

05

Магнитные и магнитоэлектрические свойства $\text{Ho}_{0.5}\text{Nd}_{0.5}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$

© И.А. Гудим¹, А.А. Демидов^{2,¶}, Е.В. Еремин^{1,3}, D.K. Shukla⁴

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

² Брянский государственный технический университет, Брянск, Россия

³ Сибирский федеральный университет, Красноярск, Россия

⁴ UGC-DAE Consortium for Scientific Research Indore, India

¶ E-mail: demandr@yandex.ru

(Поступила в Редакцию 12 апреля 2018 г.)

Проведено экспериментальное и теоретическое исследование магнитных и магнитоэлектрических свойств ферробората $\text{Ho}_{0.5}\text{Nd}_{0.5}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ с конкурирующими обменными Ho–Fe- и Nd–Fe-взаимодействиями. Обнаружены ступенчатые аномалии на кривых намагничивания при спин-переориентационном переходе, индуцируемом магнитным полем $\mathbf{B} \parallel \mathbf{c}$. Уточнена температура спонтанного спин-переориентационного перехода ($T_{\text{SR}} \approx 8 \text{ K}$). Измеренные магнитные свойства и обнаруженные особенности проинтерпретированы в рамках единого теоретического подхода, который базируется на приближении молекулярного поля и расчетах в модели кристаллического поля для редкоземельного иона. При интерпретации экспериментальных данных определены параметры кристаллического поля для ионов Ho^{3+} и Nd^{3+} в $\text{Ho}_{0.5}\text{Nd}_{0.5}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ и параметры обменных Ho–Fe- и Nd–Fe-взаимодействий.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ № 17-52-45091 ИНД_а.

DOI: 10.21883/FTT.2018.10.46522.103

1. Введение

Редкоземельные бораты $R\text{M}_3(\text{BO}_3)_4$ ($R = \text{Y}, \text{La-Lu}; M = \text{Al}, \text{Sc}, \text{Cr}, \text{Fe}, \text{Ga}$) демонстрируют большое разнообразие магнитных, магнитоэлектрических, магнитоупругих и других физических свойств [1–5]. Бораты с двумя магнитными подсистемами (ферробораты $R\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$) являются мультиферроиками [1,3,4]. Недавно было установлено, что известные своими нелинейно-оптическими свойствами алюмобораты $R\text{Al}_3(\text{BO}_3)_4$, обнаруживают гигантские значения магнитоэлектрической поляризации [5]. Новый всплеск интереса к боратам $R\text{M}_3(\text{BO}_3)_4$ связан с появившейся возможностью исследовать замещенные составы $R_{1-x}R'_x\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$, наличие в которых конкурирующих R –Fe- и R' –Fe-обменных взаимодействий, может привести к реализации спонтанных переориентационных переходов [3,6,7].

Подходящими R -ионами для синтеза и исследования замещенного ферробората с конкурирующими обменными взаимодействиями являются ионы Ho^{3+} и Nd^{3+} . Магнитные моменты железа в $\text{HoFe}_3(\text{BO}_3)_4$ антиферромагнитно упорядочиваются при $T_N \approx 38\text{--}39 \text{ K}$ и при понижении до температуры $T_{\text{SR}} \approx 4.7\text{--}5 \text{ K}$ лежат в базисной плоскости ab , также как и магнитные моменты ионов Ho^{3+} [3,8,9]. При $T_{\text{SR}} \approx 4.7\text{--}5 \text{ K}$ происходит спонтанный спин-переориентационный переход, в результате которого магнитные моменты Ho- и Fe-подсистем становятся ориентированными вдоль

оси c . В $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$ при $T < T_N \approx 31 \text{ K}$ все магнитные моменты лежат в базисной плоскости ab [10,4]. $\text{YFe}_3(\text{BO}_3)_4$ при $T < T_N \approx 37\text{--}38 \text{ K}$ также имеет легкоплоскостную (ЛП) магнитную структуру [8,11,4]. Таким образом, в результате конкуренции разных вкладов от Ho-, Nd- и Fe-подсистем в магнитную анизотропию $\text{Ho}_{1-x}\text{Nd}_x\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ возможно возникновение спонтанных и индуцированных магнитным полем спин-переориентационных переходов. Данные переходы в $\text{Ho}_{1-x}\text{Nd}_x\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ были обнаружены для составов с $x = 0.5$ [3] и 0.75 [12].

Казалось очевидным, что замещение ионов Ho^{3+} на ионы Nd^{3+} (стабилизирующие ЛП-состояние) в $\text{Ho}_{1-x}\text{Nd}_x\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ должно было привести к сдвигу температуры спин-переориентационного перехода из ЛП в легкоосное (ЛО) состояние от обнаруженного в $\text{HoFe}_3(\text{BO}_3)_4$ значения ($T_{\text{SR}} \approx 4.7\text{--}5 \text{ K}$) в область более низких температур. Однако в $\text{Ho}_{0.5}\text{Nd}_{0.5}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ температура T_{SR} неожиданно увеличилась до 9 K [3], а в $\text{Ho}_{0.25}\text{Nd}_{0.75}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ значение T_{SR} осталось таким же, как и в $\text{HoFe}_3(\text{BO}_3)_4$ [12]. Данный результат ярко показывает, что простое понимание сложения вкладов от ЛО- и ЛП-подсистем в замещенном соединении недостаточно для объяснения происходящих процессов в результирующей магнитной структуре. В [13] показано, что увеличение T_{SR} в $\text{Ho}_{0.5}\text{Nd}_{0.5}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ (по сравнению с $\text{HoFe}_3(\text{BO}_3)_4$) обусловлено расширением температурного диапазона устойчивости начального низкотемпера-

турного состояния магнитной подсистемы вследствие его изменения с легкоосного (как в $\text{HoFe}_3(\text{BO}_3)_4$) на угловое состояние.

В данной работе продолжено изучение ферробората $\text{Ho}_{0.5}\text{Nd}_{0.5}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ и представлены результаты экспериментального и теоретического исследования кривых намагничивания, магнитной восприимчивости, полевой и температурной зависимости диэлектрической проницаемости и теплоемкости. Приведены и обсуждаются новые экспериментальные данные для $\text{Ho}_{0.5}\text{Nd}_{0.5}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$: полевая и температурная зависимость диэлектрической проницаемости $\varepsilon_a(B_a, T)$, кривые намагниченности $M_{c,\perp c}(B)$, кривые восприимчивости $\chi_{c,\perp c}(T)$ при $T = 20\text{--}300$ К и $\chi_c(T)$ при $T = 2\text{--}300$ К для $B = 0.1$ Т.

2. Эксперимент

Монокристаллы $\text{Ho}_{0.5}\text{Nd}_{0.5}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ выращивались из растворов-расплавов на основе тримолибдата висмута 82 wt% $[\text{Bi}_2\text{Mo}_3\text{O}_{12} + 3\text{B}_2\text{O}_3 + 0.25\text{Ho}_2\text{O}_3 + 0.25\text{Nd}_2\text{O}_3]$ + 18 wt% $\text{Ho}_{0.5}\text{Nd}_{0.5}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ по технологии, подробно описанной в работах [14,15]. Температура насыщения (T_{sat}) определялась с точностью $\pm 3^\circ\text{C}$ с помощью пробных кристаллов, предварительно полученных в режиме спонтанного зарождения. Также в режиме спонтанного зарождения при температуре $T = T_{\text{sat}} - 20^\circ\text{C}$ выращивались кристаллы размером ~ 1 мм. Эти кристаллы затем использовались как затравки для выращивания кристаллов размером порядка $5 \times 7 \times 7$ мм³. При выращивании кристаллов на затравках стартовая температура задавалась равной $T = T_{\text{sat}} - 7^\circ\text{C}$, что соответствовало примерно середине зоны метастабильности раствора-расплава. Далее температура раствора-расплава понижалась с шагом 0.1°C по программе с нарастающим темпом так, чтобы скорость роста кристаллов не превышала 1 мм в сутки. При этом кристаллодержатель с затравками вращался со скоростью 30–40 г/мин и реверсом с периодом 1 мин. После завершения процесса роста (10–15 суток) кристаллодержатель приподнимался над раствором-расплавом и печь охлаждалась до комнатной температуры с выключенным питанием. Изготовленные образцы имели хорошее оптическое качество и не содержали видимых дефектов.

Магнитные измерения были выполнены на установке Physical Properties Measurement System (Quantum Design) в температурном интервале 2–300 К и магнитных полях до 9 Т. Диэлектрическая проницаемость исследовалась с помощью измерения емкости LCR-метром Agilent E4980A Precision LCR Meter в частотном диапазоне 10 кГц–2 МГц.

3. Методика расчетов

При расчетах использовался теоретический подход, успешно примененный к ферроборатам чистых

$R\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ ($R = \text{Tb}$ [2], Nd [16], Ho [17]) и замещенных $\text{Nd}_{1-x}\text{Dy}_x\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ [7], $\text{Sm}_{0.7}\text{Ho}_{0.3}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ [18] составов. Данный теоретический подход основывается на модели кристаллического поля (КП) для R -иона и приближении молекулярного поля. За магнитные свойства $\text{Ho}_{1-x}\text{Nd}_x\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ ответственны обе магнитные подсистемы, редкоземельная (гольмиевая и неодимовая) и железная, взаимодействующие друг с другом. Взаимодействием внутри R -подсистемы можно пренебречь. Железная подсистема может рассматриваться как совокупность двух антиферромагнитных подрешеток. Также в виде двух подрешеток может быть представлена и R -подсистема, подмагниченная за счет f - d -взаимодействия. Исходя из магнитной структуры $\text{Ho}_{1-x}\text{Nd}_x\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ и иерархии взаимодействий, в присутствии магнитного поля \mathbf{B} эффективные гамильтонианы Fe и $R = \text{Ho}, \text{Nd}$ ионов i -ой ($i = 1, 2$) подрешетки могут быть записаны:

$$\mathcal{H}_i(R) = \mathcal{H}_i^{\text{CF}} + g_J^R \mu_B \mathbf{J}_i^R [\mathbf{B} + \lambda_{fd}^R \mathbf{M}_i^{\text{Fe}}], \quad (1)$$

$$\mathcal{H}_i(\text{Fe}) = g_S \mu_B \mathbf{S}_i [\mathbf{B} + \lambda \mathbf{M}_j^{\text{Fe}} + (1-x)\lambda_{fd}^{\text{Ho}} \mathbf{m}_i^{\text{Ho}} + x\lambda_{fd}^{\text{Nd}} \mathbf{m}_i^{\text{Nd}}],$$

$$j = 1, 2, \quad j \neq i. \quad (2)$$

Здесь $\mathcal{H}_i^{\text{CF}}$ — гамильтониан КП, g_J^R — фактор Ланде, \mathbf{J}_i^R — оператор углового момента R -иона, $g_S = 2$ — g -фактор, \mathbf{S}_i — оператор спинового момента иона железа, и $\lambda_{fd}^R < 0$ — молекулярные константы R -Fe- и Fe-Fe-антиферромагнитных взаимодействий.

Магнитные моменты i -й железной \mathbf{M}_i^{Fe} и редкоземельной \mathbf{m}_i^R подрешеток в расчете на формульную единицу определяются соотношениями

$$\mathbf{M}_i^{\text{Fe}} = -3g_S \mu_B \langle \mathbf{S}_i \rangle, \quad \mathbf{m}_i^R = -g_J^R \mu_B \langle \mathbf{J}_i^R \rangle. \quad (3)$$

Выражение для гамильтониана КП в неприводимых тензорных операторах имеет вид

$$\mathcal{H}^{\text{CF}} = B_0^2 C_0^2 + B_0^4 C_0^4 + B_3^4 (C_{-3}^4 - C_3^4) + B_0^6 C_0^6 + B_3^6 (C_{-3}^6 - C_3^6) + B_6^6 (C_{-6}^6 + C_6^6). \quad (4)$$

Параметры КП B_q^k для ионов Ho^{3+} и Nd^{3+} в $\text{Ho}_{1-x}\text{Nd}_x\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ не известны. Также нет информации о расщеплении нижних уровней основного мультиплета ионов Ho^{3+} и Nd^{3+} в $\text{Ho}_{1-x}\text{Nd}_x\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$.

Вычисление величин и ориентаций магнитных моментов Fe- и R -подсистем при решении самосогласованных задач на основе гамильтонианов (1–2) при условии минимума соответствующего термодинамического потенциала позволяет рассчитывать области устойчивости различных магнитных фаз, поля фазовых переходов, кривые намагничивания, восприимчивость и т.д. Термодинамический потенциал для $\text{Ho}_{1-x}\text{Nd}_x\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ был ранее представлен нами в работе [13].

Энергия анизотропии для i -ой подрешетки Fe-подсистемы $\Phi_{\text{ан}}^i$ имеет вид

$$\Phi_{\text{ан}}^i = K_2^{\text{Fe}} \sin^2 \vartheta_i + K_4^{\text{Fe}} \sin^4 \vartheta_i + K_{66}^{\text{Fe}} \sin^6 \vartheta_i \cos 6\varphi_i, \quad (5)$$

где константа анизотропии $K_2^{\text{Fe}} < 0$ стабилизирует ЛП состояние, $K_4^{\text{Fe}} > 0$ — ЛО состояние, $K_{66}^{\text{Fe}} < 0$ — константа анизотропии в базисной ab -плоскости, ϑ_i и φ_i — полярный и азимутальный углы отклонения вектора магнитного момента железа \mathbf{M}_i^{Fe} от осей c и a соответственно.

Намагниченность и восприимчивость $\text{Ho}_{1-x}\text{Nd}_x\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ равны

$$\mathbf{M} = \frac{1}{2} \sum_i^2 (\mathbf{M}_i^{\text{Fe}} + (1-x)\mathbf{m}_i^{\text{Ho}} + x\mathbf{m}_i^{\text{Nd}}),$$

$$\chi_k = \chi_k^{\text{Fe}} + (1-x)\chi_k^{\text{Ho}} + x\chi_k^{\text{Nd}}, \quad k = a, b, c. \quad (6)$$

В упорядоченной фазе начальные магнитные восприимчивости соединения можно найти из начальных линейных участков кривых намагничивания, рассчитанных для соответствующих направлений внешнего магнитного поля. В парамагнитной области восприимчивость R-подсистемы рассчитывалась по известной формуле Ван Флека, энергетический спектр и волновые функции для которой вычислялись на основе гамильтониана (4). Восприимчивость Fe-подсистемы может быть описана законом Кюри–Вейсса с соответствующей парамагнитной температурой Нееля Θ .

Вклад R-подсистемы в магнитную часть теплоемкости $\text{Ho}_{1-x}\text{Nd}_x\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ рассчитывался по формуле (на одну формульную единицу)

$$C = (1-x)C_{\text{Ho}} + xC_{\text{Nd}}, \quad C_{\text{R}} = k_B \frac{\langle E^2 \rangle - \langle E \rangle^2}{(k_B T)^2}. \quad (7)$$

Тепловые средние $\langle E^2 \rangle$ и $\langle E \rangle^2$ вычислялись на спектре R-иона, формируемом КП и взаимодействиями с Fe-подсистемой и внешним магнитным полем.

4. Результаты и обсуждение

Известно, что в ферроборатах с малым ионным радиусом R-иона, в частности в $\text{HoFe}_3(\text{BO}_3)_4$, имеет место структурный фазовый переход, при котором локальная симметрия R-иона понижается от D_3 (при $T > T_S$) до C_2 (при $T < T_S$) [4]. При этом в $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$ данный переход отсутствует [4]. Учитывая возможность описания основных особенностей низкотемпературных магнитных свойств $\text{HoFe}_3(\text{BO}_3)_4$ в высокотемпературной D_3 -симметрии [17], описание экспериментальных данных для $\text{Ho}_{0.5}\text{Nd}_{0.5}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ было также проведено в D_3 -симметрии [13], для которой гамильтониан КП имеет более простой вид. Недавнее исследование спектров инфракрасного поглощения $\text{Ho}_{0.5}\text{Nd}_{0.5}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ в спектральном диапазоне $30\text{--}1700\text{ см}^{-1}$ при $T = 6\text{--}300\text{ К}$ [19] показало, что изменений, связанных со структурными

фазовыми переходами, не происходит. В результате, в виду отсутствия экспериментально установленных фактов наличия структурного перехода в $\text{Ho}_{0.5}\text{Nd}_{0.5}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$, отсутствия данного перехода в $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$, отсутствия данных о расщеплениях нижних уровней основных мультиплетов ионов Ho^{3+} и Nd^{3+} в $\text{Ho}_{0.5}\text{Nd}_{0.5}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ и учитывая возможность описания магнитных свойств $\text{HoFe}_3(\text{BO}_3)_4$ [17] и $\text{Ho}_{0.5}\text{Nd}_{0.5}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ [13] в D_3 -симметрии, описание полученных нами новых экспериментальных данных для $\text{Ho}_{0.5}\text{Nd}_{0.5}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ было также проведено в D_3 -симметрии. Данное приближение позволяет значительно сократить количество используемых в расчете изначально неизвестных параметров КП (с 15 для C_2 -симметрии, до 6 для D_3 -симметрии), однако, в случае обнаружения структурного перехода, полученные результаты расчетов следует признать только как качественные.

Исследование соотношения вкладов от $\text{Ho}_{0.5}$ - и $\text{Nd}_{0.5}$ -подсистем в результирующие магнитные характеристики $\text{Ho}_{0.5}\text{Nd}_{0.5}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ показало, что, например, при $T = 2\text{ К}$ и $B_{c,\perp c} = 9\text{ Т}$ вклад Ho-подсистемы составляет $\sim 84.7\%$ в намагниченность $M_c(B)$ и $\sim 82.8\%$ в $M_{\perp c}(B)$. Чувствительность к вариациям параметров КП для ионов Ho^{3+} также больше, чем для ионов Nd^{3+} . Расчеты показали, что существенного улучшения описания кривых намагничивания $M_{c,\perp c}(B)$, восприимчивости $\chi_{c,\perp c}(T)$ и теплоемкости $C_p/T(T)$ $\text{Ho}_{0.5}\text{Nd}_{0.5}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ при расчете с разными и с одинаковыми наборами параметров КП для Ho- и Nd-подсистем нет. Поэтому при расчетах использовался единый набор параметров КП для Ho- и Nd-подсистем.

Для определения параметров КП использовались полученные нами экспериментальные данные о кривых намагничивания $M_{c,\perp c}(B)$ в полях до 9 Т , температурных зависимостях начальной магнитной восприимчивости $\chi_{c,\perp c}(T)$, а также теплоемкость $C_p/T(T)$ из работы [3]. В качестве начальных значений параметров КП, с которых стартовала процедура минимизации соответствующей целевой функции, были взяты ранее найденные параметры для $\text{HoFe}_3(\text{BO}_3)_4$ [17] и $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$ [16]. Также в качестве начального рассматривался ранее найденный нами при описании только кривых восприимчивости и теплоемкости предварительный набор параметров КП для $\text{Ho}_{0.5}\text{Nd}_{0.5}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ [13]. Уставлено, что наилучшее описание всего набора экспериментальных характеристик достигается с параметрами (в см^{-1})

$$B_0^2 = 410, B_0^4 = -1250, B_3^4 = 870, B_0^6 = 350, \\ B_3^6 = 110, B_6^6 = 150. \quad (8)$$

Набору параметров КП (8) соответствуют приведенные в табл. 1 значения энергий восьми нижних штарковских уровней основных мультиплетов ионов Ho^{3+} и Nd^{3+} в $\text{Ho}_{0.5}\text{Nd}_{0.5}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ для $B = 0$: при $T > T_N$ и с учетом f - d -взаимодействия при

Таблица 1. Значения энергий восьми нижних уровней основных мультиплетов ионов Ho^{3+} и Nd^{3+} в $\text{Ho}_{0.5}\text{Nd}_{0.5}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$, расщепленных кристаллическим полем и с учетом $f-d$ -взаимодействия при $B = 0$ в парамагнитной и упорядоченной областях температур.

R	T	$\Delta = E_i - E_1, \text{cm}^{-1} (i = 1-8)$
Ho	$T > T_N$	0, 0, 12.5, 12.5, 16.9, 38, 152.6, 178.7
	$10 \text{ K} > T_{\text{SR}}$	0, 2.2, 17.9, 19.8, 29.3, 46.4, 156.6, 182.8
	$2 \text{ K} < T_{\text{SR}}$	0, 10.9, 19.3, 25.9, 30.8, 51.4, 160.7, 179.4
Nd	$T > T_N$	0, 0, 39.7, 39.7, 48.6, 48.6, 202.6, 202.6
	$10 > T_{\text{SR}}$	0, 7.5, 44.2, 44.2, 50.5, 56, 207, 207
	$2 \text{ K} < T_{\text{SR}}$	0, 7.3, 39.1, 48, 50.1, 57.5, 202, 212

$T = 10 \text{ K} > T_{\text{SR}}$ (ЛП-состояние) и $T = 2 \text{ K} < T_{\text{SR}}$ (начальное угловое состояние). Видно, что при $T < T_N$ учет $f-d$ -взаимодействия приводит к снятию вырождения энергетических уровней. При T_{SR} энергетические уровни сдвигаются друг относительно друга и происходит изменение величины их расщепления: в случае Ho (стабилизирующего ЛО-состояние) расщепление нижних уровней увеличивается от $\Delta_{fd} \approx 2.2$ до 10.9 cm^{-1} , а в слу-

чае Nd (стабилизирующего ЛП-состояние) происходит небольшое сужение уровней от $\Delta_{fd} \approx 7.5$ до 7.3 cm^{-1} .

Представленные далее на рисунках магнитные характеристики рассчитаны для параметров из табл. 2, в которой также приведены для сравнения параметры $\text{HoFe}_3(\text{BO}_3)_4$ и $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$. Кроме того, в расчетах участвовали одноосные константы анизотропии Fe-подсистемы ($K_2^{\text{Fe}} = -2.85 \text{ T} \cdot \mu_B$ и $K_4^{\text{Fe}} = 0.55 \text{ T} \cdot \mu_B$ при $T = 4.2 \text{ K}$) и константа анизотропии железа в базисной плоскости ($K_{66}^{\text{Fe}} = -1.35 \cdot 10^{-2} \text{ T} \mu_B$ [16]). Значения K_2^{Fe} и K_4^{Fe} согласуются с определенными при описании углового состояния в $\text{Pr}_x\text{Y}_{1-x}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ соответствующими одноосными константами [22] и результатами исследования антиферромагнитного резонанса в $\text{YFe}_3(\text{BO}_3)_4$ [23], согласно которым при обменном поле для Fe-подсистемы $H_E = 55 \text{ T}$ эффективное поле анизотропии получится равным $H_A^{\text{Fe}} = 0.183 \text{ T}$, откуда при $M^{\text{Fe}} = 3 \cdot 5 \mu_B$ константа $K_2^{\text{Fe}} = -2.75 \text{ T} \cdot \mu_B$.

Для расчета магнитных характеристик $\text{Ho}_{0.5}\text{Nd}_{0.5}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ при направлении внешнего магнитного поля вдоль и перпендикулярно тригональной оси с использовались изображенные на рис. 1 схемы ориентаций магнитных моментов железа \mathbf{M}_i^{Fe} и редкой земли $\mathbf{m}_i = \mathbf{m}_i^{\text{Nd}_{0.5}} + \mathbf{m}_i^{\text{Dy}_{0.5}}$.

Таблица 2. Параметры $\text{Ho}_{0.5}\text{Nd}_{0.5}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ и для сравнения $\text{HoFe}_3(\text{BO}_3)_4$ [20] и $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$ [16]: B_{dd1} (внутрицепочечное Fe–Fe), B_{dd2} (межцепочечное Fe–Fe) и B_{fd} — низкотемпературные значения обменных полей, соответствующих молекулярным константам λ_1, λ_2 и λ_{fd} ; $M_0 = |M_i(T = 0, B = 0)| = 15 \mu_B$ — магнитный момент железа в расчете на одну формульную единицу; Δ_{fd} — низкотемпературное расщепление основного состояния R -иона вследствие $f-d$ -взаимодействия (в угловой (УГ), ЛО- и ЛП-состояниях); T_{SR} — температура спин-переориентационного перехода; θ_1 — угол отклонения \mathbf{M}_1^{Fe} от оси c ; T_N — температура Нееля; Θ — парамагнитная температура Нееля для Fe-подсистемы.

Соединение	$\text{HoFe}_3(\text{BO}_3)_4$	$\text{Ho}_{0.5}\text{Nd}_{0.5}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$		$\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$
$B_{\text{dd1}} = \lambda_1 M_0, \text{T}$ $\lambda_1, \text{T}/\mu_B$	68 –4.53	55 –3.67		58 –3.87
$B_{\text{dd2}} = \lambda_2 M_0, \text{T}$ $\lambda_2, \text{T}/\mu_B$	26 –1.73	28 –1.87		27 –1.8
$B_{fd} = \lambda_{fd} M_0, \text{T}$	3.49	3.7 (Ho) 7.3 (Nd)		7.1
$\lambda_{fd}, \text{T}/\mu_B$	–0.23	–0.25 (Ho) –0.49 (Nd)		–0.47
$\Delta_{fd} = \mu_B g \lambda_{fd} M_0, \text{cm}^{-1}$	~ 10.6 (ЛО) ~ 9.7 (ЛП)	Ho	~ 10.9 (УГ) ~ 2.2 (ЛП)	8.8 (ЛП)
		Nd	~ 7.3 (УГ) ~ 7.5 (ЛП)	
T_{SR}, K	$\sim 4.7-5$ [8,3,21]	~ 8 ~ 9 [3]		
$\theta_1, ^\circ (B = 0)$	0 ($T < T_{\text{SR}}$) 90 ($T > T_{\text{SR}}$)	$\sim 46.8 (T = 2 \text{ K} < T_{\text{SR}})$ 90 ($T > T_{\text{SR}}$)		90
T_N, K	$\sim 37.4-39$ [8,3,21]	~ 32 ~ 32 [3]		~ 31 [4]
Θ, K	–210	–120		–130

Экспериментальные кривые намагничивания $M_{c,\perp c}(B)$ $\text{Ho}_{0.5}\text{Nd}_{0.5}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ при $T = 2\text{--}40\text{ К}$ приведены на рис. 2 для направления магнитного поля вдоль тригональной оси $\mathbf{B} \parallel \mathbf{c}$ (a) и в базисной плоскости $\mathbf{B} \perp \mathbf{c}$ (b). При $T < 10\text{ К}$ скачки намагниченности хорошо видны на $M_c(B)$ и различимы на $M_{\perp c}(B)$. Для $T \geq 10\text{ К}$ кривые $M_{c,\perp c}(B)$ не демонстрируют аномалий. Таким образом, температура $T = 10\text{ К}$, близкая к температуре спин-переориентационного перехода $T_{\text{SR}} \approx 9\text{ К}$ [3], разбивает исследованный температурный диапазон на две области — с обнаруженными на $M_{c,\perp c}(B)$ аномалиями (при $T < 10\text{ К}$) и без аномалий (при $T \geq 10\text{ К}$). Данный факт подтверждают и полевые зависимости магнитоэлектрической поляризации $\varepsilon_a(\text{Вa})$ при $T = 5$ и 10 К , показанные на следующем рис. 3, a. Видно существенное отличие в характере поведения $\varepsilon_a(\text{Вa})$ при изменении температуры.

Наибольший интерес вызывает кривая $M_c(B)$ при $T = 2\text{ К}$, на которой обнаружены три скачка намагниченности вблизи $B \approx 1, 1.3$ и 2.9 Т (отмечены стрелками на рис. 2, a). Три скачка обнаружены и при вводе, и при выводе магнитного поля и хорошо видны на кривых дифференциальной магнитной восприимчивости (см. вставку на рис. 4). С возрастанием температуры третий скачок вблизи 2.9 Т становится практически невидимым уже при $T = 5\text{ К}$, а второй скачок различим до $T = 7\text{ К}$ (вблизи 0.9 Т , см. рис. 2, a). Для поля в базисной плоскости на $M_{\perp c}(B)$ видна только одна аномалия при $T < 10\text{ К}$.

Согласно результатам [13] начальным низкотемпературным состоянием магнитной подсистемы $\text{Ho}_{0.5}\text{Nd}_{0.5}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ при $B = 0$ является угловое состояние, с отклоненными от оси c магнитными моментами железа (см. схему a на рис. 1). Таким образом, наблюдаемые при $T < 10\text{ К}$ аномалии на $M_{c,\perp c}(B)$ (рис. 2) обусловлены спиновой переориентацией в Fe-подсистеме от начальной угловой фазы (схема a на рис. 1) во флоп-фазу (схема d для $\mathbf{B} \parallel \mathbf{c}$ и аналогичная схема для $\mathbf{B} \perp \mathbf{c}$).

Проведенные обширные расчеты магнитных фаз, которые могут быть реализованы в $\text{Ho}_{0.5}\text{Nd}_{0.5}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ при разных ориентациях магнитных моментов Ho-, Nd- и Fe-подсистем, позволили сделать предположение, что наблюдаемый на $M_c(B)$ при $T = 2\text{ К}$ трехступенчатый вид скачка намагниченности обусловлен наличием промежуточных состояний между начальной угловой фазой (схема a) и флоп фазой (схема d). Первый, более яркий, скачок на $M_c(B)$ при B_{SR1} связан с реализацией в полях $B_{\text{SR1}} < B < B_{\text{SR2}}$ промежуточной угловой фазы с существенно большим, чем в начальной фазе ($\theta \approx 46.8^\circ$), углом отклонения магнитных моментов Fe от оси c $\theta_{\text{SR1}} \approx 71^\circ$ (при B_{SR1} , см. схему c). Второй, менее выраженный, скачок при B_{SR2} обусловлен переориентацией магнитных моментов Fe из промежуточного состояния с $\theta_{\text{SR1}} \approx 71^\circ$ в состояние с $\theta_{\text{SR2}} \approx 72.5^\circ$ (при B_{SR2} , схема c). Третий скачок обусловлен спиновой переориентацией из промежуточного состояния с $\theta_{\text{SR2}} \approx 72.5^\circ$

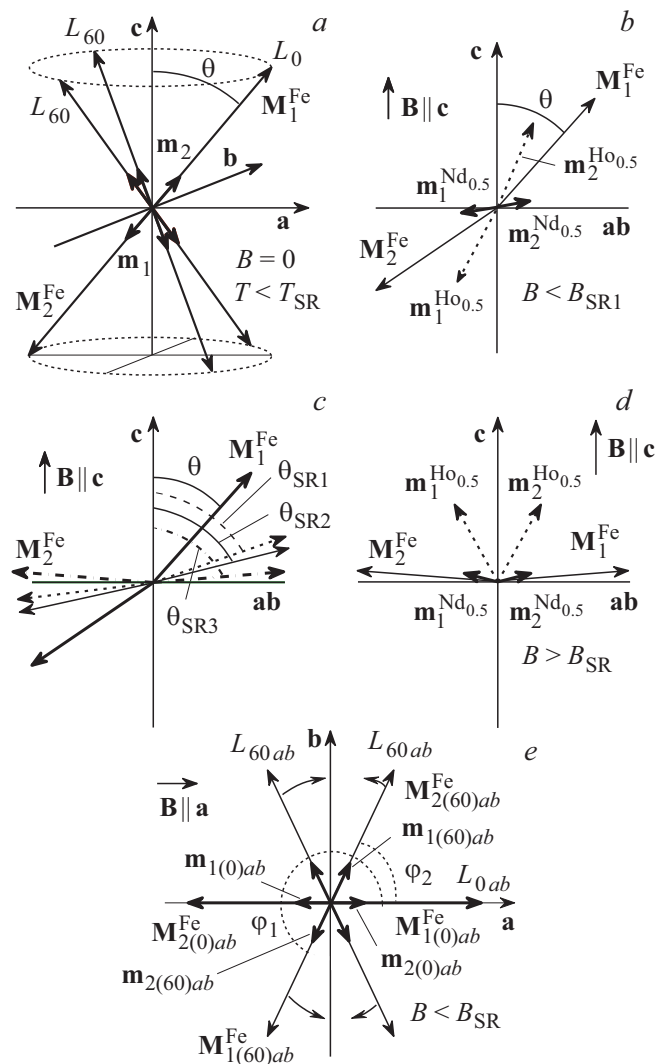


Рис. 1. Схемы ориентаций магнитных моментов железа \mathbf{M}_i^{Fe} и редкой земли $\mathbf{m}_i = \mathbf{m}_i^{\text{Ne}_{0.5}} + \mathbf{m}_i^{\text{Dy}_{0.5}}$, использованные при расчете магнитных характеристик $\text{Ho}_{0.5}\text{Nd}_{0.5}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$. Схема a — при $B = 0$ угловое состояние (конус осей легкого намагничивания). Схемы b, c и d — при $\mathbf{B} \parallel \mathbf{c}$ (плоскость ab перпендикулярна плоскости рисунка). Схема e — $\mathbf{B} \perp \mathbf{c}$ (ось c перпендикулярна плоскости рисунка) показаны проекции магнитных моментов на плоскость ab в доменах с осями антиферромагнетизма под углами к оси a $\varphi_i = 0(L_0)$ и $\varphi_i = \pm 60^\circ(L_{60})$.

во флоп-фазу ($\theta_{\text{SR3}} \rightarrow 90^\circ$, схема c) и сопровождается переориентацией вдоль направления поля $\mathbf{B} \parallel \mathbf{c}$ магнитных моментов обеих подрешеток ионов Ho^{3+} и Nd^{3+} (схема d). Таким образом, процесс трансформации магнитной подсистемы $\text{Ho}_{0.5}\text{Nd}_{0.5}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ при $T = 2\text{ К}$ с ростом поля $\mathbf{B} \parallel \mathbf{c}$ проходит следующие последовательные стадии (по изменению угла отклонения магнитных моментов Fe от оси c , см. схему c): θ (при $B = 0$) $\rightarrow \theta_{\text{SR1}}$ (при B_{SR1}) $\rightarrow \theta_{\text{SR2}}$ (при B_{SR2}) $\rightarrow \theta_{\text{SR3}}$ (при B_{SR3} , флоп фаза).

Причиной реализации возможных индуцированных магнитным полем промежуточных состояний с некол-

линейной антиферромагнитной структурой является конкуренция вкладов от Ho-, Nd- и Fe-подсистем в полную магнитную анизотропию $\text{Ho}_{0.5}\text{Nd}_{0.5}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ и энергии Зеемана. Магнитная анизотропия Nd- и Fe-подсистем стабилизирует ЛП-магнитную структуру. Гольмиевая подсистема стабилизирует ЛО-магнитную структуру. В результате при определенных значениях температуры и поля магнитные моменты железа могут быть ориентированы под углом θ к оси c . С ростом магнитного поля достигнутый в слабых полях баланс вкладов нарушается, в результате при $T < T_{\text{SR}}$ в диапазонах полей $B_{\text{SR1}} < B < B_{\text{SR2}}$ и $B_{\text{SR2}} < B < B_{\text{SR3}}$ стабилизируются промежуточные состояния с магнитными моментами Fe, ориентированными относительно оси c под большим углом θ , чем в предыдущем состоянии. Ранее в работе [24] и затем в [25] при исследовании также проявляющего спин-переориентационный переход ферробората $\text{GdFe}_3(\text{BO}_3)_4$ был сделан вывод об отклонении магнитных моментов Fe от оси c на большие вели-

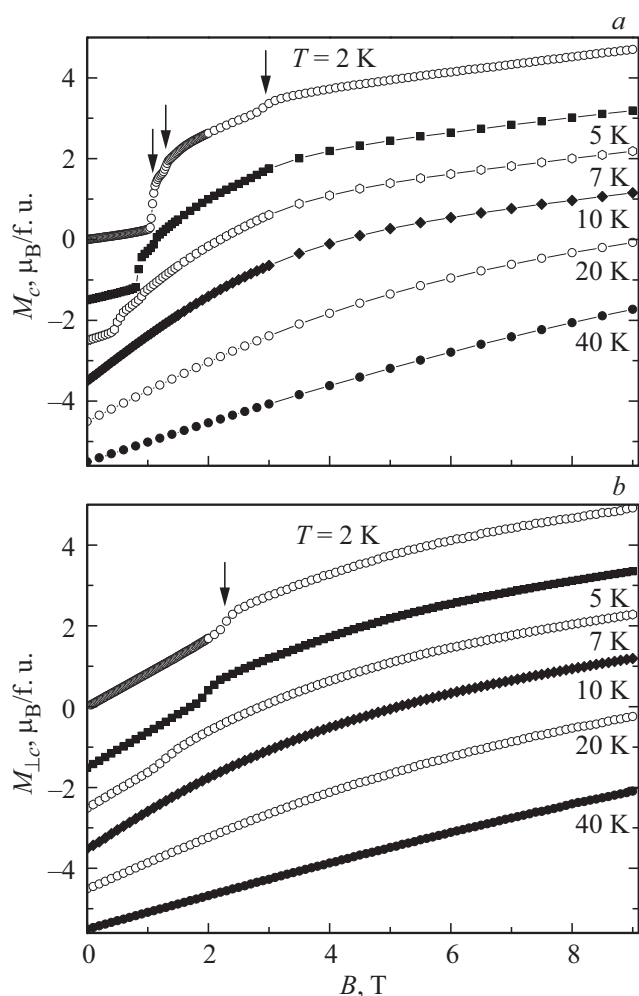


Рис. 2. Экспериментальные кривые намагничивания $M_{c,\perp c}(B)$ $\text{Ho}_{0.5}\text{Nd}_{0.5}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ для $\mathbf{B} \parallel c$ (a) и $\mathbf{B} \perp c$ (b) при $T = 2$ (0), 5 (−1.5), 7 (−2.5), 10 (−3.5), 20 (−4.5), 40 (−5.5) К (в скобках приведены коэффициенты сдвига по вертикальной оси).

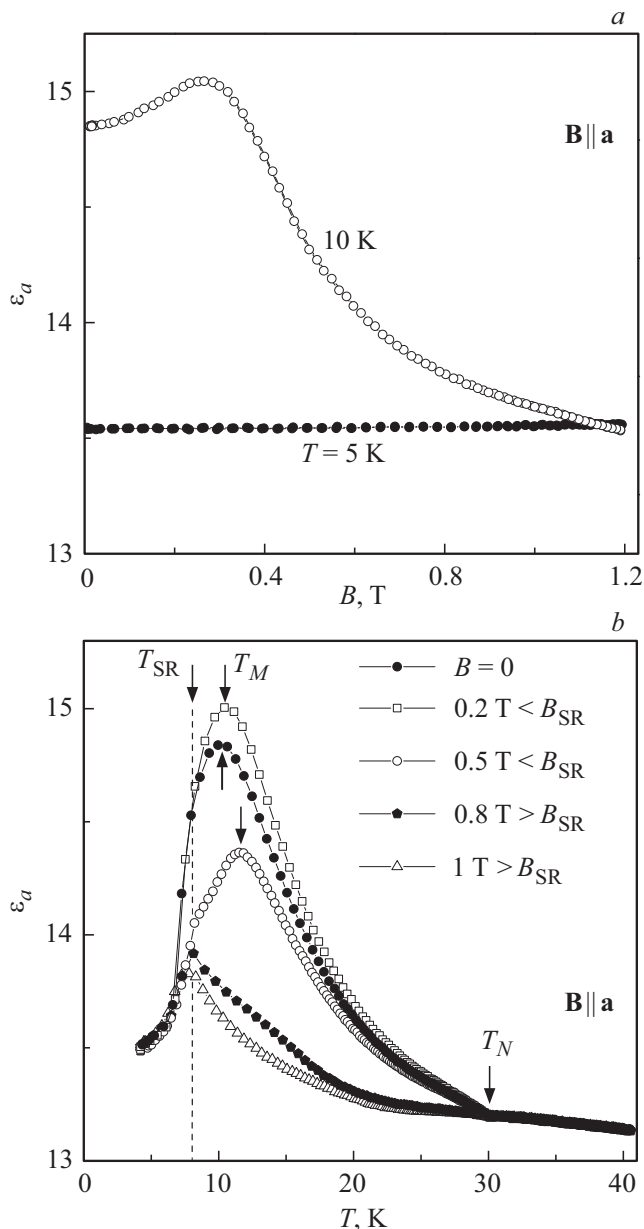


Рис. 3. Зависимость диэлектрической проницаемости ϵ_a вдоль оси a кристалла $\text{Ho}_{0.5}\text{Nd}_{0.5}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ (на частоте 10 kHz) от магнитного поля $\mathbf{B} \parallel a$ (при $T = 2 \text{ K} < T_{\text{SR}}$ и $T = 10 \text{ K} > T_{\text{SR}}$) (a) и от температуры при $\mathbf{B} \parallel a$ (b). T_M — температура при которой происходит трансформация доменной структуры $\text{Ho}_{0.5}\text{Nd}_{0.5}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ в ЛП-состоянии при $\mathbf{B} \parallel a$ и $B < B_{\text{SR}}$.

ны углов, меняющихся при разных температурах и значениях магнитного поля. Возможность реализации начального углового состояния недавно подтвердилась экспериментально в ферроборате $\text{Pr}_x\text{Y}_{1-x}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ [26]. Отметим также, что расчет по аналогичному механизму трансформации магнитной подсистемы позволил объяснить ступенчатые аномалии в ферроборатах $\text{Nd}_{1-x}\text{Dy}_x\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ [7] и $\text{Pr}_x\text{Y}_{1-x}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ [22]. Результирующая намагниченность вдоль оси c в диапазоне

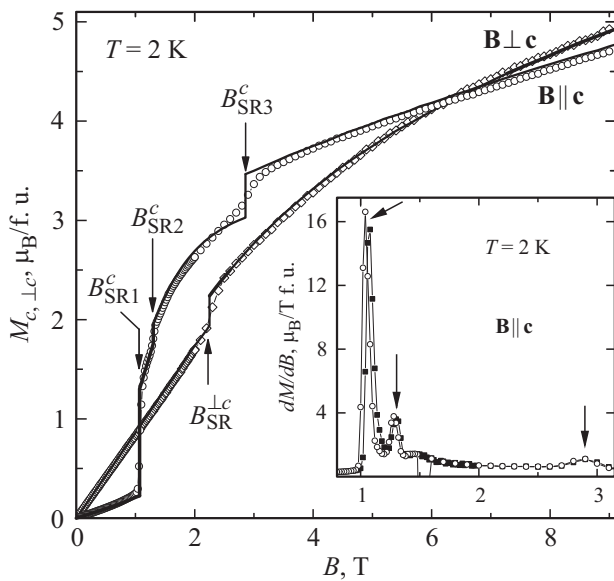


Рис. 4. Экспериментальные (значки) и рассчитанные (линии) кривые намагничивания $\text{Ho}_{0.5}\text{Nd}_{0.5}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ для $\mathbf{B} \parallel \mathbf{c}$ и $\mathbf{B} \perp \mathbf{c}$ при $T = 2$ К. На вставке — кривые дифференциальной магнитной восприимчивости dM/dB при вводе (темные значки) и при выводе (светлые значки) магнитного поля.

температур $T < 10$ К рассчитывалась по следующим формулам:

I. В начальной угловой фазе при $0 \leq B < B_{\text{SR}1}$ (схема *b* на рис. 1, $\theta_1 = 46.8^\circ$ при $B = 0$):

$$M_c = \frac{1}{2} \left(M_1^{\text{Fe}} \cos(\theta_1) + M_2^{\text{Fe}} \cos(\theta_2) + 0.5(m_{2c}^{\text{Ho}} - m_{1c}^{\text{Ho}}) + 0.5(m_{2c}^{\text{Nd}} - m_{1c}^{\text{Nd}}) \right). \quad (9)$$

II. В промежуточной фазе при $B_{\text{SR}1} < B < B_{\text{SR}2}$ по формуле (9), в которой $\theta_1 = \theta_{\text{SR}1} \approx 71^\circ$ при $B_{\text{SR}1}$ (схема *c*).

III. В промежуточной фазе при $B_{\text{SR}2} < B < B_{\text{SR}3}$ по формуле (9), в которой $\theta_1 = \theta_{\text{SR}2} \approx 72.5^\circ$ при $B_{\text{SR}1}$ (схема *c*).

IV. Во флоп-фазе при $B > B_{\text{SR}3}$ и $\theta_1 = \theta_2 = \theta_{\text{SR}3}$ (схема *d*):

$$M_{\text{flop}} = \frac{1}{2} \left(M_{1,2c}^{\text{Fe}} + 0.5m_{1,2c}^{\text{Ho}} + 0.5m_{1,2c}^{\text{Nd}} \right). \quad (10)$$

Из рис. 4 видно, что расчет намагниченности по формулам (9) и (10) позволил достигнуть хорошего описания ступенчатых аномалий на $M_c(B)$ при $T = 2$ К.

Рост температуры приводит к сглаживанию скачков намагничивания и к отсутствию различного на экспериментальных кривых при $T = 5$ и 7 К в поле $B_{\text{SR}3}$ промежуточного состояния, вследствие реализации в полях $B_{\text{SR}1} < B < B_{\text{SR}2}$ угловой фазы с близкими к плоскости *ab* углами отклонения железа. В результате при $T = 5$ и 7 К реализуется только одно промежуточное

состояние с $\theta_{\text{SR}1}$ и затем в поле $B_{\text{SR}2}$ происходит переход во флоп-фазу (схема *d*). Отметим, что учитывая установленную корреляцию магнитных, магнитоэлектрических и магнитоупругих свойств ферроборатов [4], обнаруженные множественные особенности на кривых $M_c(B)$ при $T = 2, 5$ К проясняют природу обнаруженных скачков и перегибов на полевой зависимости поляризации $P_a(H_c)$ $\text{Ho}_{0.5}\text{Nd}_{0.5}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ при $T = 5$ К из работы [3] (см. рис. 15, *b* в [3]).

Для $T > T_{\text{SR}}$ кривые $M_c(B)$ не обнаруживают видимых аномалий (рис. 2), магнитные моменты Ho-, Nd- и Fe-подсистем лежат в плоскости *ab*, и расчет проводился по формуле (10). Пример описания экспериментальной кривой $M_c(B)$ из данного диапазона (при $T = 10$ К) показан на рис. 5.

При намагничивании тригонального кристалла $\text{Ho}_{0.5}\text{Nd}_{0.5}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ в базисной плоскости *ab* в малых полях вклад в намагниченность дают все три возможных домена с осями антиферромагнетизма под углом 120° друг к другу (см. схему *e* на рис. 1). Расчет кривых $M_{\perp c}(B)$ для $B < B_{\text{SR}} \approx 2.3$ Т (при $T = 2$ К) проведен в соответствии с подходом, примененном при исследовании процессов намагничивания с учетом возможного существования трех типов доменов в ЛП ферроборате $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$ [16] и в ферроборате с угловым начальным состоянием $\text{Sm}_{0.7}\text{Ho}_{0.3}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ [18]. Аномалия на $M_{\perp c}(B)$ при $T < T_{\text{SR}}$ (рис. 1, 4) обусловлена спин-переориентационным переходом из начальной угловой

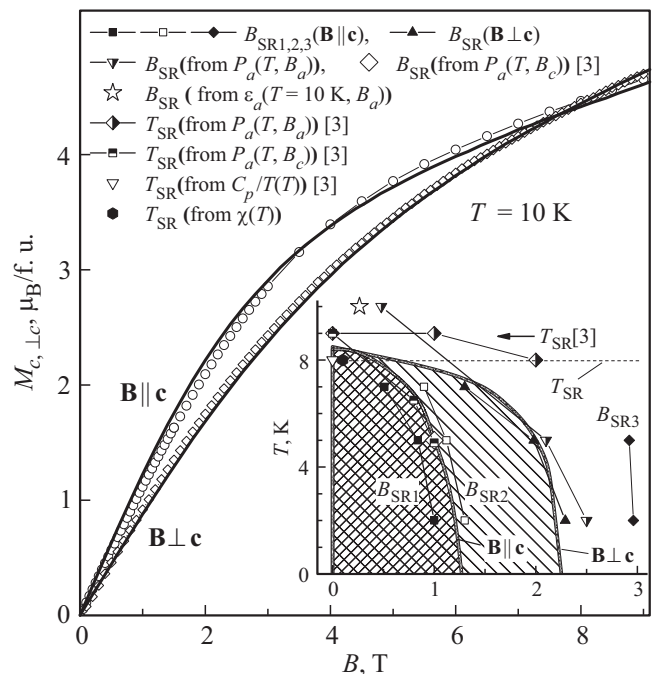


Рис. 5. Экспериментальные (значки) и рассчитанные (линии) кривые намагничивания $\text{Ho}_{0.5}\text{Nd}_{0.5}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ для $\mathbf{B} \parallel \mathbf{c}$ и $\mathbf{B} \perp \mathbf{c}$ при $T = 10$ К. На вставке — фазовая диаграмма, построенная на основании полученных данных и известных из работы [3]. Выделенные разной штриховкой области — фазовая диаграмма из работы [3].

фазы (схема *a* при $B = 0$ и схема *e* — в проекции на плоскость ab при $\mathbf{B} \parallel \mathbf{a}$) во флоридную фазу. Видно, что рассчитанная намагниченность при температуре до ($T = 2 \text{ K} < T_{\text{SR}}$, рис. 4) и после ($T = 10 \text{ K} > T_{\text{SR}}$, рис. 5) спин-переориентационного перехода достаточно хорошо описывает эксперимент.

На вставке рис. 5 приведена фазовая диаграмма, построенная на основании полученных нами экспериментальных данных и данных из литературы. Выделенные разной штриховкой области на данном рисунке — фазовая диаграмма $\text{Ho}_{0.5}\text{Nd}_{0.5}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ из работы [3]. Видно, что для $\mathbf{B} \parallel \mathbf{c}$ и $T < T_{\text{SR}}$ по данным [3] граница индуцированного полем фазового перехода располагается между областями устойчивости промежуточных фаз при $B_{\text{SR}1}$ и $B_{\text{SR}2}$ (сплошные и открытые квадраты). Для поля в базисной плоскости при $T < T_{\text{SR}}$ по данным [3], полученным для $\mathbf{B} \parallel \mathbf{a}$, граница фазового перехода практически совпадает с обнаруженными нами на $M_{\perp c}(B)$ полями переходов (треугольники). Также на фазовой диаграмме приведены данные о T_{SR} , полученные из кривых $\chi_{c,\perp c}(T)$, $C_p/T(T)$ [3] и кривых поляризации $P_a(T, B)$ [3].

Из рис. 1 и из фазовой диаграммы (вставка на рис. 5) хорошо видно, что значение поля спин-переориентационного перехода B_{SR} падает с ростом температуры, т.е. с ростом температуры исходная угловая фаза оказывается менее устойчивой, несмотря на возрастающую параллельную восприимчивость Fe-подсистемы. Данная зависимость $B_{\text{SR}}(T)$ отличается от имеющихся в $R\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ с $R = \text{Pr}, \text{Nd}, \text{Tb}, \text{Dy}$, в которых поле B_{SR} росло с ростом температуры, как это чаще всего и бывает для одноосных антиферромагнетиков. Подобное поведение зависимости $B_{\text{SR}}(T)$ было обнаружено для $\text{HoFe}_3(\text{BO}_3)_4$ [21] и обусловлено возрастающей близостью температур, при которых измерены кривые $M_c(B)$, к температуре спин-переориентационного перехода T_{SR} . При увеличении температуры происходит уменьшение суммарной эффективной константы анизотропии соединения от R- и Fe-подсистем.

На следующем рис. 6 изображены экспериментальные и теоретические температурные зависимости восприимчивости $\chi_{c,\perp c}(T)$. На экспериментальных зависимостях $\chi_{c,\perp c}(T)$, измеренных при $B = 0.1 \text{ T}$, вблизи 8 К наблюдается резкое уменьшение с понижением температуры восприимчивости $\chi_c(T)$ и небольшое скачкообразное увеличение $\chi_{\perp c}(T)$. Аналогичное поведение $\chi_a(T)$ вблизи 8 К (при $B = 0.1 \text{ T}$) и $\chi_c(T)$ вблизи 9 К (при $B = 0.02 \text{ T}$) было обнаружено в работе [3].

Установлено, что угловая фаза с $\theta \approx 46.8^\circ$ (при $T = 2 \text{ K}$) позволяет объяснить и количественно описать наблюдаемые на экспериментальных $\chi_{c,\perp c}(T)$ вблизи 8 К аномалии. Резкое уменьшение $\chi_c(T)$ и более слабо выраженный скачок на $\chi_{\perp c}(T)$ при $T \approx 8 \text{ K}$ обусловлены сменой при понижении температуры ЛП-состояния на угловое состояние. Данный спин-переориентационный переход обусловлен различными температурными зависимостями конкурирующих вкладов редкоземельных

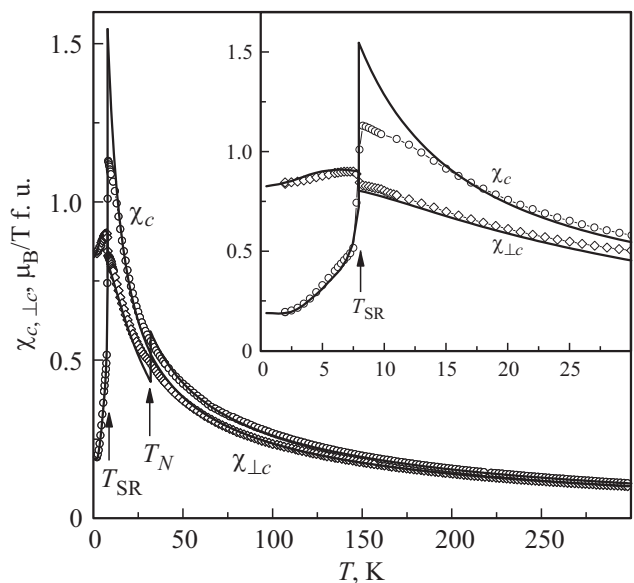


Рис. 6. Экспериментальные (значки) и рассчитанные (линии) температурные зависимости магнитной восприимчивости $\text{Ho}_{0.5}\text{Nd}_{0.5}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ вдоль (χ_c) и перпендикулярно ($\chi_{\perp c}$) тригональной оси при $B = 0.1 \text{ T}$ (на вставке — низкотемпературный диапазон кривых $\chi_{c,\perp c}(T)$).

(Ho и Nd) и Fe-подсистем в полную магнитную анизотропию $\text{Ho}_{0.5}\text{Nd}_{0.5}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$. Видно, что расчет намагниченности в поле $B = 0.1 \text{ T}$ в начальной угловой фазе ($T < T_{\text{SR}}$, схема *b* для $\chi_c(T)$ и схема *e* для $\chi_{\perp c}(T)$) и в ЛП-состоянии ($T > T_{\text{SR}}$, схема *d* для $\chi_c(T)$ и аналогичная схема для $\chi_{\perp c}(T)$) хорошо описывает экспериментальные кривые (рис. 6).

Отметим, что поведение экспериментальных кривых $\chi_{c,\perp c}(T)$ в ранее неисследованном диапазоне температур $T = 20\text{--}300 \text{ K}$, подтверждает сделанный ранее на основании расчетов [13] вывод о слабоанизотропном поведении восприимчивости $\chi_{c,\perp c}(T)$ при $T > 20 \text{ K}$.

На рис. 3, *b* приведены температурные зависимости действительной части диэлектрической проницаемости ϵ_a вдоль оси *a* кристалла на частоте 10 кГц. Видно, что практически не изменяясь в парамагнитной области, диэлектрическая проницаемость начинает сильно возрастать ниже температуры Нееля. При этом, определенная из кривых теплоемкости [3] и восприимчивости температура $T_{\text{SR}} \approx 8 \text{ K}$, находится примерно в середине диапазона, соответствующего наибольшему уменьшению $\epsilon_a(T)$ при $B = 0$, а также проявляется в виде излома (при $B = 0.5 \text{ T}$) и пика (при $B = 0.8, 1 \text{ T}$) на $\epsilon_a(T)$. Приложение магнитного поля в базисной плоскости приводит с понижением температуры от T_N в малом поле $B = 0.2 \text{ T}$ к небольшому увеличению ϵ_a , а затем с ростом поля к ее монотонному существенному уменьшению. В целом зависимости $\epsilon_a(T)$ демонстрируют либо две (при $B < B_{\text{SR}}$), либо одну (при $B > B_{\text{SR}}$) аномалии — при температуре T_M и затем с понижением температуры вблизи $T_{\text{SR}} \approx 8 \text{ K}$. Измерения $\epsilon_a(B, T)$

в частотном диапазоне 10 kHz–2 MHz показали, что частотная зависимость диэлектрической проницаемости отсутствует в диапазоне 10 kHz–200 kHz. Представленные на рис. 3, *b* зависимости $\epsilon_a(T)$ $\text{Ho}_{0.5}\text{Nd}_{0.5}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ согласуются с кривыми $\epsilon_a(T)$ для $\text{HoFe}_3(\text{BO}_3)_4$ [3], на которых также зафиксированы две аномалии — широкий пик вблизи 10 К (при T_M) и резкое уменьшение при $T_{SR} \approx 5$ К. Поскольку аномалия на $\epsilon_a(T)$ при T_M видна в диапазоне полей $B = 0 - 0.5$ Т и при $T > T_{SR}$, а затем пропадает при $B \geq 0.8$ Т, то причиной данной аномалии является трансформация доменной структуры $\text{Ho}_{0.5}\text{Nd}_{0.5}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ в ЛП состоянии при $\mathbf{B} \parallel \mathbf{a}$. Как показано в работах [16,18] для направления поля $\mathbf{B} \parallel \mathbf{a}$ в ЛП ферроборатах в базисной плоскости происходит спин-флоп-переход в одном из трех доменов, являющихся следствием тригональной симметрии. Обнаруженное увеличение значения $\epsilon_a(T)$ вблизи температуры T_M в слабом поле $\mathbf{B} \parallel \mathbf{a}$ (см. кривую при $B_a = 0.2$ Т на рис. 3, *b*), а затем существенное уменьшение $\epsilon_a(T)$ при дальнейшем выростании поля B_a соответствуют обнаруженной немонотонной зависимости от поля $\epsilon_a(B_a)$ при $T = 10$ К (рис. 3, *b*), на которой видно возрастание $\epsilon_a(B_a)$ в малых полях, а затем ее уменьшение с ростом поля.

Установлено, что рассчитанный с параметрами КП (8) вклад R-подсистемы в теплоемкость и составляющие данного вклада от Ho- и Nd-подсистем демонстрируют хорошее согласие с экспериментальной кривой $C_p/T(T)$ $\text{Ho}_{0.5}\text{Nd}_{0.5}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ при $B = 0$ [3], на которой хорошо виден обусловленный спин-переориентационным переходом резкий пик вблизи 8 К. Рассчитанный вклад R-подсистемы и степень его согласия с экспериментом аналогичны показанному ранее в работе [13].

5. Заключение

Проведено экспериментальное и теоретическое исследование магнитных и магнитодиэлектрических свойств $\text{Ho}_{0.5}\text{Nd}_{0.5}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ с конкурирующими обменными Ho–Fe- и Nd–Fe-взаимодействиями и получено согласие теории и эксперимента для всей совокупности измеренных характеристик. Единый теоретический подход позволил определить актуальные параметры при сравнении результатов расчета с экспериментальными данными.

Предложенный возможный вариант процессов намагничивания в магнитных полях до 9 Т с реализацией угловой магнитной структуры позволил в деталях проанализировать поведение магнитных моментов Ho-, Nd- и Fe-подсистем и описать аномалии на низкотемпературных кривых намагничивания $M_{c,\perp c}(B)$ при фазовых переходах от начальной фазы в промежуточную (одну или две, в зависимости от температуры) и затем во флоп-фазу.

Описан спонтанный спин-переориентационный переход, проявляющийся яркой аномалией на кривой восприимчивости $\chi_c(T)$ и менее выраженной на $\chi_{\perp c}(T)$. Рассчитанный вклад редкоземельной подсистемы в теплоемкость $\text{Ho}_{0.5}\text{Nd}_{0.5}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ воспроизводит результаты эксперимента и дает возможность понять степень ответственности составляющих редкоземельного вклада за наблюдаемые аномалии Шоттки и результирующий вид теплоемкости.

Список литературы

- [1] А.К. Звездин, С.С. Кротов, А.М. Кадомцева, Г.П. Воробьев, Ю.Ф. Попов, А.П. Пятаков, Л.Н. Безматерных, Е.А. Попова. Письма в ЖЭТФ **81**,335 (2005).
- [2] E.A. Popova, D.V. Volkov, A.N. Vasiliev, A.A. Demidov, N.P. Kolmakova, I.A. Gudim, L.N. Bezmaternykh, N. Tristan, Yu. Skourski, B. Buechner, C. Hess, R. Klingeler. Phys. Rev. B **75**, 224413 (2007).
- [3] R.P. Chaudhury, F. Yen, B. Lorenz, Y.Y. Sun, L.N. Bezmaternykh, V.L. Temerov, C.W. Chu. Phys. Rev. B **80**, 104424 (2009).
- [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] K.-C. Liang, R.P. Chaudhury, B. Lorenz, Y.Y. Sun, L.N. Bezmaternykh, V.L. Temerov, C.W. Chu. Phys. Rev. B **83**, 180417(R) (2011).
- [6] Ю.Ф. Попов, А.М. Кадомцева, Г.П. Воробьев, А.А. Мухин, В.Ю. Иванов, А.М. Кузьменко, А.С. Прохоров, Л.Н. Безматерных, В.Л. Темеров. Письма в ЖЭТФ **89**, 405 (2009).
- [7] А.А. Демидов, И.А. Гудим, Е.В. Еремин. ЖЭТФ **141**, 294 (2012).
- [8] C. Ritter, A. Vorotynov, A. Pankrats, G. Petrakovskii, V. Temerov, I. Gudim, R. Szymczak. J. Phys.: Condens. Matter **20**, 365209 (2008).
- [9] D.K. Shukla, S. Francoual, A. Skaugen, M. Zimmermann, H.C. Walker, L.N. Bezmaternykh, I.A. Gudim, V.L. Temerov, J. Stempfer. Phys. Rev. B **86**, 224421 (2012).
- [10] А.К. Звездин, Г.П. Воробьев, А.М. Кадомцева, Ю.Ф. Попов, А.П. Пятаков, Л.Н. Безматерных, А.В. Кувардин, Е.А. Попова. Письма в ЖЭТФ **83**, 600 (2006).
- [11] E.A. Popova, A.N. Vasiliev, V.L. Temerov, L.N. Bezmaternykh, N. Tristan, R. Klingeler, B. Buchner. J. Phys.: Condens. Matter **22**, 116006 (2010).
- [12] R.P. Chaudhury, B. Lorenz, Y.Y. Sun, L.N. Bezmaternykh, V.L. Temerov, C.W. Chu. J. App. Phys. **107**, 09D913 (2010).
- [13] A.A. Demidov. Physica B **440**, 73 (2014).
- [14] L.N. Bezmaternykh, V.L. Temerov, I.A. Gudim, N.A. Stolbovaya. Crystallogr. Rep. **50**, S97 (2005).
- [15] I.A. Gudim, E.V. Eremin, V.L. Temerov. J. Cryst. Growth **312**, 2427 (2010).
- [16] Д.В. Волков, А.А. Демидов, Н.П. Колмакова. ЖЭТФ **131**, 1030 (2007).
- [17] А.А. Демидов, Д.В. Волков. ФТТ **53**, 926 (2011).
- [18] А.А. Демидов, И.А. Гудим, Е.В. Еремин. ЖЭТФ **142**, 928 (2012).
- [19] Ю.В. Герасимова, С.Н. Софронова, И.А. Гудим, А.С. Орешонков, А.Н. Втюрин, А.А. Иваненко. ФТТ **58**, 149 (2016).

- [20] А.А. Демидов. Автореф. док. дис. МГУ, М. (2016). 42 с.
- [21] A. Pankrats, G. Petrakovskii, A. Kartashev, E. Eremin, V. Temerov. *J. Phys.: Condens. Matter.* **21**, 436001 (2009).
- [22] A.I. Pankrats, A.A. Demidov, C. Ritter, D.A. Velikanov, S.V. Semenov, V.I. Tugarinov, V.L. Temerov, I.A. Gudim. *J. Phys.: Condens. Matter.* **28**, 396001 (2016).
- [23] А.И. Панкрац, Г.А. Петраковский, Л.Н. Безматерных, В.Л. Темеров. *ФТТ* **50**, 77 (2008).
- [24] S.A. Kharlamova, S.G. Ovchinnikov, A.D. Balaev, M.F. Thomas, L.S. Lyubutin, A.G. Gavriiliuk. *ЖЭТФ* **128**, 1252 (2005).
- [25] K.V. Frolov, I.S. Lyubutin, E.S. Smirnova, O.A. Alekseeva, I.A. Verin, V.V. Artemov, S.A. Kharlamova, L.N. Bezmaternykh, I.A. Gudim. *J. Alloys Comp.* **671**, 545 (2016).
- [26] C. Ritter, A.I. Pankrats, A.A. Demidov, D.A. Velikanov, V.L. Temerov, I.A. Gudim. *Phys. Rev. B* **91**, 134416 (2015).

Редактор Т.Н. Василевская