

МАГНИТОСТРИКЦИЯ ПАРАМАГНИТНОГО МОЛИБДАТА ТЕРБИЯ В ПОЛЕ ДО 150 кЭ

Б.К.Пономарев, Ю.Ф.Попов*, Б.С.Редькин

Институт физики твердого тела РАН
142432 Черноголовка, Московская обл., Россия

*Физический факультет Московского государственного университета
им.М.В.Ломоносова
119899 Москва, Россия

Поступила в редакцию 11 марта 1993 г.

Измерена магнитострикция монокристаллического образца метастабильной орторомбической сегнетоэлектрической сегнетоэластической β' -фазы $Tb_2(MoO_4)_3$ при 78 К в импульсном магнитном поле до 150 кЭ. В магнитном поле напряженностью от 80 до 100 кЭ, направленном вдоль кристаллографической оси [100], возникают деформации порядка $6 \cdot 10^{-3}$, связанные с переключением спонтанной электрической поляризации.

Исследуемый материал представляет собой метастабильную орторомбическую β' -фазу $Tb_2(MoO_4)_3$. Он имеет пространственную группу симметрии $Pba2$, точечную группу $mm2$ и является сегнетоэлектриком и сегнетоэластиком. Сегнетоэлектрическая температура Кюри $T_c = 160^\circ C$ ¹. При $T < T_N = 0,45 K$ возникает антиферромагнитное упорядочение².

Образец имел форму куба $2,5 \times 2,5 \times 2,5$ мм с ребрами, параллельными осям [110], [110], [001]. В исходном состоянии образец содержал большое количество структурных доменов двух типов с различными ориентациями осей [100] и [010]; векторы спонтанной поляризации в доменах антипараллельны и направлены вдоль оси [001]¹. В таких случаях рентгеновский метод позволяет лишь указать два взаимно перпендикулярных геометрических направления, вдоль которых могут быть ориентированы кристаллографические оси [100] и [010] различных структурных доменов. Эти направления мы обозначим соответственно через X и Y.

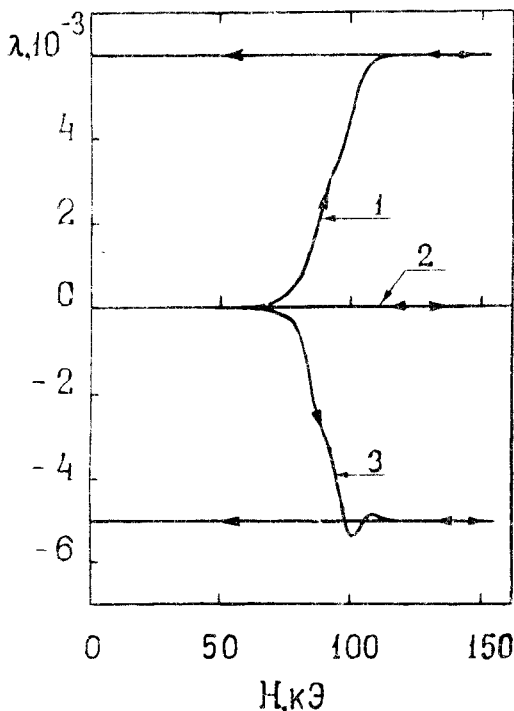
Кристаллическая структура редкоземельных молибдатов чувствительна к механическим напряжениям в плоскости базиса. Параметры решетки вдоль оси [100] (a) и вдоль оси [010] (b) различны: $b > a$. Достаточно большое сжатие вдоль [010] вызывает перестройку двойниковой структуры: сегнетоэлектрические домены с осью [100] вдоль направления сжатия становятся энергетически более выгодными и растут за счет менее выгодных доменов, в которых вдоль направления сжатия ориентирована более длинная ось [010].

Перед началом измерений образец был монодоменизирован сжатием вдоль направления X. Процесс монодоменизации контролировался визуально в поляризованном свете. Однодоменное состояние сохранялось после снятия сжимающего усилия. Таким образом, направление X перед началом измерений совпадало с кристаллографической осью [100].

Методика измерений магнитострикции описана в³. Длительность импульса магнитного поля составляла 0,01 с. Измерения выполнены при температуре 78 К. Датчиком деформаций служила тонкая (0,1 мм) пластина пьезокварца, X-среза, наклеенная на образец. Разность потенциалов, возникающая на

обкладках пьезокварца при деформировании образца, подавалась на электрометрический каскад с входным сопротивлением, обеспечивающим постоянную времени входной цепи порядка 1с, что существенно превосходит длительность импульса поля и обеспечивает воспроизведение сигнала практически без искажений.

В процессе эксперимента положение пьезокварца относительно образца не изменялось.



Зависимости магнитоэстроикционных деформаций вдоль геометрического направления X в образце $Tb_2(MoO_4)_3$ от магнитного поля при различных ориентациях последнего. $T = 78$ К. Кривая 1: поле направлено вдоль X ; первое включение; X совпадает с кристаллографической осью $[100]$. Кривая 2: Поле направлено вдоль X ; второе включение; X совпадает с кристаллографической осью $[010]$. Кривая 3: поле направлено вдоль Y , которая совпадает с кристаллографической осью $[100]$

Полевые зависимости магнитоэстроикции изображены на рисунке. Все три кривые изображают относительную деформацию вдоль одного и того же геометрического направления в образце, которое перед началом измерений совпадало с кристаллографической осью $[100]$ (геометрическое направление X). Кривая 1 изображает магнитоэстроикционную деформацию, измеренную на образце в исходном состоянии (кристаллографическая ось $[100]$ совпадает с X) в магнитном поле, параллельном X . В малых полях в пределах чувствительности измерений деформация равна нулю. В поле 70 кЭ наблюдается положительная деформация порядка $10^{-4} - 10^{-3}$. В интервале полей от 80 до 100 кЭ деформация резко возрастает на величину $\Delta\lambda \approx +6 \cdot 10^{-3}$, достигает насыщения и при дальнейшем увеличении поля до 150 кЭ не изменяется. При уменьшении поля до нуля деформация остается постоянной.

При повторных включениях поля данной ориентации непосредственно после измерения кривой 1 деформации вдоль геометрического направления X отсутствовали. Полевую зависимость магнитоэстроикции вдоль X при повторном включении поля, ориентированного вдоль X , изображает кривая 2. Видно, что магнитоэстроикция в пределах чувствительности измерений равна нулю.

После измерения кривой 2 магнитное поле было ориентировано вдоль гео-

метрического направления Y , и была измерена магнитоэлектрическая деформация вдоль геометрического направления X . Результаты измерений изображает кривая 3. Видно, что полевая зависимость магнитоэлектрики в этом случае подобна магнитоэлектрике вдоль геометрического направления X при первом включении поля, но имеет противоположный знак.

Изложенные результаты имеют две особенности, резко выделяющие $Tb_2(MoO_4)_3$ среди обычных парамагнетиков.

Первая особенность состоит в том, что магнитоэлектрика $Tb_2(MoO_4)_3$ не только аномально велика, но и нелинейно зависит от поля. Такая большая и существенно нелинейная по полю магнитоэлектрика в парамагнитном веществе при такой высокой температуре ($T = 78 \text{ K} = 173 T_N$) ранее не наблюдалась.

Вторая особенность состоит в том, что магнитоэлектрика не возникает при повторном включении поля,

Эти особенности объясняются тем, что источником наблюдаемой деформации является не только и не столько магнитоэлектрика как таковая, сколько перестройка двойниковой сегнетоэлектрической доменной структуры с перестановкой кристаллографических осей $[100]$ и $[010]$, стимулированная магнитоэлектрикой. Магнитоэлектрические деформации играют здесь ту же роль, что и обычные механические деформации, действие которых описано выше по данным обзора ¹. Рассмотрим этот вопрос подробнее.

Магнитные свойства $Tb_2(MoO_4)_3$ обусловлены ионами Tb^{3+} ². Эти ионы имеют отличный от нуля орбитальный момент. Это означает, что облако зарядов магнитоактивных $4f$ -электронов этих ионов пространственно анизотропно. Ориентация облака зарядов жестко связана с магнитным моментом иона сильным спин-орбитальным взаимодействием. Поэтому при изменении ориентации магнитного момента иона под действием магнитного поля анизотропное облако зарядов $4f$ -электронов также изменяет свою ориентацию, деформируя решетку (магнитоэлектрика). Значения магнитоэлектрических деформаций порядка $10^{-4} - 10^{-3}$ в веществах, содержащих $3+$ ионы редких земель с отличным от нуля орбитальным моментом (в том числе и в парамагнитном состоянии), являются хорошо известным экспериментальным фактом ⁴⁻⁶.

Магнитоэлектрические деформации при надлежащей ориентации магнитного поля могут сыграть ту же роль, какую играют обычные механические деформации, использованные нами для монодоменизации образца.

Когда магнитоэлектрика достигает некоторого критического значения, энергетически более выгодными становятся те сегнетоэлектрические домены, в которых вдоль направления положительной магнитоэлектрики ориентирована длинная ось $[010]$. Эти домены растут за счет менее выгодных доменов, в которых вдоль направления удлинения ориентирована короткая ось $[100]$.

Таким образом, если магнитоэлектрические деформации подходящего знака в однодоменном образце достигают достаточно высоких значений, оси $[100]$ и $[010]$ должны поменяться местами, а направление спонтанной электрической поляризации должно измениться на 180° .

Исследования магнитоэлектрического эффекта в $Tb_2(MoO_4)_3$, выполненные нами в работе ⁷, подтверждают это объяснение: прямыми визуальными наблюдениями установлено, что намагничивание сегнетоэлектрически монодоменного образца вдоль оси $[100]$ приводит к появлению обращенных сегнетоэлектрических доменов, а измерения электрической поляризации показывают, что при напряженности магнитного поля 100 кЭ вектор спонтанной электрической

поляризации изменяет свое направление на противоположное.

Если это действительно так, то при измерении кривой I кристаллографические оси $[100]$ и $[010]$ поменялись местами, что привело к удлинению вдоль геометрического направления X на величину $\Delta\lambda$. Порядок величины этого удлинения должен быть равен $\Delta\lambda = (b - a)/a$.

В $Tb_2(MoO_4)_3$ при 300 К параметр решетки вдоль кристаллографического направления $[100]$ равен $a = 10,352 \text{ \AA}$; вдоль направления $[010]$ параметр $b = 10,381 \text{ \AA}$. Относительная деформация при перестановке осей a и b равна $\Delta\lambda(300 \text{ K}) = (b - a)/a = 0,029/10,352 \approx 3 \cdot 10^{-3}$. Порядок этой величины согласуется с результатами наших измерений. Наше экспериментальное значение $\Delta\lambda(78 \text{ K}) = 6 \cdot 10^{-3}$ несколько больше этой величины. Различие вполне может быть связано с тепловым расширением.

Итак, после измерения кривой I вдоль геометрического направления X ориентирована кристаллографическая ось $[010]$, а вдоль направления Y ориентирована ось $[100]$. Отсутствие магнитострикции при повторных включениях поля после измерения кривой I подтверждает наше объяснение: если бы после измерения кривой I решетка осталась неизменной, то повторное включение поля должно было бы дать тот же результат, что и первое включение. Отсюда следует, что кривая I описывает деформацию вдоль кристаллографической оси $[010]$ в магнитном поле, параллельном кристаллографической оси $[100]$. Отрицательный знак деформации в этом случае полностью согласуется с опытами по переполяризации $Tb_2(MoO_4)_3$ при помощи механического сжатия вдоль $[010]$ и с нашими результатами, полученными в ⁷: отрицательная магнитострикционная деформация вдоль оси $[010]$, созданная полем, параллельным $[100]$, переключает спонтанную электрическую поляризацию и меняет местами оси $[100]$ и $[010]$, что и проявляется в наших измерениях в виде отрицательного скачка размера образца вдоль геометрического направления X , которое здесь до включения магнитного поля совпадало с осью $[010]$.

В работе не ставилась задача определить критическое магнитное поле и критическую деформацию переключения. Это будет сделано позднее.

Необходимо отметить, что форма крутого участка кривой магнитострикции, связанного с процессом роста обращенных сегнетоэлектрических доменов, вообще говоря, зависит от скорости увеличения поля. Это связано с достаточно высокой инерционностью движения доменных границ.

-
1. L.H.Brixner, J.R.Berkley, W.Jeitschko. Rare Earth Molybdates, In Handbook on the Phys. and Chem. of Rare Earth, Ed. K.A.Gschneidner and L.Eyring, 1979, Chapter 30.
 2. R.A.Fisher, E.W.Hornung, G.E.Brodale, and W.F.Giauque, J.Chem. Phys. **63**, 1296 (1975).
 3. R.Z.Levitin, V.N.Milov, Yu.F.Popov, and V.V.Snegirev, Physica B **177**, 59 (1992).
 4. К.П.Белов, Р.З.Левитин, Б.К.Пономарев, ЖЭТФ **49**, 1733 (1965).
 5. К.П.Белов, Р.З.Левитин, Б.К.Пономарев, ЖЭТФ **51**, 1634 (1966).
 6. К.П.Белов, Р.З.Левитин, Б.К.Пономарев, Письма в ЖЭТФ **10**, 13 (1969).
 7. В.К.Пonomarev, S.A.Ivanov, B.S.Red'kin, and V.N.Kurlov, J.Appl.Phys. (to be published).