

НОВЫЕ ОРИЕНТАЦИОННЫЕ ПЕРЕХОДЫ В ОРТОФЕРРИТЕ HoFeO_3

А.М. Балбашов, Г.В. Козлов, С.П. Лебедев, А.А. Мухин, А.Ю. Пронин, А.С. Прохоров

В HoFeO_3 обнаружены аномалии параметров магнитных мод при $T_1 = 58 \pm 2$ К, $T_2 = 51 \pm 1$ К, $T_3 = 39 \pm 2$ К. Показано, что они обусловлены спин-переориентационными фазовыми переходами соответственно между фазами $\Gamma_4 - \Gamma_{24}$, $\Gamma_{24} - \Gamma_{12}$ и $\Gamma_{12} - \Gamma_2$. Подобной последовательности спонтанных фазовых переходов в ортоферритах ранее не наблюдалось.

Считалось, что HoFeO_3 принадлежит к ряду ортоферритов (TmFeO_3 , ErFeO_3 , TbFeO_3 и др.), в которых неустойчивость магнитной подсистемы связана с переориентацией вектора антиферромагнетизма \mathbf{G} ионов Fe^{3+} в плоскости ac от оси a (фаза Γ_4) к оси c (фаза Γ_2) через угловую фазу Γ_{24} путем двух фазовых переходов (ФП) второго рода /1, 2/. Такой тип ФП должен сопровождаться смягчением квазиферромагнитной моды (Ф-моды) антиферромагнитного резонанса (АФМР) при двух температурах (T_1 и T_2), соответствующих переходам $\Gamma_4 - \Gamma_{24}$ и $\Gamma_2 - \Gamma_{24}$, что и наблюдалось, например, в TmFeO_3 /3/. Однако нейтронографические /4/ и спектроскопические /5/ исследования HoFeO_3 обнаружили черты, свойственные не только этим ФП, но и характерные для другого ФП: перехода типа Морина в DyFeO_3 /2, 6/, который характеризуется переориентацией вектора \mathbf{G} к оси b и сопровождается смягчением квазиантиферромагнитной моды (А-моды) АФМР. Об этом свидетельствуют также результаты исследований смешанного состава $\text{Ho}_{0,5}\text{Dy}_{0,5}\text{FeO}_3$ /7/.

Настоящая работа предпринята с целью поиска в HoFeO_3 ФП, связанного с разворотом вектора \mathbf{G} из плоскости ac к оси b . Для этого проведено изучение спектров пропускания монокристалла HoFeO_3 всех трех срезов (a, b, c) в области частот магнитных мод ($\nu = 70 - 700$ ГГц) при $T = 4,2 - 300$ К, уделяя особое внимание области $T < 60$ К, где, по нашим оценкам, можно было ожидать появления нового ФП.

Измерения проводились на субмиллиметровом спектрометре "Эпсилон" /8/ на образцах монокристаллов, выращенных методом бестигельной зонной плавки и представляющих собой плоскопараллельные пластинки с поперечными размерами ~ 10 мм и толщиной ~ 1 мм. Получены температурные зависимости резонансных частот, ширины линий, вкладов в статическую магнитную проницаемость для двух мод АФМР Fe-подсистемы (Ф- и А-мод) и двух редкоземельных мод (R_1 - и R_2 -мод), обусловленных электронными переходами внутри основного квазидублета иона Ho^{3+} . Соответствующие температурные зависимости резонансных частот представлены на рис. 1. Видно, что помимо наблюдавшихся ранее в /5/ особенностей параметров Ф-моды при $T_1 = 58 \pm 2$ К и $T_2 = 51 \pm 1$ К, которые были идентифицированы с началом и концом поворота вектора \mathbf{G} в ac -плоскости от оси a к оси c , имеется новая особенность при $T_3 = 39 \pm 2$ К. По нашим данным в области T_3 происходят следующие изменения: а) частота А-моды, в которой \mathbf{G} колеблется в плоскости cb , проходит через минимум, а частота R_2 -моды возрастает выше T_3 ; б) ширины линий и вкладов А-моды возрастают в 10-100 раз, а R_2 -моды, наоборот, уменьшаются при $T_3 < T < T_2$; в) частоты Ф- и R_1 -мод меняются слабо. Эти три экспериментальных факта позволяют сделать качественный вывод о том, что при $T = T_3$ имеет место новый фазовый переход, связанный с поворотом вектора \mathbf{G} от оси c к оси b . Что касается области $T_2 < T < T_1$, то поведение всех четырех мод подтверждает существование здесь известной фазы Γ_{24} /5/.

Для того, чтобы определить симметрию новой фазы при $T_3 < T < T_2$, а также типы фазовых переходов на ее границах T_3 и T_2 , проведен теоретический анализ и численный расчет температурных зависимостей резонансных частот, результаты сопоставлены с экспериментом. При этом Fe-подсистема описывалась феноменологически, а для Ho-подсистемы использовался спин-гамильтониан /2, 9/

$$H_{\text{eff}} = - \sum_i [\Delta_{\text{cf}} \sigma_{\xi}^i + (\vec{\mu}_0^i (\mathbf{H} + a\mathbf{F}) + \mathbf{B}G_z) \sigma_{\xi}^i] - \frac{1}{2} \sum_{i,j} \lambda_{ij} \sigma_{\xi}^i \sigma_{\xi}^j - \sum_i \Delta E_{\text{es}}^i (\mathbf{F}, \mathbf{G}, \mathbf{H}), \quad (1)$$

где F, G – векторы ферро- и антиферромагнетизма Fe-подсистемы; $\vec{\sigma}^i$ – матрицы Паули основного квазидублета i -го иона Ho^{3+} , $2\Delta_{cf}$ – его расщепление в кристаллическом поле; $\vec{\mu}_0^i \equiv \vec{\mu}_0^{\pm} = (\mu_x, \pm \mu_y, 0)$ – магнитный момент квазидублета для двух неэквивалентных позиций ионов Ho^{3+} ; a, b, λ_{ij} – соответственно константы изотропного и анизотропного взаимодействия Ho–Fe и взаимодействия Ho–Ho; ΔE_{es}^i – сдвиг вниз центра тяжести основного квазидублета за счет примешивания возбужденных состояний, учет которого дает в энергию анизотропии вклад, принципиально необходимый для описания наблюдаемых ФП. На основе (1) построен неравновесный термодинамический потенциал (ТП), зависящий от переменных обеих подсистем (F, G и $\langle \vec{\sigma}^i \rangle = \langle \vec{\sigma}^{\pm} \rangle$)/9. В качестве уравнений движения для F и G использовались уравнения Ландау – Лифшица; такого же типа уравнения получены для $\langle \vec{\sigma}^i \rangle$.

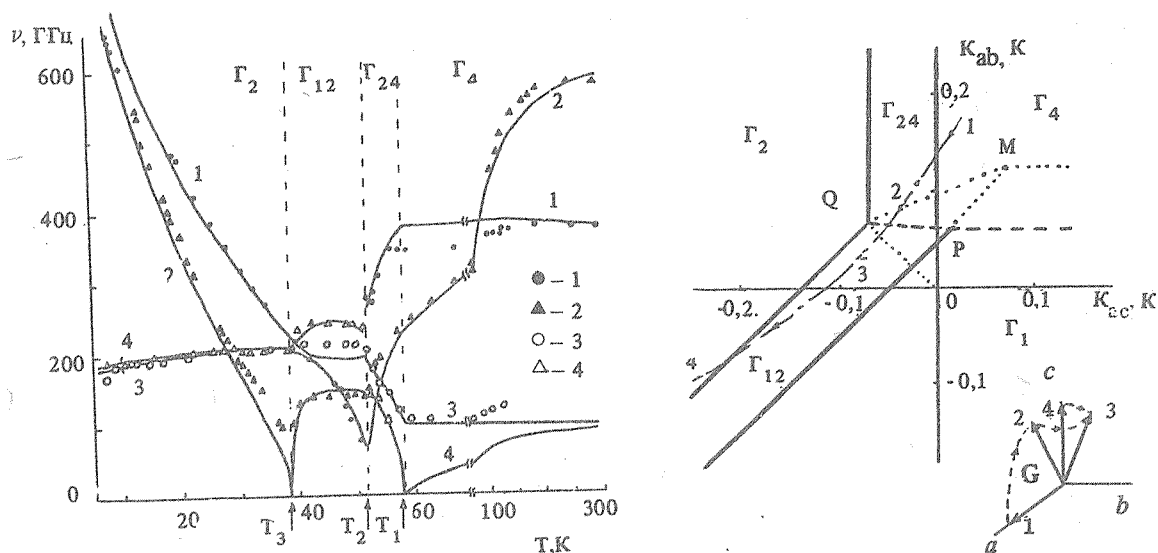


Рис. 1. Температурные зависимости резонансных частот в HoFeO_3 при ориентационных переходах $\Gamma_4 - \Gamma_{24} - \Gamma_{12} - \Gamma_2$: точки – эксперимент, сплошные линии – теория, 1 – Φ -мода, 2 – А-мода, 3 – R_1 -мода, 4 – R_2 -мода.

Рис. 2. Фазовая диаграмма системы в пространстве констант анизотропии второго порядка K_{ac} и K_{ab} ; (численный расчет при $K_2 = 0,07$ К, $K_2' = -0,117$ К, $K_2'' = -0,07$ К); сплошные линии соответствуют ФП второго рода, пунктирные линии – ФП первого рода и точечные – линиями потери устойчивости. Координаты точек: $Q(-K_2, -K_2'')$, $M(-K_2'', -K_2')$, $P(K_2'/2 - K_2'', -K_2'/2)$. На вставке показан характер переориентации вектора антиферромагнетизма G вдоль термодинамического пути 1 – 2 – 3 – 4.

Сравнение измеренных параметров мод с рассчитанными показало, что спиновая переориентация в HoFeO_3 осуществляется не в виде двух ФП $\Gamma_4 - \Gamma_{24} - \Gamma_2$ (как считалось ранее), а путем трех ФП $\Gamma_4 - \Gamma_{24} - \Gamma_{12} - \Gamma_2$, в процессе которых вектор G отклоняется от оси $-a$ (Γ_4) на верхней границе T_1 и плавно вращается в плоскости ac (Γ_{24}), затем не доходя до оси c ($10^\circ - 20^\circ$), скачком переориентируется при T_2 в плоскость bc (Γ_{12}) и в ней уже плавно доворачивается до оси c при T_3 (фаза Γ_2). Результаты расчетов частот (рис. 1, сплошные линии) демонстрируют хорошее согласие с экспериментальными данными и подтверждают предлагаемый новый для HoFeO_3 механизм спиновой переориентации. Обнаруженная новая фаза при $T_3 < T < T_2$ представляет собой угловую фазу Γ_{12} . Ее низкотемпературная граница T_3 является ФП второго рода в фазу Γ_2 , а высокотемпературная граница T_2 – ФП первого рода в фазу Γ_{24} . Такой ход спиновой переориентации в HoFeO_3 однозначно следует из фазовой диаграммы (рис. 2), построенной на основе эффективного ТП (при условии $|G| = 1$)

$$\Phi = \frac{1}{2} K_{ac} G_z^2 + \frac{1}{2} K_{ab} G_y^2 + \frac{1}{4} K_2 G_z^4 + \frac{1}{4} K_2' G_y^4 + \frac{1}{2} K_2'' G_z^2 G_y^2, \quad (2)$$

полученного из исходного путем минимизации по $F, \langle \sigma^{\pm} \rangle$. В (2) полагалось $K_2 > 0, \tilde{K}_2 = K_2 + K_2' - 2K_2'' > 0$, что следует из условия существования угловых фаз Γ_{24}, Γ_{12} и $K_2' < 0$ по данным /2,6/ для $DyFeO_3$. При $K_2 > 0, K_2'' > 0, K_2' K_2' > (K_2'')^2$ возможен второй вариант спиновой переориентации, при котором переход между угловыми фазами Γ_{24} и Γ_{12} происходит плавно через пространственную угловую фазу Γ_{124} . В $HoFeO_3$ мы отдаем предпочтение первому варианту, который позволяет лучше описать эксперимент и соответствует более реалистичному условию $K_2 < 0$.

Наблюдаемые особенности в поведении $HoFeO_3$ во многом обусловлены тем, что термодинамический путь кристалла проходит вблизи бикритической точки O (рис. 2), в которой сходятся две линии ФП второго рода и одна линия ФП первого рода. Ранее подобная точка при ориентационных ФП была обнаружена и объяснена на фазовой диаграмме $H_x - T$ (H_x — магнитное поле вдоль оси x) в ортоферрите $DyFe_{1-y}Al_yO_3$ /11/ и теоретически обсуждалась в /12/.

Вид полученной фазовой диаграммы в окрестности бикритической точки на рис. 2 совпадает с результатами /10/, полученными для ТП с двумя взаимодействующими однокомпонентными параметрами порядка. Однако поскольку в нашем случае параметр порядка является многокомпонентным (единичный вектор $G = (G_x, G_y, G_z)$), то общий вид фазовой диаграммы оказывается существенно иным, в частности, появляются дополнительные симметричные фазы.

ЛИТЕРАТУРА

1. Apostolov A., Sivadriere J. Compt. Rend., 268 В, 208 (1969).
2. Белов К.П. и др. Ориентационные переходы в редкоземельных магнетиках. М., Наука, 1979.
3. Shapiro S.M., Axe J.D., Remeika J.P. Phys. Rev., В 10, 2014 (1974).
4. Koehler W.C., Wollan E.O., Wilkinson M.K. Phys. Rev., 118, 58 (1960).
5. Балбашов А.М. и др. Письма в ЖЭТФ, 43, 33 (1986).
6. Балбашов А.М. и др. ЖЭТФ, 88, 974 (1985).
7. Белов К.П. и др. ФТТ, 19, 259 (1977).
8. Волков А.А. и др. ПТЭ, № 2, 236 (1984).
9. Звездин А.К. и др. Редкоземельные ионы в магнитоупорядоченных кристаллах. М., Наука, 1986.
10. Люксютов И.Ф., Покровский В.Л., Хмельницкий Д.Е. ЖЭТФ, 69, 1817 (1975).
11. Деркаченко В.Н. и др. Тезисы докладов на Всесоюзном совещании по физике низких температур, Харьков, 1980, ч. II, с. 159.
12. Марчуков П.Ю., Рудашевский Е.Г. Краткие сообщения по физике ФИАН, № 7, 53 (1987).

Институт общей физики АН СССР

Поступила в редакцию 23 марта 1988 г.