

## ИНДУЦИРОВАНИЕ МАГНИТНЫМ ПОЛЕМ ТОРОИДАЛЬНОГО МОМЕНТА В МАГНИТОЭЛЕКТРИКЕ $\text{Cr}_2\text{O}_3$

Ю.Ф.Попов<sup>1)</sup>, А.М.Кадомцева, А.К.Звездин\*, Д.В.Белов, Г.П.Воробьев

Московский государственный университет им.М.В.Ломоносова  
119899 Москва, Россия

\* Институт общей физики РАН  
117942 Москва, Россия

Поступила в редакцию 18 января 1999 г.

Обнаружено возникновение тороидального момента в магнитоэлектрике  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  в сильном магнитном поле, превышающем поле спин-флоп-перехода. Этот вывод сделан на основе экспериментально установленного факта – наличием у недиагональных компонент тензора магнитоэлектрической восприимчивости  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  антисимметричной части, дуальной тороидальному моменту. Таким образом показано, что магнитоэлектрик  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  в спин-флоп-фазе может быть отнесен к тороикам.

PACS: 75.25.+z, 76.75.+i

Известно, что определенные точечные группы магнитной симметрии допускают существование тороидального момента  $\mathbf{T}$  – полярного вектора, изменяющего знак при пространственной и временной инверсии [1–3].

Наличие тороидального момента возможно во многих магнетиках, которые имеют магнитоэлектрическую (МЭ) структуру с отличными от нуля недиагональными компонентами МЭ тензора [4–6]. В работе [1] материалы, допускающие существование тороидального момента, были названы тороиками. Хотя проблема тороидального упорядочения в магнитоупорядоченных кристаллах определенной симметрии в последние десятилетия интенсивно обсуждается в научной литературе, экспериментальные исследования по обнаружению тороидального момента только начинаются [7, 8].

В работе [8] на основе экспериментально установленного факта – асимметрии недиагональных компонент МЭ тензора было доказано, что в магнитном пьезоэлектрике  $\text{GaFeO}_3$  существует отличный от нуля тороидальный момент. Основываясь на данных нейтронографии, были выделены вклады в антисимметричную часть МЭ тензора от магнитного и тороидального моментов и определено значение тороидального момента  $\mathbf{T} = (24, 0, 0)\mu_B \text{ \AA}$  на элементарную ячейку.

Симметрия  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  также допускает существование тороидального момента, однако сложность его обнаружения связана с тем, что тороидальный момент в  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  может реализоваться только в сильном магнитном поле, превышающем поле спин-флоп-перехода. Дело в том, что в отсутствие поля спины  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  антиферромагнитно упорядочены вдоль  $c$ -оси ромбоэдрического кристалла. В этом случае тензор линейного МЭ эффекта содержит только диагональные компоненты и тороидальный момент элементарной ячейки равен нулю. В достаточно сильном магнитном поле  $\mathbf{H} \parallel c$ -оси спины  $\text{Cr}^{3+}$  "опрокидываются" в базисную плоскость (спин-флоп-переход),

<sup>1)</sup> e-mail: Popov@plms.phys.msu.su

при этом возникают недиагональные компоненты МЭ тензора, сопоставление величин и знаков которых может дать информацию о существовании тороидального момента.

Зависимость вектора электрической поляризации от магнитного поля  $\mathbf{H}$  в общем случае может быть представлена формулой

$$\mathbf{P} = \hat{\alpha}\mathbf{H}, \quad (1)$$

где тензор МЭ восприимчивости, согласно [9], включает симметричную и антисимметричную части:

$$\hat{\alpha} = \hat{\alpha}^S + \hat{\alpha}^A. \quad (2)$$

Тороидальный момент  $\mathbf{T}$  дуален антисимметричной части матрицы МЭ эффекта  $\hat{\alpha}$ :

$$\alpha_{ij} - \alpha_{ji} = a\epsilon_{ijk}T_k, \quad (3)$$

где  $\epsilon_{ijk}$  – символ Леви – Чивита,  $a$  – константа.

Проведенное нами изучение линейного МЭ эффекта кристаллов  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  в спин-флор-фазе позволило выявить асимметрию недиагональных компонент МЭ тензора и тем самым доказать существование индуцированного внешним магнитным полем тороидального момента.

**Результаты эксперимента и их обсуждение.** Исследовался линейный МЭ эффект, индуцированный внешним импульсным магнитным полем до 250 кЭ, по методике, описанной в [10], на монокристаллах  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ . Измерения проводились на совершенных кристаллах, не содержащих блоков. Образцы имели форму кубика с линейными размерами  $3 \times 3 \times 3$  мм, ребра которого совпадали с осями  $a$ ,  $b$ ,  $c$  в ортогексагональной системе координат ( $a$  – одна из осей второго порядка в базисной плоскости, перпендикулярной ромбоэдрической оси кристалла). Кристалл ориентировался рентгеновским методом с точностью до  $1^\circ$ . Точность ориентации поля по отношению к ромбоэдрической  $c$ -оси составляла  $\pm 2^\circ$ . Измерялась зависимость компонент электрической поляризации  $P_a$  и  $P_c$  от импульсного магнитного поля  $\mathbf{H}$ , ориентированного под углом  $\theta = +5^\circ$  ( $\theta = -5^\circ$ ) к  $c$ -оси в  $ac$ -плоскости кристалла. В этом случае с ростом поля вектор антиферромагнетизма  $\mathbf{L}$  отходит от  $c$ -оси, оставаясь в  $ac$ -плоскости и асимптотически приближаясь к направлению, перпендикулярному полю  $\mathbf{H}$ , как показано на рис.1. Такая ориентация поля выбрана в связи с тем, что при строгой ориентации поля вдоль  $c$ -оси, то есть при реализации чистого спин-флор-перехода, невозможно одновременно определить компоненты  $\alpha_{13}$  и  $\alpha_{31}$  и выявить их асимметрию, связанную с наличием тороидального момента.

Полученные экспериментально зависимости электрической поляризации вдоль  $a$ - и  $c$ -осей от величины внешнего магнитного поля приведены на рис.2. При заданной ориентации магнитного поля компоненты вектора электрической поляризации определяются формулами

$$P_a = \alpha_{11}H_a + \alpha_{13}H_c, \quad (4)$$

$$P_c = \alpha_{31}H_a + \alpha_{33}H_c. \quad (5)$$

На рис.2 видно, что с ростом поля до  $\sim 65$  кЭ компонента  $P_a$  электрической поляризации слабо возрастает, затем в интервале полей  $65-85$  кЭ наблюдается резкий рост поляризации с последующим переходом практически к линейной зависимости

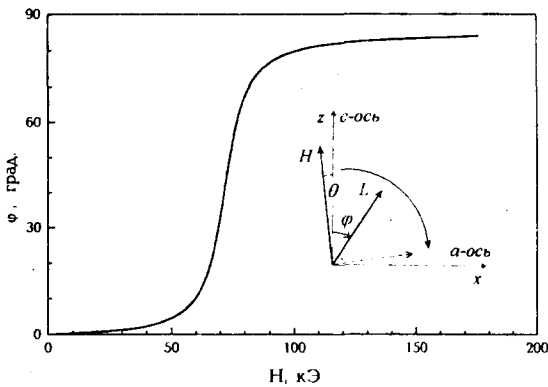


Рис.1. Зависимость угла  $\varphi$  ориентации вектора антиферромагнетизма  $\mathbf{L}$  от магнитного поля при  $\theta = -5^\circ$  при температуре 150 К

$P_a(H)$ . Такая зависимость электрической поляризации от поля объясняется тем, что в слабом поле в соотношении (4) определяющую роль играет первый член  $\alpha_{11}H_a$ , который вносит небольшой вклад в поляризацию за счет того, что проекция поля на  $a$ -ось мала. Резкий рост поляризации в интервале значений поля 65–85 кЭ обусловлен "опрокидыванием" спинов в базисную плоскость (точнее, в плоскость, не доходящую  $5^\circ$  до базисной плоскости). Близкая к линейной зависимость  $P_c(H)$  в слабом поле (спины  $\text{Cr}^{3+}$  почти параллельны  $c$ -оси) обусловлена в основном первым членом в (5), а резкий спад поляризации в интервале полей 65–85 кЭ связан с обращением в нуль компоненты  $\alpha_{33}$  МЭ тензора. Начиная с  $H \sim 65$  кЭ возникает недиагональная компонента  $\alpha_{31}$  (второй член в (5)), однако ее вклад невелик вследствие малости проекции магнитного поля на  $a$ -ось. Отметим, что при данной ориентации магнитного поля поворот спинов к направлению, перпендикулярному полю, происходит с ростом поля не скачком, как при строгом спин-флор-переходе, а эффективно растягивается на интервал полей 65–85 кЭ.

Для доказательства существования тороидального момента  $\mathbf{T}$  в  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  использовалась формула (3), связывающая его с антисимметричной частью матрицы МЭ эффекта  $\hat{\alpha}$ . Формулы для компонент  $\alpha_{ij}$  следуют из общей формулы для вектора электрической поляризации:

$$\mathbf{P} = \hat{\alpha}\mathbf{H} = \chi_{\perp}[\mathbf{H} - (\mathbf{H}\mathbf{L})\mathbf{L}] \begin{vmatrix} \lambda_1 L_y + \lambda_3 L_z & \lambda_1 L_z & \lambda_2 L_x \\ \lambda_1 L_z & -\lambda_1 L_y + \lambda_3 L_z & \lambda_2 L_y \\ \lambda_4 L_x & \lambda_4 L_y & \lambda_5 L_z \end{vmatrix} + \chi_{\parallel}(\mathbf{H}\mathbf{L}) \begin{vmatrix} 2\lambda_1 L_x L_z + (\lambda_3 + \lambda_4)L_x L_y \\ \lambda_1(L_x^2 - L_y^2) + (\lambda_3 + \lambda_4)L_y L_z \\ \lambda_2(L_x^2 + L_y^2) + \lambda_5 L_z^2 \end{vmatrix}, \quad (6)$$

полученной в [11] из термодинамического потенциала [12], имеющего вид

$$\Phi_{ME} = -\lambda_1[m_x(L_x E_y + L_y E_x) + m_y(L_x E_x + L_y E_y) - \lambda_2(L_x m_x + L_y m_y)E_z - \lambda_3(m_x E_x + m_y E_y)L_z - \lambda_4 m_z(L_x E_x + L_y E_y) - \lambda_5 m_z L_z E_z]. \quad (7)$$

В этих формулах  $\mathbf{E}$ ,  $\mathbf{H}$  – напряженности электрического и магнитного полей;  $\mathbf{m}$ ,  $\mathbf{L}$  – векторы слабого ферромагнетизма и антиферромагнетизма;  $\chi_{\parallel}$  и  $\chi_{\perp}$  – продольная и

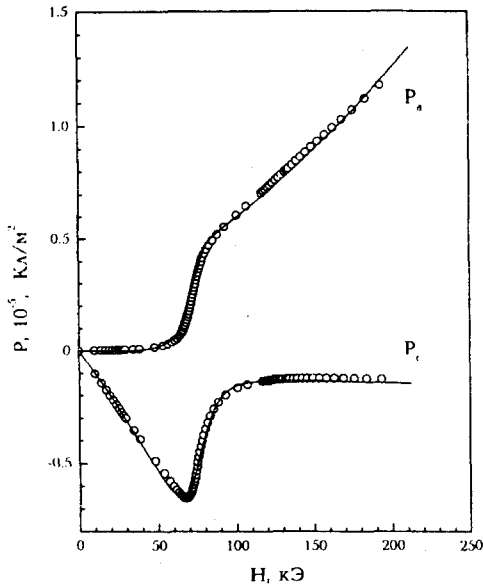


Рис.2. Зависимость электрической поляризации  $P_I$  вдоль  $a(x)$ - и  $c(z)$ -осей от поля при  $\theta = -5^\circ$ , при температуре 150 К (сплошные линии – эксперимент, точки – теория)

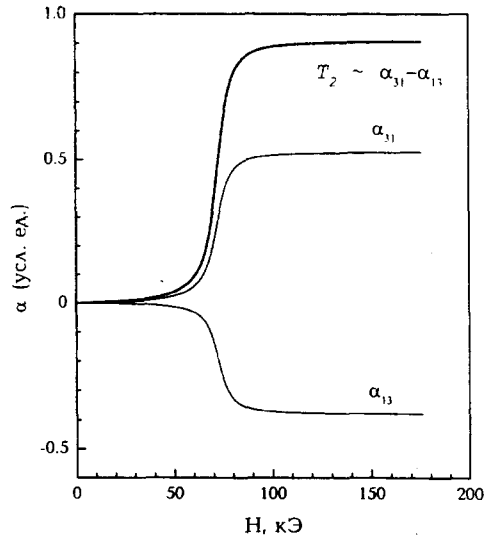


Рис.3. Зависимости от магнитного поля компонент тензора МЭ восприимчивости  $\alpha_{13}$ ,  $\alpha_{31}$  и  $T_2 \sim \alpha_{31} - \alpha_{13}$  в условных единицах при температуре 150 К

поперечная магнитные восприимчивости;  $\lambda_k$  – постоянные коэффициенты. Конкретно в работе вычислялись компоненты  $\alpha_{13}$  и  $\alpha_{31}$ , по которым оценивалась компонента  $T_2$  тороидального момента (значения 1, 2, 3 индекса  $i$  соответствуют координатным осям  $x, y, z$  в направлении кристаллографических осей  $a, b, c$ ). Эти компоненты в рассматриваемом случае определяются формулами

$$P_a = H[\sin\theta[\chi_\perp(\lambda_2 - \lambda_5) \sin\varphi \cos^2\varphi + \chi_\parallel \sin\varphi(\lambda_2 \sin^2\varphi + \lambda_5 \cos^2\varphi) + \cos\theta[\chi_\perp(\lambda_5 - \lambda_2) \cos\varphi \sin^2\varphi + \chi_\parallel \cos\varphi(\lambda_2 \sin^2\varphi + \lambda_5 \cos^2\varphi)]], \quad (8)$$

$$P_c = H[\sin\theta[\chi_\perp(\lambda_3 \cos^3\varphi - \lambda_4 \sin^2\varphi \cos\varphi) + \chi_\parallel(\lambda_3 + \lambda_4) \sin^2\varphi \cos\varphi] + \cos\theta[\chi_\perp(-\lambda_3 \sin\varphi \cos^2\varphi + \lambda_4 \sin^3\varphi) + \chi_\parallel(\lambda_3 + \lambda_4) \sin\varphi \cos^2\varphi]],$$

где  $\varphi$  – угол между вектором  $\mathbf{L}$  и  $c$ -осью, а  $\theta$  – угол между  $\mathbf{H}$  и  $c$ -осью. Зависимость угла  $\varphi$  от величины поля  $H$  определяется формулой, приведенной в работе [13]:

$$H = H_P \sqrt{\sin 2\varphi / \sin 2(\varphi - \theta)}, \quad (9)$$

где  $H_P$  – пороговое поле спин-флор-перехода при строгой ориентации поля вдоль  $c$ -оси ( $\theta = 0$ ). График зависимости  $\varphi(H)$  при  $\theta = -5^\circ$  и при температуре 150 К приведен на рис.1. Значение  $H_P = 72$  кЭ бралось из наших экспериментов.

Теоретические кривые зависимости  $P_a(H)$  и  $P_c(H)$ , полученные из (8) с учетом (9) и значения  $\chi_\perp/\chi_\parallel = 3.1$ , взятого из [13], сопоставлялись с соответствующими экспериментальными кривыми и из требования их наилучшего согласия определялись с точностью до постоянного множителя коэффициенты  $\lambda_3, \lambda_4$  (из кривых  $P_a(H)$ ) и  $\lambda_2$ ,

$\lambda_5$  (из кривых  $P_c(H)$ ). На рис.2 экспериментальные кривые даны сплошными линиями, а точками обозначены теоретические результаты при найденных значениях  $\lambda_k$ . Хорошее согласие экспериментальных и теоретических результатов свидетельствует об адекватности принятой теоретической модели.

Полученные зависимости значения матричных элементов  $\alpha_{13}$ ,  $\alpha_{31}$  и их разности  $\alpha_{31} - \alpha_{13} \sim T_2$  (в условных единицах) от величины магнитного поля при угле  $\theta = -5^\circ$  приведены на рис.3.<sup>2)</sup> Из рисунка видно, что отличная от нуля антисимметричная часть ( $\alpha_{31} - \alpha_{13}$ ), а вместе с ней и компонента  $T_2$  появляются сразу же при отходе спинов от  $c$ -оси (это следует уже из различия знаков  $\alpha_{13}$  и  $\alpha_{31}$ ) и сохраняются вплоть до спин-флоп-фазы. Это дает основание считать, что магнитоэлектрик  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  в спин-флоп-фазе является тороиком.

Итак, на основе измерения в сильном магнитном поле до 250 кЭ, электрической поляризации вдоль  $a$ - и  $c$ -осей кристалла  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  установлено, что недиагональные компоненты тензора магнитоэлектрической восприимчивости  $\alpha_{13}$  и  $\alpha_{31}$  имеют различные знаки. Асимметрия компонент тензора МЭ восприимчивости  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  в спин-флоп-фазе свидетельствует о наличии отличного от нуля тороидального момента, допускаемого симметрией этих кристаллов.

Авторы благодарны Ю.В.Копяеву за полезное обсуждение и Шмидту (H.Schmid) за постоянное внимание. Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (гранты #98-02-16848 и #96-15-96429).

1. H.Schmid, *Int. J. Magnetism* **4**, 337 (1973).
2. В.М.Дубовик, С.С.Кротов, В.В.Тугушев, *Кристаллография* **32**, 540 (1987).
3. E.Ascher, in: *Magnetolectric interaction phenomena in crystals*, Eds. A.Freeman and H.Schmid, New York, 1975, p.69.
4. Ю.И.Сиротин, М.П.Шаскольская, *Основы кристаллографии*, М.: Наука, 1975.
5. V.L.Ginsburg, A.A.Gorbatsevich, Yu.V.Kopaev, and B.A.Volkov, *Solid St. Com.* **50**, 339 (1987).
6. A.A.Gorbatsevich and Yu.V.Kopaev, *Ferroelectrics* **161**, 321 (1994).
7. Д.Г.Санников, И.С.Желудев, *ЖЭТФ* **27**, 1369 (1985).
8. Ю.Ф.Попов, А.К.Звездин, А.М.Кадомцева и др., *ЖЭТФ* **114**, 263 (1998).
9. Л.А.Шувалов, Н.В.Белов, *Кристаллография* **7**, 162 (1962).
10. Ю.Ф.Попов, А.К.Звездин, Г.П.Воробьев, А.М.Кадомцева, *Письма в ЖЭТФ* **57**, 69 (1993).
11. Д.В.Белов, Г.П.Воробьев, А.М.Кадомцева и др., *Письма в ЖЭТФ* **58**, 603 (1993).
12. Е.А.Туров, *Кинетические, оптические и акустические свойства антиферромагнетиков*, Свердловск, 1990.
13. S.Foner, *Phys. Rev.* **130**, 183 (1963).

<sup>2)</sup> Отметим, что при изменении знака угла наклона поля  $\theta \rightarrow -\theta$  меняется знак угла  $\varphi$ , а вместе с ним и знак обеих компонент  $\alpha_{13}$  и  $\alpha_{31}$ , как видно из формулы (8). При этом взаимная противоположность знаков компонент  $\alpha_{13}$  и  $\alpha_{31}$ , то есть асимметрия МЭ тензора, естественно, сохраняется.