

МАГНИТООПТИЧЕСКОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ СПИН-ОРИЕНТАЦИОННОГО ФАЗОВОГО ПЕРЕХОДА В МОНОКРИСТАЛЛЕ $\text{NdFe}_3(\text{VO}_3)_4$

В.А. БЕДАРЕВ,¹ М.И. ПАЩЕНКО,¹ Д.Н. МЕРЕНКОВ,¹
Л.Н. БЕЗМАТЕРНЫХ,² В.Л. ТЕМЕРОВ²

¹Физико-технический институт низких температур им. Б.И. Веркина НАН Украины
(Просп. Ленина, 47, Харьков 61103; e-mail: bedarev@ilt.kharkov.ua)

²Институт физики им. Л.В. Киренского Сибирского отделения РАН России
(Красноярск 660036, Россия)

УДК 537.622.5
©2012

Проведены измерения полевых зависимостей магнитного дву-
преломления света в монокристалле $\text{NdFe}_3(\text{VO}_3)_4$ в случае,
когда направление распространения света совпадало с триго-
нальной осью кристалла C_3 ($\mathbf{k} \parallel C_3$), а внешнее магнитное поле
было ориентировано вдоль оси второго порядка C_2 ($\mathbf{H} \parallel C_2$).
В температурной области существования несоответствующей фа-
зы с образованием длиннопериодической антиферромагнитной
спирали обнаружены четко выраженные скачки на полевых за-
висимостях двупреломления, которые идентифицированы как
спин-ориентационный фазовый переход первого рода. Фазовый
переход сопровождался гистерезисом на полевых зависимостях
двупреломления. Построена магнитная фазовая H - T диаграм-
ма $\text{NdFe}_3(\text{VO}_3)_4$ для ориентации магнитного поля вдоль оси
второго порядка кристалла $\mathbf{H} \parallel C_2$.

1. Введение

Монокристалл $\text{NdFe}_3(\text{VO}_3)_4$ с гигантским магни-
тоэлектрическим эффектом [1] представляет собой
один из наиболее интенсивно исследуемых ферробо-
ратов. В отличие от большинства подобных соедине-
ний структурный фазовый переход [2] в этом кри-
сталле не наблюдается. Кристаллическая симметрия
 $R\bar{3}2$ сохраняется вплоть до гелиевых температур. При
температуре около 30 К в кристалле возникает ма-
гнитное и электрическое упорядочение одновременно
[3]. Монокристалл $\text{NdFe}_3(\text{VO}_3)_4$ упорядочивается ан-
тиферромагнитно, причем магнитные моменты Fe и
Nd параллельны друг другу в плоскости, перпенди-
кулярной тригональной оси C_3 и ориентированы про-
тивоположно магнитным моментам, находящимся в
соседней плоскости [4]. В результате появляются три
типа антиферромагнитных доменов, в каждом из ко-
торых вектор антиферромагнетизма \mathbf{l} ориентирован
вдоль соответствующей оси второго порядка. Даль-
нейшее понижение температуры кристалла до 13,5 К

приводит к фазовому переходу первого рода из со-
размерной фазы в несоответствующую, представляющую со-
бой длиннопериодическую антиферромагнитную спи-
раль [4].

Известно, что в кристалле $\text{NdFe}_3(\text{VO}_3)_4$ наблюдае-
тся спин-ориентационный фазовый переход в магни-
тном поле, приложенном вдоль оси второго поряд-
ка [1, 5]. На полевых зависимостях намагниченно-
сти отчетливо виден гистерезис, указывающий на фа-
зовый переход первого рода. Однако, по-видимому,
из-за полидоменности, упругих напряжений и де-
фектов этот фазовый переход сильно растянут по
магнитному полю. Поэтому величину поля фазово-
го перехода определить достаточно сложно. В та-
ких случаях магнитооптический метод, позволяю-
щий выбирать и исследовать ненапряженные, не-
большие по размерам участки монокристаллической
пластины толщиной несколько десятков микрон, ча-
сто оказывается эффективным. Впервые этот метод
для исследования индуцированного магнитным по-
лем спин-ориентационного фазового перехода в кри-
сталле $\text{NdFe}_3(\text{VO}_3)_4$ применялся в работах [6, 7]. По-
лученные результаты были подтверждены с помощью
резонансных [8] и акустических [9] исследований ука-
занного кристалла.

В данной статье представлены результаты магни-
тооптического исследования спин-ориентационного
фазового перехода в ферроболате $\text{NdFe}_3(\text{VO}_3)_4$. Ра-
бота базируется на анализе данных, полученных из
полевых зависимостей магнитного двупреломления
этого монокристалла.

2. Экспериментальная методика

Объект исследования представлял собой монокри-
сталлическую пластину треугольной формы со сто-

ронами 1,5 мм и толщиной 70 мкм. Развитая поверхность кристалла была перпендикулярна тригональной оси C_3 . Для снятия упругих напряжений, появившихся после механической обработки, образец отжидали при температуре 700 °С в течение 10 часов. Исследуемый кристалл помещали в соленоид, расположенный внутри оптического гелиевого криостата. Магнитное поле было направлено вдоль оси C_2 . Измерения температуры образца проводились с помощью угольного термометра.

Двупреломление света Δn связано с разностью фаз δ , возникающей между двумя собственными линейно поляризованными волнами на выходе из кристалла толщиной t , следующим образом:

$$\Delta n = \delta\lambda/2\pi t, \quad (1)$$

где λ – длина световой волны. Для измерения δ использовалась фазовая пластинка $\lambda/4$. Схема экспериментальной установки, с помощью которой производилось измерение δ , представлена на рис. 1. Свет от лампы накаливания 1 проходил через тепловой фильтр 2, а затем через интерференционный фильтр 3 с максимумом пропускания на длине волны $\lambda = 633$ нм и полосой пропускания 11 нм. Далее свет проходил через поляризатор 5 и с помощью линзы 4 фокусировался на образец 6. Размер отверстия диафрагмы 9, стоящей в плоскости изображения линзы 8, задавал размер исследуемой области образца. Диаметр исследуемой области составлял около 100 мкм. Вышедший из кристалла эллиптически поляризованный свет преобразовывался пластинкой $\lambda/4$ (10) в линейно поляризованный. При этом плоскость поляризации была повернута на угол $\delta/2$ относительно плоскости поляризации света, падающего на кристалл. Для измерения угла $\delta/2$ использовалась модуляционная методика с модуляцией по плоскости поляризации света (модулятор 11) и синхронным детектированием (усилитель 14). С усилителя сигнал поступал на персональный компьютер 15.

3. Экспериментальные результаты и их обсуждение

В парамагнитной области оптическая индикатриса кристалла $\text{NdFe}_3(\text{VO}_3)_4$ с точечной кристаллической группой 32 представляет собой эллипсоид вращения вокруг оси C_3 . Магнитное упорядочение и магнитное поле может привести к понижению оптического класса кристалла до двуосного. Разложим симметричную часть диэлектрической проницаемости $^S\varepsilon_{ij}$ по магнитному полю H , ограничившись квадратичными по H

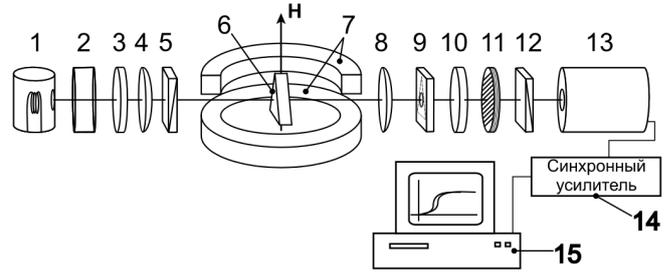


Рис. 1. Схема экспериментальной установки: 1 – лампа накаливания, 2 – тепловой фильтр, 3 – интерференционный фильтр, 4, 8 – линзы, 5 – поляризатор, 6 – образец, 7 – сверхпроводящий соленоид, 9 – диафрагма, 10 – пластинка $\lambda/4$, 11 – модулятор, 12 – анализатор, 13 – фотоэлектронный умножитель, 14 – усилитель, 15 – персональный компьютер

членами разложения:

$$^S\varepsilon_{ij} = ^S\varepsilon_{ij}^0 + \Delta^S\varepsilon_{ij} + q_{ijl}H_l + \beta_{ijk}H_lH_k. \quad (2)$$

Здесь $^S\varepsilon_{ij}$ – симметричная часть тензора диэлектрической проницаемости кристалла в парамагнитной области, $\Delta^S\varepsilon_{ij}$ – изменение симметричной части тензора диэлектрической проницаемости, связанное с магнитным и электрическим упорядочением. Тензор q_{ijl} описывает двупреломление, пропорциональное первой степени напряженности магнитного поля, меняющее свой знак при изменении направления поля на противоположный. Ненулевые компоненты тензор q_{ijl} может иметь только в магнитоупорядоченных кристаллах [10]. Тензор β_{ijk} определяет двупреломление, пропорциональное H_lH_k . Этот тензор симметричен по i, j и l, k и определяется точечной кристаллической группой 32. Таким образом, квадратичный по H вклад в двупреломление не зависит от магнитной симметрии кристалла и определяется только кристаллической симметрией. В системе координат $z\|C_3$ и $x\|C_2$ матрица коэффициентов β_{ijk} имеет вид

$$\begin{bmatrix} \beta_{11} & \beta_{12} & \beta_{13} & \beta_{14} & 0 & 0 \\ \beta_{12} & \beta_{11} & \beta_{13} & -\beta_{14} & 0 & 0 \\ \beta_{31} & \beta_{31} & \beta_{33} & 0 & 0 & 0 \\ \beta_{41} & -\beta_{41} & 0 & \beta_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \beta_{44} & 2\beta_{41} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \beta_{14} & \beta_{11} - \beta_{12} \end{bmatrix}. \quad (3)$$

В записи этого тензора была использована стандартная система сокращения индексов. Если $\mathbf{H}\|x$, то в магнитном поле согласно (3) к тензору ε_{ij} появятся добавки $\beta_{xxx}H_x^2$ и $\beta_{xyy}H_x^2$. Вследствие этого сечение оптической индикатрисы кристалла плоскостью, перпендикулярной C_3 , представляет собой эллипс, и

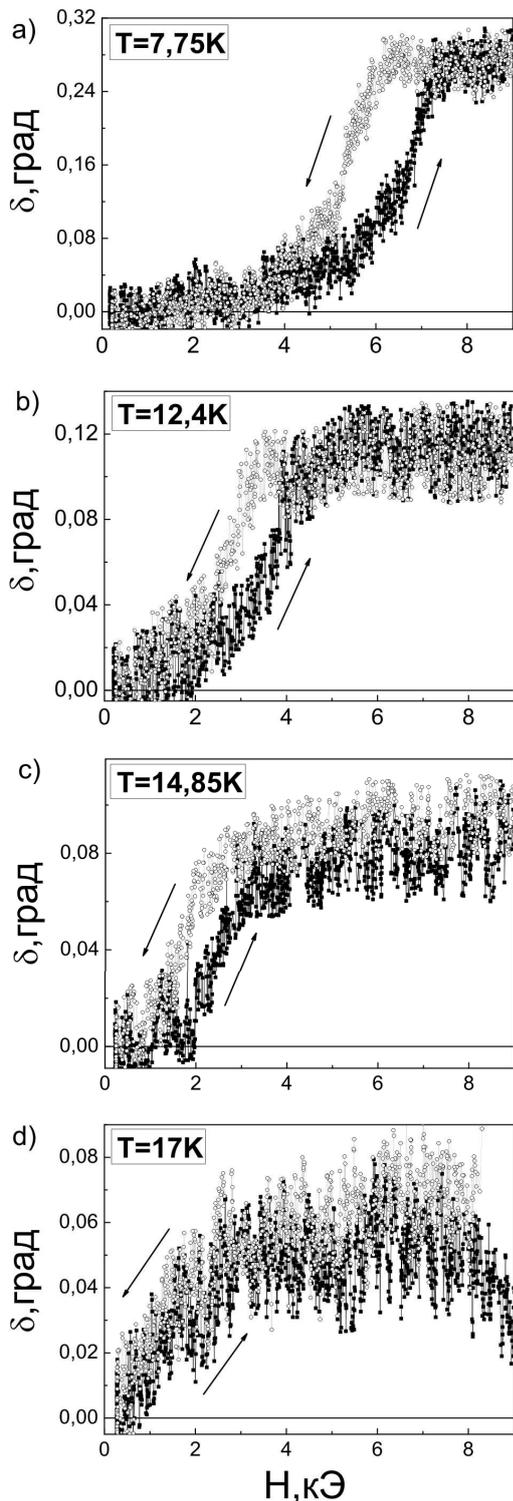


Рис. 2. Полевые зависимости двуупреломления света в монокристалле $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$, измеренные при температурах *a* – $T = 7,75$ К; *b* – $T = 12,4$ К; *c* – $T = 14,85$ К; *d* – $T = 17$ К в геометрии $\mathbf{k} \parallel C_3$ и $\mathbf{H} \parallel C_2$

кристалл будет оптически двуосным. Одна из главных осей этого эллипса будет параллельна оси x .

Проведенные исследования не обнаружили спонтанного магнитного двуупреломления, определяемого тензором $\Delta^S \epsilon_{ij}$ и связанного с переходом в антиферромагнитное состояние. Спонтанное магнитное двуупреломление не было обнаружено и при переходе кристалла в несоизмерную магнитную фазу. Магнитное линейное двуупреломление появлялось только при приложении магнитного поля.

На рис. 2 представлены экспериментальные полевые зависимости магнитного линейного двуупреломления света $\delta(H)$ при различных температурах от 7,5 до 17 К в случае $\mathbf{H} \parallel x$. При изменении направления магнитного поля на противоположное $\delta(H)$ знак не меняет. Величина двуупреломления идентична для магнитных полей H равных по величине, но противоположных по направлению. Таким образом, наблюдаемое магнитное двуупреломление квадратично по магнитному полю, а магнитное линейное двуупреломление, описываемое тензором q_{ijl} , не вносит вклад в эти зависимости. В отличие от полевых зависимостей намагниченности $M(H)$ [1] на наших экспериментальных кривых отчетливо виден скачок $\delta(H)$, который соответствует спин-ориентационному фазовому переходу первого рода. Как и на зависимостях $M(H)$ [1], при низких температурах мы наблюдаем гистерезис в области фазового перехода. В полях, превышающих поля перехода, двуупреломление слабо зависит от H . Величина $\delta(H)$ и ширина гистерезиса уменьшаются с увеличением температуры. При температуре около 17 К индуцированный магнитным полем фазовый переход первого рода уже не наблюдается.

Полученные экспериментальные данные позволили определить поля фазового перехода при различных температурах. Поле фазового перехода определялось следующим образом. Вначале при фиксированной температуре были определены значения полей, соответствующие средним точкам участка резкого изменения $\delta(H)$ как при возрастании внешнего магнитного поля, так и при убывании магнитного поля. Затем определялось поле фазового перехода как среднее арифметическое между ними. На основе полученных данных была построена фазовая диаграмма, представленная на рис. 3.

Интересно, что индуцированный магнитным полем фазовый переход первого рода наблюдался нами только в несоизмерной фазе, где реализуется длиннопериодическая антиферромагнитная спираль. При температурах выше 15 К в антиферромагнитной соизмерной фазе в случае $\mathbf{H} \parallel C_2$ можно было

бы ожидать спин-флоп фазовый переход. Но в нашем эксперименте он не наблюдается, хотя в другом легкоплоскостном антиферромагнитном ферроборате $\text{GdFe}_3(\text{BO}_3)_4$ такой фазовый переход наблюдается [11, 12]. Отсутствие спин-флопа в нашем случае может быть связано с отклонением ориентации магнитного поля от оси легкого намагничивания на угол, превышающий некоторое критическое значение ψ_c . Известно, что при этом спин-флоп переход исчезает, а происходит плавный поворот вектора антиферромагнетизма [13–15]. Пренебрегая влиянием полей размагничивания, можно утверждать [13–15], что значение ψ_c по порядку величины соответствует отношению H_a/H_e , где H_a и H_e – эффективные поля магнитной анизотропии и обменного антиферромагнитного взаимодействия в кристалле. Известно, что ферроборат $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$ имеет большое эффективное обменное поле $H_e = 580$ кЭ [5] и очень незначительное в базисной плоскости эффективное поле магнитной анизотропии H_a , которое по резонансным исследованиям составляет около 60 Э [8], а по магнитным – 12 Э [5]. Оценка ψ_c дает величину 0,3 мин. Столь малое значение критического угла, по-видимому, и является причиной того, что фазовый переход первого рода не наблюдался нами в антиферромагнитной фазе кристалла $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$. С другой стороны, причиной отчетливого наблюдения спин-флоп перехода в ферроборате $\text{GdFe}_3(\text{BO}_3)_4$, с весьма близким к нашему значению H_a/H_e , может являться влияние полей размагничивания объемных образцов, способствующее увеличению ψ_c [13–15]. Поскольку в нашем эксперименте исследовалась пластинка $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$, толщиной около 70 мкм, и магнитное поле лежало в плоскости пластинки, возникающие поля размагничивания здесь гораздо меньше, чем поля размагничивания, появляющиеся в объемном образце $\text{GdFe}_3(\text{BO}_3)_4$ [11, 12]. Таким образом, влияния на критический угол они не оказывают.

4. Выводы

В результате исследования полевых зависимостей магнитного двуупреждения в монокристалле $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$ было установлено, что магнитное поле $\mathbf{H} \parallel C_2$ индуцирует спин-ориентационный фазовый переход первого рода только в температурной области существования несоизмерной фазы, где реализуется антиферромагнитная спираль.

В температурной области существования соразмерной антиферромагнитной фазы в магнитном поле $\mathbf{H} \parallel C_2$ фазовый переход первого рода не наблюдается.

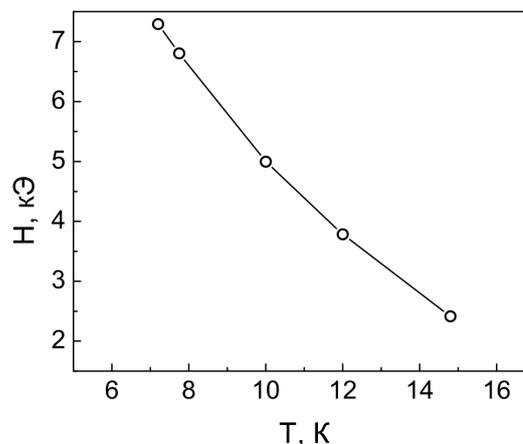


Рис. 3. Фазовая магнитная H - T диаграмма монокристалла $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$ для ориентации магнитного поля $\mathbf{H} \parallel C_2$

Это связывается с тем, что величина критического угла отклонения магнитного поля от оси легкого намагничивания ψ_c мала.

Из полевых зависимостей магнитного двуупреждения определены величины полей спин-ориентационного фазового перехода первого рода для разных температур. Построена фазовая магнитная H - T диаграмма.

Авторы выражают благодарность С.Л. Гнатченко за полезное обсуждение и ценные замечания.

1. 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).
2. M.N. Popova, J. Magn. Mater. **321**, 716 (2009).
3. 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) [Low Temp. Phys. **36**, 511 (2010)].
4. M. Janoschek, P. Fischer, J. Schefer, B. Roessli, V. Pomjakushin, M. Mever, V. Petricek, G. Petrakovskii, and L. Bezmaternykh, Phys. Rev. B **81**, 094429 (2010).
5. Д.В. Волков, А.А. Демидов, Н.П. Колмакова, ЖЭТФ **131**, 1030 (2007).
6. С.Л. Гнатченко, И.С. Качур, В.Г. Пирятинская, В.А. Бедарев, М.И. Пащенко, А.В. Малаховский, Л.Н. Безматерных, А.Л. Сухачёв, В.Л. Темеров, ФНТ **37**, 871 (2011) [Low Temp. Phys. **37**, (2011)].
7. М.И. Пащенко, В.А. Бедарев, Л.Н. Безматерных, В.Л. Темеров, Тез. Докладов XI Всероссийской молодежной школы-семинара, 78, Екатеринбург, Россия (2010).

8. M.I. Kobets, K.G. Dergachev, E.N. Khatsko, S.L. Gnatchenko, L.N. Bezmaternykh, and V.L. Temerov, e-print arXiv:1012.4588v1 (2010).
9. G.A. Zvyagina, K.R. Zhekov, I.V. Bilych, A.A. Zvyagin, I.A. Gudim, and V.L. Temerov, e-print arXiv:1104.2001v1 (2011).
10. В.В. Еременко, Н.Ф. Харченко, Ю.Г. Литвиненко, В.М. Науменко, *Магнітооптика и спектроскопия антиферромагнетиков* (Наукова думка, Київ, 1989).
11. 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).
12. A.D. Balaev, L.N. Bezmaternykh, I.A. Gudim, S.A. Kharlamova, S.G. Ovchinnikov, and V.L. Temerov, *J. Magn. Magn. Mater.* **258–259**, 532 (2003).
13. М.И. Каганов, Т.К. Цукерник, *ФТТ* **11**, 911 (1969).
14. Н.В. Гапон, К.Л. Дудко, *ЖЭТФ* **77**, 1528 (1979).
15. В.А. Попов, В.И. Скиданенко, *УФЖ* **17**, 1218 (1972).

Получено 20.07.11

МАГНІТООПТИЧНЕ ДОСЛІДЖЕННЯ ІНДУКОВАНОГО
МАГНІТНИМ ПОЛЕМ СПІН-ОРІЄНТАЦІЙНОГО
ФАЗОВОГО ПЕРЕХОДУ У МОНОКРИСТАЛІ
 $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$

*В.А. Бедарев, М.И. Пащенко, Д.М. Меренков,
Л.М. Безматерних, В.Л. Темеров*

Резюме

Проведено дослідження польових залежностей магнітного двозаломлення світла у монокристалі $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$ у випадку, коли напрямок поширення світла збігається з тригональною віссю кристала C_3 ($\mathbf{k}||C_3$), а зовнішнє магнітне поле орієнтоване вздовж осі другого порядку C_2 ($\mathbf{H}||C_2$). У температурному проміжку існування неспіврозмірної фази з утворенням довго-

періодичної антиферромагнітної спіралі виявлено чітко виражені скачки на польових залежностях двозаломлення, які ідентифіковані як спін-орієнтаційний фазовий перехід першого роду. Фазовий перехід супроводжувався гістерезисом на польових залежностях двозаломлення. Побудовано магнітну фазову $H-T$ діаграму $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$ для орієнтації магнітного поля вздовж осі другого порядку кристала $\mathbf{H}||C_2$.

MAGNETOOPTICAL STUDY OF SPIN-ORIENTATION
PHASE TRANSITION IN $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$ SINGLE CRYSTAL

*V.A. Bedarev¹, M.I. Pashchenko¹, D.N. Merenkov¹,
L.N. Bezmaternykh², V.L. Temerov²*

¹B.I. Verkin Institute for Low Temperature Physics and Engineering, Nat. Acad. of Sci. of Ukraine (47, Lenin Av., Karkiv 61103, Ukraine; e-mail: bedarev@ilt.kharkov.ua),

²Kirensky Institute of Physics, Siberian Branch of the Russian Academy of Sciences (Krasnoyarsk 660036, Russia)

S u m m a r y

The magnetic field dependences of birefringence in a $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$ single crystal have been measured in the case where the direction of light propagation coincides with the trigonal crystal axis C_3 ($\mathbf{k}||C_3$), and the external magnetic field is oriented along the second-order axis C_2 ($\mathbf{H}||C_2$). In the temperature range, in which an incommensurate phase exists with the formation of a long-period antiferromagnetic helix, the strongly pronounced jumps in the field dependence of birefringence are revealed and identified as a first-order spin-orientation phase transition. The phase transition was accompanied by a hysteresis in the field dependences of birefringence. The $H-T$ phase diagram for a $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$ single crystal has been plotted in the case where the magnetic field is oriented along the crystal axis C_2 ($\mathbf{H}||C_2$).