

УДК 537.312: 538.245

А.Ф. Ревинский, И.И. Макоед

ИНДУЦИРОВАННЫЙ МАГНИТНЫМ ПОЛЕМ ФАЗОВЫЙ ПЕРЕХОД В ПОЛИКРИСТАЛЛИЧЕСКОМ BiFeO_3

В работе представлены данные о природе сосуществования взаимосвязанных спин-поляризованных электрической и магнитной структур в BiFeO_3 . Мы изучили намагничивание (M) в поликристаллах BiFeO_3 в пульсирующих сильных магнитных полях до 25 Т. При низких температурах приложение магнитных полей вызывает резкие изменения M в интервале 16–17 Т, которые могут быть вызваны магнитным переходом от циклоидального до скошенного антиферромагнитного состояния.

Введение

В последние годы широкое применение в области спиновой электроники находят мультиферроики – материалы, обладающие одновременно магнитным и электрическим упорядочением [1]. Наиболее известным мультиферроиком является феррит висмута, в котором экспериментально подтверждено сосуществование упорядоченных магнитной и электрической фаз. Такого рода взаимосвязь упорядоченных магнитной и электрической фаз в подобных материалах привлекает к себе внимание многочисленных исследователей [2; 3] в связи с перспективой использования мультиферроиков в современной спинтронике.

Симметрия кристаллической решетки феррита висмута допускает существование линейного магнитоэлектрического эффекта, спонтанной намагниченности и тороидного магнитного момента. Однако в объемных образцах их наблюдение оказывается невозможным из-за наличия пространственно-модулированной спиновой структуры циклоидного типа. Объемные образцы феррита висмута кристаллизуются в ромбоэдрически искаженной перовскитной структуре с параметрами элементарной ячейки $a=3.96 \text{ \AA}$, $\alpha=89.76^\circ$ и проявляют относительно невысокую намагниченность при комнатной температуре [3]. Их антиферромагнитная структура представлена спиновой спиралью с несоизмеримой периоду кристаллической решетки длиной волны $\lambda=62 \text{ нм}$, приводящей к подавлению спонтанной намагниченности [4].

Слабый ферромагнетизм в поликристаллическом BiFeO_3

На рисунке 1 представлены кристаллическая и магнитная структуры феррита висмута. Кристаллическая структура характеризуется ромбоэдрически искаженной перовскитной решеткой (пространственная группа $R3c$). Спонтанная поляризация обусловлена малым смещением ионов Fe^{3+} и Bi^{3+} из равновесных положений таким образом, что вектор поляризации \vec{P} направлен вдоль оси третьего порядка, т.е. вдоль направления $[111]_c$ псевдокубической структуры. При этом, как показано на рисунке 2, спонтанный магнитный момент \vec{M} обусловлен скосом спиновых магнитных моментов подрешетки железа. Наличие спиновой циклоиды $L(x)$ приводит к периодическому изменению величины угла скоса Θ . Он максимален при $\vec{L} \uparrow \uparrow \vec{P}$ и минимален при $\vec{L} \perp \vec{P}$. В связи с этим спонтанный магнитный момент, в среднем за период циклоиды $\lambda=62 \text{ нм}$, равен нулю. Только при подавлении спиновой циклоиды становится возможным наблюдение слабого ферромагнетизма.

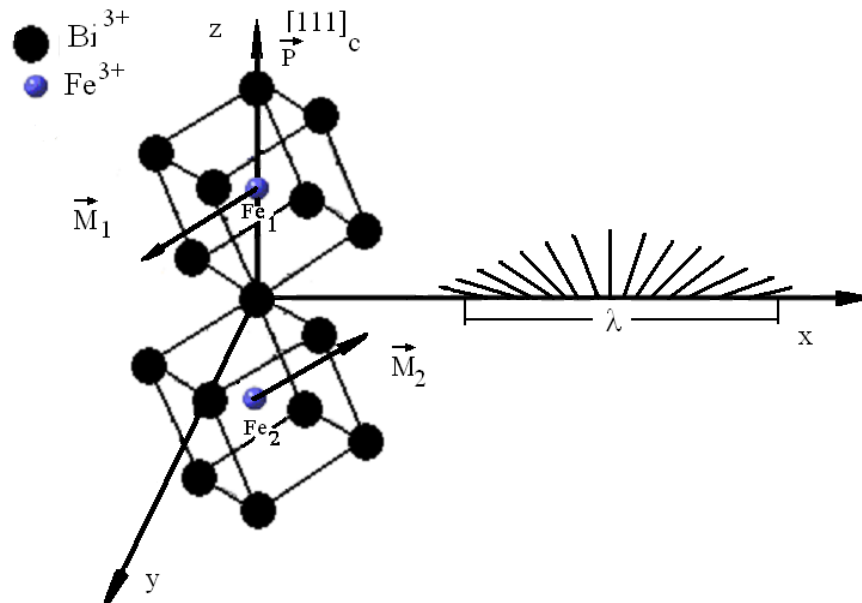
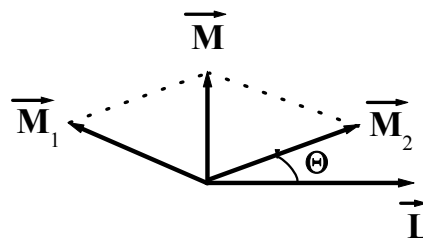


Рисунок 1 – Магнитная структура сегнетоэлектрической R3c фазы BiFeO_3 в псевдокубической решетке



Θ - угол скоса магнитных подрешеток

Рисунок 2 – Векторы намагниченности \vec{M}_1 , \vec{M}_2 и антиферромагнетизма \vec{L} слабо ферромагнетика

Разрушение циклоиды приводит к возникновению в феррите висмута слабо выраженных ферромагнитных свойств и может быть вызвано несколькими причинами. Наиболее известными являются: допирование, вызывающее частичное замещение ионов висмута редкоземельными элементами; допирование, вызывающее частичное замещение ионов железа ионами 3d элементов; помещение образцов в сильные магнитные поля; помещение образцов в области высокого давления; получение тонкопленочных и наноразмерных образцов, в которых существование циклоиды оказывается невозможным из-за размерного фактора. В этих случаях могут возникать нарушения коллинеарности спинов магнитных подрешеток ионов железа. Целью настоящей работы является исследование фазового перехода, индуцированного сильным магнитным полем в поликристаллическом BiFeO_3 .

В работе экспериментально были исследованы изменения магнитных свойств при помещении образца феррита висмута в сильное магнитное поле. Как видно на рисунке 3, приложение к образцу магнитного поля величиной от 16 до 17 Тл, в зависимости от температуры, приводит к аномальному поведению полевой зависимо-

сти относительной величины удельной намагниченности, что свидетельствует о подавлении спиральной спиновой структуры в антиферромагнитном феррите висмута. Подобные результаты были получены авторами работы [5] на монокристаллических образцах феррита висмута.

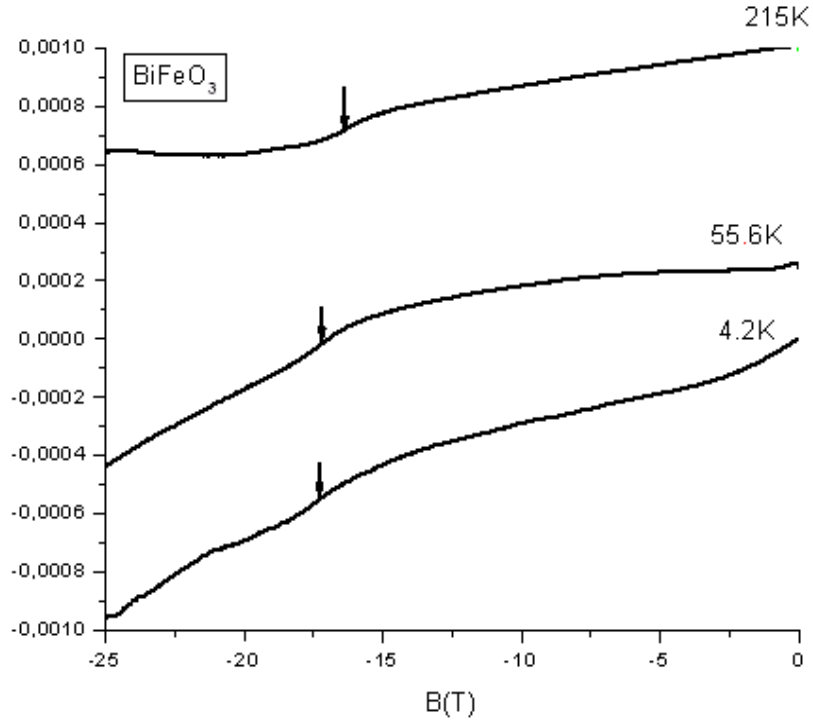


Рисунок 3 – Разрушение спиновой циклоиды в феррите висмута в сильном магнитном поле

Теория слабого ферромагнетизма была создана независимо Дзялошинским и Мория [6]. Согласно данной теории, слабый ферромагнетизм является следствием слабой неколлинеарности двух магнитных подрешеток антиферромагнетика, имеющих магнитные моменты \vec{M}_1 и \vec{M}_2 , как это показано на рисунке 2.

Для проведения оценочных расчетов величины напряженности магнитного поля, при котором подавляется магнитная спиновая циклоида, будем предполагать, что при некотором критическом значении напряженности магнитного поля H_c внутри объемного BiFeO_3 происходит фазовый переход из спин-модулированного в состояние в однородное антиферромагнитное состояние G-типа. При этом указанный фазовый переход является переходом II рода. Согласно теории Л. Ландау [6], свободная энергия при данном переходе изменяется непрерывно. Для спин-модулированного сосотояния $H < H_c$ свободную энергию f_L запишем в виде [4; 5]:

$$f_L = -\gamma P_z (\ell_x \nabla_x \ell_z - \ell_y \nabla_y \ell_z) + A \sum_{x,y,z} (\nabla \ell_i)^2 - K_u \ell_2^2 - \frac{1}{2} \chi_{\perp} H_{\perp}^2, \quad (1)$$

где P_z – компонента электрической поляризации вдоль оси симметрии третьего порядка,

ℓ_x – удельная компонента вектора антиферромагнетизма $\vec{\ell} = \frac{\vec{L}}{2M_o}$, $M_o = \left| \vec{M}_1 \right| = \left| \vec{M}_2 \right|$ –

модуль намагниченности подрешетки, γ – константа магнитоэлектрического взаимодействия, A – постоянная неоднородного обменного взаимодействия, K_u – константа

магнитной анизотропии, χ_{\perp} – магнитная восприимчивость в направлении, перпендикулярном вектору антиферромагнетизма.

Первое слагаемое в (1) представляет так называемый инвариант Лифшица, который применим для описания неоднородной антиферромагнитной структуры, в частности, спиновой циклоиды. Для случая однородной спиновой структуры применим так называемый инвариант Дзялошинского–Мория:

$$f_{DM} = D_z(m_x \ell_y - m_y \ell_x), \quad (3)$$

где D_z – константа указанного взаимодействия, \vec{m} – единичный вектор намагниченности

$$\vec{m} = \frac{\vec{M}}{2M_0}. \quad (4)$$

Усредняя (1) по направлениям x , y , z применительно к поликристаллическому веществу, можно получить формулу для оценки критического магнитного поля H_c :

$$H_c = \sqrt{\frac{4Aq^2}{\chi}}, \quad (5)$$

где $q = \frac{2\pi}{\lambda}$ – волновое число циклоиды, χ – усредненная магнитная восприимчивость.

Используем для расчета экспериментальное значение $\chi = 5 \cdot 10^{-5}$ [7], а также $A = 3 \cdot 10^{-7}$ эрг/см, $\lambda = 62$ нм [3, 8]. В таблице 1 представлены рассчитанные и экспериментальные значения в сравнении с известными литературными данными [5; 8].

Таблица 1 – Теоретические и экспериментальные данные о величине критического поля H_c (Тл), подавляющего спиновую циклоиду в объемных образцах BiFeO_3

Теоретические расчеты		Экспериментальные данные	
Поликристалл	Монокристалл	Поликристалл	Монокристалл
16	20 [8]	16–17*	20 [8] 16–18* [5]

Примечание – Измерения (*) проводили в интервале температур 4,2–215 К

Как видно, полученные результаты хорошо согласуются с данными, наблюдаемыми на монокристаллических образцах феррита висмута, и подтверждают факт разрушения спиновой циклоиды в поликристаллических образцах феррита висмута, подверженных воздействию сильного (16–17 Тл) магнитного поля.

Работа выполнена в рамках Государственной программы научных исследований «Кристаллические и молекулярные структуры» (№ гос. регистрации 20111730 от 30.04.2011). Авторы выражают благодарность профессору Левенского Католического Университета (KU Leuven, Бельгия) Марку Ван Хюлле за финансирование исследований в рамках программы академического обмена имени профессора Михаила Александровича Иванова для студентов, аспирантов и преподавателей БрГУ имени А.С. Пушкина. Благодарим также директора INPAC (Institute for Nanoscale Physics and Chemistry, K.U. Leuven, Belgium) профессора В.В. Мошалкова и ученого секретаря INPAC Йохана Ванакена за предоставленную возможность и помощь в проведении измерений в сильных магнитных полях.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Holcomb, M.B. Probing the evolution of antiferromagnetism in multiferroics / M.B. Holcomb, L.W. Martin, A. Scholl // *Phys. Rev.* – 2010. – Vol. B81, – P. 134406-1 – 134406-6.
2. Ce-Wen, N. Multiferroic-magnetoelectric composites: historical perspective, status, and future directions / N. Ce-Wen, M.I. Bichurin, S. Dong, D. Viehland, G. Srinivasan // *J. Appl. Phys.* – 2008. – Vol. 103. – P. 031101-1 – 031101-35.
3. Звездин, А.К. Неоднородное магнитоэлектрическое взаимодействие в мультиферроиках и вызванные им новые физические эффекты / А.К. Звездин, А.П. Пятаков // *УФН.* – 2009. – Т. 179, № 8.– С. 897–904.
4. Sosnowska, I. Spiral magnetic ordering in bismuth ferrite / I. Sosnowska, T.P. Neumaier, E. Steichele // *J. Phys. C. : Solid State Phys.* – 1982. – Vol. 15, – P.4835–4846.
5. Tokunaga, M. High-field study of multiferroic BiFeO₃/ M. Tokunaga, M. Azuma, Y. Shimakawa // *Journal of Physics: Conference Series* – 2010. – Vol. 200, – P. 012206-1 – 012206-4.
6. Ландау, Л.Д. Электродинамика сплошных сред / Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. – М. : Наука, 1982. – 620 с.
7. Макоед, И.И. Получение и физические свойства мультиферроиков : монография / И.И. Макоед; Брестский гос. ун-т имени А.С. Пушкина. – Брест : БрГУ имени А.С. Пушкина, 2009. – 180 с.
8. Попов, Ю.Ф. Линейный магнитоэлектрический эффект и фазовые переходы в феррите висмута BiFeO₃ / Ю.Ф. Попов [и др.] // *Письма в журнал экспериментальной и теоретической физики.* – 1993. – Vol. 57. – P. 65–68.

A.F. Ravinski, I.I. Makoed. Magnetic-field Induced Phase Transition in BiFeO₃

In this paper we report the materials on the origin of the coexistence of interrelated electric and magnetic spin-polarized structures in BiFeO₃. We studied the magnetization (M) in polycrystals of BiFeO₃ in pulsed high magnetic fields up to 25 T. At low temperatures, the application of magnetic fields causes sharp changes in M at around 16-17 T, which can be ascribed to the magnetic transition from a cycloidal to a canted antiferromagnetic state.

Рукапіс паступіў у рэдкалегію 25.04.2012