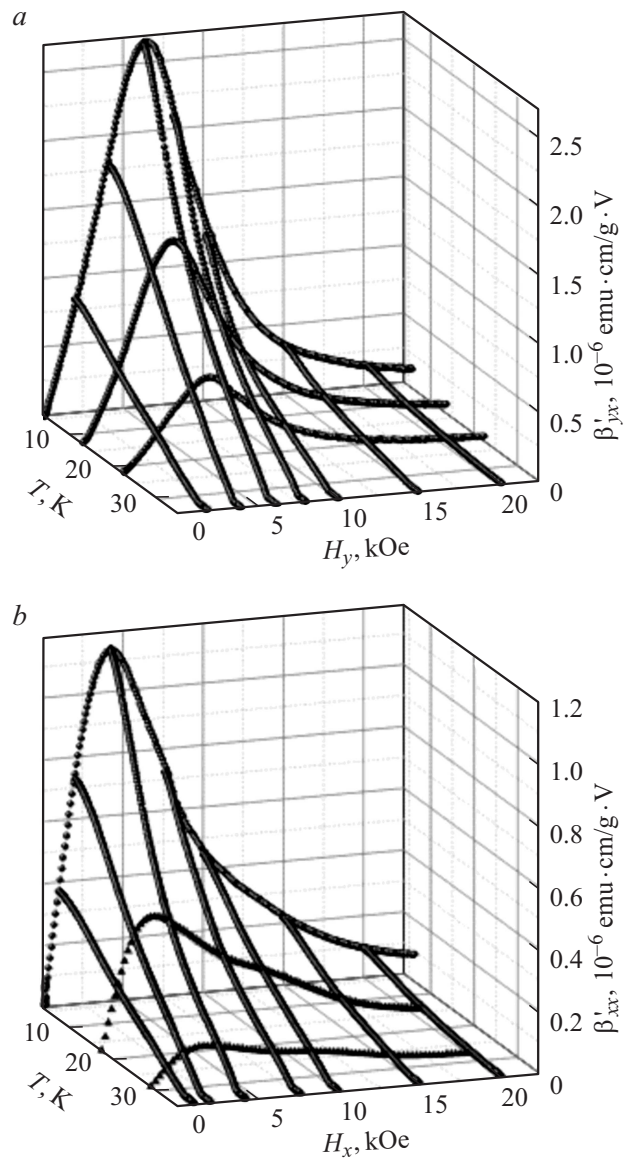


Рис. 2. Зависимость магнитоэлектрической восприимчивости поперечного $\beta'_{yx}(H_y, T)$ (*a*) и продольного $\beta'_{xx}(H_x, T)$ (*b*) эффектов. Кружками обозначены экспериментальные данные, а треугольниками — точки, полученные *spline*-аппроксимацией.

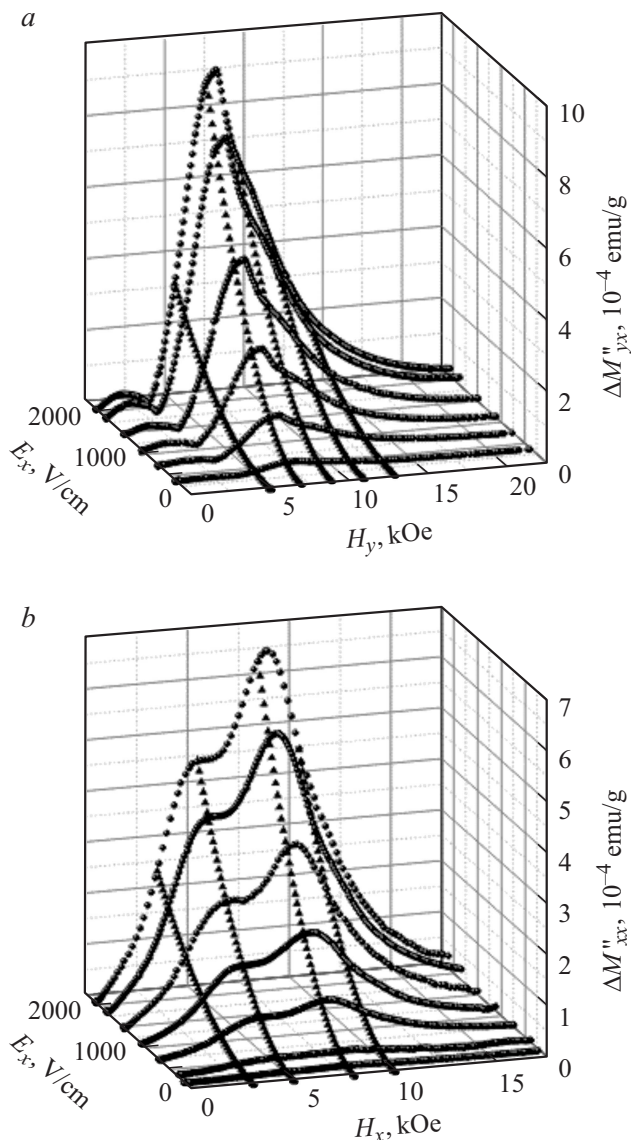


Рис. 3. Зависимость второй гармоники поперечного $\Delta M''_{yx}(H_y, E_x)$ (a) и продольного $\Delta M''_{xx}(H_x, E_x)$ (b) магнитоэлектрических эффектов, $T = 4.2$ К. Кружками обозначены экспериментальные данные, а треугольниками — точки, полученные аппроксимацией полиномом второй степени.

ции $\Delta P(H)$ [5], в то время как ME_E -эффект имеет максимум вблизи этих значений магнитного поля. Кроме того, в полях выше 10 кОе функция $\Delta P(H)$ стремится к насыщению, в то время как ME_E -эффект практически пропадает, что соответствует установлению однородного антиферромагнитного упорядочения [5].

На рис. 2 представлены графики температурно-полевой зависимости величины магнитоэлектрической восприимчивости первой гармоники ME_E -эффекта, определенной как $\beta'_{ij} = \Delta M'_{ij}/E_j$. На рис. 2, a магнитное поле приложено вдоль направления оси y (поперечный эффект), а на рис. 2, b — вдоль оси x (продольный эффект). Как видно из рисунков, на зависимостях $\beta'_{yx}(H_y, T)$ и $\beta'_{xx}(H_x, T)$ максимум ME_E -эффекта уменьшается и

смещается в сторону слабых магнитных полей по мере увеличения температуры вплоть до фазового перехода при $T = 33$ К.

Также на данном образце нами обнаружено изменение намагниченности $\Delta M''$ с частотой, равной удвоенной частоте возбуждающего электрического поля E . На рис. 3 представлены графики зависимости второй гармоники ME_E -эффекта как функции H и E . В то время как первая гармоника ME_E -эффекта $\Delta M'$ линейна относительно амплитуды электрического поля E , сигнал второй гармоники $\Delta M''$ имеет квадратичную зависимость относительно E . Зависимость $\Delta M''$ относительно магнитного поля также усложняется.

По мере увеличения магнитного поля амплитуда второй гармоники поперечного эффекта $\Delta M''_{yx}$ (рис. 3, a) возрастает до первого максимума, который наблюдается в поле $H_y \sim 2$ кОе, затем эффект убывает и в поле ~ 3.5 кОе полностью пропадает. По мере дальнейшего увеличения поля величина $\Delta M''_{yx}$ снова увеличивается и достигает своего второго максимума в поле $H_y \sim 7.5$ кОе, затем наблюдается монотонное убывание эффекта. Если после этого начать уменьшать внешнее поле H_y , то возникнет небольшой гистерезис, показанный на рис. 4. Следует отметить, что на всех приведенных нами графиках величина ΔM имеет смысл амплитуды изменения магнитного момента, однако используемый метод измерений позволяет также наблюдать за фазой принимаемого сигнала, которая, как оказалось, зависит от магнитного поля. Например, для всех конфигураций измерений и гармоник наблюдается переключение фазы на π при изменении направления поля H на противоположное, то есть при переходе через 0, другими словами, эффект оказался нечетным по H . Кроме того, фаза второй гармоники поперечного эффекта $\Delta M''_{yx}(H_y)$

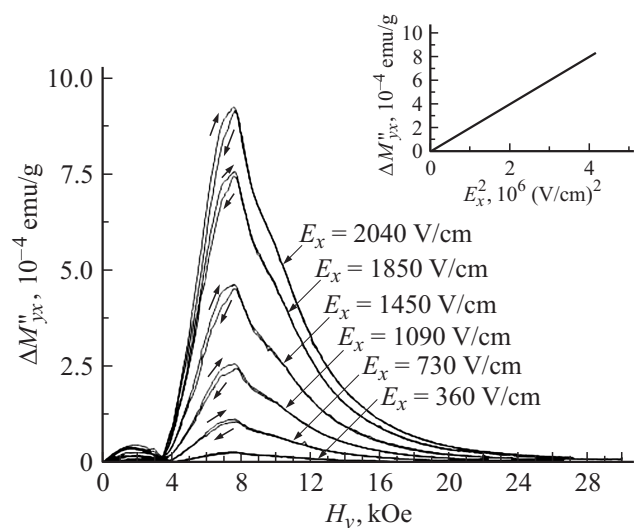


Рис. 4. Зависимость $\Delta M''_{yx}(H_y)$ при различных значениях амплитуды внешнего электрического поля E_x , $T = 4.2$ К. На вставке показана зависимость $\Delta M''_{yx}$ как функция квадрата амплитуды внешнего электрического поля E_x при $H_y = 8$ кОе, $T = 4.2$ К.

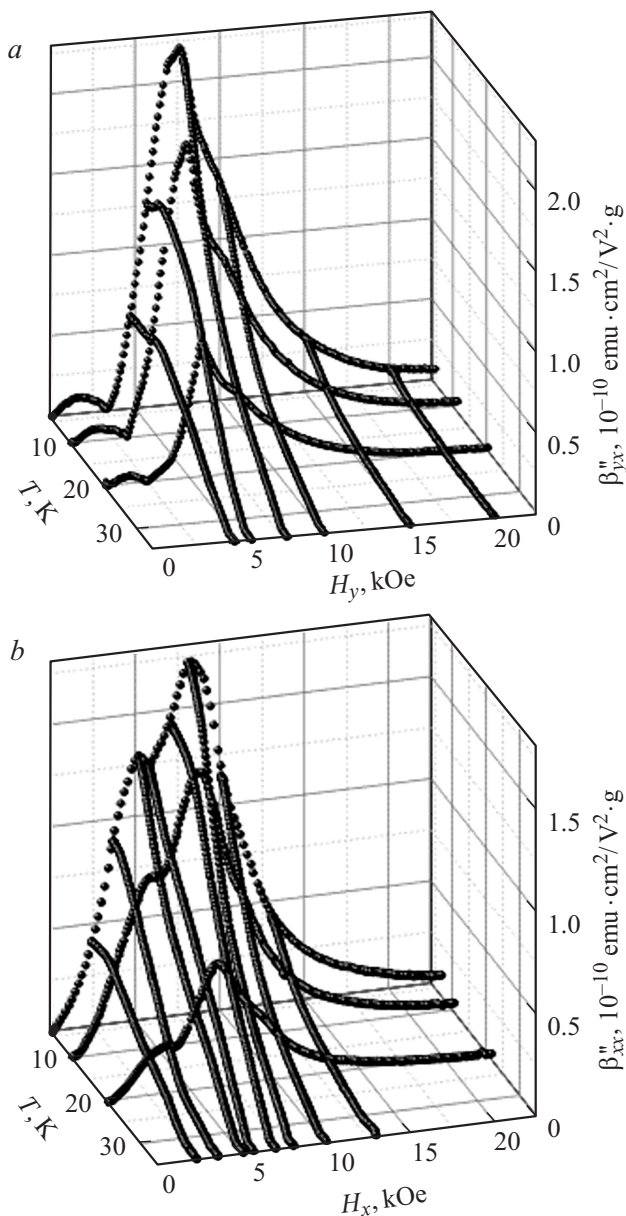


Рис. 5. Зависимость $\beta''_{yx}(H_y, T)$ (a) и $\beta''_{xx}(H_x, T)$ (b).

переключается также в поле $H_y \sim +3.5$ кОе (рис. 4). Вставка к рис. 4 указывает на строгую квадратичную зависимость второй гармоники относительно электрического поля E , т.е. $\Delta M'' = \beta''(H)E^2$.

В случае второй гармоники продольного эффекта $\Delta M''_{xx}$ (рис. 3, b) также наблюдаются два максимума в полях $H = 5.2$ и 8.1 кОе при $T = 4.2$ К, однако переключение фазы происходит лишь в точке $H = 0$. Продольный эффект так же проявляет слабый гистерезис по полю H .

Температурно-полевая зависимость магнитоэлектрической восприимчивости $\beta''(H, T)$ представлена на рис. 5 для поперечного (рис. 5, a) и продольного (рис. 5, b) эффектов. Как видно из рис. 5, максимумы второй гармоники ME_E -эффекта, как и в случае первой гармоники, смещаются в область слабых магнитных

полей при повышении температуры. Кроме того, точка переключения фазы поперечного эффекта также смещается в область слабых полей по мере увеличения T .

4. Обсуждение

Прикладываемое к кристаллу переменное электрическое поле возбуждает в нем одновременно обратный пьезоэлектрический эффект и электрострикцию. При этом, когда образец находится в постоянном магнитном поле, деформация приводит к возникновению магнитоупругого эффекта, что вызывает изменение намагниченности. На рис. 6 схематично представлена временная зависимость прикладываемого переменного электрического поля E и магнитоэлектрический отклик первой $\Delta M'$ и второй $\Delta M''$ гармоник. Так как кристалл находится в постоянном магнитном поле H , намагниченность образца осциллирует относительно постоянного значения $M_0(H)$ с амплитудой ΔM . При этом частота первой гармоники совпадает с частотой возбуждающего поля E , а частота второй гармоники в два раза больше частоты поля E . Это означает, что эффект, приводящий к возникновению осциллирующей $\Delta M'$, нечетен по E , а $\Delta M''$ — четный.

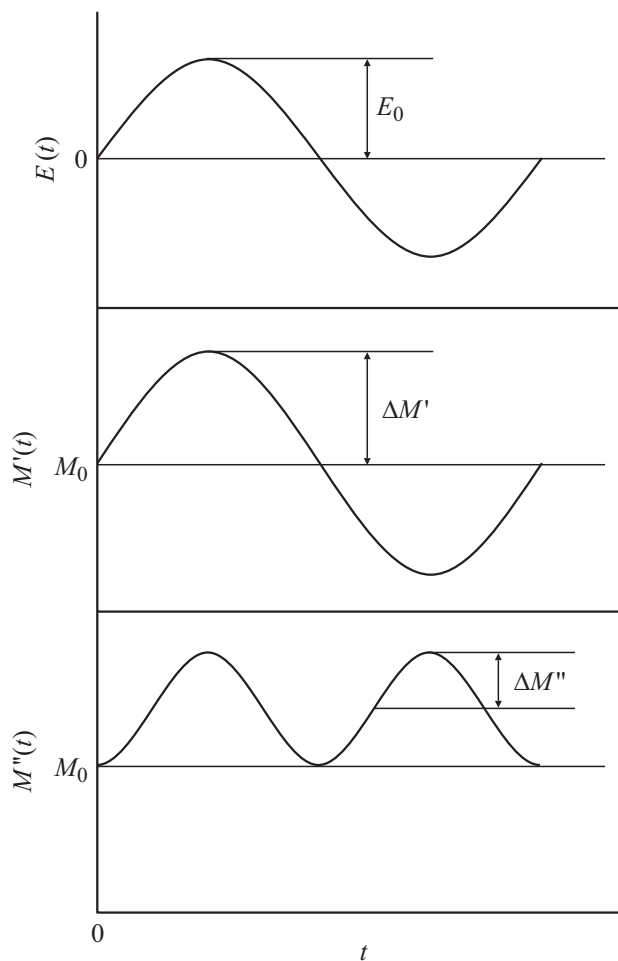


Рис. 6. Схематичное изображение временной зависимости $E(t)$, $\Delta M'(t)$, $\Delta M''(t)$.

Согласно нашим измерениям величина $\Delta M'$ линейна относительно электрического поля E , а $\Delta M''$ имеет квадратичную зависимость, что и указывает на обусловленность ME_E -эффекта пьезоэлектрическим и электрострикционным эффектами.

5. Заключение

Были впервые проведены измерения ME_E -эффекта как функции магнитного, электрического полей и температуры для кристалла $\text{SmFe}_3(\text{VO}_3)_4$. Были отделены линейный и квадратичный вклады в изучаемый магнитоэлектрический эффект. Прикладываемое к кристаллу переменное электрическое поле возбуждает в нем одновременно пьезоэлектрический эффект и электрострикцию. Было сделано предположение, что за наличие первой гармоники ME_E -эффекта ответственен пьезоэлектрический эффект, а за наличие второй — электрострикционный. Для более качественного объяснения немонотонного вида зависимостей ME_E -эффекта необходимы дополнительные исследования, что является задачей для дальнейшей работы.

Список литературы

- [1] W. Eerenstein, N.D. Mathur, J.F. Scott. *Nature* **442**, 759 (2006).
- [2] А.А. Мухин, Г.П. Воробьев, В.Ю. Иванов, А.М. Кадомцева, А.С. Нарижная, А.М. Кузьменко, Ю.Ф. Попов, Л.Н. Безматерных, И.А. Гудим. *Письма в ЖЭТФ* **93**, 305 (2011).
- [3] H. Schmid. *Introduction to complex mediums for optics and electromagnetics*. SPIE Press, Bellingham, Washington (2003). С. 172.
- [4] А.М. Кадомцева, Ю.Ф. Попов, Г.П. Воробьев, А.П. Пятаков, С.С. Кротов, К.И. Камилов, В.Ю. Иванов, А.А. Мухин, А.К. Звездин, А.М. Кузьменко, Л.Н. Безматерных, И.А. Гудим, В.Л. Темеров. *ФНТ* **36**, 640 (2010).
- [5] Ю.Ф. Попов, А.П. Пятаков, А.М. Кадомцева, Г.П. Воробьев, А.К. Звездин, А.А. Мухин, В.Ю. Иванов, И.А. Гудим. *ЖЭТФ* **138**, 226 (2010).
- [6] E.P. Chukalina, M.N. Popova, L.N. Bezmaternykh, I.A. Gudim. *Phys. Lett. A* **374**, 1790 (2010).
- [7] A.D. Balaev, A.L. Freydman. *J. Surf. Investigation*. **8**, 1, 17 (2014).
- [8] A.L. Freydman, A.D. Balaev, A.A. Dubrovskiy, E.V. Eremin, V.L. Temerov, I.A. Gudim. *J. Appl. Phys.* **115**, 174 103 (2014).