

Гигантский магнитоэлектрический эффект в мультиферроике $\text{SmFe}_3(\text{BO}_3)_4$

А. А. Мухин¹⁾, Г. П. Воробьев⁺, В. Ю. Иванов, А. М. Кадомцева⁺, А. С. Нарижная⁺, А. М. Кузьменко, Ю. Ф. Попов⁺, Л. Н. Безматерных*, И. А. Гудим*

Институт общей физики им. А.М. Прохорова РАН, 119991 Москва, Россия

⁺Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова, 119992 Москва, Россия

*Институт физики им. Л.В. Киренского Сибирского отд. РАН, 660036 Красноярск, Россия

Поступила в редакцию 31 декабря 2010 г.

После переработки 1 февраля 2011 г.

Обнаружено гигантское (более чем в 3 раза) уменьшение диэлектрической проницаемости ϵ в легкоплоскостном ферроборате $\text{SmFe}_3(\text{BO}_3)_4$ в магнитном поле ~ 5 кЭ, приложенном в базисной ab -плоскости кристалла. Установлена тесная связь этого эффекта с аномалиями в полевой зависимости электрической поляризации. Показано, что обнаруженный магнитоэлектрический эффект обусловлен вкладом в ϵ электрической восприимчивости, связанной с вращением спинов в ab -плоскости, которая возникает в области антиферромагнитного упорядочения $T < T_N = 33$ К и подавляется магнитным полем. Предложена теоретическая модель, описывающая основные черты поведения ϵ и электрической поляризации в магнитном поле, которая учитывает дополнительную анизотропию в базисной плоскости, наведенную магнитоупругими напряжениями.

1. Введение. Магнитоэлектрические материалы, в частности мультиферроики, в которых магнитные и сегнетоэлектрические (диэлектрические) свойства взаимосвязаны, привлекают в последнее время большой интерес [1]. Открытие в последние годы новых классов мультиферроиков с модулированной спиновой структурой, в которых сегнетоэлектрический порядок имеет несобственный характер и возникает при магнитном упорядочении, вызвало новый всплеск интереса к этим веществам [2–5], так как магнитоэлектрическая связь в них проявляется существенно сильнее, чем в других сегнетомагнетиках. Об этом свидетельствуют, в частности, обнаружение в мультиферроиках такого типа (TbMnO_3 , DyMnO_3 и др.) переориентации электрической поляризации в магнитном поле, а также диэлектрических аномалий при фазовых переходах [6, 7]. Наличие спонтанной электрической поляризации, связанной с магнитной структурой, которая может отклоняться от состояния равновесия под действием электрического поля, должно приводить к дополнительному вкладу в диэлектрические свойства. Значительную величину такого вклада следует ожидать при большой спонтанной поляризации и малой магнитной анизотропии системы.

Хорошие возможности для поиска и изучения этих эффектов дают редкоземельные ферробораты

$\text{RFe}_3(\text{BO}_3)_4$ ($\text{R} = \text{Y}, \text{La} - \text{Lu}$), имеющие тригональную кристаллическую структуру (пространственная группа $R\bar{3}2$), в которых реализуются легкоплоскостные антиферромагнитные структуры. Эти магнетики привлекли в последнее время значительное внимание в связи с обнаружением в них мультиферроэлектрических свойств и разнообразных фазовых переходов [8–13]. Антиферромагнитное упорядочение ионов Fe^{3+} происходит в них ниже $T_N \sim 30\text{--}40$ К, при котором спины железа ориентируются либо вдоль тригональной оси c (легкоосная структура), либо в базисной ab -плоскости (легкоплоскостная структура). В R -подсистеме также индуцируется магнитный порядок за счет R-Fe обмена, который играет важную роль в стабилизации той или иной магнитной структуры и формировании магнитных и магнитоэлектрических свойств.

Как было недавно установлено [13], ферроборат $\text{SmFe}_3(\text{BO}_3)_4$ имеет легкоплоскостную магнитную структуру и демонстрирует заметную спонтанную и сравнительно большую индуцированную магнитным полем электрическую поляризацию, а также рост ϵ при низких температурах, что свидетельствует о сильной магнитоэлектрической связи в этом ферроборате. Это указывает на возможность проявления в $\text{SmFe}_3(\text{BO}_3)_4$ заметных магнитоэлектрических эффектов в магнитном поле, изучению которых посвящена данная работа.

¹⁾ e-mail: mukhin@ran.gpi.ru

2. Экспериментальные методики. Монокристаллы $\text{SmFe}_3(\text{BO}_3)_4$ были выращены путем кристаллизации из растворов в расплавах. Диэлектрические свойства (емкость и проводимость), а также электрическая поляризация исследовались, соответственно, с помощью прецизионного LCR-метра (QuadTech model 1920) на частотах 10–200 кГц и электрометра (В7-45) в статических магнитных полях до 15 кЭ при температурах 4–300 К. Электроды из проводящей серебряной пасты наносились на определенные грани исследуемого образца перпендикулярно к направлению измерений. Измерения диэлектрической проницаемости в диапазоне субмиллиметровых волн были выполнены с помощью квазиоптического спектрометра на основе ламп обратной волны. Магнитные свойства изучались в статических полях до 50 кЭ с помощью СКВИД-магнитометра (MPMS-5, Quantum Design).

3. Результаты эксперимента. На рис.1 приведены температурные зависимости действительной части диэлектрической проницаемости ϵ_a вдоль оси a

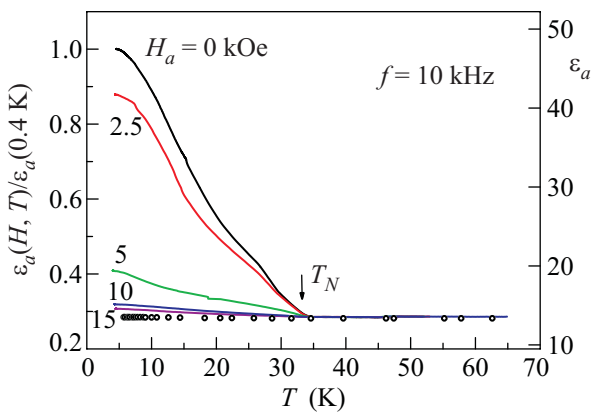


Рис.1. Температурные зависимости действительной части диэлектрической проницаемости ϵ_a вдоль оси a кристалла $\text{SmFe}_3(\text{BO}_3)_4$ (на частоте 10 кГц) при различных значениях магнитного поля $H||a$ -оси (сплошные линии). Кружки соответствуют субмиллиметровым квазиоптическим данным на частоте 400 ГГц при $H = 0$. Левая шкала соответствует нормированной радиочастотной проницаемости, а правая – абсолютным значениям радиочастотной и субмиллиметровой ϵ_a

кристалла на частоте 10 кГц. Видно, что, оставаясь практически постоянной в парамагнитной области, диэлектрическая проницаемость сильно возрастает ниже точки Нееля и достигает при низких температурах трехкратного значения от своей высокотемпературной величины. Приложение небольшого магнитного поля в базисной ab -плоскости вызывает сильное уменьшение ϵ_a , о чем свидетельствуют

соответствующие зависимости $\epsilon_a(T)$ при различных значениях магнитного поля (рис.1). В поле ~ 15 кЭ рост $\epsilon_a(T)$ практически полностью подавлен. Частотная зависимость диэлектрической проницаемости практически отсутствует вплоть до 200 кГц. Однако, как показали субмиллиметровые исследования, на высоких частотах (200–400 ГГц) ϵ_a уже не испытывает никаких аномалий ниже точки Нееля и близка к соответствующему значению для 10–200 кГц в парамагнитной области (рис.1). Это позволяет локализовать диапазон частотной дисперсии ϵ для поиска резонансных возбуждений, определяющих вклад в ϵ , чему предполагается посвятить отдельную работу.

Для более детального изучения влияния магнитного поля на диэлектрическую проницаемость измерялись полевые зависимости $\epsilon_a(H_a)$ и $\epsilon_a(H_b)$ (рис.2). Их общей чертой является сильное уменьшение ϵ_a

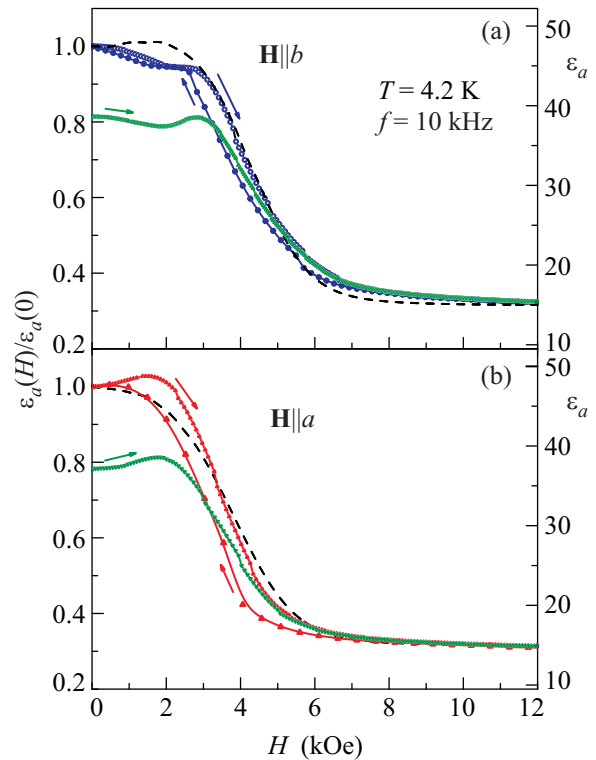


Рис.2. Зависимость действительной части диэлектрической проницаемости ϵ_a вдоль оси a кристалла $\text{SmFe}_3(\text{BO}_3)_4$ (на частоте 10 кГц) от магнитного поля $H||a$ -оси (а) и $H||b$ -оси (б). Точки и сплошные линии – эксперимент, пунктирные линии – теория. Нижележащая кривая на каждом из рисунков получена после первоначального охлаждения образца в нулевом магнитном поле

в поле ~ 4 –5 кЭ и дальнейшее плавное падение фактически до своего высокотемпературного значения. При этом наблюдается заметный гистерезис полевых

зависимостей ε , составляющий ~ 1 кЭ. Другой особенностью поведения ε является зависимость ее величины от предыстории: при первоначальном охлаждении образца из парамагнитного состояния в нулевом магнитном поле значение ε_a оказывается примерно на 20% ниже ее величины при $H = 0$ после цикла намагничивания образца (рис.2).

Сравнение диэлектрической проницаемости при различных направлениях магнитного поля показывает, что характерные пороговые поля, при которых происходит резкое уменьшение ε_a , имеют меньшую на ~ 0.5 – 1 кЭ величину при $H \parallel a$, чем при $H \parallel b$. Кроме того, отличаются и формы соответствующих кривых $\varepsilon_a(H_a)$ и $\varepsilon_a(H_b)$, на которых в ряде случаев проявляется немонотонное поведение, сопровождаемое появлением максимумов ε_a . Все это свидетельствует о наличии анизотропии в базисной плоскости и тесной взаимосвязи диэлектрической проницаемости с магнитной структурой, в частности, с ориентацией спинов в ab -плоскости кристалла.

Для более детального выяснения этих вопросов были проведены также исследования электрической поляризации и намагниченности (магнитной восприимчивости) $\text{SmFe}_3(\text{BO}_3)_4$. Поведение спонтанной $P_a^s(T)$ и индуцированной магнитным полем $P_a(H_{a,b})$ электрической поляризации показано, соответственно, на рис.3 и 4. Видно, что при охлаждении в нулевом магнитном поле ниже T_N возникает электрическая поляризация P_a^s , увеличивающаяся с понижением температуры (кривая 1 на рис.3). Если теперь, стартуя из этого состояния при $T = 4.2$ К, измерить зависимость $P_a(H_a)$, получим довольно резкое возрастание поляризации в полях 2–5 кЭ и постепенное приближение к насыщению в больших полях (рис.4). При уменьшении поля возникает гистерезис, и поляризация при $H = 0$ становится больше начального значения. Ее температурная зависимость следует кривой 2 рис.3. Если снова охладить образец в нулевом магнитном поле от температуры выше T_N и измерить $P_a(H_b)$, получим зависимость, подобную зависимости $P_a(H_a)$, но с противоположным знаком, что соответствует феноменологической теории [8–9], согласно которой $P_a \equiv P_x \sim (L_x^2 - L_y^2)$ и в двух индуцированных полями H_a и H_b состояниях $\mathbf{L} \perp \mathbf{a}$ и $\mathbf{L} \perp \mathbf{b}$ знаки P_a противоположны, где \mathbf{L} – антиферромагнитный момент спинов Fe^{3+} , а оси x, y, z совпадают, соответственно, с a, b, c . Меньшее почти на порядок значение спонтанной поляризации по сравнению с поляризацией, индуцированной полем, свидетельствует о том, что направления спинов (\mathbf{L}) распределены достаточно равномерно в базисной плоскости. При этом тот факт, что величина изменения поляризации

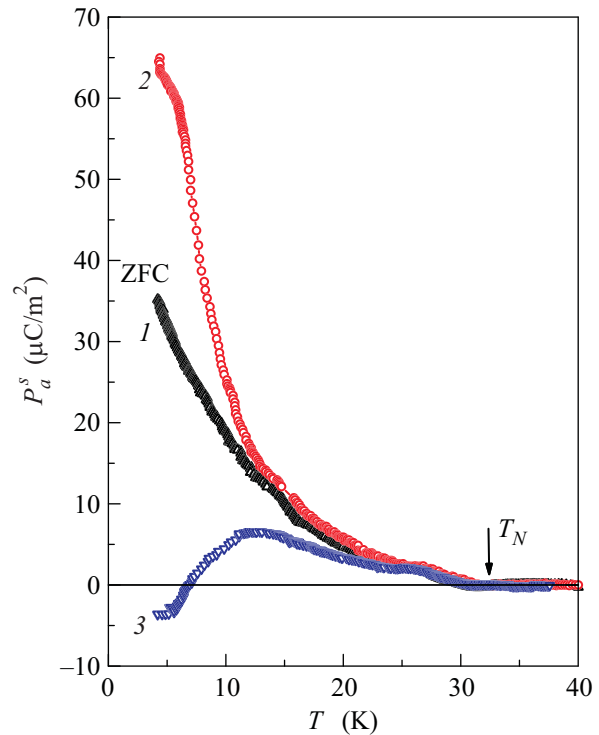


Рис.3. Температурные зависимости спонтанной электрической поляризации вдоль a -оси кристалла $\text{SmFe}_3(\text{BO}_3)_4$ при $H = 0$, полученные в различных условиях: кривая 1 соответствует охлаждению в нулевом магнитном поле, 2 и 3 – после предварительного приложения магнитного поля 13 кЭ, соответственно, вдоль осей a и b

в поле H_b больше, чем в поле H_a , указывает на то, что спины в среднем лежат ближе к оси b , то есть $\langle L_y^2 \rangle > \langle L_x^2 \rangle$. Это состояние, однако, может измениться в зависимости от предыстории. В частности, после выведения поля из индуцированного $H \parallel b$ состояния спонтанная поляризация отличается от начального значения и становится близкой к нулю или даже отрицательной (рис.4), что указывает на изменение распределения спинов, в котором уже $\langle L_y^2 \rangle < \langle L_x^2 \rangle$. Далее, при повышении температуры спонтанная поляризация в этом состоянии изменяется теперь уже по-другому и следует кривой 3 на рис.3, которая при $T \geq 15$ К приближается к исходной кривой 1. Это свидетельствует о том, что индуцированное $H \parallel b$ при низких температурах магнитное состояние является метастабильным и при $T \geq 15$ К переходит в более стабильное состояние с $\langle L_y^2 \rangle > \langle L_x^2 \rangle$.

Отметим, что влияние предыстории проявлялось также и в температурных зависимостях магнитной восприимчивости и кривых намагничивания в базисной плоскости. Тот факт, что намагничивание, изменяющее распределение спинов или соотношение

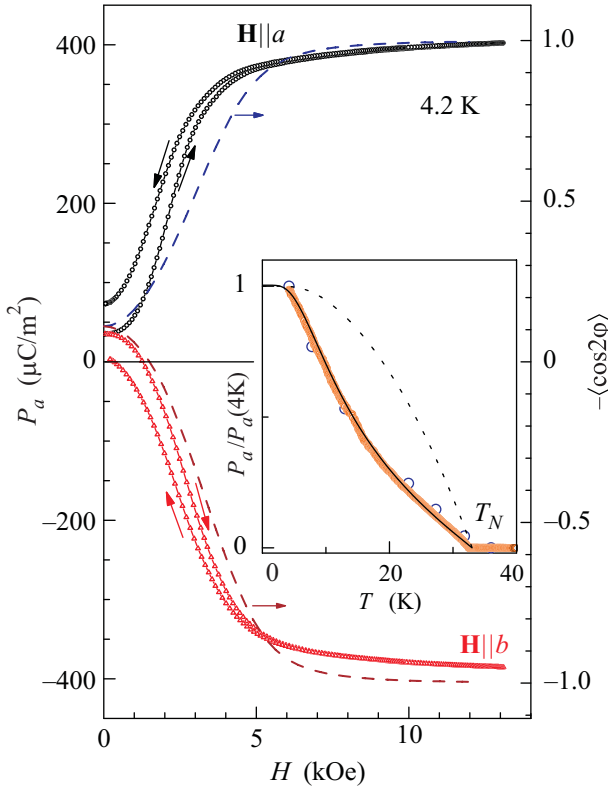


Рис.4. Зависимости электрической поляризации вдоль оси a кристалла $\text{SmFe}_3(\text{BO}_3)_4$ от магнитного поля $\mathbf{H}||a$ -оси и $\mathbf{H}||b$ -оси. Точки – эксперимент (левая шкала), штриховые линии – теория (правая шкала). На вставке показана температурная зависимость поляризации в насыщенном состоянии: точки – эксперимент (поле 7 и 10 кЭ), сплошная линия – теория с учетом редкоземельного вклада, пунктир – теория, учитывающая вклад только Fe-подсистемы

антиферромагнитных доменов в базисной плоскости, приводит к заметному изменению величины спонтанной поляризации и магнитной восприимчивости, подтверждает вывод о том, что само ее возникновение определяется какими-то факторами, понижающими симметрию кристалла. Одним из таких факторов может быть одноосная анизотропия, наведенная механическими напряжениями за счет магнитоупругих взаимодействий [12, 13].

4. Теория и обсуждение результатов. Для описания наблюдаемых диэлектрических и магнитоэлектрических свойств системы рассмотрим ее термодинамический потенциал,

$$\Phi(\mathbf{l}, \mathbf{P}, \mathbf{H}, \mathbf{E}) = \Phi_m(\mathbf{l}, \mathbf{H}) + \Phi_{me}(\mathbf{l}, \mathbf{P}) + \Phi_e(\mathbf{P}, \mathbf{E}), \quad (1)$$

включающий магнитную, $\Phi_m(\mathbf{l}, \mathbf{H})$, магнитоэлектрическую, $\Phi_{me}(\mathbf{l}, \mathbf{P})$, и электрическую, $\Phi_e(\mathbf{P}, \mathbf{E})$, части, определяемые выражениями

$$\begin{aligned} \Phi_m(\mathbf{l}, \mathbf{H}) = & -\frac{1}{2}\chi_{\perp}[\mathbf{H}^2 - (\mathbf{H}\mathbf{l})^2] + \frac{1}{2}K_{\text{eff}}l_z^2 + \\ & + \frac{1}{12}K_6[(l_x + il_y)^6 + (l_x - il_y)^6] - \frac{1}{2}K_{1u}(l_x^2 - l_y^2) - K_{2u}l_xl_y, \end{aligned} \quad (2)$$

где первое слагаемое в (2) определяет энергию скоса антиферромагнетика в магнитном поле, второе представляет собой энергию одноосной анизотропии, стабилизирующую легкую плоскость ab ($K_{\text{eff}} > 0$), а третье и четвертое – соответственно, энергии кристаллографической гексагональной анизотропии и магнитоупругой анизотропии $K_{1u} \sim \sigma_{xx} - \sigma_{yy}$, $K_{2u} \sim \sigma_{xy}$, наведенной внутренними напряжениями сжатия/растяжения $\sigma_{xx} - \sigma_{yy}$ и сдвига σ_{xy} в ab плоскости кристалла; актуальная для нашего анализа часть энергии магнитоэлектрического взаимодействия, связанная с ориентацией спинов в базисной плоскости, есть [8, 9]

$$\Phi_{me}(\mathbf{l}, \mathbf{P}) = -c_2P_x(l_x^2 - l_y^2) + 2c_2P_y l_x l_y + \dots, \quad (3)$$

а электрическая часть термодинамического потенциала равна

$$\Phi_e(\mathbf{P}, \mathbf{E}) = (P_x^2 + P_y^2)/2\chi_e^{\perp} + P_x^2/2\chi_e^{\parallel} - \mathbf{P}\mathbf{E}, \quad (4)$$

где χ_e^{\perp} и χ_e^{\parallel} – решеточные части (ди)электрической восприимчивости. Для простоты мы не учитываем здесь в явном виде вклад Sm-подсистемы и полагаем, что соответствующие параметры в (1)–(3) ($K_{\text{eff}}, K_u, c_2, \dots$) перенормированы за счет Sm-Fe взаимодействия.

Будем характеризовать интересующую нас легкочлоскостную антиферромагнитную структуру углом φ : $l_x = \cos \varphi$, $l_y = \sin \varphi$. Минимизируя термодинамический потенциал Φ (1) по \mathbf{P} и подставляя в него найденные $P_x = P_{\perp}^0 \cos 2\varphi + \chi_e^{\perp} E_x$, $P_y = -P_{\perp}^0 \sin 2\varphi + \chi_e^{\perp} E_y$, где $P_{\perp}^0 = c_2 \chi_e^{\perp}$, получаем для электрической восприимчивости (проницаемости) χ_e^x вдоль оси a

$$\begin{aligned} \chi_e^x \equiv dP_x/dE_x = & -\Phi_{E_x E_x} + (\Phi_{E_x \varphi})^2 / \Phi_{\varphi \varphi} = \\ = & \chi_e^{\perp} + (2P_{\perp}^0 \sin 2\varphi_0)^2 / \Phi_{\varphi \varphi}, \end{aligned} \quad (5)$$

где $\Phi_{E_x E_x} = \partial^2 \Phi / \partial E_x^2$, $\Phi_{E_x \varphi} = \partial^2 \Phi / \partial E_x \partial \varphi$, $\Phi_{\varphi \varphi} = \partial^2 \Phi / \partial \varphi^2$, а равновесное значение угла $\varphi = \varphi_0$ определяется уравнением $\partial \Phi / \partial \varphi = 0$. Как видно из выражения (5), в системе возникает дополнительный вклад в электрическую восприимчивость, который определяется электрической поляризацией P_{\perp}^0 в базисной плоскости и жесткостью $\Phi_{\varphi \varphi}^0$ по отношению к вращению спинов в этой плоскости. По смыслу этот

вклад напоминает хорошо известную магнитную восприимчивость вращения в ферромагнетиках или слабых ферромагнетиках, поэтому по аналогии его можно назвать *электрической восприимчивостью вращения*. Жесткость (устойчивость) равновесной спиновой конфигурации определяется величиной $\Phi_{\varphi\varphi}^0 = 6K_6 \cos 6\varphi_0 + K_u \cos 2(\varphi_0 - \varphi_u) - \chi_{\perp} H^2 \cos 2(\varphi_0 - \varphi_H)$, которая в устойчивом состоянии должна быть положительной, здесь $K_u^2 = K_{1u}^2 + K_{2u}^2$, $\text{tg} 2\varphi_u = K_{2u}/K_{1u}$.

Проанализируем сначала поведение электрической восприимчивости в магнитном поле в идеализированном кристалле, характеризуемом только гексагональной кристаллографической анизотропией в ab -плоскости. Пусть для определенности $K_6 > 0$, тогда при $H = 0$ имеется три типа равновесных состояний (доменов): $\varphi_1 = 0$ и $\varphi_{2,3} = \pm\pi/3$. Пусть $H \parallel a$ – оси ($\varphi_H = 0$). Тогда состояние $\varphi_1 = 0$ остается неизменным до достижения H_x значения спин-флоп перехода, $H_0 = \sqrt{6K_6/\chi_{\perp}}$, при котором антиферромагнитный момент \mathbf{L} разворачивается на 90° перпендикулярно H , а в двух других состояниях углы плавно приближаются к ортогональному полю состоянию $\sin 2\varphi_{2,3} = \pm\sqrt{1 - H_x^2/H_0^2}$ при $H_x \rightarrow H_0$. Первое состояние не дает вклада в диэлектрическую проницаемость, а вклад двух других состояний в угловой фазе ($H_x < H_0$) равен $\Delta\varepsilon_x(H_x) = \Delta\varepsilon_x^0/\sqrt{1 + 3H_x^2/H_0^2}$, а при $H_x > H_0$ $\Delta\varepsilon_x(H_x) = 0$, где $\Delta\varepsilon_x^0 = 4\pi(2P_{\perp}^0)^2/8K_6$. На рис.5а показана зависимость $\Delta\varepsilon_x(H_x)$, где пунктирная кривая соответствует исходному состоянию

с равновероятным распределением по трем доменам $\varphi_{1,2,3}$, а сплошная линия – более стабильным состоянием $\varphi_{2,3}$, в которые система переходит после цикла намагничивания выше поля H_0 .

При другом направлении поля, $H \parallel b$ -оси ($\varphi_H = \pi/2$), состояние $\varphi_1 = 0$ остается неизменным, а в двух других состояниях $\cos 2\varphi_{2,3} = \frac{1}{2}\sqrt{1 - 3H_y^2/H_0^2}$, и углы плавно приближаются к значению $\pm\pi/4$ при $H_y \rightarrow H_0/\sqrt{3}$, где теряется устойчивость метастабильных состояний $\varphi_{2,3}$, и происходит переход в устойчивое состояние $\varphi_1 = 0$, в котором далее система и остается. Вращательный диэлектрический вклад $\Delta\varepsilon_x(H_e) = \Delta\varepsilon_x^0/\sqrt{1 - 3H_y^2/H_0^2}$ отличен от нуля только для метастабильных состояний $\varphi_{2,3}$, который расходуется при $H_y \rightarrow H_0/\sqrt{3}$ при переходе из метастабильных угловых фаз в ортогональное полю состояние, где и обращается в нуль (рис.5б). Магнитоэлектрический эффект в этом случае проявляется только при первоначальном цикле намагничивания, когда существуют соответствующие метастабильные состояния $\varphi_{2,3}$, и исчезает при переходе \mathbf{L} в ортогональное полю состояние.

Таким образом, полученные для чисто гексагональной анизотропии результаты демонстрируют наличие магнитоэлектрического эффекта, который, однако, качественно отличается при намагничивании вдоль осей a и b кристалла. Это не соответствует экспериментальным данным, демонстрирующим, наоборот, схожее поведение диэлектрической проницаемости в поле по обеим осям. Для того чтобы прояснить ситуацию, рассмотрим влияние магнитоупругой энергии анизотропии $-K_u \cos 2(\varphi - \varphi_u)$, наведенной внутренними напряжениями в реальном кристалле. Локально, то есть в определенной области кристалла, эта анизотропия является одноосной с легкой осью в базисной плоскости, определяемой углом φ_u . Однако, учитывая случайный характер распределения внутренних напряжений, следует ожидать и соответствующего распределения как направлений легких осей φ_u , так и самой величины анизотропии K_u . Поэтому для нахождения магнитоэлектрического вклада в проницаемость в этом случае необходимо определить локальную ориентацию \mathbf{L} , то есть угол φ , и затем усреднить соответствующую электрическую восприимчивость (5) для конкретного распределения φ_u , K_u или K_{1u} , K_{2u} . Поскольку задача в общем случае, когда имеются как гексагональная, так и наведенная анизотропии, является достаточно громоздкой, мы ограничимся на данном этапе учетом только наведенной магнитоупругой анизотропии.

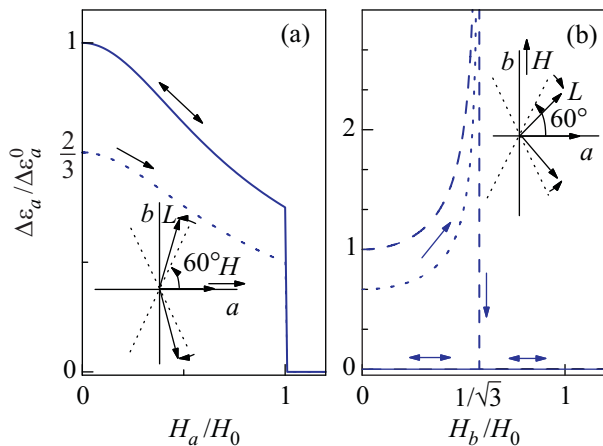


Рис.5. Теоретические зависимости вращательной диэлектрической проницаемости (электрической восприимчивости) от магнитного поля в случае гексагональной кристаллографической анизотропии в плоскости ab при $\mathbf{H} \parallel a$ и $\mathbf{H} \parallel b$. На вставках стрелками показано отклонение \mathbf{L} в поле от легких осей (пунктир) в различных доменах

Минимизируя термодинамический потенциал (2) по углу φ при $H \parallel a$, найдем локальное равновесное значение $\operatorname{tg} 2\varphi = K_{2u}/(K_{1u} - \chi_{\perp} H_x^2)$, подставляя которое в (5), получим для локального магнитодиэлектрического вклада

$$\Delta \varepsilon_x(H_x) = \Delta \varepsilon_x^0 \frac{\sin^2 2\varphi_u}{[1 - 2h_x^2 \cos 2\varphi_u + h_x^4]^{3/2}}, \quad (6)$$

где $\Delta \varepsilon_x^0 = 4\pi(2P_{\perp}^0)^2/K_u$, $h_x^2 = \chi_{\perp} H_x^2/K_u$. В зависимости от направления легкой оси φ_u $\Delta \varepsilon_x(H_x)$ может проходить как через максимум ($\varphi_u < \pi/4$), так и монотонно спадать ($\varphi_u > \pi/4$), а при больших полях уменьшается как $1/H_x^6$.

Предположим, что параметры наведенной анизотропии K_{1u} и K_{2u} имеют двумерное гауссово распределение и характеризуются одинаковой дисперсией ΔK_u^2 , средними значениями \bar{K}_{1u} , \bar{K}_{2u} и отсутствием между K_{1u} и K_{2u} корреляции. Результаты проведенных численных расчетов и моделирования зависимостей $\Delta \varepsilon_x(H_x)$ и $\Delta \varepsilon_x(H_y)$ представлены на рис.2 пунктирными кривыми. Видно, что в целом наблюдаемые полевые зависимости описываются в рамках данной модели. Найденные из сопоставления с экспериментом параметры распределения равны $\Delta K_u = 5.5 \cdot 10^3$ эрг/см³, $\bar{K}_{1u} = -1.2 \cdot 10^3$ эрг/см³, $\bar{K}_{2u} = 0$, где отрицательное значение \bar{K}_{1u} отражает тот факт, что в среднем легкая ось наведенной энергии анизотропии лежит вдоль оси b . Это обстоятельство определяет также несколько большее значение порогового поля вдоль оси b , чем вдоль оси a . Используя выражение для усредненного магнитодиэлектрического вклада $\Delta \varepsilon_x^0 \approx 4\pi(2P_{\perp}^0)^2 \sqrt{\pi/2}/2\Delta K_u \approx 32.5$ при $H = 0$ ($\Delta K_{1u} \gg |\bar{K}_{1u}|, |\bar{K}_{2u}|$), мы оценили поляризацию $P_{\perp}^0 = \chi_{\perp}^{\perp} c_2 \approx 255$ мкК/м² в состоянии $\mathbf{l} \perp \mathbf{H}$, которое соответствует по порядку прямым измерениям этой величины ~ 400 мкК/м² (рис.4). Поведение электрической поляризации $P_x(H_{x,y}) = P_{\perp}^0(\cos 2\varphi)$ в рамках рассматриваемого подхода также согласуется с экспериментом (см. штриховые линии на рис.4). Таким образом, предложенная модель, учитывающая распределенный характер наведенной магнитоупругой анизотропии в базисной плоскости, в целом дает согласованное описание полевых зависимостей как диэлектрической проницаемости, так и поляризации.

Обсудим кратко температурные зависимости наблюдаемых явлений. На вставке к рис.4 показана температурная зависимость поляризации в насыщенном ($\mathbf{l} \perp \mathbf{H}$) состоянии $P_{\perp}^0(T)$. Видно, что поведение $P_{\perp}^0(T)$ явно не соответствует вкладу только Fe-подсистемы, пропорциональному квадрату среднего значения ее вектора антиферромагнетизма $L_0^2(T)$ (см. пунктирную кривую на вставке к

рис.4, приближение молекулярного поля), что свидетельствует о превалирующем вкладе в поляризацию R-подсистемы. Феноменологический анализ магнитоэлектрических взаимодействий в ферроборатах с учетом вклада R-подсистемы дан в работе [9]. Он, однако, включает большое количество констант, не все из которых являются актуальными в конкретной системе. Мы провели анализ редкоземельного вклада на основе подхода, учитывающего особенности основного состояния R-иона в кристалле (крамерсовский дублет) и соответствующего гамильтониана магнитоэлектрического взаимодействия для R-иона по аналогии с подходом, развитым в [14–16] для описания магнитоупругих взаимодействий в редкоземельных магнетиках. В результате актуальный вклад в магнитоэлектрическое взаимодействие, определяемый нижним крамерсовским дублетом R-иона, имеет вид

$$\begin{aligned} \Phi_{me}^R = & -P_x \{c_{2R}[l_x(\sigma_x^+ - \sigma_x^-) - l_y(\sigma_y^+ - \sigma_y^-)] + \\ & + c'_{2R}[H_x(\sigma_x^+ + \sigma_x^-) - H_y(\sigma_y^+ + \sigma_y^-)]\} - \\ & -P_y \{-c_{2R}[l_x(\sigma_y^+ - \sigma_y^-) + l_y(\sigma_x^+ - \sigma_x^-)] - \\ & - c'_{2R}[H_x(\sigma_y^+ + \sigma_y^-) + H_y(\sigma_x^+ + \sigma_x^-)]\}, \quad (7) \end{aligned}$$

где $\sigma_{x,y}^{\pm} = [(\mu_{\perp} H_{x,y} \pm \Delta_{\perp} l_{x,y})/\Delta^{\pm}] \operatorname{th}(\Delta^{\pm}/T)$ – средние значения x - и y -компонент матриц Паули основного дублета R-ионов, соответственно в подрешетках \pm , $2\Delta^{\pm} = 2[(\mu_{\perp} H_x \pm \Delta_{\perp} l_x)^2 + (\mu_{\perp} H_y \pm \Delta_{\perp} l_y)^2]^{1/2}$ – расщепление дублета в R-Fe обменном и внешнем полях, μ_{\perp} – магнитный момент (g -фактор) дублета в базисной плоскости, c_{2R} и c'_{2R} – константы. Учитывая специфику крамерсовского иона Sm^{3+} , связанную со слабым взаимодействием с внешним полем из-за малого значения фактора Ланде ($|\sigma_{x,y}^+ + \sigma_{x,y}^-| \ll |\sigma_{x,y}^+ - \sigma_{x,y}^-|$), можно представить Φ_{me}^R при $H_{x,y} \ll \Delta_{\perp}/\mu_{\perp}$ в виде (3), где магнитоэлектрическая константа зависит от T как $c_{2R} L_0 \operatorname{th}[\Delta_{\perp} L_0/T]$. На вставке к рис.4 сплошной линией показана рассчитанная зависимость $P_{\perp}^0(T)$, которая хорошо описывает эксперимент. Значение расщепления $2\Delta_{\perp} = 13$ см⁻¹ взято из оптических данных [17].

Наблюдаемая температурная зависимость $\varepsilon_a(T)$ похожа на зависимость $P_{\perp}^0(T)$ (рис.1), несмотря на то, что $\varepsilon_a(T)$ пропорциональна квадрату $P_{\perp}^0(T)$ (см. (5), (6)). Это указывает на то, что энергия анизотропии в ab -плоскости также возрастает с понижением T по закону, подобному $P_{\perp}^0(T)$, по-видимому, за счет редкоземельного вклада, определяя, таким образом, более плавный рост $\varepsilon_a(T)$.

5. Заключение. Таким образом, в $\operatorname{SmFe}_3(\operatorname{BO}_3)_4$ обнаружен гигантский магнитодиэлектрический эффект, связанный с возрастанием (более чем в 3 раза)

диэлектрической проницаемости ϵ при $T < T_N$ и ее подавлением до первоначального уровня парамагнитного состояния в магнитном поле ~ 5 кЭ, приложенном в базисной ab -плоскости кристалла. Установлено, что наблюдаемое поведение ϵ тесным образом коррелирует со спонтанной и индуцированной полем электрической поляризацией. Предложено теоретическое объяснение обнаруженных явлений. Показано, что наблюдаемый магнитодиэлектрический эффект обусловлен вкладом в ϵ электрической восприимчивости, связанной с вращением спинов в ab -плоскости при антиферромагнитном упорядочении ионов Fe^{3+} , которая подавляется магнитным полем. Ее большая величина в ферроборате самария $\Delta\epsilon \sim (P_{\perp}^0)^2/K$ обусловлена относительно высокой электрической поляризацией P_{\perp}^0 в базисной плоскости, которая в легкоплоскостном состоянии относительно легко поворачивается в электрическом поле, благодаря малой энергии магнитной анизотропии в базисной плоскости K . Разработана теоретическая модель, описывающая согласованным образом основные черты поведения диэлектрической проницаемости и электрической поляризации в магнитном поле, учитывающая наведенную магнитоупругую анизотропию в базисной плоскости. Анализ температурных зависимостей наблюдаемых явлений позволил установить превалирующий вклад редкоземельной (Sm) подсистемы в рассматриваемые эффекты.

Недавно сильный магнитодиэлектрический эффект был обнаружен в ферроборате $HoFe_3(BO_3)_4$ [11]. Мы полагаем, что механизм его возникновения подобен предложенному выше, то есть обусловлен электрической восприимчивостью вращения в ab -плоскости. Что касается других ферроборатов, то, учитывая, что $\epsilon \sim (P_{\perp}^0)^2$, относительно маленькая величина магнитодиэлектрического эффекта в них (см., например, [12]) связана, по-видимому, с небольшим значением поляризации.

В целом рассмотренный в работе механизм возникновения “вращательного” диэлектрического вклада может существовать в широком классе

мультиферроиков, обладающих спонтанной электрической поляризацией несобственного происхождения, связанной с их магнитной структурой.

Авторы признательны А.К. Звездину и А.П. Пятакову за обсуждение работы и ценные замечания. Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проекты # 10-02-00846 и # 09-02-01355).

1. M. Fiebig, J. Phys. D: Appl. Phys. **38**, R123 (2005).
2. Y. Tokura, Science **312**, 1481(2006).
3. S.-W. Cheong and M. Mostovoy, Nature Mater. **6**, 13 (2007).
4. D. Khomskii, J. Magn. Magn. Mater. **306**, 1 (2006).
5. R. Ramesh and N. A. Spaldin, Nature Mater. **6**, 21 (2007).
6. T. Kimura, T. Goto, H. Shintani et al., Nature **426**, 55 (2003).
7. T. Goto, T. Kimura, G. Lawes et al., Phys. Rev. Lett. **92**, 257201 (2004); T. Kimura, J. C. Lashley, and A. P. Ramirez, Phys. Rev. **73**, 220401 (2006).
8. А. К. Звездин, С. С. Кротов, А. М. Кадомцева и др., Письма в ЖЭТФ **81**, 335 (2005).
9. А. К. Звездин, Г. П. Воробьев, А. М. Кадомцева и др., Письма в ЖЭТФ **83**, 600 (2006).
10. А. Н. Васильев, Е. А. Попова ФНТ **32**, 968 (2006).
11. R. P. Chaudhury, F. Yen, B. Lorenz et al., Phys. Rev. B **80**, 104424 (2009).
12. А. М. Кадомцева, Ю. Ф. Попов, Г. П. Воробьев и др., ФНТ **36**, 640 (2010).
13. Ю. Ф. Попов, А. П. Пятаков, А. М. Кадомцева и др., ЖЭТФ **138**, 226 (2010).
14. А. К. Звездин, Р. З. Левитин, А. И. Попов и др., ЖЭТФ **80**, 1504 (1981).
15. Г. А. Бабушкин, А. К. Звездин, Р. З. Левитин и др., ЖЭТФ **85**, 1366 (1983).
16. А. К. Звездин, В. М. Матвеев, А. А. Мухин, А. И. Попов, *Редкоземельные ионы в магнитоупорядоченных кристаллах*, М.: Наука, 1985.
17. E. P. Chukalina, M. N. Popova, L. N. Bezmaternykh, and I. A. Gudim, Phys. Letters A **374**, 1790 (2010).