

## ВЛИЯНИЕ МАГНИТНОГО ПОЛЯ НА СЕГНЕТОЭЛЕКТРИЧЕСКУЮ ДОМЕННУЮ СТРУКТУРУ $TbGd(MoO_4)_3$

Б.К.Пономарев, С.А.Иванов, Б.С.Редькин, В.Н.Курлов

Институт физики твердого тела РАН

142432, Черноголовка, Московская обл.

Поступила в редакцию 27 января 1992 г.

После переработки 25 февраля 1992 г.

Измерено изменение электрической поляризации вдоль направления  $[001]$  монокристаллического образца метастабильной орторомбической сегнетоэлектрической сегнетоэластической  $\beta'$ -фазы смешанного тербий-гадолиниевого молибдата  $TbGd(MoO_4)_3$ , вызванное действием импульсного магнитного поля с длительностью импульса 0,01 с и напряженностью до 100 кЭ при 78 К при различных ориентациях поля в плоскости  $(001)$ . Показано, что при определенных ориентациях магнитное поле изменяет сегнетоэлектрическую доменную структуру образца.

Методика выращивания монокристалла  $TbGd(MoO_4)_3$  описана в <sup>1</sup>. Исследуемый материал имеет пространственную группу симметрии  $Pba2$ , точечную группу симметрии  $mm2$  и является сегнетоэлектриком и сегнетоэластиком. Мы не располагаем данными о температуре перехода в параэлектрическую фазу (пространственная группа  $P42m$ , точечная группа симметрии  $42m$ ) для  $TbGd(MoO_4)_3$ , но известны сегнетоэлектрические температуры Кюри для  $Gd_2(MoO_4)_3$  и  $Tb_2(MoO_4)_3$ , которые равны соответственно 159° С и 160° С <sup>2</sup>. Образец представлял собой плоскопараллельную пластину  $(001)$ -среза толщиной 1 мм, имеющую форму равностороннего восьмиугольника. Расстояние между противоположными сторонами 9 мм. 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  $[001]$  <sup>2</sup>. В таких случаях рентгеновский метод позволяет лишь указать два взаимно перпендикулярных направления, вдоль которых могут быть направлены оси  $[100]$  и  $[010]$  различных структурных доменов. Эти направления обозначены через  $X$  и  $Y$  (см. рис.1).

Кристаллическая структура редкоземельных молибдатов чувствительна к механическим напряжениям в плоскости базиса. Оси  $[100]$  и  $[010]$  имеют различные длины: ось  $[010]$  несколько длиннее оси  $[100]$ . Сжатие вдоль  $[010]$  вызывает перестройку кристаллической структуры. Перестройка состоит в том, что сегнетоэлектрические домены, в которых вдоль направления сжатия ориентирована ось  $[100]$ , становятся энергетически более выгодными и растут за счет менее выгодных доменов, в которых вдоль направления сжатия ориентирована ось  $[010]$  <sup>2</sup>.

Перед началом измерений образец был монодоменизирован сжатием вдоль направления  $X$ . Процесс монодоменизации визуально контролировался в поляризованном свете. Однодоменное состояние сохранялось после снятия сжимающего усилия. Объемная доля немонодоменизированной части образца не превышала 1%. Таким образом, направление  $X$  перед началом измерений совпадало с кристаллографической осью  $[100]$ .

Измерялась электрическая поляризация  $P$  в направлении  $[001]$  в импульсном магнитном поле, ориентированном вдоль направлений  $X$ ,  $Y$  и вдоль биссектрисы угла между ними. Методика описана в <sup>3</sup>.

Зависимость магнитного поля от времени изображена на рис.2а. На рис.2б изображены соответствующие зависимости электрической поляризации от вре-

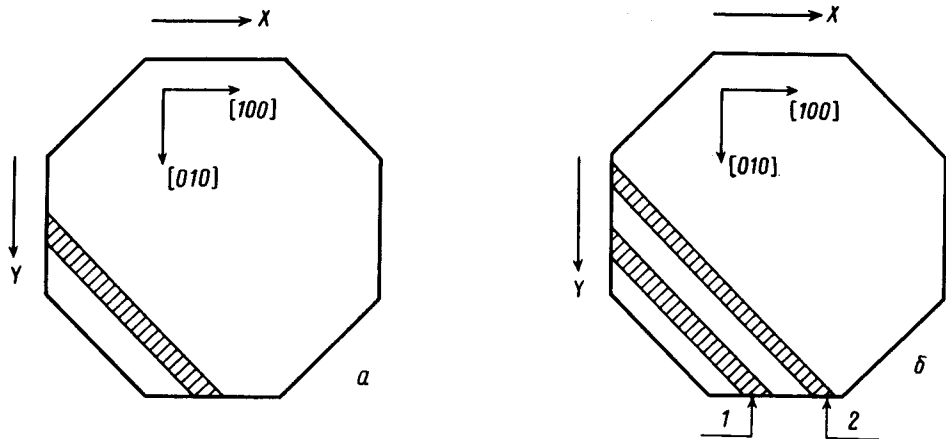


Рис.1. Схематическое изображение структурных доменов с обращенной электрической поляризацией, возникающих в однодоменном образце  $\text{TbGd}(\text{MoO}_4)_3$  под действием магнитного поля. *а* - Доменная структура после первого импульса магнитного поля. Незаштрихованная часть восьмиугольника изображает исходное однодоменное состояние образца. Стрелками показаны кристаллографические направления исходного однодоменного состояния. Изображение обращенного домена заштриховано. Оси  $[100]$  и  $[010]$  в заштрихованной области повернуты на  $90^\circ$ . Ось  $[001]$  и вектор электрической поляризации инвертированы. *б* - Доменная структура после второго импульса магнитного поля. 1 - Обращенный домен, возникший после первого импульса; 2 - обращенный домен, возникший после второго импульса

мени при температуре 78 К и различных ориентациях поля. Кривые 1 и 2 измерены в поле, параллельном направлению  $X$ . Кривая 1 измерена на однодоменном образце, то есть в поле, параллельном оси  $[100]$ . Видно, что поляризация заметно отстает от поля во времени. В поле 100 кЭ изменение поляризации превышает  $50 \cdot 10^{-9}$  Кл/см<sup>2</sup>. При уменьшении поля до нуля поляризация не обращается в нуль. Остаточная поляризация составляет  $40 \cdot 10^{-9}$  Кл/см<sup>2</sup>. Это соответствует появлению в образце обращенного домена, площадь которого составляет примерно 10% от полной площади образца, если принять, что значение спонтанной поляризации исследуемого образца при 78 К не очень сильно отличается от таковой для  $\text{Tb}_2(\text{MoO}_4)_3$  при 298 К ( $P_s = 180 \cdot 10^{-9}$  Кл/см<sup>2</sup> <sup>4</sup>).

После измерения кривой 1 образец был извлечен из установки и подвергнут визуальному контролю в поляризованном свете. В результате воздействия поля он перестал быть однодоменным. Его доменная структура схематически изображена на рис.1а. Незаштрихованная часть восьмиугольника изображает исходное однодоменное состояние. Заштрихованная часть восьмиугольника изображает обращенный домен, то есть ту часть образца, в которой под действием магнитного поля произошла необратимая структурная перестройка, сопровождаемая инверсией электрической поляризации. Границы домена лежат в плоскости  $(110)$ . Площадь этого домена составляет не более 10% от площади образца. Это значение хорошо согласуется с тем, которое получено из измерений поляризации.

После осмотра образец вновь был помещен в датчик и подвергнут воздействию поля. Возникшее при этом изменение электрической поляризации изображено на рис.2б (кривая 2). Видно, что эта кривая качественно подобна кривой 1. Соответствующая доменная структура изображена схематически на рис. 1б. Видно, что обращенный домен, возникший после первого импульса поля, сохранился, и кроме него появился еще один аналогичный домен.

После этого поле было направлено вдоль биссектрисы угла между  $X$  и

У. Соответствующая зависимость  $P(t)$  изображена под номером 3 на рис.2б. Изменение поляризации значительно меньше  $10^{-10}$  Кл/см<sup>2</sup>. Измерения на монокристаллическом образце при такой ориентации в пределах погрешности эксперимента дают такой же результат. После измерений кривой 3 образец был подвергнут осмотру в поляризованном свете. Не было отмечено никаких изменений доменной структуры.

Далее поле было направлено вдоль У. Результаты измерений представлены на рис.2в. Номера кривых соответствуют последовательности их получения. Изменение поляризации имеет отрицательный знак, и максимальное абсолютное значение составляет  $20 \cdot 10^{-9}$  Кл/см<sup>2</sup>. Многократное включение импульсного поля привело к уменьшению этого значения до  $1 \cdot 10^{-9}$  Кл/см<sup>2</sup> (кривая 6 на рис.2в). Контроль в поляризованном свете показал, что образец после этого находился в однодоменном состоянии.

Ступеньки на кривых (рис.2) связаны с использованием нами цифровых осциллографов, имеющих лишь 8-битные АЦП, и являются приборным эффектом.

Итак, нами экспериментально показано, что при 78 К магнитное поле изменяет электрическую поляризацию и доменную структуру TbGd(MoO<sub>4</sub>)<sub>3</sub>.

Одно из возможных объяснений этого эффекта можно получить, исходя из двух хорошо известных экспериментальных фактов.

Первый из них уже упомянут выше и заключается в том, что механическое сжатие вдоль оси [010] (или растяжение вдоль [100]) делает сегнетоэлектрические домены с различными ориентациями этих осей энергетически неравноправными, и происходит рост энергетически выгодных доменов за счет невыгодных.

Второй факт состоит в том, что для всех исследовавшихся до настоящего времени редкоземельных металлов и их соединений характерны огромные магнитоэлектрические деформации - порядка  $10^{-4} - 10^{-3}$ , в том числе и в парамагнитном состоянии <sup>5-9</sup>. Большие значения магнитоэлектричества обусловлены отличным от нуля орбитальным моментом 3<sup>+</sup>-ионов. Исключением является гадолиний. 3<sup>+</sup>-ион гадолиния имеет нулевой орбитальный момент, и магнитоэлектричество металлического гадолиния и его соединений на два порядка ниже, чем в других редких землях. Редкоземельные элементы характерны тем, что их ионы, как правило, сохраняют свою индивидуальность в различных соединениях <sup>5</sup>.

В работах <sup>10-11</sup> показано, что магнитные свойства молибдатов тербия и гадолиния определяются 3<sup>+</sup>-ионами тербия и гадолиния.

Таким образом, есть все основания предположить, что редкоземельные молибдаты не являются исключением, и что в них также возникают большие магнитоэлектрические деформации. В таком случае становится понятным, почему действие магнитного поля, приводящее к появлению и росту новых структурных доменов, оказывается аналогичным действию механических деформаций. Например, отрицательная магнитоэлектрическая деформация вдоль оси [010] подействует на наш образец совершенно аналогично механическому сжатию, при помощи которого мы монокристаллизировали образец перед началом эксперимента, а положительная магнитоэлектрическая деформация вдоль оси [100] должна оказать на доменную структуру именно такое воздействие, какое мы наблюдаем в эксперименте.

Магнитоэлектрические деформации в начале эксперимента (рис.2б кривые 1-2, поле параллельно Х) благоприятствуют росту сегнетоэлектрических доменов с обращенной поляризацией, а в конце эксперимента (рис.2в, кривые 1-6, поле параллельно У) уничтожают домены с обращенной поляризацией.

Двигаясь по образцу, граница может встретить барьеры, для преодоления

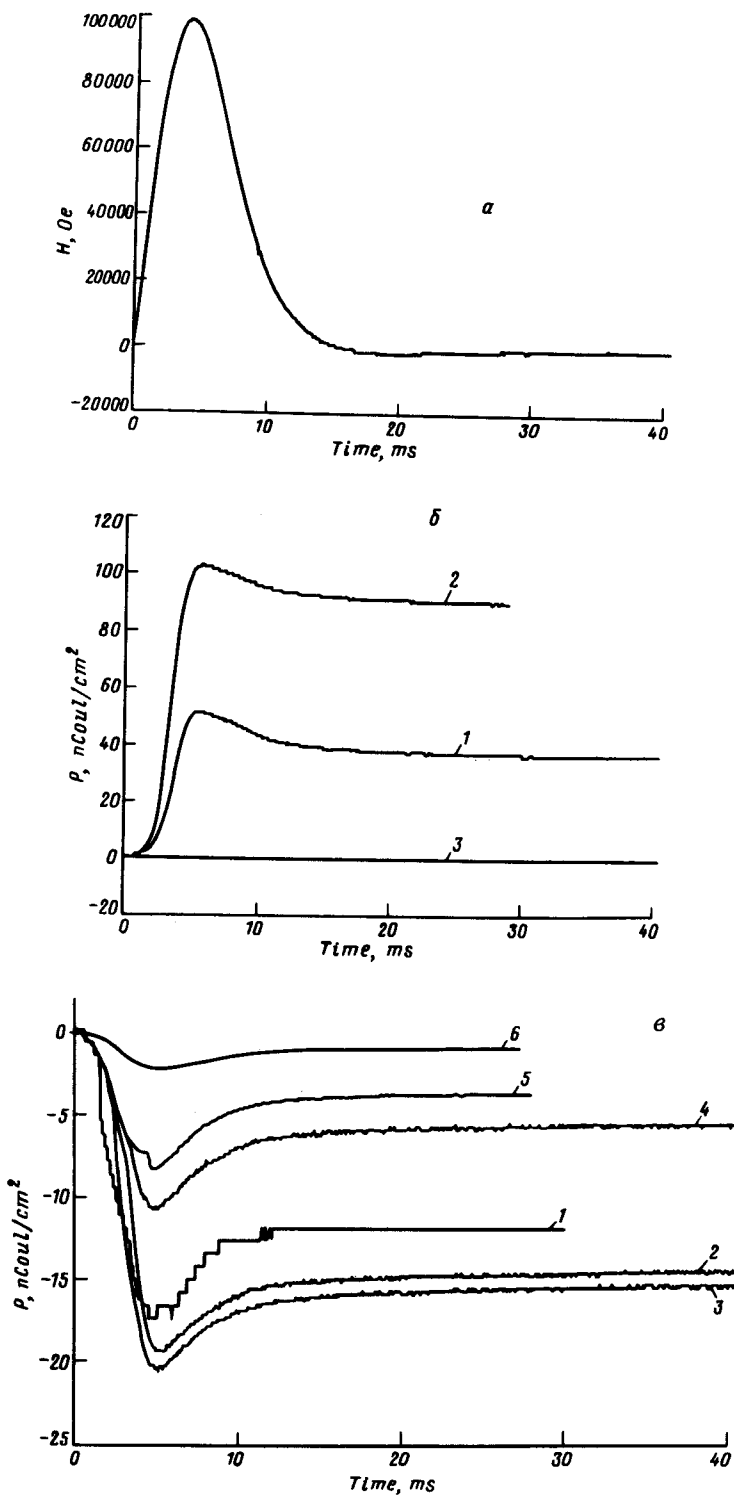


Рис.2. *а* - Зависимость магнитного поля от времени. *б* - Зависимость от времени электрической поляризации, созданной магнитным полем в монокристаллическом образце  $TbGd(MoO_4)_3$  вдоль направления  $[001]$  при температуре 78 К. Кривая 1 - поле параллельно направлению X, первый импульс поля; 2 - поле параллельно направлению X, второй импульс; 3 - поле параллельно биссектрисе угла между X и Y. *в* - Зависимость поляризации от времени. Поле параллельно Y. Нумерация указывает последовательность измерения кривых

которых приложенное поле недостаточно эффективно. Поэтому доля образца, претерпевшая структурную перестройку, может быть различной в зависимости от его дефектной структуры. Ясно, что это величина случайная. Если бы в нашем эксперименте в поле, параллельном оси  $X$ , произошла полная переполаризация образца, то значение поляризации на кривой 2 на рис.2б было бы того же порядка, что на кривой 6 на рис.2в, отличаясь знаком. Визуальные наблюдения доменной структуры показывают, что переполаризация образца не была полной. Это можно объяснить наличием достаточно высоких потенциальных барьеров на пути движения доменных границ, которые не могут быть преодолены в наших экспериментальных условиях (качество образца, напряженность магнитного поля и температура). Достигнув непреодолимого в данных условиях потенциального барьера, доменная граница остановилась, и мы наблюдали при визуальном контроле частично переполаризованное состояние образца. Обратная переполаризация в исследуемом образце произошла полностью до восстановления исходного однодоменного состояния.

Авторы благодарны В.А.Бородину, С.Н.Россоленко, И.С.Петькову, И.М.Шмытько и И.К.Бдикину за полезные обсуждения и помощь в подготовке эксперимента.

- 
1. B.S.Red'kin, V.N.Kurlov, I.S.Pet'kov and S.N.Rossolenko, *J. of Crys. Growth.* **104**, 77 (1990).
  2. L.H.Brixner, J.R.Berkley and 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.
  3. С.А.Иванов, В.Н.Курлов, Б.К.Пономарев, Б.С.Редькин, *Письма в ЖЭТФ* **52**, 1003 (1990).
  4. H.J.Borchardt and P.E.Bierstedt, *J. Appl. Phys.* **38**, 2057 (1967).
  5. К.П.Белов, М.А.Белянчикова, Р.З.Левитин, С.А.Никитин, *Редкоземельные ферро- и антиферромагнетики*. М.: Наука, 1965.
  6. К.П.Белов, Р.З.Левитин, Б.К.Пономарев, *ЖЭТФ* **49**, 1733 (1965).
  7. К.П.Белов, Р.З.Левитин, Б.К.Пономарев, *ЖЭТФ* **51**, 1634 (1966).
  8. К.П.Белов, Р.З.Левитин, Б.К.Пономарев, Ю.Ф.Попов, *Письма в ЖЭТФ* **10**, 13, (1969).
  9. Р.З.Левитин, Б.К.Пономарев, Ю.Ф.Попов, *ЖЭТФ*, **59**, 1952 (1970).
  10. R.A.Fisher, E.W.Hornung, G.E.Brodale, and W.F.Giauque, *J. Chem. Phys.* **56**, 193 (1972).
  11. R.A.Fisher, E.W.Hornung, G.E.Brodale, and W.F.Giauque, *J. Chem. Phys.* **63**, 1296 (1975).