# 05;12 Влияние внутренних ростовых напряжений на процесс намагничивания кристаллов гематита в базисной плоскости

#### © А.Т. Караев, Б.Ю. Соколов

Национальный университет Узбекистана, 700174 Ташкент, Узбекистан e-mail: optic@nuuz.uzsci.net

#### (Поступило в Редакцию 19 сентября 2002 г.)

Магнитооптическим методом исследовано поведение доменной структуры тонких пластинок гематита во внешнем магнитном поле. Обнаружено, что в кристаллах, имеющих внутренние напряжения, в некотором интервале магнитного поля, приложенного в базисной плоскости в направлении трудной оси намагничивания, возникает магнитная сверхструктура с осциллирующим вдоль направления магнитного поля азимутом вектора ферромагнетизма. Полученные экспериментальные результаты обсуждаются в рамках теории магнитной ряби.

История исследований доменной структуры (ДС) гематита насчитывает уже более 30 лет. Для наблюдения доменов в этом слабом ферромагнетике использовались различные экспериментальные методы: порошковых фигур [1], рентгеновской топографии [2], магнитооптический [3,4]; теоретическое рассмотрение возможных типов ДС гематита выполнено в [5]. Казалось бы, на сегодняшний день этот предмет достаточно хорошо изучен как экспериментально, так и теоретически. Тем не менее в [6] сообщалось об особенностях эволюции ДС гематита, содержащего примесь ионов Ga, при намагничивании вдоль трудной оси — появлении квазипериодической микромагнитной структуры с осциллирующим вдоль направления магнитного поля азимутом вектора ферромагнетизма. Обнаруженная модулированная магнитная структура (ММС) связывалась в [6] с переходом кристалла из однородного в неоднородное магнитное состояние и описывалась с привлечением концепции случайного поля, возникающего вследствие замещения части ионов Fe в составе гематита диамагнитными ионами Ga. Олнако, как показали дальнейшие исследования. появление ММС наблюдается и в номинально чистых кристаллах гематита при наличии в них внутренних напряжений. Результаты исследований условий возбуждения и существования ММС в таких кристаллах представлены ниже.

#### Образцы и методика эксперимента

Для исследований использовались монокристаллы гематита  $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (пространственная группа  $D_{3d}^6$ ), выращенные методом спонтанной кристаллизации из раствора в расплаве [7]. Образцы представляли собой плоскопараллельные пластинки с поперечными размерами ~ 5×5 mm и толщиной ~ 200-300  $\mu$ m, развитые плоскости которых совпадали с базисной (плоскостью (111)).

Для изучения ДС применялся магнитооптический метод. Наблюдение доменов осуществлялось при помощи поляризационного микроскопа "на просвет" в окне прозрачности гематита (в области длин волн 0.9 <  $\lambda$  < 1.2 $\mu$ m) при нормальном падении света на плоскость образца (свет распространялся вдоль  $C_3$ -оси) в скрещенной геометрии осей пропускания поляризатора и анализатора. Изображение доменов считывалось с экрана электронно-оптического преобразователя видеокамерой, состыкованной с компьютером. Кроме этого, в эксперименте измерялись магнитополевая и ориентационная зависимости изменения интенсивности света, прошедшего систему поляризатор–образец–анализатор (фотоприемником служил ФЭУ-62).

Однородное магнитное поле напряженностью  $H \leq 100$  Ое создавалось двумя парами катушек Гельмгольца и могло ориентироваться в любом направлении в базисной плоскости образца с сохранением заданной величины |H|. Образцы размещались в оптическом криостате, позволяющем проводить исследования в температурном интервале 80-290 K. Во всех экспериментах плоскость образца ориентировалась перпендикулярно магнитному полю Земли.

Поскольку известно [8,9], что величина магниооптических эффектов в гематите существенно зависит от ориентации намагниченности в базисной плоскости, проанализируем взаимосвязь между азимутальным углом вектора ферромагнетизма **m** и изменением интенсивности света, прошедшего систему поляризатор-образецанализатор, вызванным основными магнитооптическими эффектами. Используя формализм матриц Джонса (матрица Джонса для ромбоэдрических слабых ферромагнетиков получена в [10]) и учитывая, что в ближней инфракрасной области спектра основными магнитооптическими эффектами в гематите являются магнитное линейное двупреломление [8] и эффект Фарадея [9], интенсивность света на выходе системы поляризаторобразец-анализатор можно представить в виде

$$I(\varphi) \approx A \sin^2 2(\varphi + \varphi_1) + B \sin 3(\varphi + \varphi_1) + C \sin(\varphi + \varphi_2),$$
(1)

где *А* — магнитооптический коэффициент, характеризующий магнитное линейное двупреломление; *В* и *С* — ко-



**Рис. 1.** Зависимость интенсивности света, прошедшего систему поляризатор-образец-анализатор, от ориентации магнитного поля H = 100 Ое в базисной плоскости  $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.  $\psi$  — угол между направлением вектора **H** и произвольно выбранным направлением в базисной плоскости кристалла. Точки — эксперимент, сплошная кривая — результат подгонки с использованием формулы (1).

эффициенты, описывающие эффект Фарадея;  $\varphi$  — угол между вектором **m** и направлением  $C_2$ -оси;  $\varphi_1, \varphi_2$  — параметры, определяющиеся ориентацией плоскости поляризации падающего света относительно  $C_2$ -оси.

В (1) учтено, что главная ось симметрии кристалла может быть незначительно отклонена от направления распространения света. Это приводит к тому, что в  $I(\varphi)$  имеется вклад от эффекта Фарадея как от поперечной (гармоника *B*), так и продольной (гармоника *C*) компонент вектора **m**. Для учета этих, вообще говоря, мешающих при определении азимута вектора **m** эффектов были проведены измерения зависимости фототока фотоприемника от ориентации магнитного поля в базисной плоскости кристалла. Величина прикладываемого поля выбиралась такой, чтобы магнитное состояние образцов было однородным (монодоменным). Как показали наши измерения, это достигалось при H > 30 Oe.

На рис. 1 приведена типичная ориентационная зависимость сигнала I, полученная для  $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> при  $T = 290 \, \text{K}$ , откуда методом наименьших квадратов извлекались амплитуды присутствующих в (1) гармоник (угол между направлением распространения света и  $C_3$ -осью ~  $1-2^\circ$ ). Найденные из приведенных на рис. 1 результатов величины магнитооптических коэффициентов соотносятся между собой как  $A:C:B \approx 10:1:0.1$ . Следовательно, за модуляцию интенсивности І в основном ответственно магнитное линейное двупреломление, и, добиваясь большей точности ориентации плоскости образцов относительно падающего света, можно уменьшить амплитуду первой гармоники так, чтобы добиться соответствия между изменением величины I и азимутом вектора т. Таким образом, анализируя интегральные характеристики светового потока на выходе образца, на основе (1) можно установить ориентацию вектора т в базисной плоскости (определить направление  $C_2$ -осей), а из анализа локальных характеристик светового потока — судить о пространственных вариациях магнитного параметра порядка кристалла, положив угол  $\phi$ функцией координат.

## Экспериментальные результаты

Как показали экспериментальные исследования эволюции ДС гематита, в некоторых кристаллах при наложении поля Н в базисной плоскости в направлении, перпендикулярном направлению доменных границ (ДГ), наблюдаемых в размагниченном состоянии образца, возникают ММС, аналогичные обнаруженным ранее в  $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>: Ga [6]. В качестве примера на рис. 2, *а* показана ДС одного из таких кристаллов, визуализированная в отсутствие внешнего магнитного поля при комнатной температуре. Как оказалось, более контрастным изображение доменов получается, когда С3-ось образца слегка отклонена от направления распространения света, т.е. визуализация ДС осуществляется в основном за счет эффекта Фарадея. Такой результат возможен, если домены 90- или 180°-ные. Поскольку введение четвертьволновой фазовой пластинки в оптический тракт микроскопа также не позволило надежно наблюдать ДС при нормальном падении света, было установлено, что домены 180°-ные. Характерно, что изображение одной из ДГ (правой) на рис. 2, а размыто, т.е. эта ДГ наклонна к базисной плоскости кристалла. При этом оказалось, что ДГ ориентированы в направлении, не связанном ни с каким из выделенных направлений в базисной плоскости кристалла (для большинства исследованных кристаллов они ориентировались вдоль одной из С2-осей, являющихся при комнатной температуре легкими осями внутриплоскостной кристаллографической (гексагональной) анизотропии гематита [5]). Известно, что причиной появления наклонных ДГ и несовпадения оси легкого намагничивания с C<sub>2</sub>-осью в α-Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> являются внтуренние напряжения, возникающие в поцессе роста кристалла [5].

При наложении магнитного поля в плоскости этого образца в направлении, перпендикулярном направлению ДГ в размагниченном состоянии, вначале образец монодоменизировался, а затем в полях  $H \sim 6-15$  Ое на некотором участке поверхности образца наблюдалось появление ММС, проявляющейся в виде системы полос различного магнитооптического контраста с нечеткими границами (рис. 2, *b*, *c*). При отклонении вектора **H** от этого направления на угол < 10° полосы видоизменяются: меняется их ширина, они смещаются, но их направление и контраст изображения сохраняются. Дальнейшее отклонение поля от указанного направления приводит к исчезновению ММС.

Так же как и в случае  $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>: Ga, пространственный период  $\lambda$  обнаруженной MMC зависит от величины поля: с ростом *H* расстояние между полосами уменьшается (рис. 2, *b*, *c*). Изменение периода  $\lambda$  в поле происходит скачкообразно, путем изменения числа полос на регистрируемой длине, причем кроме этого эффекта пининга при инверсии направления **H** наблюдается гистерезис значений  $\lambda$ : при уменьшении поля (на обратном ходе намагничивания) средний период MMC оказывается меньше, чем при его увеличении.

Отметим, что полосы на рис. 2, *b*, *c* отчетливо наблюдаются при нормальном падении света на образец, при





Рис. 2. Поверхность образца  $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> в поляризованном свете (толщина образца 210  $\mu$ m, T = 290 K): H = 0 (*a*), 6 (*b*), 14 Oe (*c*).

этом соответствующим подбором азимута поляризатора можно инвертировать контраст изображения ММС. Последнее достигалось при повороте поляризатора на угол  $\approx 50^{\circ}$  относительно положения, в котором наблюдались полосы, показанные на рис. 2, *b*, *c*. Это, очевидно, означает, что азимут вектора **m** в центре соседних полос различается примерно на 50°. Отсутствие резких границ у наблюдаемой системы полос позволяет заключить, что в ней **m** является не просто знакопеременной величиной, как в обычной ДС, а плавно меняет свое направление. Наглядно обнаруженная ММС может быть приближенно представлена в виде одномерной осцилли-

рующей зависимости азамутального угла  $\beta$  вектора **m** от пространственной координаты  $\beta \approx 25^{\circ} \cos kx$ , где  $k = 2\pi/\lambda$  — волновой вектор MMC, x — текущая координата ( $H \parallel X$ ).

Понижение температуры не приводит к заметному изменению периода ММС или контраста ее изображения, но при  $T \approx 260 \,\mathrm{K}$  как ДС, так и ММС в исследованном кристалле практически скачком исчезали. Это закономерно, поскольку при температуре Морина  $T_M = 260 \, {
m K}$ в α-Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> происходит переход из слабоферромагнитного лекгоплоскостного состояния  $(T > T_M)$  в легкоосное антиферромагнитное ( $T < T_M$ ). Сравнение кривых полевых зависимостей магнитооптического сигнала I(H), снятых с участка образца, где наблюдалось появление ММС, с кривыми I(H), полученными с участков, где она не возникала, показало, что эти участки не различаются ни коэрцитивной силой, ни величиной поля насыщения, однако температура Морина (определяемая по исчезновению сигнала I) для первого из них оказалась ниже примерно на 3К.

### Обсуждение результатов

По внешним признакам обнаруженная в имеющих внутренние напряжения кристаллах ММС схожа с хорошо известным явлением магнитной ряби ("magnetization ripple"), наблюдаемым в поликристаллических пленках пермаллоя [11]. Магнитная рябь возникает при намагничивании пленки в плоскости и связана с переходом пермаллоя в магнитную фазу с осциллирующим около направления поля Н азимутом вектора локальной намагниченности, при этом пространственный период модуляции, так же как и период MMC в  $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, уменьшается с ростом поля. Как показано в [12], равновесная магнитная структура типа магнитной ряби возникает за счет конкуренции между случайной анизотропией, роль которой играет кристаллографическая анизотропия в кристаллах, ориентированных случайным образом относительно друг друга, одноосной анизотропией, наведенной текстурой пленки, и внешним магнитным полем.

Если считать, что к возбуждению обнаруженной ММС приводят аналогичные причины, следует предположить наличие в тех областях кристалла, где возникают ММС, одноосных магнитных центров со случайным направлением легких осей. В частности, такие центры могут представлять собой комплексы, образованные ионами примеси (неконтролируемые примеси технологического происхождения в некотором количестве всегда присутствуют в реальных кристаллах) и окружающими их матричными ионами Fe. Различие ионных радиусов или/и зарядового состояния примесных и матричных ионов будет приводить к искажениям кристаллической решетки и, как следствие, к отличию ориентации магнитных моментов комплексов от направлений, задаваемых гексагональной анизотропией кристалла. Именно с присутствием такого рода анизотропных магнитных центров обычно связывается появление дополнительной одноосной анизотропии в базисной плоскости гематита [13,14]. Возникновение наведенной анизотропии объясняется процессами упорядочения ионов примеси, происходящими путем ионной диффузии. Внутренние напряжения, возникающие при росте кристалла, задают характерное направление такого упорядочения и тем самым определяют направление оси наведенной анизотропии. О наличии примесей косвенно свидетельствует более низкая температура перехода Морина области кристалла, где индуцируется MMC (хорошо известно [13], что примеси существенно снижают  $T_M$  гематита: например, замещение в матрице гематита даже 1% ионов Fe ионами Sn приводит к смещению  $T_M$  в область субгелиевых температур [14]).

Если сделанные предположения верны, то, основываясь на теории магнитной ряби и считая (как этого требует теоретическая модель [12]), что  $K_a > K \gg K_a N^{-1/2}$ , где  $K_a$  — константа анизотропии, задающая направление легкой оси магнитного центра; K — константа наведенной одноосной анизотропии; N — число одноосных центров в единице объема, период ММС можно представить в виде

$$\lambda = 2\pi (J/K)^{1/2} (HM/2K - 1)^{-1/2}.$$
 (2)

Здесь J — константа обмена; M — спонтанная намагниченность, причем в соответствии с принятой моделью в (2) не входят ни концентрация примесей, ни константа внутриплоскостной гексагональной анизотропии (эти параметры определяют максимальный угол отклонения локального вектора **m** структуры от направления намагничивания).

Согласно (2), ММС возникает при условии

$$H > H_0 = 2K/M,\tag{3}$$

которое позволяет оценить константу наведенной одноосной анизотропии. Используя  $H_0 = 6$  Oe — значение поля, при котором появляется MMC, и известную величину  $M(T = 290 \text{ K}) \approx 2G$  [13], из (3) находим  $K \approx 6 \text{ erg}/\text{ cm}^3$  (для сравнения: при комнатной температуре константа гексагональной анизотропии в гематите  $\sim 1-3 \text{ erg}/\text{ cm}^3$  [5]).

К сожалению, эффекты гистерезиса и пининга, наблюдаемые при изменении величины приложенного поля, не позволяют непосредственно сравнить (2) с экспериментальной зависимостью  $\lambda(H)$ . Однако из структуры формулы (2) видно, что вначале при  $H \ge H_0$  зависимость  $\lambda(H)$  имеет резкий спад, но при  $H \ge 2H_0$  можно считать  $\lambda \approx \text{const.}$  Тогда подставляя в (2) значение константы обмена  $J = 2 \cdot 10^{-6} \text{ erg} / \text{ cm} [1], K = 6 \text{ erg} / \text{ cm}^3$ и H = 12 Oe, находим  $\lambda \approx 35 \,\mu$ m, что хорошо согласуется с данными эксперимента (рис. 2, c). Это указывает на то, что выбранная модель возникновения ММС достаточно адекватно описывает экспериментальную ситуацию. Существенно, что (2) и (3) совпадают с соответствующими выражениями, полученными в [6] из рассмотрения термодинамического потенциала ромбоэдрического слабого ферромагнетика, если положить  $J = 2\gamma$ ,  $K = -\alpha$ ,  $M = \mu l^2$ , где  $\gamma$ ,  $\alpha$ ,  $\mu$  — коэффициенты разложения термодинамического потенциала по степеням магнитного порядка, l — модуль вектора антиферромагнетизма.

Насколько нам известно, ММС, подобная обнаруженной в данной работе, ранее в гематите не наблюдалась. Причина этого, вероятно, связана с ограничениями экспериментальных методик, традиционно применяемых для визуализации ДС гематита. Так, метод порошковых фигур [1] или полярный эффект Керра [3] требуют выхода намагниченности из плоскости образца, что невозможно при исследованиях на базисной плоскости гематита; метод рентгеновской топографии [2] не обладает достаточным пространственным разрешением. Что же касается [4], где для наблюдения ДС использовался метод, аналогичный нашему, то, судя по приведенным результатам, в этой работе исследовались лишь образцы с совершенной кристаллической структурой.

## Список литературы

- Eaton J.A., Morrish A.H. // Canad. J. Phys. 1971. Vol. 49. P. 2768–2777.
- [2] Лабушкин В.Г., Селезнев В.Н., Фалеев Н.Н., Фигин В.А. // ФТТ. 1978. Т. 20. Вып. 5. С. 1544–1546.
- [3] Богданов А.А., Власов А.Я. // ФТТ. 1970. Т. 12. Вып. 1. С. 164–169.
- [4] Преображенский В.Л., Шишков А.А., Экономов Н.А. // ФТТ. 1987. Т. 29. Вып. 12. С. 3549–3552.
- [5] Фарздинов М.М., Шамсутдинов М.А. // ФТТ. 1977. Т. 19. Вып. 8. С. 1422–1426.
- [6] Азаматов З.Т., Караев А.Т., Соколов Б.Ю., Федоров Ю.М. // ЖТФ. 2001. Т. 71. Вып. 3. С. 84–87.
- [7] Восканян Р.А., Желудев И.С. // Кристаллография. 1967.
   Т. 12. Вып. З. С. 539–540.
- [8] Меркулов В.С., Рудашевский Е.Г., Ле Галль А., Лейкюрас К. // ЖЭТФ. 1981. Т. 80. Вып. 1. С. 141–170.
- [9] Щербаков Ю.И. // ФТТ. 1984. Т. 26. Вып. 3. С. 866-869.
- [10] Федоров Ю.М., Лексиков А.А., Аксенов А.Е. // ФТТ. 1984. Т. 26. Вып. 1. С. 220–226.
- [11] Baltz A., Doyie W.D. // J. Appl. Phys. 1964. Vol. 35. #6.
   P. 1814–1818.
- [12] Hoffmann H. // J. Appl. Phys. 1964. Vol. 35. #6. P. 1790-1798.
- [13] Петраковский Г.А., Панкрац А.И., Соснин В.М., Васильев В.Н. // ЖЭТФ. 1983. Т. 85. Вып. 2 (8). С. 691–699.
- [14] Костюжанский Б.Я., Марышко М., Прозоров Л.А. // ЖЭТФ. 1979. Т. 77. Вып. 2 (8). С. 764–772.