

Общероссийский математический портал

А. М. Кадомцева, Ю. Ф. Попов, Г. П. Воробьев, А. А. Мухин, В. Ю. Иванов, А. М. Кузьменко, Л. Н. Безматерных, Влияние синглетного основного состояния иона \Pr^{3+} на магнитные и магнитоэлектрические свойства мультиферроика $\Pr Fe_3(BO_3)_4$, Писъма в ЖЭТФ, 2008, том 87, выпуск 1, 45–50

Использование Общероссийского математического портала Math-Net.Ru подразумевает, что вы прочитали и согласны с пользовательским соглашением http://www.mathnet.ru/rus/agreement

Параметры загрузки: IP: 84.237.90.20 25 ноября 2022 г., 15:30:51



Влияние синглетного основного состояния иона \Pr^{3+} на магнитные и магнитоэлектрические свойства мультиферроика $\Pr\mathrm{Fe}_3(\mathrm{BO}_3)_4$

А. М. Кадомцева¹⁾, Ю. Ф.Попов, Г. П. Воробьев, А. А. Мухин⁺, В. Ю. Иванов⁺, А. М. Кузьменко⁺, Л. Н. Безматерных^{*}

Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова, 119992 Москва, Россия

+Институт общей физики им. А.М. Прохорова РАН, 119991 Москва, Россия

*Институт физики Сибирского отд. РАН, 660038 Красноярск, Россия

Поступила в редакцию 9 ноября 2007 г. После переработки 19 ноября 2007 г.

Проведено комплексное экспериментальное и теоретическое исследования магнитных, магнитоэлектрических и магнитоупругих свойств и индуцированных магнитным полем фазовых переходов в монокристалле $\Pr Fe_3(BO_3)_4$, основное состояние редкоземельного иона в котором, в отличие от других раннее изученных ферроборатов, является синглетным. Установлено, что ниже $T_N = 32$ К магнитная структура в отсутствии магнитного поля является одноосной (1||c) и при приложении большого магнитного поля $\mathbf{H} || \mathbf{c} (H_{cr} \sim 43$ к \exists при температуре 4.2 К) возникает переориентация спинов Fe^{3+} к базисной плоскости, сопровождаемая аномалиями намагниченности, магнитострикции и электрической поляризации. По значениям пороговых полей, определенных в температурном интервале 2–32 К, построена фазовая H–Tдиаграмма. Определен вклад основного состояния иона \Pr^{3+} в актуальные параметры и проанализировано влияние иона празеодима на магнитные и магнитоэлектрические свойства ферробората празеодима.

PACS: 75.80.+q

Введение. В последние годы интерес к исследованию редкоземельных ферроборатов RFe₃(BO₃)₄, кристаллическая структура которых описывается пространственной группой $R32~(D_3^7),$ значительно вырос (см. обзор [1]). Это связано, прежде всего, с интересными магнитными свойствами редкоземельных ферроборатов, в которых имеются две взаимодействующие магнитные подсистемы: железная и редкоземельная. Помимо этого, недавно было установлено, что редкоземельные ферробораты принадлежат к новому классу мультиферроиков [2-4]. В зависимости от основного состояния редкоземельного иона [5] магнитные и магнитоэлектрические свойства этих соединений сильно различаются. Так, ферробораты неодима, гадолиния и тербия, основное состояние редкоземельного иона для которых ${}^{4}I_{9/2}$, ${}^{8}S_{7/2}$, ${}^{7}F_{6}$, соответственно, имеют ниже температуры Нееля Т_N различную магнитную структуру: для NdFe₃(BO₃)₄ - легкоплоскостную, для TbFe₃(BO₃)₄ - легкоосную, а для $\mathrm{GdFe_3(BO_3)_4}$ магнитная структура при $T < 10\,\mathrm{K}$ легкоосная, а в интервале температур 10 < T < < Т_N – легкоплоскостная. Максимальная величина электрической поляризации, индуцированной маг-

45

нитным полем, наблюдается в NdFe₃(BO₃)₄, а минимальная – в TbFe₃(BO₃)₄, где ион Tb³⁺ является сильно анизотропным (изинговским) ионом, который в силу специфики основного состояния практически не вносит вклада в электрическую поляризацию. Представляло интерес исследовать магнитные и магнитоэлектрические взаимодействия в ферроборате празеодима PrFe₃(BO₃)₄, в котором ион Pr³⁺ является некрамерсовским, по существу, синглетным (основное состояние ³H₄), тем более что свойства PrFe₃(BO₃)₄ ранее практически не исследовались.

Эксперимент. В работе проведены комплексные исследования магнитных, магнитоупругих и магнитоэлектрических свойств монокристаллов $\Pr Fe_3(BO_3)_4$ в интервале температур 2–300 К. Монокристаллы ферробората празеодима были выращены методом из раствора в расплаве, технология синтеза описана в работе [6]. Магнитные свойства измерялись в статическом магнитном поле с помощью СКВИД-магнитометра MPMS-50 и в импульсном магнитном поле до 250 кЭ индукционным методом с использованием дифференциальных катушек. Магнитострикция измерялась с помощью контактных пьезоэлектрических датчиков, а электрическая поляризация – с помощью измерения электрического

¹⁾e-mail: kadomts@plms.ru

Письма в ЖЭТФ том 87 вып. 1-2 2008

заряда на образце, индуцированного импульсным магнитным полем.

На рис.1 приведена температурная зависимость магнитной восприимчивости, измеренной в постоян-



Рис.1. Температурные зависимости магнитной восприимчивости, измеренной в поле $1 \, \kappa \Im$ вдоль осей c и b, символы – эксперимент, точечные линии – расчет, который позволил выделить редкоземельную часть восприимчивости (см. текст)

ном магнитном поле $H \sim 1 \, \mathrm{k} \Im$ в температурном интервале 2-300 К на СКВИД-магнитометре. При понижении температуры от $300\,\mathrm{K}$ вплоть до $T_N = 32\,\mathrm{K}$ восприимчивость вдоль с-оси обнаруживает плавное возрастание с последующим резким спадом χ_c от $2 \cdot 10^{-4}$ при T_N до $0.75 \cdot 10^{-4}$ см³/г при T = 2 К. Восприимчивость вдоль *b*-оси с понижением температуры от 300 до T_N вначале плавно возрастает, а ниже T_N χ_b практически не зависит от температуры. Такое поведение восприимчивости χ_c указывает на то, что ниже T_N спины ионов Fe^{3+} упорядочены вдоль с-оси, вызывая антиферромагнитную поляризацию ионов \Pr^{3+} за счет обменного взаимодействия Pr-Fe. На кривых намагничения вдоль с-оси $\Pr Fe_3(BO_3)_4$ в статическом (смотри вставку к рис.2) и импульсном магнитном поле (рис.2) наблюдались резкие скачки намагниченности, обусловленные переориентацией спинов Fe³⁺ от *с*-оси в базисную плоскость, сопровождаемые перемагничиванием моментов ионов Pr³⁺. Величина поля перехода составляет $\sim45\,$ к \Im при $4.2\,$ К и вырастает до $63\,$ к \Im с увеличением температуры до 30 К. Следует отметить, что скачки намагниченности на кривых намагничения наблюдались только при **H**||**c**, что непосредственно указывает на то, что спины ионов Fe^{3+} ориентированы в отсутствие поля вдоль с-оси и их переориентация может реализоваться только в достаточно большом пороговом поле.



Рис.2. Кривые намагничивания кристалла $\Pr Fe_3(BO_3)_4$ вдоль оси *c*, измеренные в импульсных магнитных полях при различных температурах. На вставке: кривые намагничения, измеренные при T = 2.0 К вдоль осей *c* и *b* на СКВИД – магнитометре

Процесс индуцированной полем **H**||с спиновой переориентации сопровождался возникновением скачков магнитострикционных деформаций (рис.3), причем пороговые поля, в которых наблюдались скач-



Рис.3. Полевые зависимости продольной магнитострикции вдоль оси *с* при различных температурах

ки намагниченности и магнитострикции, коррелируют между собой. Отметим, что магнитострикционные деформации сравнительно невелики и составляют $\sim 5 \cdot 10^{-6}$.

Было также обнаружено, что при индуцированном магнитным полем **H**||**c** спин-переориентационном переходе наблюдаются аномалии электрической поляризации, которые имеют характер "пичков" (рис.4). Величина и форма наблюдаемых аномалий поляризации в значительной степени, как будет показано ниже, определяется неизбежным малым отклонением поля от строгой ориентации вдоль *с*-оси к базисной

Письма в ЖЭТФ том 87 вып. 1-2 2008



Рис.4. Зависимости изменения поляризации вдоль оси a (a) , b (b) и c (c) от величины магнитного поля, приложенного вдоль оси c. Около кривых указано значение T

плоскости. Минимальная величина пичков наблюдалась вдоль *c*-оси $\Delta P_c(H_c)$, где, согласно симметрийному анализу (см. [3]), в отличие от $\Delta P_{a,b}(H_c)$ она определяется членом четвертого порядка по вектору антиферромагнетизма **l**.

Продольная электрическая поляризация в базисной плоскости квадратично зависела от магнитного поля вдоль *a*- и *b*-осей кристалла (рис.5), не обнаруживая аномалий, указывающих на наличие фазового перехода в магнитном поле, как это наблюдалось при $\mathbf{H} \| \mathbf{c}.$

Фазовая диаграмма H(T) для $\Pr Fe_3(FeO_3)_4$, полученная из измерения магнитных $M_C(H_C)$, магнито-



Рис.5. Зависимости изменения поляризации вдоль оси *a* от магнитного поля, приложенного вдоль оси *a*. На вставке: температурная зависимость коэффициента при квадратичном по полю члене: точки – эксперимент, кривая – теоретическая зависимость



Рис.6. Температурная зависимость критического магнитного поля, полученного из измерений намагниченности, магнитострикции и электрической поляризации

упругих $\lambda_c(H_c)$ и магнитоэлектрических $\Delta P_{a,c}(H_c)$ свойств, приведена на рис.6 и обнаруживает хорошее согласие величин пороговых полей для различных измерений.

Теория и обсуждение результатов. Для описания наблюдаемых магнитных свойств PrFe₃(BO₃)₄, в частности одноосной антиферромагнитной структуры, необходимо учесть анизотропию, вносимую редкоземельной подсистемой. Этот фактор является принципиальным, так как магнитная анизотропия Fe-подсистемы стабилизирует легкоплоскостное состояние, о чем свидетельствуют данные по ферроборату YFe₃(BO₃)₄ с немагнитными ионами Y³⁺ [7,8]. Согласно экспериментальным данным (рис.1), наибольшая магнитная восприимчивость ионов Pr^{3+} проявляется вдоль оси c, что

=

позволяет стабилизировать одноосное состояние при достаточной величине обменного \Pr -Fe взаимодействия. Другой важной особенностью $\Pr Fe_3(BO_3)_4$ является наблюдаемый линейный характер кривых намагничения, как в одноосном состоянии, так и в спин-флоп фазе (рис.2). Это указывает на синглетный характер основного состояния некрамерсовского иона \Pr^{3+} в кристаллическом поле, отделенного от вышележащих уровней достаточно большим энергетическим интервалом, что и приводит к отсутствию насыщения намагниченности редкоземельной подсистемы в магнитном поле до 200 кЭ в отличии от ферроборатов с изинговскими ионами Tb^{3+} [4].

В этом случае намагниченность двух Pr подрешеток можно представить в виде $m^{\pm} \approx \hat{\chi}^{\Pr}(T) \mathbf{H}_{\text{eff}}^{\pm}$, где $\hat{\chi}^{\Pr}(T)$ – тензор магнитной восприимчивости ионов \Pr^{3+} в кристаллическом поле, $\mathbf{H}_{\text{eff}}^{\pm} = \mathbf{H} + \mathbf{H}_{\text{ex}}^{\pm} - \mathfrak{s} \phi$ фективное поле и $\mathbf{H}_{\text{ex}}^{\pm} \approx \pm (\lambda_{\perp} l_x, \lambda_{\perp} l_y, \lambda_z l_z)$ – обменное поле, определяемое Pr-Fe взаимодействием, $\mathbf{l} = (l_x, l_y, l_z)$ – безразмерный вектор антиферромагнетизма Fe-подсистемы, знаки \pm соответствуют двум подрешеткам Pr. Полную свободную энергию всей системы представим в виде

$$\begin{split} \Phi(\mathbf{l},\mathbf{H}) &= -\frac{1}{2}\chi_{\perp}^{\mathrm{Fe}}\mathbf{H}^{2} + (\chi_{\perp}^{\mathrm{Fe}} - \chi_{\parallel}^{\mathrm{Fe}})(\mathbf{H}\mathbf{l})^{2} + \\ &+ \frac{1}{2}K_{\mathrm{Fe}}l_{z}^{2} - \frac{1}{4}\sum_{\alpha=\pm}\mathbf{H}_{\mathrm{eff}}^{\alpha}\widehat{\chi}^{\mathrm{Pr}}\mathbf{H}_{\mathrm{eff}}^{\alpha} = \\ &= -\frac{1}{2}\chi_{\perp}^{\mathrm{Fe}}\mathbf{H}^{2} + (\chi_{\perp}^{\mathrm{Fe}} - \chi_{\parallel}^{\mathrm{Fe}})(\mathbf{H}\mathbf{l})^{2} + \frac{1}{2}K_{\mathrm{eff}}l_{z}^{2} - \\ &- \frac{1}{2}\chi_{z}^{\mathrm{Pr}}H_{z}^{2} - \frac{1}{2}\chi_{\perp}^{\mathrm{Pr}}(H_{x}^{2} + H_{y}^{2}) + \mathrm{const}, \end{split}$$
(1)

где первые три слагаемых в верхней части определяют вклад антиферромагнитно упорядоченной Feподсистемы, а последнее – вклад редкоземельных ионов, $\chi_{\perp}^{
m Fe}$ и $\chi_{\parallel}^{
m Fe}$ – соответственно поперечная и продольная восприимчивости Fe-подсистемы ($\chi^{
m Fe}_{||}
ightarrow 0$ при $T
ightarrow 0), \, \chi_z^{
m Pr}, \, \chi_\perp^{
m Pr}$ – компоненты магнитной восприимчивости Pr-подсистемы соответственно вдоль оси с и перпендикулярно ей, $K_{\rm Fe} > 0$ – константа одноосной анизотропии Fe-подсистемы, $K_{\rm eff} = K_{\rm Fe}$ – $-\left(\chi_z^{\Pr}\lambda_z^2-\chi_\perp^{\Pr}\lambda_\perp^2
ight)$ – эффективная константа одноосной анизотропии кристалла с учетом анизотропного вклада ионов Pr³⁺ и Pr-Fe взаимодействия. Отрицательный редкоземельный вклад $-(\chi_z^{\Pr}\lambda_z^2-\chi_\perp^{\Pr}\lambda_\perp^2)$ в Keff стабилизирует одноосное состояние и определяет при $K_{\rm eff} < 0$ величину поля спин-флоп перехода при $H \| c$ -оси $H_{sf} = [-K_{ ext{eff}}/(\chi_{\perp}^{ ext{Fe}}-\chi_{\parallel}^{ ext{Fe}})]^{1/2}.$

При $H \| c$ -оси намагниченность системы, как следует из (1), линейна по полю как в одноосном состоянии $M_z = (\chi_{\parallel}^{\rm Fe} + \chi_z^{\rm Pr}) H_z$ при $H_z < H_{sf}$, так и в

спин-флоп фазе $M_z = (\chi_{\perp}^{\rm Fe} + \chi_z^{\rm Pr})H_z$ при $H_z > H_{sf}$, что хорошо соответствует эксперименту. Величина скачка намагниченности при спин-флоп переходе определяется при низких температурах простым соотношением $\Delta M_z = \chi_{\perp}^{\rm Fe}H_{sf}$, которое дает близкую к эксперименту величину скачка ~ 5.6 Гс·см³/г при использовании для $\chi_{\perp}^{\rm Fe}$ значения для YFe₃(BO₃)₄ ($\approx 0.125 \cdot 10^{-3}$ см³/г [7]).

Как уже отмечено выше, одноосное состояние в $\Pr Fe_3(BO_3)_4$ стабилизируется анизотропным вкладом ионов \Pr^{3+} и \Pr -Fe взаимодействием. При низких температурах, когда $\chi_{||}^{Fe} \approx 0$, магнитная восприимчивость \Pr -подсистемы вдоль *с*-оси определяется непосредственно измеряемой восприимчивостью при H = 0 и, согласно рис.1, равна $\chi_{z0}^{Pr} = 0.75 \cdot 10^{-4} \text{ см}^3/\text{г}$. Восприимчивость \Pr -подсистемы перпендикулярно *с*-оси можно оценить как $\chi_{\perp 0}^{Pr} = \chi_{\perp}^{exp}(4.2 \text{ K}) - \chi_{\perp}^{Fe} \approx 0.35 \cdot 10^{-4} \text{ см}^3/\text{г}$, воспользовавшись значением χ_{\perp}^{Fe} для YFe₃(BO₃)₄. В результате можно оценить величину эффективного обменного поля, создаваемого на ионах \Pr^{3+} Fe-подсистемой:

$$H_{
m ex}({
m Pr-Fe}) = \lambda_{\perp,z} =$$

= $[(K_{
m Fe} + \chi^{
m Fe}_{\perp} H^2_{sf})/(\chi^{
m Pr}_{z0} - \chi^{
m Pr}_{\perp 0})]^{1/2} \approx 115 \,
m \kappa \Im,$ (2)

где мы пренебрегли анизотропией Pr–Fe обмена, а для $K_{\rm Fe}$ использовалось значение $2.9 \cdot 10^5$ эрг/г из данных по антиферромагнитному резонансу в YFe₃(BO₃)₄ [7].

Для того чтобы получить представление о структуре спектра иона \Pr^{3+} в кристаллическом поле, мы провели простое моделирование наблюдаемых температурных зависимостей магнитной восприимчивости (рис.1) в парамагнитной области, представив ее в виде суммы вкладов Fe- и Pr-подсистем:

$$\chi_{\alpha}(T) = C_{\rm Fe}/(T - \theta_{\rm Fe}) + \chi_{\alpha}^{\rm Pr}(T),$$

$$\chi_{\alpha}^{\rm Pr}(T) = [\chi_{\alpha 01}^{\rm Pr}(1 - e^{-E_1/T}) + \chi_{\alpha 02}^{\rm Pr}(1 - e^{-E_2/T}) + (C_{\rm Pr}(2J+1)/T - \chi_{\alpha 01}^{\rm Pr}E_1/T - \chi_{\alpha 02}^{\rm Pr}E_2/T)e^{-E_2/T}]/Z,$$

(3)

где Fe-подсистема описывается законом Кюри-Вейса, а для ионов \Pr^{3+} используется упрощенное выражение для восприимчивости в кристаллическом поле, в котором E_1 и E_2 представляют собой, соответственно, энергии первого возбужденного уровня и центра тяжести всех остальных возбужденных состояний основного мультиплета ${}^{3}H_4$ иона \Pr^{3+} (J = 4), а величины $\chi^{\Pr}_{\alpha 01}$ и $\chi^{\Pr}_{\alpha 02}$ определяют вклад от магнитодипольных переходов между основным и указанными возбужденными состояниями, $Z = 1 + e^{-E_1/T} + (2J - 1)e^{-E_2/T}$, $C_{\rm Fe, \Pr}$ – константы Кюри-Вейса, индекс

Письма в ЖЭТФ том 87 вып. 1-2 2008

 $\alpha = z, \bot$. Данное выражение позволяет учесть основные особенности редкоземельной подсистемы как при высоких, так и низких температурах. Результаты расчета позволяют хорошо описать эксперимент (рис.1) и определить характерные параметры иона \Pr^{3+} в кристаллическом поле: $E_1 \approx 55$ К, и $E_2 \approx 550-650$ К, $\chi_{z02}^{\Pr}/\chi_{z01}^{\Pr} \approx 2.5$, $\chi_{\perp 02}^{\Pr}/\chi_{\perp 01}^{\Pr} \approx 0$. При этом значения восприимчивости при T = 0, $\chi_{\alpha 0}^{\Pr} = \chi_{\alpha 01}^{\Pr} + \chi_{\alpha 02}^{\Pr}$, $\alpha = z, \bot$ брались из эксперимента, константы Кюри-Вейса $C_{\rm Fe, Pr}$ определялись их теоретическими значениями, а парамагнитная температура Кюри $\theta_{\rm Fe} \approx 130$ К бралась для YFe₃(BO₃)₄ [7].

Обратимся теперь к магнитоэлектрическим свойствам $\Pr Fe_3(BO_3)_4$ и проанализируем их с учетом выявленных особенностей основного состояния иона Pr. Согласно симметрии ферроборатов, определяемой пространственной группой *R32* и трансформационными свойствами вектора антиферромагнетизма 1 Fe-подсистемы и магнитных моментов \mathbf{m}_i (i = 1, 2) *R*-подсистемы, электрическая поляризация может быть представлена в виде [3]

$$P_x = c_1 l_y l_z + c_2 (l_x^2 - l_y^2) + l_y^2$$

$$+\frac{1}{2}\sum_{i=1}^{2}[c_{3}(m_{ix}^{2}-m_{iy}^{2})+c_{4}m_{iz}H_{y}+c_{5}m_{iz}M_{iy}], \quad (4a)$$
$$P_{y}=-c_{1}l_{x}l_{z}-2c_{2}l_{x}l_{y}-$$
$$-\frac{1}{2}\sum_{i=1}^{2}[2c_{3}m_{ix}m_{iy}+c_{4}m_{iz}H_{x}+c_{5}m_{iz}m_{ix}], \quad (46)$$

$$P_z = c_6 l_x l_z (l_x^2 - 3 l_y^2) + rac{1}{2} \sum_{i=1}^z c_7 m_{ix} m_{iz} (m_{ix}^2 - 3 m_{iy}^2),$$
 (4B)

где c_1, c_2, \ldots, c_7 – магнитоэлектрические константы. При спин-флоп переходе, индуцированном полем H || c, в первую очередь можно ожидать появления скачков поляризации по a-оси $\Delta P_x \sim c_2 (l_x^2 - l_y^2) + rac{1}{2} \Sigma_i c_3 (m_{ix}^2 (-m_{iy}^2),$ и b-оси $\Delta P_y \sim -2c_2 l_x l_y - rac{1}{2} \Sigma_i 2c_3 m_{ix} m_{iy},$ обусловленных появлением x- или y-компонент векторов 1 и m_i в базисной плоскости. При этом, в силу специфики основного состояния Pr компоненты, m_{ix} , m_{iy} определяются только его ван-флековской восприимчивостью $\sim \, \chi_{\perp}^{
m VV} H_{ex}.\,\,\,$ Величина скачка и его знак существенно зависят от ориентации магнитных моментов в базисной плоскости в спин-флоп фазе. Поэтому наблюдаемое в эксперименте возрастание электрической поляризации вдоль оси а после перехода в спин-флоп фазу (рис.4а) может быть связано с данным скачком, если векторы \mathbf{l} и m_i переориентируются либо к a(x)-оси или к b(y)-оси.

Другая особенность поведения поляризации, связанная с ее зависимостью от поля при $H_z < H_{sf}$ и проявляющаяся в виде пичка в поле спин-флоп перехода H_{sf} (рис.4.), может быть связана с вкладами $l_x l_z, l_y l_z, m_{ix} m_{iz}, m_{iy} m_{iz}, H_x m_{iz}, H_y m_{iz}$ B (4a), (46). Они могут стать отличными от нуля из-за небольших отклонений магнитного поля от с-оси в реальных экспериментальных условиях, которые вызывают отклонение магнитных моментов от *с*-оси еще при *H* < H_{sf}. Как показало проведенное нами моделирование, вклады, пропорциональные $l_x l_z$, $l_y l_z$, вначале квадратичным образом зависят от магнитного поля, достигая максимального по амплитуде значения в области H_{sf} , и далее при $H > H_{sf}$ спадают по величине. Наблюдаемое экспериментально поведение поляризации вдоль b-оси (рис.4b), похоже, связано в основном с этими вкладами, так как скачок поляризации (как для ΔP_x) здесь не проявлялся, видимо, из-за преимущественной ориентации спинов или по a-, или по bоси в спин-флоп фазе, при которой он равен нулю.

Наконец, отметим еще одну особенность в поведении поляризации вдоль оси a, проявляющуюся в полях, превышающих H_{sf} , в виде заметного уменьшения поляризации (рис.4а). Возможной причиной этой аномалии является переориентация спинов в базисной плоскости, индуцированная x- или y-"паразитными" компонентами магнитного поля. Такого рода аномалии поляризации наблюдались в легкоплоскостных ферроборатах NdFe₃(BO₃)₄ [3], YFe₃(BO₃)₄, EuFe₃(BO₃)₄ [7] при переориентации спинов перпендикулярно полю в полях ~ 7-8 кЭ, приложенных в базисной плоскости.

Полевые зависимости электрической поляризации для магнитного поля в базисной плоскости хорошо описываются выражением $P_b = C_3 m_x^2 = C_3 (\chi_\perp^{\Pr} H_x)^2$, то есть определяются вкладом Pr-подсистемы. На вставке к рис.5 приведена температурная зависимость экспериментально определенного коэффициента при квадратичном по полю члене $C_3^{\rm Pr}$ продольной поляризации вдоль оси а (точки) и рассчитанная зависимость (сплошная линия) $C_3^{\Pr} = C_3 (\chi_{\perp}^{\Pr})^2$ с теми же параметрами, которые использовались для описания поперечной восприимчивости празеодима (рис.1). Как видно из рисунка, рассчитанная кривая в целом разумно согласуется с экспериментальными точками. Более строгое рассмотрение температурных зависимостей электрической поляризации требует расчета мультипольных моментов, учет которых может привести к еще более хорошему согласию теории и эксперимента.

Заключение. Таким образом, проведенные исследования PrFe₃(BO₃)₄ позволили выявить важную

роль редкоземельной подсистемы в формировании его магнитных и магнитоэлектрических свойств. Характерной особенностью иона Pr³⁺ является синглетный характер его основного состояния, что определяет отличную от нуля начальную восприимчивость в одноосной фазе и линейный характер кривых намагничения как выше, так и ниже поля спин-флоп перехода в отличие от ферробората $TbFe_3(BO_3)_4$ [4,8], где расщепление квазидублета в кристаллическом поле равно нулю. Анизотропия магнитной восприимчивости Pr³⁺ и Pr-Fe-обмен стабилизируют одноосную магнитную структуру. Проведенный анализ позволил количественно описать основные экспериментальные результаты и определить ключевые характеристики основного состояния иона Pr^{3+} (расщепление в кристаллическом поле, величину обменного поля). Показано, что наблюдаемые аномалии электрической поляризации при спин-флоп переходе оказываются весьма чувствительными ко многим деталям магнитной структуры и ориентации магнитного поля, что может быть использовано для получения дополнительной информации о магнитной структуре, в частности ориентации спинов в спин-флоп фазе.

Авторы статьи выражают благодарность А.К. Звездину и А.П. Пятакову за полезные дис-

куссии в процессе обсуждения результатов работы. Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант # 07-02-00580).

- 1. А. Н. Васильев, Е. А. Попова, ФНТ 32, 968 (2006).
- 2. А.К. Звездин, С.С. Кротов, А.М. Кадомцева и др., Письма в ЖЭТФ 81, 335 (2005).
- А.К. Звездин, Г.П. Воробьев, А.М. Кадомцева и др., Письма в ЖЭТФ 83, 600 (2006).
- 4. А. М. Кадомцева, Ю.Ф. Попов, Г. П. Воробьев и др., *I Международный междисциплинарный симпозиум "Среды со структурным и магнитным упорядочением"*, Multiferroics-2007.
- 5. М.Н. Попова, Е.П. Чукалина, Т.Н. Станиславчук, Л.Н. Безматерных, Изв. РАН Серия физ. **70**, 1652 (2006).
- 6. Л. Н. Безматерных, С. А. Харламова, В. Л. Темеров, Кристаллография **49**, 1 (2004).
- V. Yu. Ivanov, A. A. Mukhin, A. M. Kuzmenko et al., Bezmaternikh Abstracts of the International Conference "Functional Materials" ICFM-2007, Ukraine, Crimea, Partenit, October 1-6, 2007, p. 207.
- E. A. Popova, D. V. Volkov, A. N. Vasiliev et al., Phys. Rew. B 75, 224413 (2007).