

МАГНИТОЭЛЕКТРИЧЕСКИЕ ЭФФЕКТЫ В Gd_2CuO_4

А.И.Смирнов, И.Н.Хлюстиков*

Институт физических проблем им.П.Л.Капицы РАН
117334 Москва, Россия*Институт проблем технологии микроэлектроники и особо чистых материалов РАН
142432 Черноголовка, Московская обл., Россия

Поступила в редакцию 28 апреля 1994 г.

В антиферромагнитном Gd_2CuO_4 при температуре ниже 6,5 К обнаружено наведение магнитного момента электрическим полем. Зависимость $M_x(E_x)$ линейна, а $M_x(E_y)$ обладает существенным гистерезисом. Наблюдались вклады в статическую и динамическую магнитную восприимчивость, пропорциональные E , E^2 и EH . Обнаружен линейный сдвиг антиферромагнитного резонанса электрическим полем.

Введение

Антиферромагнитный Gd_2CuO_4 обладает необычной магнитной структурой. Спины ионов меди упорядочиваются антиферромагнитным образом при температуре $T_N(Cu) = 280$ К так, что в базисных плоскостях тетрагональной кристаллической решетки направления магнитных моментов чередуются в шахматном порядке. При температуре $T_N(Gd) = 6,5$ К происходит антиферромагнитное упорядочение ионов гадолиния. При этом образуются ферромагнитные слои, чередование направлений магнитного момента этих слоев происходит при перемещении вдоль направления $[001]$. Таким образом медная и гадолиниевая магнитные подсистемы обладают различной симметрией. При температуре ниже $T_N(Gd)$ магнитная структура становится неинвариантной относительно центров инверсии кристаллической структуры и допускает существование линейного магнитоэлектрического эффекта [1]. Авторы этой работы наблюдали возникновение электрической поляризации Gd_2CuO_4 под действием магнитного поля, параллельного $[100]$ (ось x) или $[001]$ (ось z). С помощью симметричного анализа в [1] получены следующие члены термодинамического потенциала, ответственные за магнитоэлектрический эффект:

$$\Phi_{ME} = \lambda M_x (P_x L_x + P_y L_y) + \Lambda P_z M L. \quad (1)$$

Здесь P , M и L - соответственно электрическая поляризация, намагниченность и вектор антиферромагнетизма.

В настоящей работе мы приводим результаты наблюдения линейного магнитоэлектрического эффекта в Gd_2CuO_4 по возникновению магнитного момента под действием электрического поля. Далее описано измерение сдвига антиферромагнитного резонанса (АФМР) электрическим полем и наблюдение магнитоэлектрических эффектов высших порядков.

Результаты экспериментов

А. Статические магнитные свойства в электрическом поле. Изменение намагниченности δM под действием электрического поля E измерялось с помощью SQUID-магнитометра [2] при температуре 1,2 К. Образец размерами $1 \times 1,5 \times 1$ мм был приклеен между плоскими электродами проводящим клеем.

Приемная катушка фиксировала появление δM в направлении, перпендикулярном E и параллельном внешнему магнитному полю H . Приложенное поле E изменялось в пределах $0 \div \pm 20$ кВ/см, а поле $H - 0 \div \pm 200$ Э.

Эксперимент показал, что поле E_z вызывает линейное изменение δM_x в нулевом магнитном поле (рис 1а). На этом же рисунке изображено изменение намагниченности в зависимости от электрического поля во внешнем поле H_x . Результаты экспериментов в магнитном поле и без него описываются формулой $\delta M(E, H) = \alpha E + H(\beta E + \gamma E^2)$. Таким образом мы обнаруживаем линейное влияние электрического поля на магнитный момент, а также линейное и квадратичное влияние на магнитную восприимчивость χ . В поле $E_z = 10$ кВ/см изменение восприимчивости за счет линейной части зависимости равно $3 \cdot 10^{-8}$, за счет квадратичной $1 \cdot 10^{-8}$ ед. CGS.

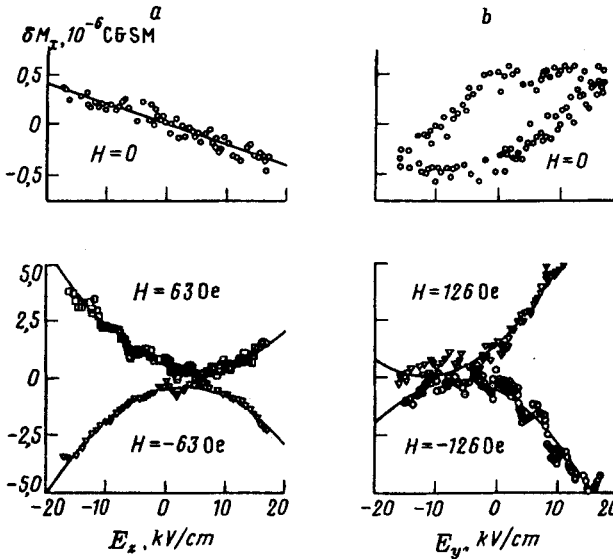


Рис.1. а) Изменение x-компоненты намагниченности в зависимости от электрического поля, направленного вдоль z ; б) Изменение x-компоненты намагниченности в зависимости от электрического поля, направленного вдоль y обход петли гистерезиса против часовой стрелки

Электрическое поле, E_y также приводит к изменению намагниченности M_x , при этом зависимость $\delta M_x(E_y)$ в нулевом поле обладает существенным гистерезисом (рис.1б). Этот результат обнаруживает магнитоэлектрическую связь между M_x и E_y , не описывающуюся (1), и свидетельствует о спонтанном магнитном моменте. Влияние электрического поля на восприимчивость в этой ориентации показано на нижнем графике рис.1б.

В. *Высокочастотные свойства в электрическом поле.* Для измерений магнитной СВЧ восприимчивости χ_ω и наблюдения АФМР на частоте 36 ГГц в электрическом поле внутри резонатора спектрометра располагалась изолированная медная пластинка. На пластинку подавалось напряжение относительно стенок резонатора. При этом в образце возникало электрическое поле E , перпендикулярное внешнему магнитному полю H . СВЧ магнитное поле h на образце было перпендикулярно обоим полям H и E . Резонансное поглощение в образце приводит к уменьшению СВЧ мощности U , прошедшей через резонатор. Линия АФМР на данной частоте записывается как зависимость $U(H)$. Измерение малого сдвига линии АФМР и малых изменений χ_ω при действии электрического поля производилось с помощью модуляционной методики. Поле E изменялось с частотой $F = 1,95$ кГц. При влиянии поля E

на χ_ω возникает переменная составляющая СВЧ мощности, прошедшей через резонатор, колеблющаяся с этой частотой. Амплитуда δU этой составляющей определялась с помощью фазочувствительного усилителя.

АФМР в Gd_2CuO_4 подробно описан в [3]. Мы изучали влияние электрического поля на его нижнюю ветвь. Если магнитное поле АФМР зависит от приложенного электрического поля, то амплитуда отклика на электрическое поле δU должна зависеть от H как производная $\frac{dU}{dH}$.

Магнитное поле было направлено в плоскости xz под углом 45° к оси x , а электрическое поле вдоль оси y . Такая ориентация позволяет использовать взаимодействие компонент M_z и E_y , описываемое первым членом (1), и в то же время наблюдать АФМР на рабочей частоте резонатора 36 ГГц (при ориентации $H \parallel z$ поле АФМР на этой частоте становится слишком большим). На рис.2 изображены зависимости U , $\frac{dU}{dH}$, а также δU от магнитного поля. Видно, что зависимость $\delta U(H)$ вблизи линии АФМР пропорциональна производной $\frac{dU}{dH}$, что свидетельствует о сдвиге поля АФМР электрическим полем.

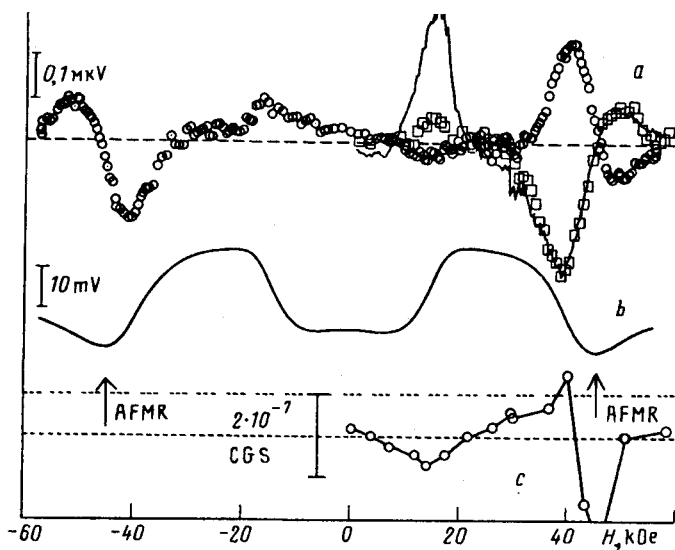


Рис.2. а) Зависимость $\delta U(H)$ для $E=3$ кВ/см: кружки - после отжига в полях E и H , квадраты - после отжига с инвертированным полем E . Сплошная линия представляет величину, пропорциональную $\frac{dU}{dH}$; б) зависимость СВЧ сигнала U от магнитного поля; в) изменение действительной части СВЧ восприимчивости под действием электрического поля 3 кВ/см в зависимости от магнитного поля. Горизонтальные пунктирные линии обозначают нулевые уровни: верхняя - для δU и $\frac{dU}{dH}$, средняя - для U , нижняя - для $\delta\chi''_\omega$

Для получения однодоменного антиферромагнитного образца мы использовали охлаждение в полях E и H [4], направление вектора L вдоль легкой оси при этом определяется знаком EH во время прохождения температуры Нелля. В образце, не прошедшем такого отжига линейный магнитоэлектрический эффект оказывается в значительной мере скомпенсированным за счет противоположного знака эффекта в доменах, отличающихся знаком L . На рис.2 приведены данные, полученные на образце, охлажденном в полях $E_y = 3$ кВ/см и $H = 54$ кЭ от 7,5 до 1,2 К а также результаты, полученные после нагрева до 7,5 К и охлаждения с тем же значением H , но с инвертированным полем E .

По величине δU мы определили сдвиг поля АФМР, который составляет 0,02 Э при действии электрического поля 3 кВ/см. Отметим, что действие электрического поля в нашем эксперименте оказывается эквивалентным действию эффективного магнитного поля, направление которого определяется направлением векторов E и L . Это эффективное поле может складываться с

внешним магнитным полем или вычитаться из него, о чем свидетельствует изменение знака δU после переполюсовки магнитного поля.

В наших опытах сдвиг поля АФМР для образца, охлажденного в нулевых полях, оказывался более чем в 20 раз меньше, чем при охлаждении с указанными значениями полей и скрывался в шумах.

В области полей $H < 20$ кЭ наблюдается изменение U , вызванное зависимостью магнитной восприимчивости χ_ω от магнитного поля [3]. В результате изменения χ_ω происходит расстройка резонатора и изменение прошедшего сигнала. В этих полях появляется заметная величина δU (см.рис.2), свидетельствующая о влиянии электрического поля на восприимчивость χ_ω , измеряемую по отношению к слабому полю h .

Эксперимент показывает, что при $H < 20$ кЭ δU содержит существенную часть, которая меняет знак при переполюсовке магнитного поля. Тем самым обнаруживается нечетная по ЕН добавка к магнитной восприимчивости. Зависимость $\delta\chi'(H)$ также приведена на рис.2.

Обсуждение

Наблюдение индуцированного электрическим полем E_z магнитного момента δM_x позволяет оценить магнитоэлектрический модуль $\alpha_{xz} = \frac{dM_x}{dE_z} \sim 10^{-8}$ CGS. Эта величина является заниженной более чем на порядок, поскольку в наших статических экспериментах образец не подвергался магнитоэлектрическому отжигу и не был монокристаллическим. Считая, что сдвиг АФМР происходит на величину порядка $H_{eff} = -\frac{d\Phi}{dM_x}$, оценим модуль $\alpha_{xz} = \frac{dM_x}{dE_z} \sim \chi \Delta L \sim 10^{-5}$ CGS.

Описанные изменения магнитной восприимчивости, нечетные по ЕН можно объяснить приведенными в формуле (1) членами потенциала. При $H \neq 0$ электрическое поле приводит, согласно (1), к изменению ориентации вектора L . В свою очередь это должно приводить к изменению восприимчивости из-за известного различия восприимчивости антиферромагнетика в параллельном и перпендикулярном вектору L направлениях.

Слабый ферромагнетизм, обусловленный билинейными по L и M членами запрещен, для тетрагональных кристаллов, к которым относится Gd_2CuO_4 . Однако слабый ферромагнитный момент здесь наблюдался [5] при температурах ниже $T_N(Cu)$ и выше $T_N(Gd)$. Для объяснения этого факта предполагалось, что существуют слабые искажения тетрагональной решетки [6]. Мы наблюдаем спонтанный ферромагнитный момент $\sim 10^{-9}$ намагниченности подрешетки при температуре значительно ниже $T_N(Gd)$. Магнитоэлектрическое взаимодействие, соответствующее члену потенциала $E_x M_y$, наблюдаемое в наших экспериментах (см.рис 1b) также невозможно в рамках исходной кристаллографической группы $I4mmm$. Отметим здесь, что симметрия допускает или запрещает наличие спонтанной электрической поляризации одновременно с восприимчивостью, пропорциональной E , которая наблюдается в наших экспериментах. По-видимому, спонтанный магнитный момент через магнитоэлектрическое взаимодействие порождает также и спонтанную электрическую поляризацию. В этом случае Gd_2CuO_4 представляет собой, аналогично никель-иодному борацинту [7], слабоферромагнитный магнитоэлектрический ферроэлектрик.

В заключение приведем члены термодинамического потенциала в переменных E и H , которые он должен содержать для описания наблюдавшихся нами магнитоэлектрических эффектов:

$$\Phi_{ME} = \kappa_i H_i + \alpha_{ik} E_i H_k + \gamma_{ik} E_i H_k^2 + \beta_{ikl} E_i H_k H_l^2 + \tau_{ik} E_i^2 H_k^2. \quad (2)$$

В наших экспериментах обнаружены ненулевые коэффициенты

$$\kappa_x, \alpha_{xx}, \alpha_{xy}, \alpha_{xz}, \gamma_{xx}, \gamma_{xz}, \beta_{xxx}, \beta_{xxy}, \tau_{xx}, \tau_{xy}, \tau_{xz}.$$

Авторы благодарны Х.Вигельману и И.М.Витебскому за предоставление рукописи их доклада на конференции и обсуждение, В.И.Марченко и А.А.Мухину за содержательные дискуссии. Работа поддержана Российским Фондом Фундаментальных Исследований.

-
1. H.Wiegelmann, A.A.Stepanov, I.M.Vitebsky, and P.Wyder, *Magnetoelectric interaction phenomena in crystals*, 2nd Intern. Conf., Sept 13-18 1993, Ascona, Switzerland, Abstract Booklet, p.85.
 2. И.Н.Хлюстикова, ПТЭ вып 2, 167,(1993).
 3. А.И.Звягин, Д.А.Яблонский, В.А.Пашенко и др., ФНТ 18, 1 (1992).
 4. Д.Н.Астров, ЖЭТФ 38, 984 (1960).
 5. J.Tompson, S.-W.Cheong, S.E.Brown et al., *Phys.Rev. B* 39, 6660 (1989).
 6. A.A.Stepanov, P.Wyder, T.Chattopadhyay et al., *Phys.Rev.B* 48, 12979 (1993).
 7. E.Ascher, H.Rieder, H.Schmid, and H.Stoessel, *J.Appl.Phys.*37, 1404 (1966).