

Магнитоэлектрические состояния $TbMnO_3$ в магнитных полях различных направлений

И.Е. Чупис

*Физико-технический институт низких температур им. Б.И. Веркина НАН Украины
пр. Ленина, 47, г. Харьков, 61103, Украина
E-mail: chupis@ilt.kharkov.ua*

Статья поступила в редакцию 29 ноября 2007 г.

Проведен феноменологический анализ магнитоэлектрических диаграмм сегнетоантиферромагнетика $TbMnO_3$ в области температур, где редкоземельная подсистема парамагнитная. Показано, что объяснение поведения электрической поляризации в магнитных полях разных направлений невозможно только в рамках A -конфигурации спинов марганца, и следует учитывать более слабые G - и C -состояния. Магнитоэлектрические диаграммы свидетельствуют о более сложной структуре спинов типа «косой крест». Доказано, что так называемый «поляризационный флоп» в магнитном поле в $TbMnO_3$ не является переходом, подобным спин-флопу в магнетиках.

Проведено феноменологічний аналіз магнітоелектричних діаграм сегнетоантиферромагнетика $TbMnO_3$ в області температур, де рідкоземельна підсистема є парамагнітною. Показано, що пояснення поведінки електричної поляризації у магнітних полях різних напрямків неможливо тільки в рамках A -конфігурації спінів марганцю, і треба враховувати слабкі G - і C -стани. Магнітоелектричні діаграми свідчать о більш складній структурі спінів типу «косий хрест». Доведено, що так званий «поляризаційний флоп» у магнітному полі у $TbMnO_3$ не є переходом, який схожий з спин-флопом у магнетиках.

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

Ключевые слова: магнитоэлектрические диаграммы, сегнетоантиферромагнетик $TbMnO_3$, конфигурации спинов Mn.

В орторомбическом антиферромагнетике $TbMnO_3$ недавно открыт колоссальный магнитоэлектрический (МЭ) эффект: изменение диэлектрической постоянной на 10% и переориентация электрической поляризации в магнитном поле порядка нескольких тесла [1]. Манганит тербия имеет при температурах ниже $T_N \approx 42$ К синусоидально модулированную вдоль оси Y антиферромагнитную (АФ) структуру A_y , с вектором модуляции $k_y \approx 0,295b^*$ [2]. Ниже температуры $T_1 \approx 28$ К появляется еще одна компонента вектора антиферромагнетизма вдоль оси Z и электрическая поляризация вдоль той же оси [1,3]. В магнитном поле порядка нескольких тесла, направленном вдоль оси Y , электрическая поляризация P_z исчезает и появляется статическая поляризация P_x вдоль оси X («magnetic-field-induced electric polarization flop» [1]). Впоследствии было экспериментально изучено поведение в этом

соединении всех компонент электрической поляризации в магнитных полях различных направлений (вдоль осей a, b, c , т.е. X, Y, Z) [4]. Так, не было обнаружено сколько-нибудь заметной спонтанной или индуцированной магнитными полями электрической поляризации вдоль оси Y (рис. 1, $z-e$). Электрическая поляризация вдоль оси X возникала лишь в магнитном поле вдоль оси Y , большем нескольких тесла (рис. 1, $a-f$). Магнитные поля такой величины вдоль осей Y и Z «отключали» (уничтожали) электрическую поляризацию вдоль оси Z (рис. 1, z,u). Если последние из упомянутых эффектов (исчезновение электрической поляризации P_z в достаточно сильных магнитных полях H_y, H_z) можно объяснить спин-флоп переходом [5], то остальные МЭ диаграммы на рис. 1 нуждаются в объяснении. Их анализ является целью настоящего сообщения.

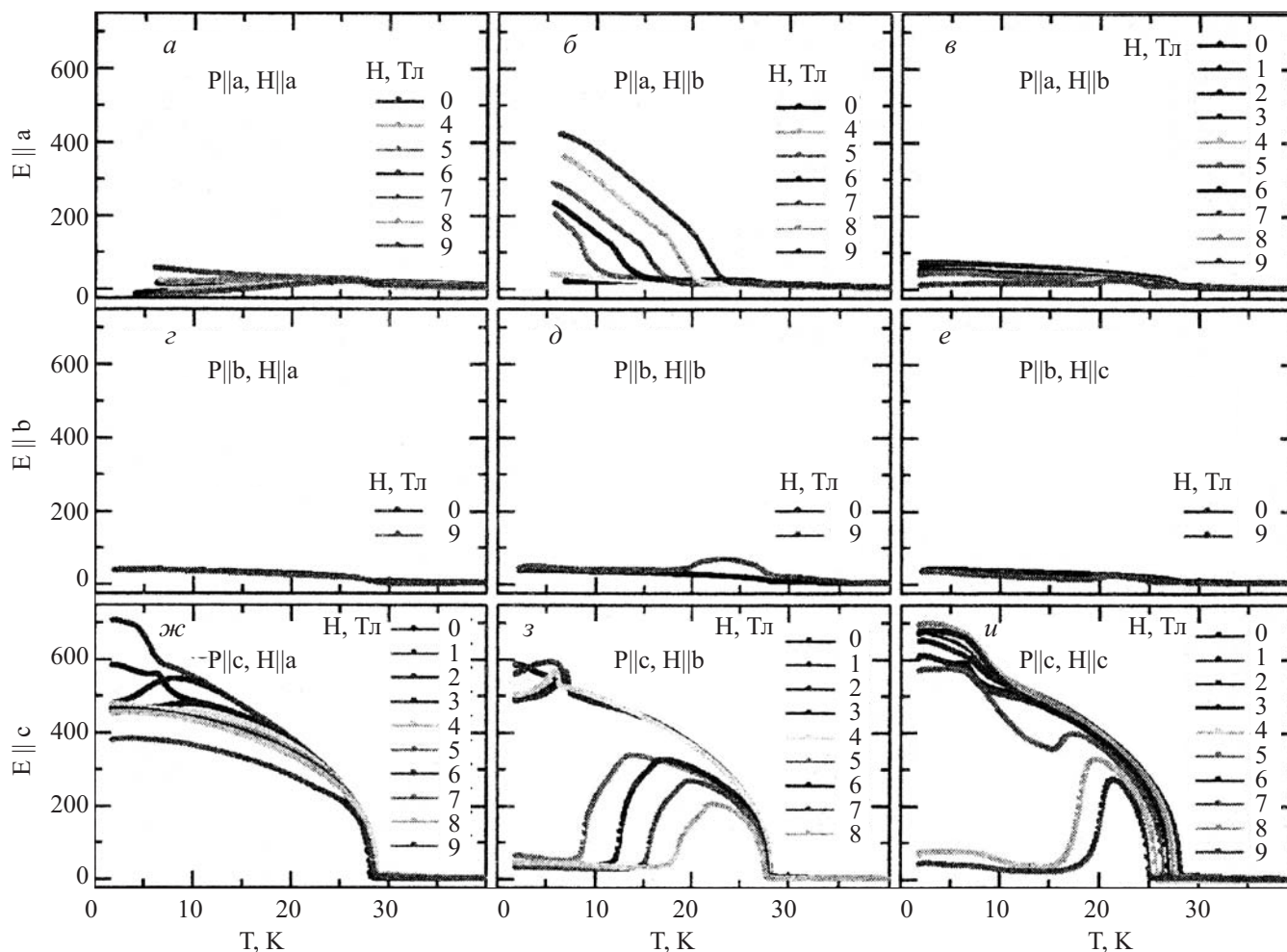


Рис. 1. Температурные зависимости электрической поляризации в различных магнитных полях (до 9 Тл) вдоль осей *a*, *b* и *c* в TbMnO₃ [4].

Проведен феноменологический анализ поведения вектора электрической поляризации манганита тербия в магнитных полях различных направлений в области температур, где редкоземельная подсистема парамагнитна. Показано, что для объяснения экспериментальных данных необходимо кроме основной *A*-конфигурации учитывать присутствие более слабых *G*- и *C*-конфигураций, и наблюдение электрической поляризации вдоль оси *X* свидетельствует о более сложной, чем *A*, магнитной структуре типа «косой крест». Показано, что наблюдаемый «magnetic-field-induced electric polarization flop» в TbMnO₃ не является ориентационным переходом, как в магнетиках.

Так как МЭ эффекты (рис. 1) появляются в области температур, где тербиева подсистема парамагнитна (температура упорядочения спинов тербия $T' \sim 7$ К), то в дальнейшем будем считать ответственными за магнитные свойства ионы марганца, которые подмагничивают подсистему тербия. В элементарной ячейке орторомбического TbMnO₃ (пространственная груп-

па *Pbnm*) содержится четыре иона Mn³⁺ в следующих позициях [2]:

$$\text{Mn}^{3+}: 1(1/2, 0, 0), 2(1/2, 0, 1/2), 3(0, 1/2, 1/2), 4(0, 1/2, 0).$$

Магнитные состояния обозначаются символами *A*, *G*, *C* и *M*, где

$$\begin{aligned} \mathbf{A} &= \mathbf{M}_1 - \mathbf{M}_2 - \mathbf{M}_3 + \mathbf{M}_4, \\ \mathbf{G} &= \mathbf{M}_1 - \mathbf{M}_2 + \mathbf{M}_3 - \mathbf{M}_4, \\ \mathbf{C} &= \mathbf{M}_1 + \mathbf{M}_2 - \mathbf{M}_3 - \mathbf{M}_4, \end{aligned} \quad (1)$$

$$\mathbf{M} = \sum_1^4 \mathbf{M}_n.$$

Преобразования магнитных векторов (1), электрической поляризации *P* и тензора деформации u_{ik} под действием элементов симметрии centrosymmetric группы *Pbnm* представлены в табл. 1, где строчные символы магнитных векторов относятся к тербиевой подсистеме.

Таблица 1. Неприводимые представления группы P_{bmm}

Γ_i	I	$2I_x$	$2I_y$	Компоненты
Γ_1	+1	+1	+1	$A_x, G_y, C_z, c_z, u_{xx}, u_{yy}, u_{zz}$
Γ_2	+1	+1	-1	$M_x, C_y, G_z, m_x, c_y, u_{yz}$
Γ_3	+1	-1	+1	$A_z, C_x, M_y, m_y, c_x, u_{xz}$
Γ_4	+1	-1	-1	$A_y, G_x, M_z, m_z, u_{xy}$
Γ_5	-1	+1	+1	a_x, g_y
Γ_6	-1	-1	-1	a_y, g_x, P_z
Γ_7	-1	-1	+1	a_z, P_y
Γ_8	-1	+1	-1	g_z, P_x

Нейтроннографические исследования свидетельствуют об A -типе модулированной магнитной структуры в манганите тербия [2]. Для существования сегнетоэлектрического (СЭ) упорядочения необходимо наличие в термодинамическом потенциале инвариантов с первой степенью электрической поляризации. Поскольку группа симметрии кристалла центросимметрична, а подсистема тербия неупорядочена, то, как следует из таблицы неприводимых представлений, при модуляции вектора \mathbf{A} вдоль оси Y возможны такие инварианты с первой степенью поляризации, квадратичные по компонентам \mathbf{A} :

$$\begin{aligned}
 F_m = V^{-1} \int \left\{ \frac{1}{2} (a_1 \mathbf{A}^2 + a_2 \mathbf{G}^2 + a_3 \mathbf{C}^2) + \frac{1}{4} u (\mathbf{A}^4 + \mathbf{G}^4 + \mathbf{C}^4) + \frac{1}{2} \gamma [(\partial_y \mathbf{A})^2 + (\partial_y \mathbf{G})^2 + (\partial_y \mathbf{C})^2] + \right. \\
 + \frac{1}{2} \alpha [(\partial_y^2 \mathbf{A})^2 + (\partial_y^2 \mathbf{G})^2 + (\partial_y^2 \mathbf{C})^2] + \frac{1}{2} (w_1 A_z^2 + w_2 G_x^2 + w_3 C_y^2) + d_1 A_y M_z + d_2 A_z M_y + d_3 G_z M_x + \\
 + v_1 A_z C_x + v_2 G_y C_z + v_3 A_x G_y - \mathbf{M}\mathbf{H} + \frac{1}{2} (B_1 M_x^2 + B_2 M_y^2 + B_3 M_z^2) + \frac{1}{2} \lambda_1 (\mathbf{A}\mathbf{M})^2 + \frac{1}{2} \lambda_2 (\mathbf{G}\mathbf{M})^2 + \\
 \left. + \frac{1}{2} \lambda_3 (\mathbf{C}\mathbf{M})^2 + \frac{1}{2} (\lambda'_1 \mathbf{A}^2 + \lambda'_2 \mathbf{G}^2 + \lambda'_3 \mathbf{C}^2) \mathbf{M}^2 \right\} dV. \quad (3)
 \end{aligned}$$

В функционал (3) включены лишь основные необходимые для дальнейшего анализа члены, относящиеся лишь к марганцевой подсистеме, так как рассмотрены температуры, при которых тербиевая подсистема парамагнитна и подмагничивается только спинами марганца. Так, например, возможна модуляция g_x за счет инварианта $g_x \partial G_z / \partial y$ и т.п. Обменно-модулированная АФ структура в манганите тербия возникает при $T < T_N$ с вектором модуляции $k_y = k$, $k^2 = -\gamma / 2\alpha$, где $\gamma < 0$, $\alpha > 0$. Так как векторы АФ \mathbf{A} и \mathbf{G} направлены вдоль оси Y , то постоянные анизотропии w_1, w_2 положительны. Поскольку модулированные конфигурации $A_y, G_y, C_{x(z)}$ возникают одновременно [6], то мож-

$$P_x \frac{\partial A_y}{\partial y} A_x, P_x \frac{\partial A_x}{\partial y} A_y, P_y \frac{\partial A^2}{\partial y}, P_z \frac{\partial A_y}{\partial y} A_z, P_z \frac{\partial A_z}{\partial y} A_y. \quad (2)$$

Вид инвариантов говорит о том, что сегнетоэлектрическое состояние существует только в модулированной магнитной фазе. Механизмы появления спонтанной поляризации P_z ниже T_1 при переходе в неколлинеарное АФ модулированное состояние [3] и ее поведения в магнитных полях H_y и H_z [5] обусловлены неоднородной МЭ энергией (последние два слагаемых в (2)). Однако в рамках A -состояния (ферромагнитное упорядочение спинов в плоскости (X, Y) и АФ между плоскостями) нельзя понять появление $P_x \neq 0$ после спин-флопа в поле H_y , когда $A_y = 0$. (рис. 1, б). Следовательно, магнитная структура TbMnO₃ более сложная, и следует учитывать возможную примесь G - и C -конфигураций. Нейтроннография последних лет свидетельствует об одновременном появлении при $T < T_N$ кроме значительных A_y -пиков более слабых G_y - [1,6] и еще более слабых C_x - либо C_z -пиков [6] с тем же вектором модуляции $k_y = k$. Проведем последовательное феноменологическое рассмотрение МЭ диаграмм на рис. 1.

Магнитную часть функционала Гинзбурга–Ландау с учетом разных спиновых конфигураций запишем в виде

но положить $(a_i - a_c) = \xi_i (T - T_N)$, $\xi_i > 0$, $i = 1, 2, 3$, $a_c = \alpha k^4$.

Полный функционал энергии кроме магнитного (3) содержит электродипольную энергию $F_e = \chi P^2 / 2$ и энергию МЭ взаимодействия, в которой мы будем ограничиваться лишь линейными по электрической поляризации членами. Конкретный вид МЭ энергии будет приводиться ниже при анализе поведения различных компонент \mathbf{P} в магнитных полях разной ориентации.

Сразу отметим, что поскольку электрическая поляризация P_y вдоль оси Y может возникать лишь за счет МЭ инвариантов вида $P_y \partial_y S_i R_k$, где S_i, R_k — компоненты АФ векторов, преобразующихся по одному не-

приводимому представлению (см. таблицу), то P_y модулирована и ее среднее значение равно нулю. Этот вывод находится в согласии с экспериментом (рис. 1, *э-е*).

Электрическая поляризация P_x вдоль оси X

В отсутствие магнитного поля электрическая поляризация P_x вдоль оси X согласно диаграммам рис. 1 во всем интервале температур $T' < T < T_N$ близка к нулю. Нейтронография выявила АФ компоненты A_y, G_y, A_z ($T < T_1$), C_x (или C_z). Малую компоненту A_x индуцирует G_y вследствие наличия инварианта $v_3 A_x G_y$ в (3). Согласно данным табл. 1, МЭ инварианты с первой степенью P_x в этом случае следующие:

$$P_x A_y \frac{\partial G_y}{\partial y}, P_x G_y \frac{\partial A_y}{\partial y}, P_x C_z \frac{\partial A_y}{\partial y}, P_x A_y \frac{\partial C_z}{\partial y},$$

$$P_x A_x \frac{\partial A_y}{\partial y}, P_x A_y \frac{\partial A_x}{\partial y}. \quad (4)$$

Наибольшую величину имеют первые два инварианта. В модулированном состоянии

$$A_y = A_1 \cos ky, G_y = G_1 \sin ky, \quad (5)$$

эти МЭ инварианты индуцируют результирующую поляризацию $P_x \sim k A_1 G_1$, которая из-за малости G значительно меньше спонтанной поляризации вдоль оси Z , что соответствует эксперименту. Амплитуды модуляций A_1, G_1 и значение k находим подстановкой выражений (5) в (3) и последующей минимизацией функционала (3) по амплитудам и волновому вектору модуляции [7]. Рассмотрим разные направления магнитного поля.

1. $\mathbf{H} \parallel X$. Так как основной вклад в энергию дает A -конфигурация, приближенное выражение для намагниченности следующее:

$$M_x \cong \frac{H_x}{B_1 + \lambda'_1 A^2}. \quad (6)$$

В дальнейшем мы предполагаем величину магнитного поля не близкой к полю перехода в парамагнитное состояние, которое больше, чем 14 Тл [4], т.е. считаем $B_1 \gg \lambda'_1 A^2$, $M_x \approx H_x B_1^{-1} = h_x$.

В коллинеарной фазе ($T_1 < T < T_N$) значения амплитуд таковы [5] (в приводимых далее формулах для амплитуд не учитываются слабоферромагнитные слагаемые в (3) с коэффициентами d_i):

$$A_1^2 = \frac{4}{3u} (L_0 - \lambda'_1 h_x^2), L_0 = a_c - a_1 > 0, \quad (7)$$

$$G_1^2 = \frac{4}{3u} (G_0 - \lambda'_2 h_x^2), G_0 = a_c - a_2 > 0.$$

В неколлинеарной фазе ($T' < T < T_l$), где кроме A_y отлична от нуля компонента $A_z = A_2 \sin ky$, амплитуда A_1 имеет другую величину [5]:

$$A_1^2 = (2u)^{-1} (L_1 - 2\lambda'_1 h_x^2), L_1 = -2(a_1 - a_c) + w_1 > 0. \quad (8)$$

Величина $P_x \sim A_1 G_1$ с увеличением магнитного поля убывает при $\lambda'_1 > 0, \lambda'_2 > 0$, возрастает при отрицательных λ'_1, λ'_2 и может вести себя немонотонно, если знаки λ'_1, λ'_2 разные. Дальнейший анализ (см. ниже) поведения электрической поляризации P_z в поле H_x показывает, что $\lambda'_1 > 0$. На рис. 1, *а* заметно слабое возрастание P_x в магнитном поле, меньшем 9 Тл. Это возможно при разных знаках λ'_1, λ'_2 , следовательно, $\lambda'_2 < 0$. Возрастание величины P_x в неколлинеарной фазе будет иметь место в поле

$$h_x < \bar{h} = [(2\lambda'_1 G_0 + \lambda'_2 L_1) / 4\lambda'_1 \lambda'_2]^{1/2}$$

при условии $(2\lambda'_1 G_0 + \lambda'_2 L_1) < 0$. Поскольку $G_0 \ll L_1$, то при $\lambda'_1 \sim |\lambda'_2|$ значение $\bar{h} \approx (L_1 / 4\lambda'_1)^{1/2}$ находится вблизи поля перехода в парамагнитную фазу $h' = (L_1 / 2\lambda'_1)^{1/2}$. Наличие компоненты $A_x \neq 0$ означает возможность спин-флопа в поле H_x .

При спин-флоп переходе в поле H_x поляризация меняется вследствие наличия в (4) линейной по A_x МЭ энергии, но по-прежнему ее величина $P_x \sim A_1 G_1$. Измерения в более сильных полях ($H > 10$ Тл, рис. 5, *д* [4]) показывают возрастание P_x , которое, по-видимому, становится заметным вследствие малости $G_0 \ll L_1$ в полях $|\lambda'_2| h_x^2 \geq G_0$. Именно присутствие слабых искажений A -структуры обуславливает проявление P_x в эксперименте. Наблюдение поляризации означает, что после спин-флопа модуляция магнитной структуры сохраняется.

2. $\mathbf{H} \parallel Y$. В неколлинеарной фазе, предшествующей спин-флопу,

$$A_1^2 = (2u)^{-1} [L_1 - (3\lambda_1 + 2\lambda'_1) h_y^2],$$

$$G_1^2 = \frac{4}{3u} [G_0 - (\lambda_2 + \lambda'_2) h_y^2], \quad (9)$$

постоянная λ_1 положительна, так как параллельная восприимчивость при переходе в АФ состояние уменьшается (рис. 1, *б* [1]). Поэтому величина A_1 уменьшается с увеличением магнитного поля. При любом знаке величины $(\lambda_2 + \lambda'_2)$ во всем рассматриваемом температурном интервале изменение P_x в полях $H_y < 5$ Тл незначительно (рис. 1, *б*). В поле порядка нескольких тесла в неколлинеарной фазе происходит спин-флоп. Если считать, что в результате этого перехода АФ вектора A_y и G_y переориентируются к оси Z , то к МЭ инвариантам (4) добавятся такие:

$$P_x A_z \frac{\partial G_z}{\partial y}, P_x G_z \frac{\partial A_z}{\partial y}, P_x C_x \frac{\partial G_z}{\partial y}, P_x G_z \frac{\partial C_x}{\partial y}, \quad (10)$$

где $A_z = A_2 \sin ky, G_z = G_2 \cos ky, C_x = C_1 \sin ky$,

$$A_2^2 = 4(3u)^{-1}(L_2 - \lambda'_1 h_y^2), \quad L_2 = a_c - a_1 - w_1,$$

$$G_2^2 = 4(3u)^{-1}(G_0 - \lambda'_2 h_y^2), \quad C_1^2 = 4(3u)^{-1}(C_0 - \lambda'_3 h_y^2),$$

$$C_0 = a_c - a_3 > 0. \quad (11)$$

Поскольку после спин-флопа $P_x \neq 0$, т.е. АФ структура остается модулированной, то определяющий вклад в P_x дают первые два члена в (10), т.е. $A-G$ конфигурация, хотя в сильных полях вклад от $G-C$ конфигураций тоже может быть значительным. Так как $\lambda'_2 < 0$, то после спин-флопа величина $P_x \sim A_2 G_2$ возрастает в полях $h_y^2 < L / 2\lambda'_1 \lambda'_2$ при $\lambda'_1 G_0 + \lambda'_2 L_2 = L < 0$.

Примесь других более слабых модулированных $G-C$ конфигураций (последние два слагаемых в (9)) дает вклад в $P_x \sim G_2 C_1$ и возрастает с ростом магнитного поля при $\lambda'_3 < 0$ и $0 < \lambda'_3 < -\lambda'_2 C_0 / G_0$. Эксперимент (рис. 1,б) свидетельствует о возрастании после спин-флопа первоначально очень малой величины поляризации с увеличением магнитного поля (рис. 3,д [1]).

Заметное возрастание $P_x(H_y)$, как и $P_x(H_x)$ после спин-флопа происходит вследствие присутствия слабой «примеси» G -, C -состояний, на которые магнитное поле действует сильнее, чем на A -состояние. До спин-флопа поляризация P_x отлична от нуля, хотя и мала. Магнитное поле постепенно увеличивает ее величину, которая становится заметной в полях, больших поля спин-флопа. При этом поле спин-флопа H_y как бы «отключает» электрическую поляризацию вдоль оси Z , после чего наблюдается поляризация вдоль оси X значительно меньшей величины. Этот процесс не является поворотом вектора электрической поляризации от оси Z к оси X , т.е. именуемый в литературе «magnetic-field-induced electric polarization flop» — это не ориентационный переход, как в магнетиках. Наблюдение отличной от нуля электрической поляризации означает, что модуляционная структура после спин-флопа сохраняется.

При понижении температуры величина электрической поляризации возрастает (рис. 1,б). Легко убедиться, что такая зависимость следует из формул (11), где $L_2 = \xi_1(T'_N - T)$, $T'_N = T_N - w_1 / \xi_1$, $G_0 = \xi_2(T_N - T)$, $C_0 = \xi_3(T_N - T)$. Величина P_x растет с уменьшением температуры независимо от того, $A-G$ или $G-C$ конфигурации ее порождают.

3. Н || Z. В этом случае по-прежнему главный вклад в P_x дают первые слагаемые в (4), $P_x \sim A_1 G_1$. В неколлинеарной фазе значения амплитуд следующие:

$$A_1^2 = (2u)^{-1}(L_1 + \bar{\lambda} h_z^2), \quad G_1^2 = 4(3u)^{-1}(G_0 - \lambda'_2 h_z^2),$$

$$h_z = H_z / B_3, \quad \bar{\lambda} = \lambda_1 - 2\lambda'_1. \quad (12)$$

Эксперимент свидетельствует об уменьшении P_x после спин-флопа (рис. 1,в).

После спин-флопа в поле $H > 6$ Тл магнитная структура перестраивается. Если $A_z \rightarrow A_y$ с сохранением модулированной структуры, то величина электрической поляризации по-прежнему определяется амплитудами (11). При переходе же в немодулированное состояние $P_x = 0$. Сохранение модулированной структуры после спин-флопа представляется маловероятным, поскольку, как следует из формул (12), уменьшение поляризации в магнитном поле требует выполнения условия $\bar{\lambda} G_0 - \lambda'_2 L_1 < 0$, а $\lambda'_2 < 0, L_1 \gg G_0$.

Электрическая поляризация P_z вдоль оси Z

Электрическая поляризация P_z возникает в неколлинеарном магнитном состоянии за счет двух последних МЭ инвариантов в (2) [3]:

$$P_z \sim A_y \partial_y A_z - A_z \partial_y A_y. \quad (13)$$

Величина этой спонтанной электрической поляризации значительно больше значения P_x в магнитных полях $H_x < 10$ Тл.

1. Н || X. Величина поляризации $P_z \sim A_1 A_2$, где A_1 дано формулой (8),

$$A_2^2 = (2u)^{-1}(A_0 - 2\lambda'_1 h_x^2),$$

$$A_0 = 2(a_c - a_1) - 3w_1 = 2\xi_1(T_l - T), \quad (14)$$

$$T_l = T_N - 3w_1 / 2\xi_1,$$

Из (13) и (14) следует, что спонтанная поляризация вдоль оси Z вблизи перехода из неколлинеарной в коллинеарную магнитную фазу $P_0 \sim \sqrt{T_l - T}$. Такая зависимость видна на рис. 1,ж-и. Магнитное поле понижает температуру перехода в неколлинеарную фазу, $T_l \rightarrow T_l - \lambda'_1 h_x^2 \xi_1^{-1}$, этот сдвиг незначителен. Рисунок 1,ж свидетельствует о постепенном уменьшении значения поляризации с увеличением магнитного поля. Это значит (см. (8) и (14)), что постоянная $\lambda'_1 > 0$.

2. Н || Y. В неколлинеарной фазе, предшествующей спин-флопу, имеем

$$A_1^2 = (2u)^{-1}[L_1 - (3\lambda_1 + 2\lambda'_1)h_y^2],$$

$$A_2^2 = (2u)^{-1}(A_0 + \bar{\lambda} h_y^2). \quad (15)$$

При $\bar{\lambda} < 0$ P_z с увеличением поля может только убывать, что и наблюдается на рис. 1,з в области, предшествующей резкому уменьшению электрической поляризации при спин-флопе. Значение поля спин-флопа растет с повышением температуры [1,5]. После опрокидывания подрешеток $A_y = 0$ и в рассматриваемой модели $P_z = 0$. Поскольку модуляционная структура после спин-флопа остается, то отличное от нуля значение P_z возможно, например, за счет инвариантов $P_z A_z \partial_y G_x$, $P_z A_x \partial_y G_z$.

3. $\mathbf{H} \parallel Z$. В этом поле амплитуды до спин-флоп перехода таковы:

$$\begin{aligned} A_1^2 &= (2u)^{-1}(L_1 + \bar{\lambda}h_z^2), \\ A_2^2 &= (2u)^{-1}[A_0 - (3\lambda_1 + 2\lambda'_1)h_z^2]. \end{aligned} \quad (16)$$

Магнитное поле такого направления понижает температуру перехода в неколлинеарную фазу заметнее, чем для других направлений поля (рис. 1, u). Из (16) имеем $T_l(H) = T_l - (3\lambda_1 + 2\lambda'_1)h_z^2 / 2\xi_1$.

Температурная зависимость поляризации в некоторых полях немонотонна. На рис. 1, u электрическая поляризация в поле 7 Тл при температуре ~ 17 К имеет максимум. Легко убедиться, что у величины $P_z \sim A_1 A_2$ — максимум при температуре

$$T_m = T_0 - (\lambda_1 + 2\lambda'_1)h_z^2 / 2\xi_1, \quad T_0 = T_N - w_1(2\xi_1)^{-1} > T_l. \quad (17)$$

Наблюдение максимума в неколлинеарной фазе возможно в полях

$$h_m^2 > h_m^2 = 2w_1(\lambda_1 + 2\lambda'_1)^{-1}, \quad (18)$$

если h_m меньше поля спин-флопа. Это условие выполняется в поле H_z и, видимо, не выполняется в поле H_y , где величина поля спин-флопа меньше и максимума не наблюдается.

После спин-флопа $A_z = 0$ и $P_z = 0$ в A -конфигурации. Отличное от нуля малое значение P_z теперь возможно в A - C -состоянии, например, за счет инварианта $P_z A_y \partial_y C_x$, который приводил бы к некоторому возрастанию P_z в сильных полях. Однако поляризация в таких полях практически отсутствует (рис. 4, f [4]). Это свидетельствует о том, что после спин-флопа магнитная структура является немодулированной. Манганит тербия после спин-флопа в поле H_z переходит в параэлектрическое и слабоферромагнитное состояние (A_y, M_z).

Выводы

Феноменологическое рассмотрение с учетом симметричных свойств TbMnO₃ позволило дать качественное объяснение экспериментально наблюдаемым полевой и температурной зависимостям вектора электрической поляризации в магнитных полях различных направлений. Показано, что для такого объяснения необходимо учитывать искажения A -конфигурации спинов марганца в результате «примеси» более слабых G - и C -конфигураций. Наблюдение компоненты электрической поляризации P_x свидетельствует о более сложной магнитной структуре ($A_y + A_z + G_y + C_{x(z)}$) типа «косой крест». Таким образом, МЭ измерения могут быть индикаторами реальной спиновой струк-

туры. Наблюдаемый в поле H_y , так называемый «поляризационный флоп» («отключение» P_z и появление P_x [1]) не является ориентационным переходом, подобным спин-флопу в магнетиках. Электрическая поляризация P_x изначально отлична от нуля и постепенно растет в магнитном поле, становясь заметной в полях порядка поля спин-флопа вследствие присутствия слабых G - и C -состояний. Такое поведение поляризации естественно, поскольку, в отличие от спинов, в анизотропном кристалле повороты электрической поляризации затруднены, и легче изменить ее величину. Результаты анализа МЭ диаграмм находятся в качественном согласии с экспериментом при определенных условиях, накладываемых на параметры: $\lambda'_1 > 0$, $\lambda_1 < 2\lambda'_1$, $\lambda'_2 < 0$.

1. T. Kimura, T. Goto, H. Shintal, K. Ishizaka, T. Arima, and Y. Tokura, *Nature (London)* **426**, 55 (2003).
2. S. Quezel, F. Tcheou, J. Rossat-Mignod, G. Quezel, and E. Roudaut, *Physica (Amsterdam)* **B86-88**, 916 (1977).
3. M. Kenzelmann, A.B. Harris, S. Jonas, C. Broholm, J. Schefer, S.B. Kim, C.L. Zhang, S.-W. Cheong, O.P. Vajk, and J.W. Lynn, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 087206 (2005).
4. T. Kimura, G. Lawes, T. Goto, Y. Tokura, and A.P. Ramirez, *Phys. Rev.* **B71**, 224425 (2005).
5. И.Е. Чупис, *Известия РАН, сер. физ.* **71**, 1098 (2007).
6. R. Kajimoto, H. Yoshizawa, H. Shintani, T. Kimura, and Y. Tokura, *Phys. Rev.* **B70**, 012401 (2004).
7. Ю.А. Изюмов, *Дифракция нейтронов на длиннопериодических структурах*, Энергоатомиздат, Москва (1987).

Magnetoelectric states of TbMnO₃ in magnetic fields of different directions

I.E. Chupis

A phenomenological analysis of the magnetoelectric ME diagrams of the ferroelectric-antiferromagnetic TbMnO₃ in a temperature region where the rare-earth subsystem is paramagnetic has been made. It is shown that the behavior of electric polarization in magnetic fields of different directions can not be explained within the limits of A -configuration of spins without any consideration of weaker G - and C -states. The ME diagrams suggest a more complex spin structure of an «oblique cross» type. It is proved that the so-called «magnetic-field-induced-polarization flop» in TbMnO₃ is not similar to the spin-flop transition in magnets.

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

Keywords: magnetoelectric diagrams, ferroelectric-antiferromagnetic TbMnO₃, configurations of spins Mn.