Физика низких температур, 2008, т. 34, № 11, с. 1139–1141

Влияние электрической поляризации на волновой вектор модуляции антиферромагнитной структуры $TbMnO_3$

И.Е. Чупис, И.В. Ушакова

Физико-технический институт низких температур им. Б.И. Веркина НАН Украины
пр. Ленина, 47, г. Харьков, 61103, Украина
E-mail: irs@nm.ru

Статья поступила в редакцию 12 июня 2008 г.

Проанализировано влияние электрической поляризации на температурную и полевую зависимости вектора модуляции **k** антиферромагнитной структуры в манганите тербия. Показано, что в отличие от ангармонизмов электрическая поляризация увеличивает величину **k**, что может быть причиной наблюдаемой немонотонной температурной зависимости вектора модуляции в $TbMnO_3$.

Проаналізовано вплив електричної поляризації на температурну та польову залежності вектора модуляції **k** антиферомагнітної структури в манганіті тербію. Показано, що на відміну від ангармонізмів електрична поляризація збільшує величину **k**, що може бути причиною немонотонної температурної залежності вектора модуляції в $TbMnO_3$, яка спостерігається.

PACS: **75.80.+q** Магнитомеханические и магнитоэлектрические эффекты, магнитострикция.

Ключевые слова: модулированная магнитная структура, антиферромагнетик, электрическая поляризация, вектор модуляции.

Недавнее открытие гигантских изменений диэлектрической постоянной (~10%) и электрической поляризации в магнитном поле порядка нескольких тесла в сегнетоэлектрике (СЭ)–антиферромагнетике (АФ) $TbMnO_3$ дало возможность эффективного магнитного контроля над СЭ состоянием [1]. В $TbMnO_3$ ниже температуры $T_N = 42$ К существует несоразмерная коллинеарная АФ структура типа A_y (**A** — вектор антиферромагнетизма) с модуляцией и направлением спинов вдоль оси Y и вектором модуляции $k_y = 0{,}295b^*$. Ниже температуры $T_l = 27$ К появляется еще одна компонента вектора антиферромагнетизма вдоль оси Z и электрическая поляризация вдоль той же оси. В магнитном поле порядка нескольких тесла, направленном вдоль оси Y, электрическая поляризация P_z исчезает и появляется статическая поляризация P_x («magnetic-field-induced electric polarization flop» [1]). Однако, как показано в работе [2], наблюдаемый «magnetic-field-induced electric polarization flop» не является ориентационным переходом, как в магнетиках, а объясняется примесью к конфигурации A_y более слабой конфигурации G_y.

Волновой вектор модуляции обычно слабо зависит от температуры, уменьшаясь с ее понижением за счет вклада от гармоник более высокого порядка. Однако наблюдаемая температурная зависимость в неколлинеарной АФ фазе $TbMnO_3$ немонотонна: понижение значения вектора модуляции сменяется его стабилизацией и слабым возрастанием ниже T_l после возникновения СЭ упорядочения [1,3–5].

В настоящей работе проанализирован вклад в температурную и полевую зависимости вектора модуляции в неколлинеарной фазе как гармоник более высокого порядка, так и магнитоэлектрического (МЭ) взаимодействия. Показано, что в отличие от ангармонизмов наличие СЭ поляризации приводит к увеличению значения вектора модуляции. Разный знак вкладов от высших гармоник и поляризации может привести к стабилизации вектора модуляции ниже T_l в $TbMnO_3$.

Функционал Гинзбурга–Ландау с учетом ромбической симметрии $TbMnO_3$ (пространственная группа *Pbnm*) как функцию АФ векторов $\mathbf{A},\mathbf{G}$, намагниченности **M** и электрической поляризации **P** запишем в виде [2]

$$F = V^{-1}\int\left\{\frac{1}{2}(a_1(\mathbf{A})^2 + a_2(\mathbf{G})^2) + \frac{1}{2}wA_z^2 + \frac{1}{4}u((\mathbf{A})^4 + (\mathbf{G})^4) + dA_zM_y + \frac{1}{2}\gamma[(\partial_y\mathbf{A})^2 + (\partial_y\mathbf{G})^2] + \right.$$
$$+\frac{1}{2}\alpha[(\partial_y^2\mathbf{A})^2 + (\partial_y^2\mathbf{G})^2] - \mathbf{MH} + \frac{1}{2}c(\mathbf{M})^2 + \frac{1}{2}\lambda_1(\mathbf{AM})^2 + \frac{1}{2}\lambda_2(\mathbf{GM})^2 + \frac{1}{2}(\lambda_1'(\mathbf{A})^2 + \lambda_2'(\mathbf{G})^2)\mathbf{M}^2 + \frac{b_1}{2}P_x^2 + \frac{b_2}{2}P_z^2 +$$
$$\left. + \nu P_x(A_y\partial_yG_y - G_y\partial_yA_y) + \nu_1P_x(A_z\partial_yG_z - G_z\partial_yA_z) + \nu_2P_z(A_z\partial_yA_y - A_y\partial_yA_z) + \ldots\right\}d\mathbf{V}. \qquad (1)$$

Здесь $\partial_yA = \partial A/\partial y$; постоянные b_1, b_2, u и c положительны; обменные постоянные $a_{1,2} \sim T - T_0$ (T_0 — температура перехода в однородное АФ состояние), $|G| << |A|$ [5]. Модулированное АФ состояние возникает благодаря конкуренции между постоянными неоднородного обмена между ближайшими соседями $(\gamma < 0)$ и соседями, следующими за ближайшими $(\alpha > 0)$. Поскольку ниже T_N АФ вектор $\mathbf{A}$ направлен вдоль оси Y [1], постоянная анизотропии $w > 0$. Электрическая поляризация возникает за счет наличия неоднородной МЭ энергии (три последних слагаемых в (1)). В функционал (1) включены лишь слагаемые, которые будут необходимы для дальнейшего анализа.

Сначала проанализируем температурную зависимость вектора модуляции в отсутствие внешнего магнитного поля ($H = 0$). При этом достаточно учитывать только A конфигурацию, так как $|G| << |A|$ [5].

Известно, что в модулированном магнитном состоянии волновой вектор $\mathbf{k}(T)$ слабо уменьшается за счет вклада от гармоник более высокого порядка [6]. Такая температурная зависимость наблюдается в $TbMnO_3$ при $T < T_N$ [1,3,5].

Однако ниже $T_l < T_N$ зависимость $\mathbf{k}(T)$ стабилизируется и начинает слабо возрастать [1,3,5]. Так как поляризация P_z возникает при $T < T_l$, анализируем влияние P_z на температурное поведение $\mathbf{k}$ при $T < T_l$. Равновесные значения A_y, A_z и P_z в неколлинеарной АФ фазе ищем в виде гармонических рядов:

$$A_y = A_1\cos ky + A_3\cos 3ky + \ldots$$
$$A_z = B_1\sin ky + B_3\sin 3ky + \ldots \qquad (2)$$
$$P = P_0 + p\cos 2ky + \ldots$$

После подстановки (2) в (1) и минимизации функционала по параметрам $A_1, A_3, B_1, B_3, P_0, p$ и k получаем следующее выражение для волнового вектора $\mathbf{k}$:

$$k^2 \approx k_0^2 + \frac{1}{\alpha(A_1^2 + B_1^2)}\left[36\gamma(A_3^2 + B_3^2) + \frac{\nu_2^2}{b_2}A_1^2B_1^2\right],$$
$$k_0^2 = -\frac{\gamma}{2\alpha}, \qquad (3)$$

где $P_0 = \nu_2k_0b_2^{-1}A_1B_1$,

$$A_1^2 = (2u)^{-1}[L_2(k_0) - 3L_1(k_0)], \quad B_1^2 = (2u)^{-1}[L_1(k_0) - 3L_2(k_0)],$$
$$A_3 = -\frac{uA_1(A_1^2 - B_1^2)}{4L_1(3k_0)}, \quad B_3 = -\frac{uB_1(A_1^2 - B_1^2)}{4L_2(3k_0)},$$
$$L_1(k) = a_1 + \gamma k^2 + \alpha k^4 < 0, \quad L_2(k) = L_1(k) + w < 0. \qquad (4)$$

Изменение вектора модуляции $\mathbf{k}$ при $T < T_N$ ($\mathbf{k} = \mathbf{k}_0$ при $T = T_N$) имеет место за счет вклада от гармоник третьего порядка (второе слагаемое в (3)) и за счет электрической поляризации (третье слагаемое в (3)). Эти вклады имеют разные знаки: третья гармоника уменьшает значение $\mathbf{k}\,(\gamma < 0)$, а электрическая поляризация увеличивает $\mathbf{k}$. Поэтому магнитоэлектрическое взаимодействие в $TbMnO_3$ может быть причиной стабилизации значения вектора модуляции.

Присутствие многих неизвестных параметров в (3) затрудняет численную оценку различных вкладов в значение вектора модуляции (3).

Если ввести обозначения:

$$a_c = \alpha k_0^4,\ a - a_c = \zeta(T - T_N),\ t = \frac{a - a_c}{w},\ y = 64\frac{a_c}{w},$$
$$L_1 = a - a_c \qquad (5)$$

и воспользоваться тем, что при $T = T_l = 27$ К компонента $A_Z = 0, (B_1 = 0)$, т.е. $L_1 = 3L_2$, то для значения $T_N = 42$ К имеем $w/\zeta = 10°$, $t = 0{,}1(T - T_N)$. Тогда в неколлинеарной фазе ($T < T_l$) выражение (3) можно представить в виде:

$$k^2 = k_0^2\left\{1 + \frac{9}{1+2t}\left[\frac{1-2t}{(t+y)^2} - \frac{(3+2t)}{(t+1+y)^2}\right]\right\} +$$
$$+\frac{\varepsilon}{2}\frac{(1-2t)(3+2t)}{(1+2t)}, \quad \varepsilon = \frac{\nu_2w}{2\alpha b_2u}. \qquad (6)$$

Выражение (6) содерит два неизвестных параметра: y и ε.

Параметр ε выразим через параметр y, используя экспериментальное значение $2k \approx 0{,}55$ при $T = 25$ К ($t = -1{,}7$) [1], а также равенство значений k при температурах $T = 25{,}9$ и $T = 15$ К [1]. В этом случае можно показать, что при значении $y = 12{,}9$, $\varepsilon \approx 0{,}016k_0^2$ и величина вектора модуляции $\mathbf{k}$ мало отличается от рационального числа $k = 5/18$, а именно:

$2k = 0{,}5498$ ($T = 15$ К; 25,9 К), $2k = 0{,}55$ ($T = 20$ К; 25 К),

$$2k = 0{,}548 \ (T = 10 \text{ К}) .$$

Таким образом, для выбранных значений y и ε значение вектора модуляции **k** в неколлинеарной фазе стабилизируется вблизи $k = 5/18$.

Рассматриваемая модель, не учитывающая критического поведения редкоземельного иона Tb^{3+}, когда упорядочивается тербиева подсистема, не годится для температур $T < 10$ К.

Внешнее магнитное поле мало изменяет величину амплитуды A [2]. Магнитное поле вдоль оси Y отключает поляризацию P_z после спин-флоп перехода, а электрическая поляризация вдоль оси X, $P_x \sim A_z \partial_y G_z$ быстро возрастает в магнитном поле [2]. Мы рассчитаем изменение вектора **k** в магнитном поле H_y после спин-флоп перехода, когда $A_y \to A_z, G_y \to G_z$. В этом равновесном состоянии положим:

$$\begin{aligned} A_z &= B_1 \sin ky + B_2 \cos 2ky , \\ M_y &= M_0 + M_1 \sin ky , \\ G_z &= G \cos ky . \end{aligned} \tag{7}$$

Приняв во внимание слабость высших гармоник и $G << B_1$, $M_1 << M_0$, после расчетов получаем следующее приближенное выражение для зависимости от магнитного поля вектора модуляции $\mathbf{k}(H)$:

$$k^2(H) \approx k_0^2 \left[1 - \frac{12 B_2^2}{B_1^2} + \frac{\nu_1^2 G^2}{\alpha k_0^2 B_1} \right], \tag{8}$$

где $P_x = \nu_1 k b^{-1} B_1 G$,

$$B_1^2 \approx -4(3u)^{-1}[L_2(k_0) + \lambda_1' M_0^2], \ \ M_0 \approx Hc^{-1},$$

$$G^2 \approx -4(3u)^{-1}[G_0 + \lambda_2' M_0^2], \quad a_c = \alpha k_0^4,$$

$$G_0 = a_2 - a_c < 0 ,$$

$$B_2 \approx -d\lambda_1' H B_1^2 c^{-2} \tilde{L}_2^{-1}(2k_0), \tilde{L}_2(2k_0) \approx L_2(2k_0) + \frac{3}{2} u B_1^2 . \tag{9}$$

Значение B_1 слабо уменьшается в магнитном поле ($\lambda_1' > 0$), а G заметно увеличивается, так как ($\lambda_2' < 0$), $|G_0| << |L_2(k_0)|$ [2].

Из выражения (8) следует, что в магнитном поле МЭ взаимодействие (последнее слагаемое в (8)) так же, как и в температурной зависимости $k(T)$ (3), увеличивает значение вектора модуляции в отличие от вклада высшей гармоники несоразмерной АФ структуры (второе слагаемое в (8)). После спин-флоп перехода в достаточно большом магнитном поле $H^2 >> |G_0 c^2|/|\lambda_2'|$, как следует из (9), величина $G \sim H$, т.е. электрическая поляризация вдоль оси X линейно возрастает с увеличением поля. Вклады в вектор модуляции (второе и третье слагаемое в (8)) квадратичны по магнитному полю ($B_2^2 \sim H^2$, $G^2 \sim H^2$) и имеют разные знаки.

1. T. Kimura, T. Goto, H. Shintani, K. Ishizaka, T. Arima, and Y. Tokura, *Nature* **426**, 55(2003).
2. И. Е. Чупис, *ФНТ* **34**, 530 (2008).
3. S. Quezel, T. Tcheou, J. Rossat-Mignod, E. Quezel, and E. Roudaut, *Physica* **B86–88**, 916 (1977).
4. M. Kenzelmann, A.B. Harris, S. Jonas, C. Broholm, J. Schefer, S.B. Kim, C.L. Zhang, S.-W. Cheong, O.P. Vajk, and I.W. Lynn, *Phys. Rev. Lett*. **95**, 087206 (2005).
5. R. Kajimoto, H. Yoshizawa, H. Shintani, T. Kimura, and Y. Tokura, *Phys. Rev.* **B70**, 012401 (2004).
6. Ю.А. Изюмов, *Дифракция нейтронов на длиннопериодических структурах*, Энергоатомиздат, Москва (1987).

Influence of electric polarization on a wave vector of modulation of antiferromagnetic structure $TbMnO_3$

I.E. Chupis and I.V. Ushakova

The influence of electric polarization on temperature and field dependences of wave vector **k** of the modulation of antiferromagnetic structure in manganite terbium has been analyzed. It is shown that unlike high harmonics, the electric polarization increases the value of the modulation vector **k**. It is supposed that this is a cause of the nonmonotonic temperature dependence of **k** observed in $TbMnO_3$.

PACS: **75.80.+q** Magnetomechanical and magnetoelectric effects, magnetostriction.

Keywords: the modulated magnetic structure, antiferromagnetic, electric polarization, a vector of modulation.