05,04

Магнитоэлектрические свойства феррита-граната самария

© *Д.И. Плохов* [1,2], *А.И. Попов* [3], *А.К. Звездин* [1,4]

[1] Институт общей физики им. А.М. Прохорова РАН,
Москва, Россия
[2] Российский университет дружбы народов,
Москва, Россия
[3] Национальный исследовательский университет Московский институт электронной техники,
Москва, Зеленоград, Россия
[4] Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН,
Москва, Россия

E-mail: dmitry.plokhov@gmail.com, zvezdin@gmail.com

Поступила в Редакцию 29 декабря 2022 г.
В окончательной редакции 30 декабря 2022 г.
Принята к публикации 30 декабря 2022 г.

Теоретически исследованы магнитоэлектрические свойства самариевого феррита-граната: описаны антисегнетоэлектрические структуры ионов самария и выявлена их связь с конфигурациями магнитных моментов ионов и их трансформациями при магнитных фазовых переходах. Установлена возможность возникновения при низких температурах необычных блоховских доменных границ, в которых вектор намагниченности совершает разворот от осей типа $[u\,v\,0]$ к осям $[v\,u\,0]$, не являющихся осями симметрии кристалла. Изучена электрическая поляризация блоховских доменных границ, реализующихся как при низких ($T \to 0\,\mathrm{K}$), так и при высоких температурах. Установлено, что электрическая поляризация блоховских границ, возникающая вследствие неоднородного магнитоэлектрического эффекта, существенно зависит от их формы.

Ключевые слова: редкоземельные ферриты-гранаты, магнитные фазовые переходы, блоховские доменные границы, неоднородный магнитоэлектрический эффект.

DOI: 10.21883/FTT.2023.03.54742.561

1. Введение

В настоящее время проводятся интенсивные исследования материалов, обладающих магнитоэлектрическими свойствами [1,2]. В большинстве случаев (феррит висмута, ферробораты, манганиты) возникновение магнитоэлектрических эффектов материалов обусловлено наличием нечетных магнитных конфигураций d-ионов $(\mathrm{Fe}, \mathrm{Mn}, \mathrm{Cr})$, входящих в их состав.

В последнее годы возрос интерес к изучению редкоземельных (РЗ) магнитоэлектриков, свойства которых формируются за счет взаимодействия магнитных подрешеток, образованных редкоземельными f-ионами и d-ионами железа [3]. К новому классу таких магнитоэлектриков относятся редкоземельные ферриты со структурой граната (РЗФГ) [4,5]. В работе [5] было показано, что в редкоземельных гранатах магнитное поле, в частности, поле обменного R-Fe взаимодействия, а также и поле упругих напряжений [6], приводит к возникновению электрических дипольных моментов у РЗ-ионов. Совокупность электрических дипольных моментов подсистемы РЗ-ионов в кристаллах гранатов образуют (в случае однородных магнитных полей) сложные антисегнетоэлектрические структуры с нулевой результирующей поляризацией, тесно связанные с магнитными структурами.

В случае неоднородного магнитного поля, реализующегося, например, в области доменных границ происходит „раскомпенсация“ электрических дипольных моментов РЗ-ионов, что приводит к возникновению электрической поляризации подсистемы РЗ-ионов в области неоднородного поля [5]. Указанное обстоятельство определяется не точечной, а пространственной симметрией кристалла [6], в связи с чем следует четко различать примитивную и элементарную ячейки кристалла. Отметим, что в работе [5] в качестве поляризации доменных границ был взят увеличенный в два раза электрический дипольный момент примитивной ячейки, в то время как в подобных случаях следует использовать элементарную ячейку [6].

В настоящей работе проведено исследование магнитоэлектрических свойств редкоземельного самариевого феррита-граната $\mathrm{Sm_3Fe_5O_{12}}$ (SmIG — Samarium Iron Garnet). Выбор этого материала в качестве объекта исследования обусловлен следующими обстоятельствами: во-первых, ионы $\mathrm{Sm^{3+}}$ входят в состав пленок ферритов-гранатов, используемых на практике, во-вторых, характеристики SmIG, такие как, например, энергия анизотропии, намагниченность РЗ-подрешетки и другие, убывают с ростом температуры не так быстро, как в случае остальных (за исключением $\mathrm{Eu^{3+}}$) РЗ-ионов, и обладают существенными величинами даже при комнатных температурах.

При низких температурах SmIG также обладает уникальными магнитными свойствами [7–9], к которым следует отнести существование спонтанных ориентационных фазовых переходов $[u\,v\,0] \leftrightarrow [1\,1\,0]$ при температуре 18 K и $[1\,1\,0] \leftrightarrow [1\,1\,1]$ при температуре 65.7 K, которые будут подробно рассмотрены ниже.

В настоящей работе исследованы антисегнетоэлектрические структуры ионов Sm^{3+} в зависимости от конфигураций их магнитных моментов, реализующихся при магнитных фазовых переходах. Изучены поляризации доменных стенок, возникающие в пределе низких температур (блоховская стенка, в которой происходит разворот вектора намагниченности от оси легкого намагничивания $[2\,1\,0]$ к оси легкого намагничивания $[1\,2\,0]$, при этом поляризация $\mathbf{P}$ стенки направлена вдоль оси разворота $[0\,0\,1]$) и стенок, реализующихся при высоких температурах, когда происходит разворот намагниченности от направления $[1\,1\,1]$ к направлению $[1\,1\,\bar{1}]$ вдоль оси $\tilde{z} \parallel [\bar{1}\,1\,0]$ (в этом случае поляризация $\mathbf{P}$ ориентирована перпендикулярно оси разворота $[\bar{1}\,1\,0]$).

2. Кристаллическая структура ферритов-гранатов

Редкоземельные кристаллы со структурой граната обладают рядом уникальных магнитных, магнитоупругих и магнитооптических свойств, обусловленных в большинстве случаев наличием в их составе РЗ-ионов. Они имеют общую химическую формулу $R_3M_5O_{12}$, где R — редкоземельный элемент или иттрий, а M — металл. Подобные соединения обладают весьма сложной кристаллографической структурой, которая описывается пространственной группой O_h^{10} — $Ia3d$. Элементарная ячейка является объемноцентрированной кубической и включает в себя восемь формульных единиц $R_3M_5O_{12}$, т. е. содержит 160 атомов. Длина ребра ячейки равна 1.2 nm.

Важное значение имеет тот факт, что РЗ-ионы в кристаллах граната размещены по шести неэквивалентным c-позициям, симметрия окружения которых не является кубической, а описывается точечной группой D_2, которая не содержит операции пространственной инверсии (что принципиально важно для понимания магнитоэлектрических свойств гранатов [4]). Координаты всех 24 c-позиций РЗ-ионов и ориентации осей симметрии первых шести мест приведены в таблице. Нумерация мест РЗ-ионов в ячейке выбрана такой, что окружение места с номером $k+6$ отличается от окружения k-го места операцией инверсии, т. е. $\mathbf{e}_\alpha^{(k+6)} = -\mathbf{e}_\alpha^{(k)}$.

Координаты c-позиций (в единицах длины ребра ячейки) и ориентация осей симметрии c-позиций.

k	1	2	3	4	5	6
$\mathbf{e}_x^{(k)}$	$1\,1\,0$	$1\,\bar{1}\,0$	$0\,1\,1$	$0\,1\,\bar{1}$	$1\,0\,1$	$\bar{1}\,0\,1$
$\mathbf{e}_y^{(k)}$	$\bar{1}\,1\,0$	$1\,1\,0$	$0\,\bar{1}\,1$	$0\,1\,1$	$1\,0\,\bar{1}$	$1\,0\,1$
$\mathbf{e}_z^{(k)}$	$0\,0\,1$	$0\,0\,1$	$1\,0\,0$	$1\,0\,0$	$0\,1\,0$	$0\,1\,0$
$\mathbf{r}^{(k)}$	$0\,\frac{3}{4}\,\frac{3}{8}$	$0\,\frac{1}{4}\,\frac{1}{8}$	$\frac{3}{8}\,0\,\frac{3}{4}$	$\frac{1}{8}\,0\,\frac{1}{4}$	$\frac{3}{4}\,\frac{3}{8}\,0$	$\frac{1}{4}\,\frac{1}{8}\,0$
$\mathbf{r}^{(k+6)}$	$0\,\frac{1}{4}\,\frac{5}{8}$	$0\,\frac{3}{4}\,\frac{7}{8}$	$\frac{5}{8}\,0\,\frac{1}{4}$	$\frac{7}{8}\,0\,\frac{3}{4}$	$\frac{1}{4}\,\frac{5}{8}\,0$	$\frac{3}{4}\,\frac{7}{8}\,0$
$\mathbf{r}^{(k+12)}$	$\frac{1}{2}\,\frac{1}{4}\,\frac{7}{8}$	$\frac{1}{2}\,\frac{3}{4}\,\frac{5}{8}$	$\frac{7}{8}\,\frac{1}{2}\,\frac{1}{4}$	$\frac{5}{8}\,\frac{1}{2}\,\frac{3}{4}$	$\frac{1}{4}\,\frac{7}{8}\,\frac{1}{2}$	$\frac{3}{4}\,\frac{5}{8}\,\frac{1}{2}$
$\mathbf{r}^{(k+18)}$	$\frac{1}{2}\,\frac{3}{4}\,\frac{1}{8}$	$\frac{1}{2}\,\frac{1}{4}\,\frac{3}{8}$	$\frac{1}{8}\,\frac{1}{2}\,\frac{3}{4}$	$\frac{3}{8}\,\frac{1}{2}\,\frac{1}{4}$	$\frac{3}{4}\,\frac{1}{8}\,\frac{1}{2}$	$\frac{1}{4}\,\frac{3}{8}\,\frac{1}{2}$

Ионы железа в редкоземельных ферритах-гранатах распределены по двум подрешеткам, одна из которых — a-подрешетка — образована ионами Fe^{3+} в узлах с октаэдрическим окружением, вторая — d-подрешетка — ионами Fe^{3+} в местах с тетраэдрическим окружением.

3. Магнитные структуры и ориентационные фазовые переходы

В редкоземельных ферритах-гранатах упорядочение магнитных моментов редкоземельных ионов осуществляется, главным образом, за счет отрицательного обменного взаимодействия РЗ-ионов с ионами железа Fe^{3+} в d-подрешетке, причем эффективное поле R-Fe взаимодействия $H_{\text{eff}} = \lambda M_d \sim 10\,\text{T}$. Обменное взаимодействие между самими РЗ-ионами на порядок меньше обменного R-Fe взаимодействия, и поэтому ниже учитываться не будет. В свою очередь, взаимодействие РЗ-ионов с кристаллическим полем в кристаллах ферритов-гранатов по величине существенно превышает обменное R-Fe взаимодействие.

В феррите-гранате самария при температурах $T_1 = 65.7\,\text{K}$ и $T_2 = 18\,\text{K}$ наблюдаются спонтанные ориентационные фазовые переходы [7,8]. При температуре $T > T_1$ намагниченность SmIG ориентирована вдоль осей типа $[1\,1\,1]$, в интервале $T_2 < T < T_1$ она направлена вдоль $[1\,1\,0]$, наконец, при $T < T_2$ намагниченность кристалла отклоняется от оси $[1\,1\,0]$ в плоскости $(0\,0\,1)$, и реализуется фаза $[u\,v\,0]$. Переход $[1\,1\,1] \leftrightarrow [1\,1\,0]$ является фазовым переходом первого рода, в то время как переход $[1\,1\,0] \leftrightarrow [u\,v\,0]$ представляет собой фазовый переход второго рода. Причина этих фазовых переходов заключается в особенностях расщепления уровней ионов Sm^{3+} в кристаллическом поле и поле обменного R-Fe взаимодействия [10].

Основным мультиплетом иона самария Sm^{3+} является мультиплет $^6H_{5/2}$, который в кристаллическом поле расщепляется на три дублета, обладающих, согласно [10], энергиями $E_0 = 0\ \text{cm}^{-1}$, $E_1 = 76\ \text{cm}^{-1}$ и $E_2 = 313\ \text{cm}^{-1}$. Основной дублет отличается сильной анизотропией g-тензора: $g_x \gg g_y, g_z$ в локальных осях (см. таблицу). Пренебрежем величинами g_y и g_z. В этом случае расщепление уровней основного дублета в обменном поле $\mathbf{H}_{\text{eff}} = \lambda \mathbf{M}_{\text{Fe}}$

$$E_{1,2}^{(k)} = \pm \mu_B g_x (\mathbf{H}_{\text{eff}} \cdot \mathbf{e}_x^{(k)}) = \pm \mu_x (\mathbf{H}_{\text{eff}} \cdot \mathbf{e}_x^{(k)})$$
$$= \pm \mu_x \lambda M_{\text{Fe}} (\mathbf{m} \cdot \mathbf{e}_x^{(k)}), \tag{1}$$

где $\mu_x = g_x\mu_B$ и $\mathbf{m} = \mathbf{M}_{\mathrm{Fe}}/M_{\mathrm{Fe}}$. Магнитный момент иона самария Sm^{3+}, обусловленный расщеплением в поле уровней основного дублета, коллинеарен локальной x-оси

$$M_x^{(k)} = \mu_x \,\mathrm{th}\left(\frac{\mu_x \lambda M_{\mathrm{Fe}}\left(\mathbf{m}\cdot\mathbf{e}_x^{(k)}\right)}{kT}\right). \qquad (2)$$

В общих чертах ориентационные фазовые переходы в SmIG были исследованы в работах [7,8], в которых было показано, что они являются проявлениями магнитного аналога эффекта Яна–Теллера [11]. Теоретическое описание переходов проводилось на основе анализа экстремальных свойств термодинамического потенциала

$$\Phi = -K_1(m_x^4 + m_y^4 + m_z^4) - \frac{kT}{6}\sum_{k=1}^{6} \ln\mathrm{ch}\left(\frac{\mu_x\lambda M_{\mathrm{Fe}}\left(\mathbf{m}\cdot\mathbf{e}_x^{(k)}\right)}{kT}\right), \qquad (3)$$

где K_1 — константа магнитной анизотропии.

Выражение (3) записано с учетом уровней только основного дублета ионов Sm^{3+}, что справедливо при температурах $T < T^* = E_1/k \sim 120\,\mathrm{K}$. Первое слагаемое в соотношении (3) представляет собой энергию анизотропии ионов железа и вклад ван-флековского типа от вышележащих уровней ионов самария. Отметим, что константа анизотропии K_1 слабо зависит от температуры.

При низких температурах $T \to 0\,\mathrm{K}$ выражение (3) принимает вид

$$\Phi = -K_1(m_x^4 + m_y^4 + m_z^4) - \frac{\mu_x H_{\mathrm{eff}}}{6}\sum_{k=1}^{6}\left|\mathbf{m}\cdot\mathbf{e}_x^{(k)}\right|. \qquad (4)$$

Основной вклад в термодинамический потенциал Φ дает второе слагаемое, учетом которого в выражении (4) в первом приближении вполне можно ограничиться. В этом случае осями легкого намагничивания SmIG являются направления типа $[2\,1\,0]$, не совпадающие с осями симметрии кристалла и близкие к реализующимися в действительности [7]. Влияние первого слагаемого в формуле (4) приводит к тому, что $\mathbf{M}_{\mathrm{Fe}}$ незначительно отклоняется от оси $[2\,1\,0]$ к оси $[1\,1\,0]$. При повышении температуры в фазе $[u\,v\,0]$ вектор $\mathbf{M}_{\mathrm{Fe}}$ движется в плоскости $(0\,0\,1)$ от оси $[2\,1\,0]$ к оси $[1\,1\,0]$, далее при промежуточных температурах $T_2 < T < T_1$ реализуется фаза $[1\,1\,0]$, а затем при высоких температурах $T > T_1$ — фаза $[1\,1\,1]$ (см. рис. 1).

Конфигурации магнитных моментов $\mathbf{M}_k$ ионов Sm^{3+} во всех трех перечисленных фазах показаны на рис. 2, 3, 4.

4. Электрические дипольные моменты ионов самария, индуцированные обменным полем

В работе [4] было показано, что вклад отдельного редкоземельного иона, обладающего дублетным (или

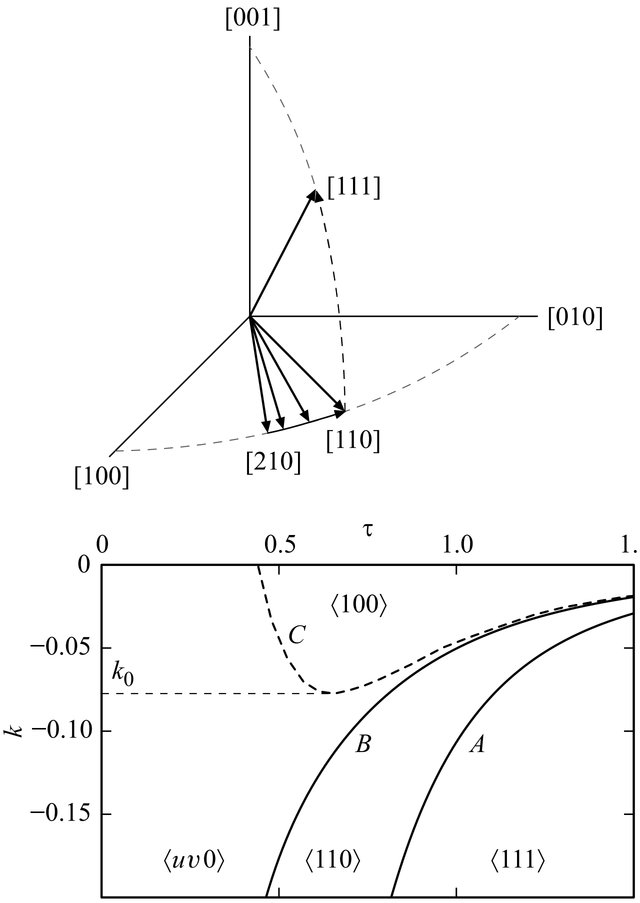

Рис. 1. *a* — направление вектора намагниченности $\mathbf{M}_{\mathrm{Fe}}$ подрешетки железа в различных магнитных фазах самариевого феррита-граната. *b* — магнитная фазовая диаграмма кристалла в переменных $\tau = T/(\mu_x\lambda M_{\mathrm{Fe}})$ и $k = 2K_1/(\mu_x\lambda M_{\mathrm{Fe}})$.

квазидублетным) основным состоянием, в магнитоэлектрическую энергию $\mathscr{E}_{\mathrm{me}}^{(k)}$ кристалла со структурой граната представляет собой инвариантные относительно преобразований группы D_2 комбинации произведений компонент векторов $\mathbf{E}$, $\mathbf{H}$ и $\mathbf{M}$. В случае ионов самария в феррите-гранате при низких температурах $T < E_1/k \sim 120\,\mathrm{K}$, когда можно ограничиться заселением уровней основного дублета, в локальных осях k-го места,

$$\mathscr{E}_{\mathrm{me}}^{(k)} = C_1 M_x^{(k)} H_y^{(k)} E_z^{(k)} + C_2 M_x^{(k)} H_z^{(k)} E_y^{(k)}, \qquad (5)$$

где $\mathbf{H} = \mathbf{H}_{\mathrm{eff}} = \lambda\mathbf{M}_{\mathrm{Fe}}$, а $M_x^{(k)}$ определено выражением (2). Дипольный момент иона в k-м месте

$$P_\alpha^{(k)} = -\frac{\partial\mathscr{E}_{\mathrm{me}}^{(k)}}{\partial E_\alpha^{(k)}}, \quad \alpha = x, y, z. \qquad (6)$$

Нам достаточно рассмотреть индуцирование электрических дипольных моментов на первых шести узлах редкоземельных ионов в ячейке. Дипольные моменты остальных мест найдем, используя соотношения

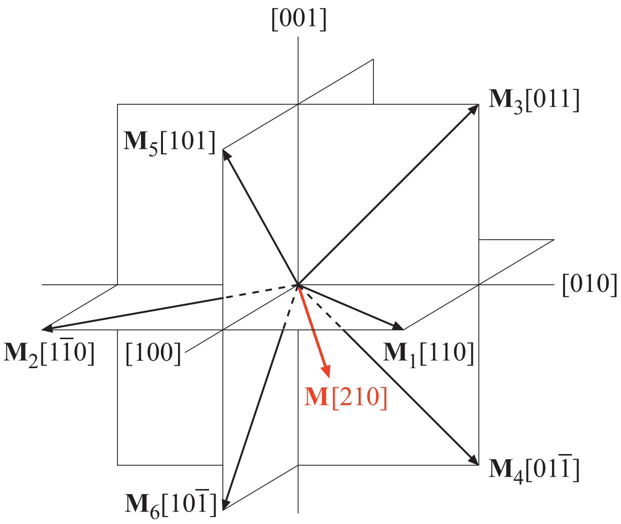

Рис. 2. Конфигурация магнитных моментов ионов самария в фазе [2 1 0], реализующейся при $T \to 0$ K. Магнитные моменты $\mathbf{M}_1$ и $\mathbf{M}_2$ лежат в плоскости (0 0 1), магнитные моменты $\mathbf{M}_3$ и $\mathbf{M}_4$ лежат в плоскости (1 0 0), магнитные моменты $\mathbf{M}_5$ и $\mathbf{M}_6$ лежат в плоскости (0 1 0). При конечной температуре намагниченность $\mathbf{M}$ несколько отклоняется от [2 1 0] к [1 1 0].

$P_\alpha^{(k+6)} = -P_\alpha^{(k)}$, справедливые для четных магнитных структур и в случае однородного магнитного (обменного) поля. Рассмотрим поочередно фазы [1 1 1], [1 1 0] и $[u\,v\,0]$.

Для низкотемпературной фазы $[u\,v\,0]$ найдем

$$\mathbf{P}^{(1,2)} = \pm\frac{\mu H_{\text{eff}}}{\sqrt{2}}\,\text{th}\left(\frac{\gamma_x \pm \gamma_y}{\tau\sqrt{2}}\right) C_1(\gamma_x \mp \gamma_y)\mathbf{e}_z,$$

$$\mathbf{P}^{(3,4)} = \pm\frac{\mu H_{\text{eff}}}{\sqrt{2}}\,\text{th}\left(\frac{\gamma_y}{\tau\sqrt{2}}\right)\big(C_1\gamma_y\mathbf{e}_x + C_2\gamma_x(\mathbf{e}_y \mp \mathbf{e}_z)\big),$$

$$\mathbf{P}^{(5,6)} = \mp\frac{\mu H_{\text{eff}}}{\sqrt{2}}\,\text{th}\left(\frac{\gamma_x}{\tau\sqrt{2}}\right)\big(C_1\gamma_x\mathbf{e}_y + C_2\gamma_y(\mathbf{e}_x \mp \mathbf{e}_z)\big), \quad (7)$$

где $\tau = kT/\mu H_{\text{eff}}$, $\mathbf{e}_x = [1\,0\,0]$, $\mathbf{e}_y = [0\,1\,0]$, $\mathbf{e}_z = [0\,0\,1]$,

$$\gamma_x = \frac{u(\tau)}{\sqrt{u^2(\tau) + v^2(\tau)}} \quad \text{и} \quad \gamma_y = \frac{v(\tau)}{\sqrt{u^2(\tau) + v^2(\tau)}}.$$

Для фазы [1 1 0] в уравнениях (7) достаточно положить $\gamma_x = \gamma_y = 1/\sqrt{2}$.

Наиболее простая конфигурация электрических дипольных и магнитных моментов реализуется в случае высокотемпературной фазы [1 1 1], в которой (см. рис. 5)

$$\mathbf{P}^{(2)} = \mathbf{P}^{(4)} = \mathbf{P}^{(6)} = 0,$$

$$\mathbf{P}^{(1)} = C_2\frac{\mu H_{\text{eff}}}{\sqrt{6}}\,\text{th}\left(\frac{\sqrt{6}}{3\tau}\right)\big(\mathbf{e}_x - \mathbf{e}_y\big),$$

$$\mathbf{P}^{(3)} = C_2\frac{\mu H_{\text{eff}}}{\sqrt{6}}\,\text{th}\left(\frac{\sqrt{6}}{3\tau}\right)\big(\mathbf{e}_y - \mathbf{e}_z\big),$$

$$\mathbf{P}^{(5)} = C_2\frac{\mu H_{\text{eff}}}{\sqrt{6}}\,\text{th}\left(\frac{\sqrt{6}}{3\tau}\right)\big(\mathbf{e}_z - \mathbf{e}_x\big). \quad (8)$$

Отметим, что во всех трех фазах векторы $\mathbf{P}^{(k)}$ и $\mathbf{M}^{(k)}$ перпендикулярны друг другу. Что касается результирующего вектора поляризации $\sum_{k=1}^{6}\mathbf{P}^{(k)}$, то фазах $[u\,v\,0]$ и [1 1 0] он отличен от нуля и направлен вдоль оси [0 0 1]. В фазе [1 1 1] векторы $\mathbf{P}^{(1,3,5)}$ перпендикулярны оси [1 1 1] и $\sum_{k=1}^{6}\mathbf{P}^{(k)} = 0$. Разумеется, в случае однородного обменного поля результирующий электрический дипольный момент элементарной ячейки $\sum_{k=1}^{24}\mathbf{P}^{(k)}$ обращается в ноль в силу соотношений $P_\alpha^{(k+6)} = -P_\alpha^{(k)}$. Возникновение поляризации у подсистемы редкоземельных ионов в ферритах-гранатах возможно в случае неоднородного

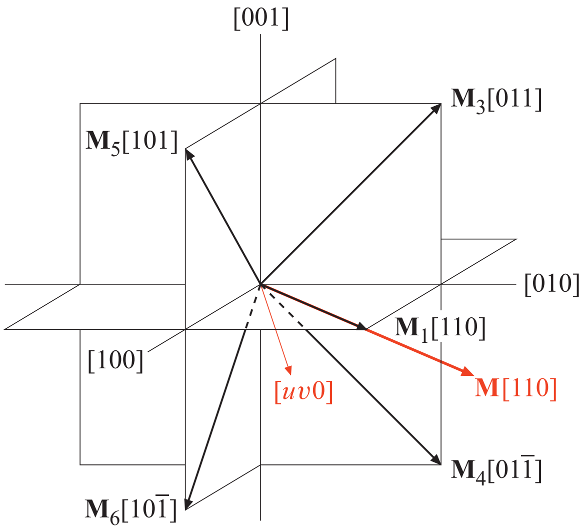

Рис. 3. Конфигурация магнитных моментов ионов самария в фазе [1 1 0], в которой $\mathbf{M}_2 = 0$, реализующейся при $T_2 < T < T_1$.

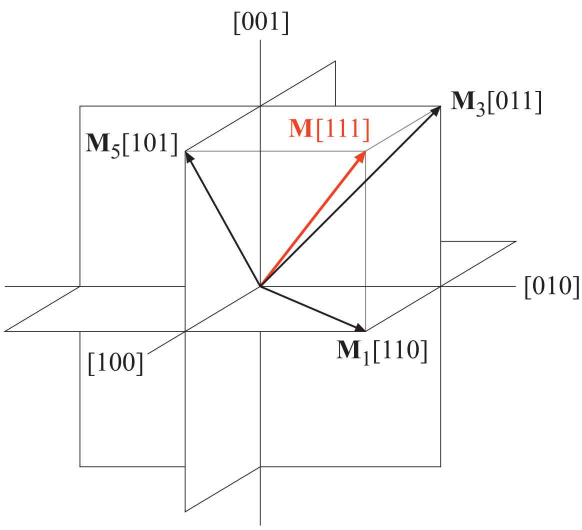

Рис. 4. Конфигурация магнитных моментов ионов самария в фазе [1 1 1], реализующейся при температурах $T > 65.7$ K. В этой фазе $\mathbf{M}_2 = \mathbf{M}_4 = \mathbf{M}_6 = 0$.

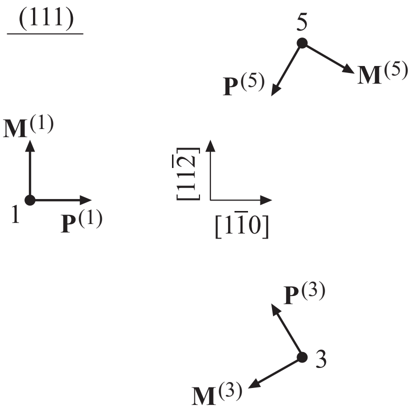

Рис. 5. Конфигурация дипольных электрических и магнитных моментов ионов самария в проекции на плоскость (1 1 1) для фазы [1 1 1], реализующейся при температурах $T > T_1 = 65.7\,\mathrm{K}$.

обменного поля, реализующегося, в частности, в области доменных границ.

5. Поляризация доменных стенок в SmIG

Поляризация подсистемы редкоземельных ионов в доменных стенках, обусловленная неоднородностью обменного поля, действующего на редкоземельные ионы, была исследована в работах [5,12,13]. В этих работах рассматривались обычные доменные границы блоховского типа, в которых вектор $\mathbf{M}_{\mathrm{Fe}}$ разворачивался на угол 71° от направления $[1\,1\,1]$ к направлению $[1\,1\,\bar{1}]$ вдоль оси $[\bar{1}\,1\,0]$, а также доменные границы неелевского типа, в которых разворот вектора $\mathbf{M}_{\mathrm{Fe}}$ осуществляется от оси $[\bar{1}\,\bar{1}\,\bar{1}]$ к оси $[1\,1\,1]$.

Отметим, что в качестве поляризации в указанных работах [5,12,13] был взят увеличенный в два раза электрический дипольный момент примитивной ячейки, в то время как в подобных случаях следует использовать элементарную ячейку [6]. Поэтому в настоящей работе мы ниже исследуем поляризацию блоховской доменной границы, возникающей, в частности, в SmIG при температуре $T > T_1 = 65.7\,\mathrm{K}$ при учете указанного обстоятельства, а также изучим поляризацию доменных стенок SmIG, реализующихся при низких температурах ($T \to 0\,\mathrm{K}$).

Уникальность SmIG состоит в том, что при низких температурах осями легкого намагничивания являются направления типа $[u\,v\,0]$, не совпадающие с осями симметрии кубического кристалла. В пределе $T \to 0\,\mathrm{K}$ эти направления близки к $\langle 2\,1\,0\rangle$, так что здесь будут реализовываться блоховские стенки, в которых $\mathbf{M}_{\mathrm{Fe}}$ разворачивается на угол 37° от направления $[2\,1\,0]$ к направлению $[1\,2\,0]$, либо на угол 66° при развороте от $[2\,1\,0]$ к $[0\,2\,1]$, либо на 78° в случае разворота от $[2\,1\,0]$ к $[0\,1\,2]$.

Рассмотрим поляризацию обладающей наименьшей энергией 37-градусной доменной стенки. Пусть в ней вектор $\mathbf{M}_{\mathrm{Fe}}$ совершает разворот вдоль оси $z = [0\,0\,1]$ от направления $[2\,1\,0]$ к направлению $[1\,2\,0]$. Плотность энергии анизотропии феррита-граната самария при $T \to 0$ К представима в виде $E_A = nE_1$, где, согласно (4), выражение

$$E_1 = -\frac{1}{6}\mu_x \lambda M_{\mathrm{Fe}} \sum_{k=1}^{6} \left|\mathbf{m}\cdot\mathbf{e}_x^{(k)}\right|$$

есть термодинамический потенциал системы в расчете на один ион самария, обусловленный расщеплением основного дублета Sm^{3+} в эффективном обменном поле, $n = 24/d^3$ — число ионов самария в единице объема, а $d \sim 1.2\,\mathrm{nm}$ — длина ребра элементарной ячейки. Таким образом

$$E_A = -K \sum_{k=1}^{6} \left|\mathbf{m}\cdot\mathbf{e}_x^{(k)}\right|, \tag{9}$$

где $K = 4\mu_x \lambda M_{\mathrm{Fe}}/d^3$. Представим вектор $\mathbf{m}$ в виде

$$\mathbf{m} = \mathbf{e}_x \cos\left(\varphi + \frac{\pi}{4}\right) + \mathbf{e}_y \sin\left(\varphi + \frac{\pi}{4}\right), \tag{10}$$

где угол φ отсчитывается от оси $[1\,1\,0]$, а $\mathbf{e}_x = [1\,0\,0]$ и $\mathbf{e}_y = [0\,1\,0]$. При этом слагаемые, входящие в сумму в выражении (9), имеют вид

$$\left(\mathbf{m}\cdot\mathbf{e}_x^{(1)}\right) = \frac{1}{\sqrt{2}}\cos\left(\varphi + \frac{\pi}{4}\right) + \frac{1}{\sqrt{2}}\sin\left(\varphi + \frac{\pi}{4}\right) = \cos\varphi,$$

$$\left(\mathbf{m}\cdot\mathbf{e}_x^{(2)}\right) = \frac{1}{\sqrt{2}}\cos\left(\varphi + \frac{\pi}{4}\right) - \frac{1}{\sqrt{2}}\sin\left(\varphi + \frac{\pi}{4}\right) = -\sin\varphi,$$

$$\left(\mathbf{m}\cdot\mathbf{e}_x^{(3,4)}\right) = \frac{1}{\sqrt{2}}\sin\left(\varphi + \frac{\pi}{4}\right),$$

$$\left(\mathbf{m}\cdot\mathbf{e}_x^{(5,6)}\right) = \pm\frac{1}{\sqrt{2}}\cos\left(\varphi + \frac{\pi}{4}\right).$$

Тем самым получаем

$$E_A = -K\big(3\cos\varphi + |\sin\varphi|\big) = -K\sqrt{10}\cos\left(\frac{\varphi_0}{2} - |\varphi|\right),$$

где $\varphi_0 = \arccos(4/5) = 37^\circ$ — угол между осями $[2\,1\,0]$ и $[1\,2\,0]$.

Уравнение Эйлера–Лагранжа при такой E_A имеет вид

$$A\left(\frac{\partial\varphi}{\partial z}\right)^2 = K\sqrt{10}\left(1 - \cos\left(\frac{\varphi_0}{2} - |\varphi|\right)\right), \tag{11}$$

где $A \sim 10^{-7}$ erg/cm — константа неоднородного обмена. Разделение переменных в дифференциальном уравнении (11) приводит к интегралу

$$z\cdot 10^{1/4}\sqrt{\frac{K}{A}} = \int \frac{d\varphi}{\sqrt{1 - \cos\left(\frac{\varphi_0}{2} - |\varphi|\right)}},$$

откуда найдем выражение, определяющее форму доменной стенки

$$\operatorname{tg}\left(\frac{\varphi_0}{8}-\frac{\varphi}{4}\right)=\operatorname{tg}\left(\frac{\varphi_0}{8}\right)\cdot\exp\left(\pm\frac{z}{z_0}\right), \qquad (12)$$

где величина z_0 дается соотношением

$$z_0=10^{-1/4}\sqrt{\frac{A}{2K}}. \qquad (13)$$

В формуле (12) верхний знак соответствует $z<0$ и $\varphi<0$, а нижний — $z>0$ и $\varphi>0$. Поскольку углы $\varphi_0/8$ и $\varphi_0/8\pm\varphi/4$ весьма малы (меньше 5°), то уравнение (12) можно представить в виде

$$\varphi(z)=\mp\frac{\varphi_0}{2}\left(1-e^{\pm z/z_0}\right), \qquad (14)$$

где опять верхний знак следует использовать при $z<0$, а нижний — при $z>0$.

Вектор поляризации доменной стенки определим как электрический дипольный момент ионов самария в элементарной ячейке, расположенной в заданной точке, отнесенный к объему ячейки. Согласно соотношениям (6), электрические дипольные моменты ионов самария равны

$$\mathbf{P}^{(k)}=-C_1M_x^{(k)}H_y^{(k)}\mathbf{e}_z^{(k)}-C_2M_x^{(k)}H_z^{(k)}\mathbf{e}_y^{(k)},$$

где $\mathbf{H}=\lambda\mathbf{M}_{\mathrm{Fe}}=\lambda M_{\mathrm{Fe}}\mathbf{m}$. В свою очередь, при температуре $T\to 0\,\mathrm{K}$, магнитные дипольные моменты ионов самария $M_x^{(k)}=\mu_x\operatorname{sign}\left(\mathbf{m}\cdot\mathbf{e}_x^{(k)}\right)$ равны $M_x^{(1,3,4,5)}=\mu_x$, $M_x^{(6)}=-\mu_x$, $M_x^{(2)}=-\mu_x\operatorname{sign}z$, в соответствии с формулой (10), определяющей вектор $\mathbf{m}$.

Воспользуемся соотношением

$$f(\mathbf{r}_k)-f(\mathbf{r}_{k+6})=(\nabla f)(\mathbf{r}_k-\mathbf{r}_{k+6})$$

и найдем, что

$$\sum_{i=k}^{24}\mathbf{P}^{(k)}=-\frac{1}{2}C_1\mu_x\lambda M_{\mathrm{Fe}}d\left(\cos\varphi(z)-|\sin\varphi(z)|\right)\frac{\partial\varphi(z)}{\partial z}\,\mathbf{e}_z.$$

Разделим это выражение на объем d^3 элементарной ячейки и найдем вектор поляризации

$$\mathbf{P}=-\frac{C_1\mu_x\lambda M_{\mathrm{Fe}}}{d^2}\left(\cos\varphi(z)-|\sin\varphi(z)|\right)\frac{\partial\varphi(z)}{\partial z}\,\mathbf{e}_z,$$

направленный вдоль оси разворота намагниченности (оси z). Согласно формуле (14), угол $\varphi\ll 1$, при этом выражение для вектора $\mathbf{P}(z)$ принимает простой вид

$$\mathbf{P}(z)=-P_0\,e^{-\frac{|z|}{z_0}}\,\mathbf{e}_z,\quad P_0=\frac{C_1\mu_x\lambda M_{\mathrm{Fe}}}{d^2}\,\frac{\varphi_0}{2z_0}. \qquad (15)$$

Зависимость $P(z)$ представлена на рис. 6.

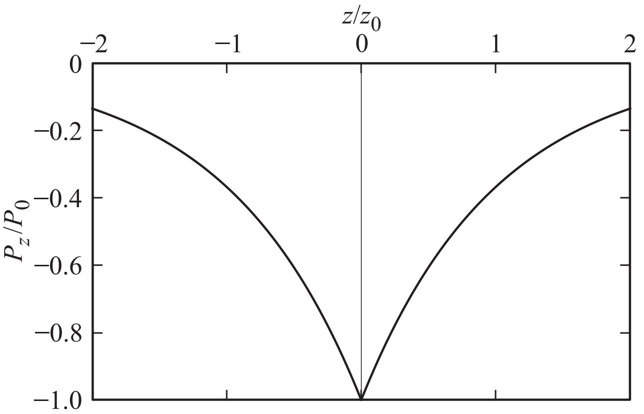

Рис. 6. Зависимость электрической поляризации $P(z)$ блоховской доменной стенки, в которой вектор намагниченности $\mathbf{M}_{\mathrm{Fe}}$ разворачивается от направления [2 1 0] к направлению [1 2 0] вдоль оси [0 0 1], от координаты z (в относительных единицах). Величины z_0 и P_0 даются соответственно соотношениями (13) и (15).

Рассмотрим теперь электрическую поляризацию реализующейся при температуре $T>T_1$ блоховской доменной стенки, в которой вектор $\mathbf{M}_{\mathrm{Fe}}$ разворачивается на угол 71° от направления [1 1 1] к направлению $[1\,1\,\bar{1}]$ вдоль оси $\tilde{z}\parallel[\bar{1}\,1\,0]$. В этом случае

$$\mathbf{m}=\frac{\mathbf{M}_{\mathrm{Fe}}}{M_{\mathrm{Fe}}}=\mathbf{e}_{\tilde{x}}\cos\varphi+\mathbf{e}_{\tilde{y}}\sin\varphi,$$

где φ — угол, определяющий ориентацию вектора намагниченности $\mathbf{M}_{\mathrm{Fe}}$ в лабораторной системе координат $\mathbf{e}_{\tilde{x}}=[1\,1\,1]$, $\mathbf{e}_{\tilde{y}}=[1\,1\,\bar{2}]$, $\mathbf{e}_{\tilde{z}}=[\bar{1}\,1\,0]$. Распределение намагниченности в блоховской доменной стенке определяется соотношениями, приведенными в работе [14]:

$$\frac{\partial\varphi}{\partial\tilde{z}}=\sqrt{\frac{K_1}{A}}\left(\frac{1}{2}\cos^4(\gamma-\varphi)+\sin^4(\gamma-\varphi)-\frac{1}{3}\right)^{1/2},$$

$$\varphi(\tilde{z})=\gamma+\operatorname{arctg}\left(\frac{1}{\sqrt{2}}\operatorname{th}\left(\tilde{z}\sqrt{\frac{K_1}{3A}}\right)\right), \qquad (16)$$

где A — константа неоднородного обменного взаимодействия, K_1 — абсолютная величина константы магнитной анизотропии, а $2\gamma=2\operatorname{arctg}\left(1/\sqrt{2}\right)=71^\circ$ — угол полного разворота вектора намагниченности в доменной границе.

При температуре $T>T_1=65.7\,\mathrm{K}$, согласно данным работы [10], расщепления дублетов Sm^{3+} в поле обменного взаимодействия меньше kT, и в этом случае электрические дипольные моменты ионов Sm^{3+} (равно, как и других РЗ-ионов), согласно [5], принимают вид

$$\mathbf{P}^{(k)}=-d_1\mathbf{e}_x^{(k)}m_y^{(k)}m_z^{(k)}-d_2\mathbf{e}_y^{(k)}m_x^{(k)}m_z^{(k)}-d_3\mathbf{e}_z^{(k)}m_x^{(k)}m_y^{(k)},$$

где d_i $(i=1,2,3)$ — константы, определяемые волновыми функциями и уровнями энергии редкоземельных ионов в кристаллическом поле, а также и температурой (см. работу [5]).

Далее необходимо просуммировать векторы $\mathbf{P}^{(k)}$ по всем 24 ионам самария в элементарной ячейке, а затем

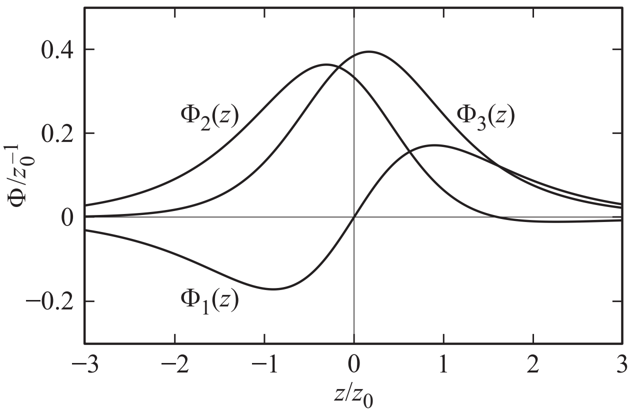

Рис. 7. Зависимости $\Phi_1(z)$, $\Phi_2(z)$ и $\Phi_3(z)$, заданные формулами (18) и (16), в относительных единицах. Величина z_0 определена выражением (13).

поделить на объем ячейки d^3 и получить тем самым поляризацию $P(\tilde{z})$. Поскольку $\mathbf{e}_\alpha^{(k+6)} = -\mathbf{e}_\alpha^{(k)}$, то сумма $\sum_{k=1}^{24}$ будет содержать разности $f(\mathbf{r}_k) - f(\mathbf{r}_{k+6})$, где f — тригонометрические функции.

В рассматриваемом нами случае $f(\mathbf{r}_k) = f(\varphi(\mathbf{r}_k))$, а угол φ, в свою очередь, есть $\varphi(\tilde{z})$, поэтому

$$f(\mathbf{r}_k) - f(\mathbf{r}_{k+6}) = \frac{\partial f(\varphi)}{\partial \varphi} \frac{\partial \varphi(\tilde{z})}{\partial \tilde{z}} \left(\mathbf{e}_{\tilde{z}} \cdot (\mathbf{r}_k - \mathbf{r}_{k+6})\right).$$

Воспользуемся данным соотношением и найдем, что вектор электрической поляризации 71-градусной доменной стенки

$$\mathbf{P} = \frac{1}{d^3} \sum_{k=1}^{24} \mathbf{P}^{(k)} = \left(q_1 \Phi_1(\tilde{z}) + q_2 \Phi_2(\tilde{z})\right) \mathbf{e}_{\tilde{x}} + \frac{1}{\sqrt{2}} \left(q_1 \Phi_1(\tilde{z}) + \sqrt{3} q_2 \Phi_3(\tilde{z})\right) \mathbf{e}_{\tilde{y}}. \quad (17)$$

Здесь введены обозначения

$$q_1 = \frac{\sqrt{3}}{4} \frac{d_3}{d^2} \quad \text{и} \quad q_2 = \frac{\sqrt{2}}{4} \frac{d_1 + d_2}{d^2},$$

а также

$$\Phi_1(\tilde{z}) = \frac{\partial \varphi(\tilde{z})}{\partial \tilde{z}} \sin\left(2\varphi(\tilde{z}) - 2\gamma\right),$$

$$\Phi_2(\tilde{z}) = \frac{\partial \varphi(\tilde{z})}{\partial \tilde{z}} \cos\left(2\varphi(\tilde{z}) - \gamma\right),$$

$$\Phi_3(\tilde{z}) = \frac{\partial \varphi(\tilde{z})}{\partial \tilde{z}} \sin\left(2\varphi(\tilde{z})\right), \quad (18)$$

где величины $\varphi(\tilde{z})$ и $\partial\varphi(\tilde{z})/\partial\tilde{z}$ определены соотношениями (16). Отметим, что в этом случае вектор поляризации стенки ориентирован перпендикулярно оси разворота, т. е. $\mathbf{P} \perp \mathbf{e}_{\tilde{z}}$. Графики функций $\Phi_{1,2,3}(\tilde{z})$ представлены на рис. 7.

6. Заключение

Настоящая работа была в основном направлена на выявление магнитоэлектрических свойств самариевого феррита-граната, обладающего уникальными магнитными характеристиками. Были определены индуцируемые полем обменного R-Fe взаимодействия конфигурации электрических дипольных моментов ионов самария, выявлена из связь с магнитными структурами и их трансформациями при ориентационных магнитных фазовых переходах.

Установлена возможность реализации при низких температурах $T \to 0$ K необычных 37° блоховских доменных границ, в которых происходит разворот вектора намагниченности подрешеток ионов железа $\mathbf{M}_{\mathrm{Fe}}$ от осей типа [2 1 0] к осям [1 2 0] и проведено их количественное описание. Рассчитана электрическая поляризация таких блоховских границ.

Также исследована электрическая поляризация 71°-х доменных границ, возникающих SmIG при высоких температурах $T > T_1 = 65.7$ K, в которых $\mathbf{M}_{\mathrm{Fe}}$ разворачивается от осей типа [1 1 1] к осям $[1\,1\,\bar{1}]$. Полученные в этом случае результаты применимы не только для SmIG, но и для составляющих большинство других редкоземельных ферритов-гранатов, осями легкого намагничивания которых являются направления типа [1 1 1].

Установлено, что электрическая поляризация блоховских доменных границ, возникающая вследствие неоднородного магнитоэлектрического эффекта, существенно зависит от формы границ. Так в случае 37°-градусной границы, где разворот вектора $\mathbf{M}_{\mathrm{Fe}}$ происходит от оси [2 1 0] к оси [1 2 0] вдоль вектора [0 0 1] поляризация $\mathbf{P}$ направлена вдоль оси разворота, а для 71°-градусной границы доменной границы, в которой вектор $\mathbf{M}_{\mathrm{Fe}}$ разворачивается от направления [1 1 1] к $[1\,1\,\bar{1}]$ вдоль оси $\tilde{z} \parallel [\bar{1}\,1\,0]$, вектор поляризации перпендикулярен оси разворота.

Финансирование работы

Работа выполнена при поддержке Программы стратегического академического лидерства Российского университета дружбы народов (РУДН). АКЗ признателен Российскому научному фонду за поддержку работы (проект РНФ № 22-12-00367).

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

[1] N.A. Spaldin, R. Ramesh. Nature Mater. **18**, 202 (2019). https://doi.org/10.1038/s41563-018-0275-2
[2] X. Liang, H. Chen, N.X. Suna. Appl. Phys. Lett. Mater. **9**, 041114 (2021). https://doi.org/10.1063/5.0044532

[3] А.К. Звездин, А.А. Мухин. Письма в ЖЭТФ **88**, *8*, 581 (2008). http://jetpletters.ru/ps/1852/article_28266.shtml
[4] A.I. Popov, D.I. Plokhov, A.K. Zvezdin. Phys. Rev. B **90**, 214427 (2014). https://doi.org/10.1103/PhysRevB.90.214427
[5] A.I. Popov, Z.V. Gareeva, A.K. Zvezdin. Phys. Rev. B **92**, 144420 (2015). https://doi.org/10.1103/PhysRevB.92.144420
[6] А.И. Попов, Ч.К. Сабденов. ФТТ **61**, *6*, 1084 (2019). https://doi.org/10.21883/FTT.2019.06.47682.351
[7] Г.А. Бабушкин, В.А. Бородин, В.Д. Дорошев, А.К. Звездин, Р.З. Левитин, А.И. Попов. Письма в ЖЭТФ **35**, *1*, 28 (1982). http://jetpletters.ru/ps/358/article_5642.shtml
[8] А.К. Звездин, В.М. Матвеев, А.А. Мухин, А.И. Попов. Редкоземельные ионы в магнитоупорядоченных кристаллах. Наука, М. (1985). 296 с.
[9] О.А. Дорофеев, А.И. Попов. ФТТ **32**, *11*, 3425 (1990). http://journals.ioffe.ru/articles/21435
[10] О.А. Дорофеев, А.И. Попов. ФТТ **31**, *11*, 124 (1989). http://journals.ioffe.ru/articles/28969
[11] А.К. Звездин, А.А. Мухин, А.И. Попов. Письма в ЖЭТФ **23**, *5*, 267 (1976). http://jetpletters.ru/ps/571/article_8976.shtml
[12] A.I. Popov, K.A. Zvezdin, Z.V. Gareeva, F.A. Mazhitova, R.M. Vakhitov, A.R. Yumaguzin, A.K. Zvezdin. J. Phys.: Condens. Matter **28**, 456004 (2016). https://doi.org/10.1088/0953-8984/28/45/456004
[13] A.I. Popov, Z.V. Gareeva, A.K. Zvezdin, T.T. Gareev, A.S. Sergeev, A.P. Pyatakov. Ferroelectrics **509**, 32 (2017). https://doi.org/10.1080/00150193.2017.1292111
[14] А.М. Алексеев, А.Ф. Попков, А.И. Попов. ФТТ **41**, *12*, 2183 (1999). https://journals.ioffe.ru/articles/35642

Редактор Т.Н. Василевская