

Индуцированное магнитным полем вращение плоскости поляризации света в антиферромагнитном ферроборате $TbFe_3(BO_3)_4$

В.А. Бедарев, М.И. Пашенко, А.Н. Блудов, С.Л. Гнатченко

*Физико-технический институт низких температур им. Б.И. Веркина НАН Украины
пр. Ленина, 47, г. Харьков, 61103, Украина*

E-mail: bedarev@ilt.kharkov.ua

Л.Н. Безматерных, В.Л. Темеров

Институт физики им. Л.В. Киренского Сибирского отделения РАН, г. Красноярск, 660036, Россия

Статья поступила в редакцию 14 декабря 2010 г.

Исследованы полевые зависимости вращения плоскости поляризации света и намагниченности в монокристалле ферробората $TbFe_3(BO_3)_4$. Показано, что основной вклад в индуцированное магнитным полем вращение плоскости поляризации света связан с магнитной подсистемой ионов тербия.

Досліджено польові залежності обертання площини поляризації світла та намагніченості у монокристалі ферроборату $TbFe_3(BO_3)_4$. Показано, що основний внесок у індуковане магнітним полем обертання площини поляризації світла пов'язаний з магнітною підсистемою іонів тербію.

PACS: 78.20.Ls Магнитооптические эффекты;
75.50.Ee Антиферромагнетики.

Ключевые слова: антиферромагнетик, намагниченность, вращение плоскости поляризации света.

Редкоземельные ферробораты $RFe_3(BO_3)_4$ привлекают к себе внимание прежде всего тем, что эти соединения обнаруживают свойства мультиферроиков [1,2]. Кроме того, взаимодействие редкоземельной и железной подсистем в ферроборатах приводит к появлению большого разнообразия магнитных структур, в том числе несоразмерных магнитных структур, исследование которых также вызывает интерес [3]. Редкоземельные ферробораты имеют тригональную структуру, которая принадлежит к нецентросимметричной пространственной группе $R32$. В некоторых ферроборатах наблюдается структурный фазовый переход первого рода. Например, в ферроборате $GdFe_3(BO_3)_4$ такой фазовый переход происходит при температуре 156 К [4]. С помощью рентгеновских исследований было установлено, что симметрия кристалла при этом фазовом переходе $GdFe_3(BO_3)_4$ понижается с $R32$ до $P3_121$, а точечная кристаллическая группа остается неизменной — 32 . Предполагается, что подобное изменение симметрии происходит и в монокристалле $TbFe_3(BO_3)_4$ во время структурного фазового перехода первого рода при температуре 192 К.

Магнитные и магнитоэлектрические свойства ферроборатов сильно зависят от редкоземельного элемента. Магнитная структура этих соединений определяется анизотропией редкоземельной подсистемы, поскольку подсистема железа является слабоанизотропной. В зависимости от редкоземельного элемента реализуется антиферромагнитная структура типа легкая ось или легкая плоскость. В случае $R = Tb$ реализуется антиферромагнитная структура типа легкая ось [5]. Подсистема ионов железа этого кристалла антиферромагнитно упорядочивается при температуре $T_N = 40$ К, магнитные моменты при этом направлены вдоль тригональной оси c . Ионы тербия за счет ($f-d$)-взаимодействия находятся в подмагнитном состоянии. Магнитные моменты подсистемы ионов тербия также направлены вдоль оси c . Если внешнее магнитное поле направит вдоль оси c , то в кристалле $TbFe_3(BO_3)_4$ наблюдается спинориентационный фазовый переход первого рода при температурах ниже 40 К [5].

В магнитном поле намагниченность $M(\mathbf{H})$ тербиевого ферробората складывается из проекций магнитных моментов подрешеток ионов тербия $M_{Tb}(H)$ и ионов

железа $M_{Fe}(H)$ на направление магнитного поля. Если на этот кристалл послать линейно поляризованный свет, направление распространения которого совпадает с направлением магнитного поля, то плоскость поляризации вышедшего из кристалла света по отношению к плоскости поляризации вошедшего будет повернута на угол, который определяется следующим выражением:

$$\Phi(H) = (A \cdot M_{Fe} + B \cdot M_{Tb}) t. \quad (1)$$

Здесь A и B — магнитооптические константы, t — толщина кристалла.

Цель настоящей работы — исследование полевых зависимостей вращения плоскости поляризации света и определение вкладов в это вращение подсистемы ионов тербия и подсистемы ионов железа в монокристалле $TbFe_3(BO_3)_4$.

Исследуемый монокристалл $TbFe_3(BO_3)_4$ выращен из раствора в расплаве [5]. Для магнитооптических исследований из монокристалла вырезали пластинку перпендикулярно оси c . Образец механически полировали, а затем отжигали при температуре 800 °C в течение 10 часов для снятия упругих напряжений. В результате был приготовлен образец толщиной 110 мкм, достаточно прозрачный в видимой области света.

Образец, прикрепленный к хладопроводу, помещался в оптический гелиевый криостат и находился в вакууме. Температуру образца определяли с помощью термосопротивления, размещенного на хладопроводе вблизи образца. Магнитное поле, создаваемое сверхпроводящим соленоидом, было параллельно тригональной оси c образца и совпадало с направлением распространения измерительного пучка света. Полевые зависимости вращения плоскости поляризации света измеряли с помощью модуляционной методики с модуляцией света по плоскости поляризации и синхронным детектированием. В качестве источника света использовали лампу накаливания, за которой помещали интерференционный фильтр $\lambda = 633$ нм.

Полевые зависимости намагниченности измеряли с помощью SQUID магнитометра MPMS-XL. Магнитное поле в этом случае было также направлено вдоль тригональной оси c кристалла.

На рис. 1 представлены полевые зависимости вращения плоскости поляризации света $\Phi(H)$, измеренные при температурах 8, 10, 15, 20 и 35 К в интервале полей от 0 до 35 кЭ. Как видно на рисунке, с повышением температуры величина вращения растет. Кроме того, при низких температурах величина $\Phi(H)$ нелинейно зависит от магнитного поля. Отклонение $\Phi(H)$ от линейной зависимости с повышением температуры постепенно уменьшается, и при температурах близких к T_N вращение плоскости поляризации почти линейно зависит от магнитного поля.

Для того чтобы сопоставить полевые зависимости вращения плоскости поляризации света $\Phi(H)$ и полевые

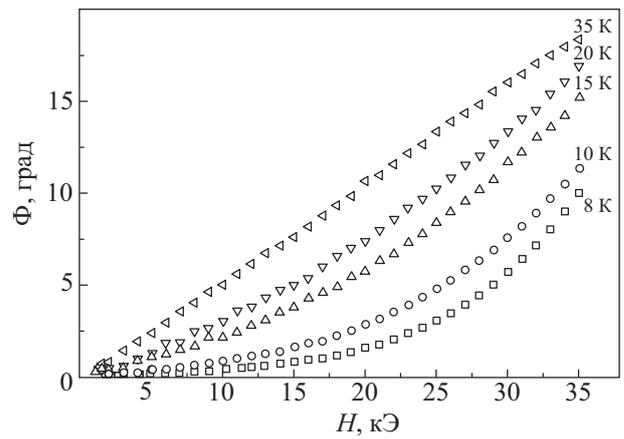


Рис. 1. Полевые зависимости угла вращения плоскости поляризации света $\Phi(H)$ в монокристалле $TbFe_3(BO_3)_4$.

зависимости намагниченности $M(H)$, эти зависимости измерялись при тех же температурах и в том же интервале полей, что и зависимости $\Phi(H)$. Полевые зависимости намагниченности, представленные на рис. 2, ведут себя подобно полевым зависимостям вращения плоскости поляризации света. Зависимости $M(H)$ при низких температурах так же, как и зависимости $\Phi(H)$ нелинейно зависят от магнитного поля, тогда как при температурах близких к T_N они практически линейны.

Нелинейные зависимости от магнитного поля намагниченности и вращения плоскости поляризации света свидетельствуют о том, что, кроме линейного по магнитному полю H вклада, в этих зависимостях существуют вклады с более высокими степенями по H . Рассмотрим какие вклады, кроме линейного по магнитному полю, могут существовать в полевых зависимостях намагниченности и вращения плоскости поляризации света в ферроборате тербия. Для этого разложим по H намагниченность $M(H)$ и антисимметричную часть диэлектрической проницаемости $\epsilon_{ij}^a(H)$:

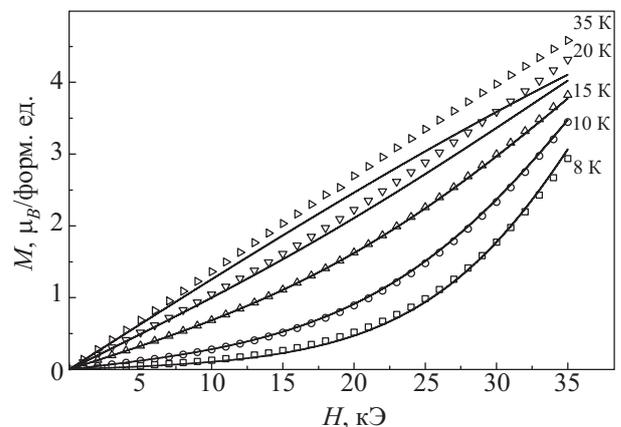


Рис. 2. Полевые зависимости намагниченности $M(H)$ в ферроборате $TbFe_3(BO_3)_4$: символы — эксперимент, сплошные линии — расчетные полевые зависимости намагниченности подсистемы тербия.

$$M = \chi_{ij}H_j + \chi_{ijk}H_jH_k + \chi_{ijkl}H_jH_kH_l + \dots, \quad (2)$$

$$\varepsilon_{ij}^a = \tau_{ij\alpha}H_\alpha + \tau_{ij\alpha\beta}H_\alpha H_\beta + \tau_{ij\alpha\beta\gamma}H_\alpha H_\beta H_\gamma + \dots. \quad (3)$$

Здесь симметричный по всем индексам аксиальный c -тензор третьего ранга χ_{ijk} и антисимметричный по первой и симметричный по второй паре индексов полярный c -тензор четвертого ранга $\tau_{ij\alpha\beta}$ описывают квадратичные по магнитному полю намагниченность и вращение плоскости поляризации света соответственно. Оба этих вклада разрешены в одних и тех же точечных магнитных группах [6]. Линейные и кубические по магнитному полю вклады в намагниченность и вращение плоскости поляризации света разрешены для всех точечных магнитных групп.

Таким образом, необходимо выяснить принадлежит ли ферроборат тербия к точечной магнитной группе, в которой разрешены квадратичный по магнитному полю вклад в намагниченность и квадратичный по магнитному полю вклад во вращение плоскости поляризации света. Из точечной кристаллической группы 32 после магнитного упорядочения ферроборат тербия может перейти в точечные магнитные группы 32, 32', 3 [7]. В отличие от точечной магнитной группы 32 в точечных магнитных группах 32' и 3 разрешены слабоферромагнитный момент и квадратичная по магнитному полю намагниченность. Учитывая это, попытаемся понять в какую конкретно магнитную группу может перейти ферроборат тербия после антиферромагнитного упорядочения. Известно, что магнитная ячейка удвоена относительно кристаллической ячейки в ферроборатах $GdFe_3(BO_3)_4$ и $NdFe_3(BO_3)_4$ [1,2]. В ферроборате $TbFe_3(BO_3)_4$ такое удвоение, по-видимому, существует также, поскольку в магнитном поле, приложенном вдоль оси c , наблюдается спин-ориентационный фазовый переход первого рода. Такой фазовый переход может наблюдаться только в случае, когда магнитная ячейка удвоена по отношению к кристаллографической. Это следует из того, что если магнитная и кристаллографическая ячейки совпадают, то в ячейке будет 9 ионов Fe^{3+} , а в рамках такой ячейки не может возникнуть антиферромагнитная структура, для которой наблюдался бы спин-ориентационный фазовый переход первого рода в магнитном поле. Поскольку такой фазовый переход экспериментально наблюдается, то магнитная ячейка удвоена по отношению к кристаллографической в кристалле $TbFe_3(BO_3)_4$. С точки зрения симметрии это означает, что магнитная симметрия кристалла содержит такой элемент симметрии как антитрансляция, которая запрещает существование слабоферромагнитного момента. Среди возможных магнитных групп ферробората тербия только в точечной магнитной группе 32 запрещен слабоферромагнитный момент. Таким образом, нелинейные по магнитному полю вклады в намагниченность и вращение

плоскости поляризации света в кристалле $TbFe_3(BO_3)_4$ связаны с кубическими вкладами по магнитному полю, поскольку квадратичные вклады по магнитному полю запрещены в магнитной группе 32.

Вклад во вращение плоскости поляризации света в ферроборате тербия может давать как подсистема ионов тербия, так и подсистема ионов железа. Для того чтобы определить обе магнитные подсистемы дают вклад во вращение плоскости поляризации света или только одна из них, построим полевую зависимость Φ/M . В качестве примера такие зависимости приведены на рис. 3 для температур 8, 15 и 35 К. Видно, что величина Φ/M почти не зависит от магнитного поля. Таким образом, отношение Φ/M при определенной температуре является константой. Используя полевые зависимости вращения плоскости поляризации света и полевые зависимости намагниченности, была определена константа Φ/M при различных температурах, в результате чего удалось построить зависимость величины Φ/M , нормированной на толщину образца $t = 110$ мкм, от температуры, которая представлена на рис. 4. Видно, что в температурном интервале от 8 до 35 К величина Φ/M меняется слабо, ее среднее значение в этом интервале около 300 град·форм. ед./ μ_B -см. Тот факт, что отношение Φ/M является константой, свидетельствует о том, что вклад во вращение плоскости поляризации света определяется, по-видимому, только одной из магнитных подсистем ферробората тербия — подсистемой ионов железа или подсистемой ионов тербия.

Чтобы определить какая из подсистем вносит определяющий вклад во вращение плоскости поляризации света, оценим величины вкладов в намагниченность каждой из подсистем.

Как уже упоминалось выше, подсистема ионов железа антиферромагнитно упорядочивается при температуре ниже 40 К, а магнитные моменты ионов Fe^{3+} силами магнитной анизотропии, создаваемой подсистемой ионов тербия, направлены вдоль тригональной

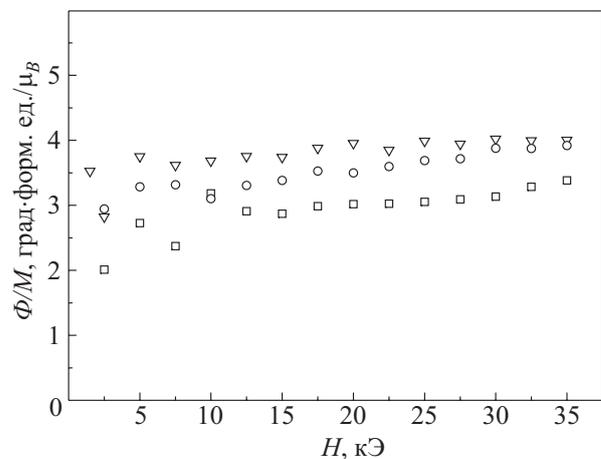


Рис. 3. Полевые зависимости величины Φ/M для T , К: 8 (□), 15(○), 35 (▽).

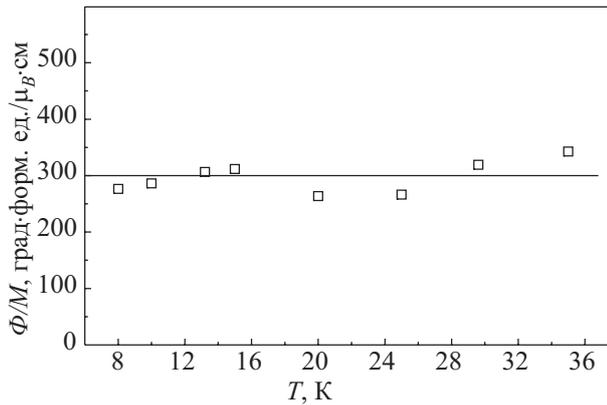


Рис. 4. Температурная зависимость величины Φ/M , нормированной на толщину образца.

оси *c*. Если ограничиться двухподрешеточной моделью, то намагниченность подсистемы ионов железа на одну формульную единицу в магнитном поле $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$ можно оценить с помощью хорошо известного выражения [8]:

$$M_{\text{Fe}}(H) = 3g_{\text{Fe}}\mu_B S(B_S(y^+) + B_S(y^-)), \quad (4)$$

$$y^\pm = \frac{|H^\pm_{\text{Fe-Fe}} + H| Sg_{\text{Fe}}\mu_B}{kT}. \quad (5)$$

Здесь в (4) и (5) $g_{\text{Fe}} \approx 2$ — *g*-фактор иона Fe³⁺, μ_B — магнетон Бора, $S = 5/2$ — спин иона Fe³⁺, $H_{\text{Fe-Fe}} = 705$ кЭ — обменное поле Fe–Fe антиферромагнитного взаимодействия [5]. Используя выражения (4) и (5), нетрудно рассчитать для температур $T = 8, 10, 15, 20$ и 35 К, а также магнитного поля $H = 35$ кЭ значения намагниченности подсистемы ионов железа в расчете на одну формульную единицу, которые представлены в табл. 1.

Таблица 1. Значения намагниченности подсистемы ионов железа в расчете на одну формульную единицу при различных температурах

<i>T</i> , К	M_{Fe} , $\mu_B/\text{форм. ед.}$	$H_{\text{Fe-Tb}}$, кЭ	M_{Tb} , $\mu_B/\text{форм. ед.}$
8	$1,347 \cdot 10^{-5}$	39,3	3,067
10	$1,127 \cdot 10^{-4}$	38,4	3,476
15	$1,737 \cdot 10^{-3}$	38	3,774
20	$6,361 \cdot 10^{-3}$	36,1	4,024
35	$3,1 \cdot 10^{-2}$	21	4,206

Чтобы сравнить с намагниченностью подсистемы ионов железа, рассчитаем намагниченность подсистемы ионов тербия при тех же температурах 8, 10, 15, 20, 35 К и магнитном поле $H = 35$ кЭ. Выше уже указывалось, что в отличие от подсистемы ионов железа обменное взаимодействие Tb–Tb мало, а подсистема ио-

нов тербия находится под влиянием обменного поля $\mathbf{H}_{\text{Tb-Fe}}$. Для противоположно направленных магнитных моментов ионов Tb поля $\mathbf{H}_{\text{Tb-Fe}}$ направлены также противоположно. Из оптических исследований [9–11] следует, что основное состояние иона Tb это квазидублет. Этот квазидублет расщеплен обменным полем $\mathbf{H}_{\text{Tb-Fe}}$. Максимальная величина этого расщепления Δ при низких температурах составляет около 32 см^{-1} , а при повышении температуры уменьшается и при T_N становится равным нулю. Минимальная разность энергий между основным и возбужденными состояниями составляет около 190 см^{-1} в ионе Tb [9]. Если основное состояние иона Tb квазидублет, хорошо отделенный от возбужденных состояний, то намагниченность подсистемы ионов тербия в магнитном поле \mathbf{H} будет определяться следующим выражением [2]:

$$M_{\text{Tb}}(H) = \frac{g_{\text{eff}}\mu_B}{2} \cdot \left[\text{th} \left(\frac{g_{\text{eff}}\mu_B(H + H_{\text{Tb-Fe}})}{2kT} \right) + \text{th} \left(\frac{g_{\text{eff}}\mu_B(H - H_{\text{Tb-Fe}})}{2kT} \right) \right], \quad (6)$$

где $g_{\text{eff}} = 17,8$ — эффективный *g*-фактор основного квазидублета иона Tb³⁺ [10], μ_B — магнетон Бора. Для того чтобы оценить величину намагниченности подсистемы ионов тербия для температур 8, 10, 15, 20 и 35 К, необходимо сначала определить величины $H_{\text{Tb-Fe}}$ для этих температур. Известно, что обменное поле $H_{\text{Tb-Fe}} = \Delta/g_{\text{eff}}\mu_B$. Поэтому, используя температурную зависимость расщепления квазидублета основного состояния иона тербия Δ , нетрудно рассчитать $H_{\text{Tb-Fe}}$, значения которых приведены в табл. 1. Теперь, зная $H_{\text{Tb-Fe}}$, можно вычислить намагниченность подсистемы ионов тербия в расчете на одну формульную единицу в магнитном поле $H = 35$ кЭ, используя выражение (6). Значения этих намагниченностей также представлены в табл. 1. Из полученных оценок видно, что намагниченность подсистемы ионов тербия при любой температуре превышает, по крайней мере на два порядка, намагниченность подсистемы ионов железа. Поэтому можно сделать вывод, что вклад в общую намагниченность ферробората тербия подсистемы ионов железа очень незначителен, а основной вклад в намагниченность вносит подсистема ионов тербия. Чтобы убедиться в этом, были сопоставлены экспериментальные полевые зависимости намагниченности с расчетными полевыми зависимостями намагниченности подсистемы ионов тербия $M(H)_{\text{Tb}}$ без учета намагниченности подсистемы ионов железа. Как видно на рис. 2, при температурах 8, 10 и 15 К экспериментальные и расчетные зависимости хорошо совпадают. При температурах 20 и 35 К расчетные зависимости уже отклоняются от экспериментальных и проходят несколько ниже. Можно предположить, что при высоких температурах нельзя ограничиваться только основным

состоянием иона тербия — квазидублетом, и для расчета намагниченности необходимо учитывать возбужденные состояния иона тербия.

Исходя из вышеизложенного, показано, что основной вклад в величину намагниченности ферробората $TbFe_3(BO_3)_4$ в исследованном интервале температур и магнитных полей связан с магнитной подсистемой ионов тербия. Поскольку отношение Φ/M постоянная величина, то основной вклад в индуцированное магнитным полем вращение плоскости поляризации света также связан с магнитной подсистемой ионов тербия. Поэтому константа 300 град-форм. ед./ μB -см, полученная из температурной зависимости Φ/M , соответствует магнитооптической константе B из выражения (1).

1. А.К. Звездин, С.С. Кротов, А.М. Кадомцева, Г.П. Воробьев, Ю.Ф. Попов, А.П. Пятаков, Л.Н. Безматерных, Е.Н. Попова, *Письма в ЖЭТФ* **81**, 335 (2005).
2. А.К. Звездин, Г.П. Воробьев, А.М. Кадомцева, Ю.Ф. Попов, А.П. Пятаков, Л.Н. Безматерных, А.В. Кувардин, Е.Н. Попова, *Письма в ЖЭТФ* **83**, 600 (2006).
3. M. Janoschek, P. Fischer, J. Schefer, B. Roessli, V. Pomjakushin, M. Meven, V. Petricek, G. Petrakovskii, and L. Bezmaternikh, *Phys. Rev.* **B81**, 094429 (2010).
4. S.A. Klimin, D. Fausti, A. Meetsma, L.N. Bezmaternykh, P.H.M. van Loosdrecht, and T.T.M. Palstra, *Acta Crystallogr.* **B61**, 481 (2005).
5. C. Ritter, A. Bulaev, A. Vorotynov, G. Petrakovskii, D. Velikanov, V. Temerov, and I. Gudim, *J. Phys.: Condens. Matter* **19**, 196227 (2007).
6. Н.Ф. Харченко, А.В. Бибик, В.В. Еременко, *Письма в ЖЭТФ* **42**, 447 (1985).
7. Б.А. Тавгер, В.М. Зайцев, *ЖЭТФ* **30**, 564 (1956).
8. С.В. Вонсовский, *Магнетизм*, Наука, Москва (1971).
9. М.Н. Попова, Е.П. Чукалина, Т.Н. Станиславчук, Л.Н. Безматерных, *Изв. РАН, Сер. физ.* **70**, 1652 (2006).
10. M.N. Popova, *J. Magn. Magn. Mater.* **321**, 716 (2009).
11. E.A. Popova, D.V. Volkov, A.N. Vasiliev, A.A. Demidov, N.P. Kolmakova, I.A. Gudim, L.N. Bezmaternykh, N. Tristan, Yu. Skourski, B. Buechner, C. Hess, and R. Klingeler, *Phys. Rev.* **B75**, 224413 (2007).

Magnetic field-induced rotation of polarization plane of light in antiferromagnetic iron borate $TbFe_3(BO_3)_4$

V.A. Bedarev, M.I. Pashchenko, A.N. Bludov,
S.L. Gnatchenko, L.N. Bezmaternykh,
and V.L. Temerov

Magnetic field dependences of rotation of polarization plane of light and magnetization were studied in a single crystal of iron borate $TbFe_3(BO_3)_4$. It is shown that the main contribution to the magnetic field-induced rotation of polarization plane of light is related with the terbium ions subsystem.

PACS: 78.20.Ls Magneto-optical effects;
75.50.Ee Antiferromagnetics.

Keywords: antiferromagnet, magnetization, rotation of polarization plane of light.