

МАГНИТОЭЛЕКТРИЧЕСКИЙ ЭФФЕКТ В СПИН-ФЛОП ФАЗЕ Cr₂O₃ И ПРОБЛЕМА ОПРЕДЕЛЕНИЯ МАГНИТНОЙ СТРУКТУРЫ

Д.В.Белов, Г.П.Воробьев, А.К.Звездин*, А.М.Кадомцева, Ю.Ф.Попов

*Московский государственный университет им.М.В.Ломоносова
119899 Москва, Россия*

*Институт общей физики РАН

117942 Москва, Россия

Поступила в редакцию 1 сентября 1993 г.

Исследован магнитоэлектрический эффект в спин-флоп фазе Cr₂O₃ в импульсных магнитных полях до 200 кЭ и в области температур 4,2–300 К. Теоретически показано, что коэффициент α_{33} в этой фазе имеет следующую зависимость от компонент вектора антиферромагнетизма $\alpha_{33} = \chi_{\perp} \lambda_6 L_y (L_y^2 - 3L_x^2)$, то есть является релятивистски малым по сравнению с другими компонентами магнитоэлектрического тензора. Эксперимент, проведенный при тщательном ориентировании магнитного поля относительно оси c кристалла, показывает, что $\alpha_{33} \approx 0$ в пределах точности эксперимента. Обсуждаются возможные причины, которые могут привести к отличному от нуля наблюдаемому значению α_{33} .

Как известно, Cr₂O₃ является классическим объектом, в котором был впервые теоретически предсказан [1] и экспериментально обнаружен [2] линейный магнитоэлектрический эффект. С тех пор появилось много работ, посвященных исследованию особенностей поведения магнитоэлектрического эффекта (МЭЭ) в Cr₂O₃ и изучению механизмов, приводящих к его появлению [3,4]. Значительно меньше исследовался линейный МЭЭ в сильных магнитных полях [5,6], где до настоящего времени остался нерешенным целый ряд проблем.

В отсутствие магнитного поля спины ионов Cr³⁺ антиферромагнитно упорядочены вдоль оси c ромбоэдрического кристалла и магнитная симметрия Cr₂O₃ такова, что тензор линейного МЭЭ содержит только диагональные компоненты [1,2]. В достаточно сильном магнитном поле $H \parallel c$ спины ионов Cr³⁺ опрокидываются в базисную плоскость, то есть происходит спин-флоп переход. Возникает вопрос о возможности исследования магнитной симметрии в спин-флоп фазе на основе измерения линейного МЭЭ, что предполагает установление зависимости магнитоэлектрического тензора от направления спинов. Литература последних лет по этому вопросу весьма противоречива. Попытка определения магнитной симметрии Cr₂O₃ в спин-флоп фазе была предпринята в работе [6]. Авторы [6] предполагали, основываясь на результатах работы [7], что тензор МЭЭ в случае, когда спины направлены вдоль $a(x)$ -оси (бинарная ось) кристалла (магнитная симметрия $2'/m$), имеет вид

$$\hat{\alpha}_{if} = \begin{vmatrix} 0 & \alpha_{12} & \alpha_{13} \\ \alpha_{21} & 0 & 0 \\ \alpha_{31} & 0 & 0 \end{vmatrix},$$

а в случае, когда спины направлены вдоль $b(y)$ -оси, – нормали к бинарной оси (магнитная симметрия $2/m'$):

$$\hat{\alpha}_{if} = \begin{vmatrix} \alpha_{11} & 0 & 0 \\ 0 & \alpha_{22} & \alpha_{23} \\ 0 & \alpha_{32} & \alpha_{33} \end{vmatrix}.$$

При произвольной ориентации спинов Cr^{3+} в базисной плоскости (магнитная точечная симметрия ($1'$)) отличными от нуля оказываются все 9 компонент тензора магнитоэлектрической восприимчивости.

Авторы работы [6] обнаружили экспериментально в спин-флоп фазе поляризацию вдоль оси c кристалла при $H \parallel c$ и интерпретировали этот результат как наличие в кристалле отличного от нуля коэффициента α_{33} . Отсюда был сделан вывод, что магнитная точечная симметрия в спин-флоп фазе либо $2/m'$ (спины Cr^{3+} лежат вдоль нормали к бинарной оси), либо $1'$ (спины лежат в базисной плоскости под углом к бинарной оси).

С другой стороны, согласно приведенному в [8,9] выражению для МЭЭ, магнитоэлектрический тензор не должен обладать аксиальной анизотропией в спин-флоп фазе, то есть коэффициент α_{33} должен быть равен нулю в обеих фазах $2'/m$ ($L00$) и $2/m'$ ($0L0$).

В настоящей статье сообщаются результаты экспериментального и теоретического исследования этой проблемы, которая нам представляется интересной и важной еще и потому, что авторы работы [6] предлагают использовать отмеченный выше факт равенства нулю или отличия от нуля компоненты α_{33} магнитоэлектрического тензора в качестве теста при определении магнитной симметрии Cr_2O_3 в спин-флоп фазе.

Мы исследуем электрическую поляризацию, наведенную магнитным полем. В качестве исходного пункта используем выражение для магнитоэлектрического взаимодействия в виде

$$\Phi_{\text{МЕ}} = -\lambda_1 [m_x(L_x E_y + L_y E_x) + m_y(L_x E_x + L_y E_y)] - \lambda_2(L_x m_x + L_y m_y)E_z - \lambda_3(m_x E_x + m_y E_y)L_z - \lambda_4 m_x(L_x E_x + L_y E_y) - \lambda_5 m_x L_x E_x, \quad (1)$$

где L_i , m_i - компоненты антиферромагнитного и слабоферромагнитного векторов, E_i - компоненты электрического поля, λ_i - магнитоэлектрические коэффициенты. Это выражение согласуется с приведенными в книге Турова [8] формулами для МЭЭ. Определяя электрическую поляризацию как $P_i = -\partial\Phi/\partial E_i$ и подставляя в (1) в качестве m следующее выражение [10]:

$$m = \chi_{\perp}(\mathbf{H} - (\mathbf{H}\mathbf{L})\mathbf{L}) + \chi_{\parallel}(\mathbf{H}\mathbf{L})\mathbf{L},$$

получим формулу для электрической поляризации:

$$P = \chi_{\perp}[\mathbf{H} - (\mathbf{H}\mathbf{L})\mathbf{L}] \begin{vmatrix} \lambda_1 L_y + \lambda_3 L_x & \lambda_1 L_x & \lambda_2 L_x \\ \lambda_1 L_x & -\lambda_1 L_y + \lambda_3 L_x & \lambda_2 L_y \\ \lambda_4 L_x & \lambda_4 L_y & \lambda_5 L_x \end{vmatrix} + \chi_{\parallel}(\mathbf{H}\mathbf{L}) \begin{vmatrix} 2\lambda_1 L_x L_y + (\lambda_3 + \lambda_4)L_x L_y \\ \lambda_1(L_x^2 - L_y^2) + (\lambda_3 + \lambda_4)L_y L_x \\ \lambda_2(L_x^2 + L_y^2) + \lambda_5 L_x^2 \end{vmatrix}. \quad (2)$$

Из этой формулы легко определить коэффициенты магнитоэлектрического тензора α_{ij} ; они, очевидно, будут зависеть от направления \mathbf{L} , а также от магнитных восприимчивостей χ_{\perp} и χ_{\parallel} (последняя зависимость имеет значение для интерпретации температурной зависимости МЭЭ).

Мы акцентируем здесь внимание на том, что вытекающий из (2) коэффициент α_{33} (при $H \parallel c$ и $H \perp c$) равен нулю, хотя с точки зрения магнитной

симметрии он может быть отличен от нуля [7]. Дело в том, что формула (2) получена из выражения для магнитоэлектрического взаимодействия, которое учитывает лишь линейные по L слагаемые. Отличные от нуля значения коэффициента α_{33} можно получить, если учесть в магнитоэлектрической энергии слагаемые третьего или более высокого порядка по L . Имеется 16 инвариантных комбинаций вида $E_r m_x L_i L_j L_k$, где индексы принимают значения x, y, z . Фактически нас интересуют инварианты типа $E_x m_x L_i L_j L_k$ при $L_x = 0$, так как мы занимаемся только спин-флоп фазой. Имеется только один инвариант такого типа:

$$V_3 = -\lambda_6 E_x m_x L_y (L_y^2 - 3L_x^2) m_x. \quad (3)$$

Легко убедиться непосредственной проверкой, что эта комбинация действительно является инвариантом группы $R3\bar{c}$. При этом достаточно проверить "действия" только образующих элементов группы: $1^-, 3_x^+, 2_x^-$, где индексы $(-, +)$, указывают на четность соответствующего элемента относительно перестановки подрешеток [8]. Например, $1^- L = L$, $1^- E_x = -E_x$, $2_x^- L_x = -L_x$, $2_x^- L_y = L_y$, $2_x^- m_x = -m_x$, $3_x^+ E_x = E_x$, $3_x^+ m_x = m_x$ и т.д. Легко убедиться в том, что взаимодействие (3) дает следующее слагаемое в коэффициенте α_{33} магнитоэлектрического тензора:

$$\alpha_{33} = \chi_{\perp} \lambda_6 L_y (L_y^2 - 3L_x^2) = 4\chi_{\perp} \lambda_6 L^3 \sin \varphi \sin(\varphi - \pi/3) \sin(\varphi + \pi/3) = -\chi_{\perp} \lambda_6 L^3 \sin 3\varphi, \quad (4)$$

где $L = (\cos \varphi, \sin \varphi, 0)$. Последняя формула в (4) подчеркивает аксиальную симметрию этого коэффициента. Поскольку малым параметром в разложении анизотропного термодинамического потенциала по степеням вектора антиферромагнетизма является отношение релятивистских взаимодействий (в первую очередь спин-орбитального взаимодействия) к электростатическим взаимодействиям (прежде всего обменному), то константа α_{33} обладает релятивистской малостью по сравнению с другими компонентами магнитоэлектрического тензора, которые отличны от нуля уже в первом порядке по L . Все это говорит о том, константу α_{33} вряд ли возможно с достаточной уверенностью использовать для тестирования магнитной структуры в спин-флоп фазе. Возникающие в третьем порядке по L_i добавочные слагаемые у других компонент магнитоэлектрического тензора мы не рассматриваем в силу их отмеченной выше малости по сравнению с ненулевыми значениями этих компонент в линейном по L_i приближении.

Таким образом, аксиальная анизотропия магнитоэлектрического тензора, то есть анизотропия относительно вращения вокруг оси 3 порядка, проявляется лишь в третьем порядке по L_i и является релятивистски малой.

Заметим, однако, что аксиальная зависимость наблюдаемой электрической поляризации может возникнуть в эксперименте и при учете в тензоре α_{ij} лишь линейных по L_i членов за счет магнитной анизотропии в базисной плоскости. Предположим, что мы вращаем вектор $L = (L_x, L_y, 0)$ вокруг оси c при помощи относительно небольшого по величине дополнительного магнитного поля $H_{\perp} = (\Delta H_x, \Delta H_y, 0)$, вращающегося в базисной плоскости. Тогда из (2) следует, что

$$P_z = \chi_{\perp} \lambda_4 L \Delta H \cos(\varphi - \varphi_H),$$

где φ_H - азимутальный угол поля ΔH . Поскольку зависимость $\Delta \varphi = \varphi - \varphi_H$ от φ_H определяется реальной магнитной анизотропией в базисной плоскости, то наблюдаемая поляризация в принципе может выявить эту анизотропию.

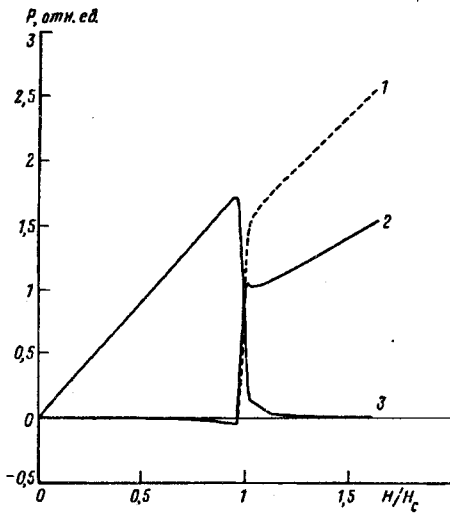


Рис.1.

Экспериментальные зависимости поляризации P от магнитного поля H при 4,2К: кривая 1) $P_y - H_z$, 2) $P_x - H_z$, 3) $P_z - H_z$

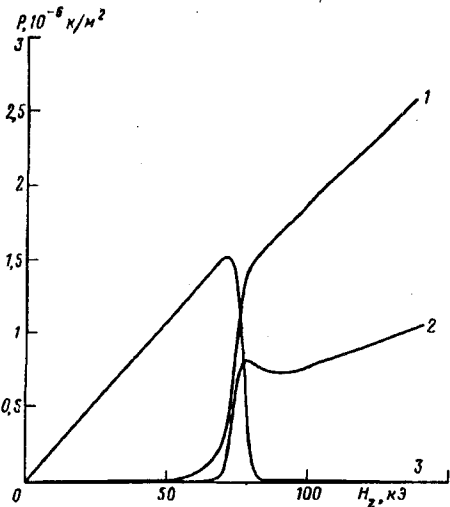


Рис.2.

Теоретические зависимости поляризации P от магнитного поля H/H_c ($\theta_H = 30'$, $\varphi_H = 265^\circ$) при 4,2К: кривая 1) $P_y - H/H_c$, 2) $P_x - H/H_c$, 3) $P_z - H/H_c$

Экспериментально снимались зависимости компонент P_x , P_y , P_z от импульсного магнитного поля H (до 200кЭ), ориентированного вдоль оси c кристалла. Исследования проводились на совершенных кристаллах, не содержащих блоков. Экспериментально наблюдаемая зависимость электрической поляризации P_z от внешнего магнитного поля $H \parallel c$ приведена на рис.1 (кривая 3). Как и следовало ожидать, в слабых полях с ростом поля зависимость $P_z(H_z)$ имеет линейный характер, а при достаточно большом поле H_c , индуцирующем спин-флоп переход, электрическая поляризация скачком обращается в нуль. Это свидетельствует об обращении в нуль компоненты α_{33} , в отличие от результатов [5,6,11]. Подчеркнем, что наблюдаемая экспериментальная поляризация P_z вдоль оси z очень сильно зависит от точности ориентации магнитного поля относительно оси c кристалла. В случае, когда поле отклонено на заметный угол θ_H от оси c , спины Cr^{3+} в спин-флоп фазе не лежат строго в базисной плоскости; при этом вектор антиферромагнетизма L имеет небольшую проекцию на ось c кристалла, что приводит к отличному от нуля значению α_{33} и, следовательно, поляризации вдоль оси c . Другой возможной причиной наблюдения отличной от нуля компоненты α_{33} может быть наличие в кристалле блоков, ориентированных под небольшим углом к оси c .

Одновременно с исчезновением $P_z(H_z)$ при спин-флоп переходе в связи с изменением магнитной симметрии появлялись отличные от нуля компоненты $P_x(H_z)$ и $P_y(H_z)$ вектора поляризации (рис.1, кривые 2 и 1). Интересной особенностью этих кривых является наличие характерных аномалий в области спин-флоп перехода. Чтобы понять происхождение этих аномалий, рассмотрим более подробно кинематику поведения вектора антиферромагнетизма L в зависимости от поля. Для этого используем термодинамический потенциал,

магнитная часть которого имеет вид

$$\Phi_m = \Delta\chi(HL)^2/2 - KL_z^2 + K_6 \sin^6 \theta \sin(6\varphi), \quad (5)$$

где $L \equiv (\sin \theta \cos \varphi, \sin \theta \sin \varphi, \cos \theta)$. Конкуренция энергии $(\Delta\chi(LH)^2/2)$ и энергий анизотропии $-KL_z^2$ и $K_6 \sin^6(\theta) \sin(6\varphi)$ с учетом малости константы анизотропии K_6 в ab -плоскости приводит к тому, что с ростом поля вектор L сначала уходит от поля, оставаясь в плоскости, проходящей через поле H и ось c (H не строго параллельно оси c), а затем поворачивается к плоскости, проходящей через ось c и ближайшую к H_{\perp} легкую ось в ab -плоскости. При этом проекция L на одну из осей в ab -плоскости (кривая 1 на рис.1.) непрерывно растет и соответствующая компонента поляризации P_y меняется монотонно. У проекции L на другую ось рост сменяется уменьшением и, соответственно, (кривая 2 на рис.1) P_x имеет "пикообразную" аномалию. Теоретические кривые $P_{x,y,z}(H)$ приведены на рис.2 в условных единицах.

Авторы благодарны А.С.Боровику-Романову за стимулирующие критические замечания и интерес к работе, а также В.А.Копцику за полезные консультации.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (93-02-3214).

-
1. И.Е.Дзялошинский, ЖЭТФ **37**, 881 (1959).
 2. Д.Н.Астров, ЖЭТФ **38**, 984 (1960).
 3. G.T.Rado and V.J.Folen, J.Appl. Phys. **33**, 1126 (1962).
 4. E.Kita, K.Siratori, and A.Tasaki, J. Appl. Phys. **50**, 7748 (1979).
 5. S.Foner and M.Hanabusa, J. Appl. Phys. **34**, 1246 (1963).
 6. J.Ohtani and K.Kohn, J.Phys. Soc. Jap. **53**, 3744 (1984).
 7. R.R.Birss, Symmetry and Magnetism. Amsterdam. North-Holland Publishing Company, 1964.
 8. Е.А.Туров, Кинетические, оптические и акустические свойства антиферромагнетиков. Свердловск, АН СССР - Уральское отделение, 1990.
 9. В.Г.Шавров, ЖЭТФ **46**, 1419 (1965).
 10. А.С.Боровик-Романов, Лекции по низкотемпературному магнетизму. Новосибирск, НГУ, 1976.
 11. Ю.Ф.Попов, А.М.Кадомцева, З.А.Казей, Письма в ЖЭТФ **55**, 238 (1992).