

Одноионный механизм слабого ферромагнетизма и спин-флоп переход в одно- и двухпозиционном антиферромагнетике

С. Н. Мартынов¹⁾

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

Поступила в редакцию 21 июня 2018 г.

После переработки 26 июня 2018 г.

Для двухподрешеточного антиферромагнетика с неколлинеарными осями одноионной анизотропии моментов разных подрешеток получена система уравнений описывающих основное состояние во внешнем магнитном поле. Показано, что при спин-флоп переходе вектор антиферромагнетизма меняет знак. Это приводит к магнитному фазовому переходу первого рода, с гистерезисом в полевой зависимости намагниченности. Получен явный вид соотношений между параметрами микроскопического гамильтониана и экспериментально наблюдаемыми величинами – величиной спонтанного момента и поля спин-флоп перехода. Показано, что для антиферромагнетика с магнитными ионами в двух кристаллографически неэквивалентных позициях (двухпозиционного антиферромагнетика) в рамках двухподрешеточной модели полевая зависимость суммарного магнитного момента выше поля перехода нелинейна при любой ориентации кристалла относительно магнитного поля.

DOI: 10.1134/S0370274X18150092

Антиферромагнетики со слабым ферромагнитным моментом изучаются более полувека. Причиной постоянного внимания является, прежде всего, их широкая распространенность и разнообразие магнитных свойств [1, 2]. Последнее в большой степени объясняется существованием различных механизмов неколлинеарности магнитных моментов антиферромагнитных (АФ) подрешеток. В последнее десятилетие дополнительным стимулом к изучению таких магнетиков является существование у многих из них мультиферроидных свойств. Как правило, наиболее ярко эти свойства проявляются в окрестности магнитных фазовых переходов, когда существенно изменяется величина или ориентация магнитных моментов. Для антиферромагнетиков это прежде всего относится к спин-флоп (“spin-flop”) (СФ) переходу – повороту моментов подрешеток при приложении внешнего магнитного поля вдоль легкой оси одноосной анизотропии антиферромагнетика. Величина поля, при котором происходит переход и его вид определяются, прежде всего, антиферромагнитным обменным взаимодействием и магнитной анизотропией и, следовательно, несут важную информацию о виде анизотропии и величинах этих взаимодействий. При отсутствии слабого ферромагнитного момента СФ переход происходит в виде фазового перехода первого рода – магнитные моменты меняют ори-

ентацию скачком. В слабых ферромагнетиках вид перехода существенно зависит от механизма неколлинеарности АФ подрешеток. Так, для релятивистского двухионного взаимодействия Дзялошинского–Мория, который обычно считается основной причиной неколлинеарности, переориентация моментов происходит в виде двух фазовых переходов второго рода – ориентация магнитных моментов изменяется непрерывно [2]. Одноионный механизм неколлинеарности магнитных моментов возникает при отсутствии трансляционной инвариантности позиций магнитных ионов в кристалле, что приводит к неколлинеарности осей локальной одноионной анизотропии на разных узлах магнитной решетки. Это определяет принципиальное отличие данного механизма от двухионного. Последний, как правило, описывается через векторное произведение магнитных моментов подрешеток

$$H_{DM} = \mathbf{D}[\mathbf{M}_1 \times \mathbf{M}_2]$$

и приводит к величине слабого момента изотропной в плоскости ортогональной вектору \mathbf{D} . В то время как одноионный механизм жестко связан с ориентацией осей магнитной анизотропии в кристалле, и при повороте слабый момент изменяется вплоть до смены своего знака [2]. Если главным механизмом является одноионный, в точке смены знака слабого момента должна происходить переориентация моментов АФ подрешеток $\mathbf{M}_1 \leftrightarrow \mathbf{M}_2$, что приведет к восстанов-

¹⁾e-mail: unonav@iph.krasn.ru

лению параллельности слабого момента и внешнего поля. Целью настоящей работы является определение типа и условий существования такой переориентации, сопровождающей СФ переход, а также явного вида соотношений между наблюдаемыми значениями слабого момента и поля СФ перехода и параметров микроскопического гамильтониана описывающих магнитную анизотропию.

Описание магнитного состояния слабого ферромагнетика обычно проводится либо на основе феноменологического гамильтониана [1], либо используя разложение термодинамического потенциала по степеням параметров порядка (компонент векторов антиферромагнетизма $\mathbf{l} = (\mathbf{M}_1 - \mathbf{M}_2)/2M_0$ и слабого момента $\mathbf{m} = (\mathbf{M}_1 + \mathbf{M}_2)/2M_0$) [2] в термодинамической теории Ландау [3]. В основном состоянии ($T = 0$) потенциал совпадает с плотностью магнитной энергии, и оба подхода эквивалентны. Произведения компонент \mathbf{l} и \mathbf{m} каждого члена разложения должны быть инвариантны относительно преобразований элементами симметрии, соответствующей группы кристалла. Для наиболее многочисленного класса ромбических кристаллов и случая centrosymmetric обменной структуры с четной осью второго порядка вдоль оси b кристалла потенциал имеет вид

$$F = \mathbf{A}\mathbf{m}^2 + a_1 m_a^2 + a_2 m_c^2 + b_1 l_a^2 + b_2 l_c^2 + d_1 m_a l_c + d_2 m_c l_a + h_a m_a + h_c m_c.$$

Коэффициенты разложения $a_{1,2}, b_{1,2}$ и $d = d_1 = d_2$ (для одноионного механизма) не являются независимыми параметрами модели. Они могут быть выражены через коэффициенты одноионной анизотропии спинов подрешеток микроскопического гамильтониана и углы их ориентации в кристалле. Для определения явной зависимости наблюдаемого слабого момента и поля СФ перехода от этих параметров рассмотрим основное состояние на основе гамильтониана

$$H = J \sum_{ij} \mathbf{S}_i \mathbf{S}_j + K_1 \sum_i S_i^{\varphi 1^2} + K_2 \sum_j S_j^{\varphi 2^2} + H_0 \left(\sum_i S_i^z + \sum_j S_j^z \right) \quad (1)$$

$J > 0.$

Далее рассмотрим равномодульную модель классических моментов с изотропными g -факторами и одноосной локальной анизотропией типа “легкая ось” $K_1, K_2 < 0$ во внешнем магнитном поле, приложенном в плоскости образованной этими осями анизотропии. Такая максимально упрощенная модель мо-

жет быть использована для описания в первом приближении системы S-ионов в обеих позициях. При этом область изменения направления моментов подрешеток ограничивается плоскостью образованной осями анизотропии. Направление внешнего магнитного поля примем за ось z . Ориентация магнитных моментов АФ подрешеток относительно внешнего поля определяется углами θ_1 и θ_2 , а осей анизотропии – углами φ_1 и φ_2 . Магнитная энергия двух моментов в основном состоянии записывается в виде

$$E_2 = h_e \cos(\theta_1 - \theta_2) + (K + \Delta) \cos(\theta_1 - \varphi - \delta)^2 + (K - \Delta) \cos(\theta_2 - \varphi + \delta)^2 - h(\cos \theta_1 + \cos \theta_2), \quad (2)$$

где введены средние значения для одноосной анизотропии $K = (K_1 + K_2)S^2/2$ и углов $\varphi = (\varphi_1 + \varphi_2)/2$, отклонения от средних значений $\Delta = (K_1 - K_2)S^2/2$ и $\delta = (\varphi_1 - \varphi_2)/2$, приведенные обменное и внешнее поля $h_e = JzS^2$, $h = g\mu_B H_0 S$.

Определение равновесной ориентации магнитных моментов можно проводить как минимизацией магнитной энергии (2), так и удовлетворяя необходимому условию коллинеарности моментов суммарному эффективному полю [4, 5]. Применим второй подход, означающий зануление поперечных компонент полных локальных полей на каждом моменте [6–8]. Этот способ позволяет наиболее наглядно представить влияние каждой составляющей магнитных взаимодействий (2) на ориентацию отдельного момента. Поперечные поля на моментах АФ подрешеток имеют вид

$$\begin{aligned} h_1^\theta &= \frac{h_e}{2} S(\theta_1 - \theta_2) + \frac{K + \Delta}{2} S(2(\theta_1 - \varphi - \delta)) - \\ &\quad - \frac{h}{2} S(\theta_1) = 0, \\ h_2^\theta &= \frac{h_e}{2} S(\theta_2 - \theta_1) + \frac{K - \Delta}{2} S(2(\theta_2 - \varphi + \delta)) - \\ &\quad - \frac{h}{2} S(\theta_2) = 0, \end{aligned} \quad (3)$$

где для сокращения записи введены обозначения $S(x) = \sin(x), C(x) = \cos(x)$. Складывая и вычитая уравнения системы (3), получаем два уравнения на новые переменные задачи – относительное значение слабого момента $m = C((\theta_1 - \theta_2)/2)$ и угол его ориентации относительно внешнего поля $\theta = (\theta_1 + \theta_2)/2$. Ограничиваясь линейным приближением по степеням $m \ll 1$ в разложении тригонометрических функций в поперечных полях (что соответствует разложению до m^2 включительно функций в энергии (2)), получаем разные выражения для двух возможных ориентаций АФ моментов во внешнем магнитном поле (рис. 1). Для состояния А получаем

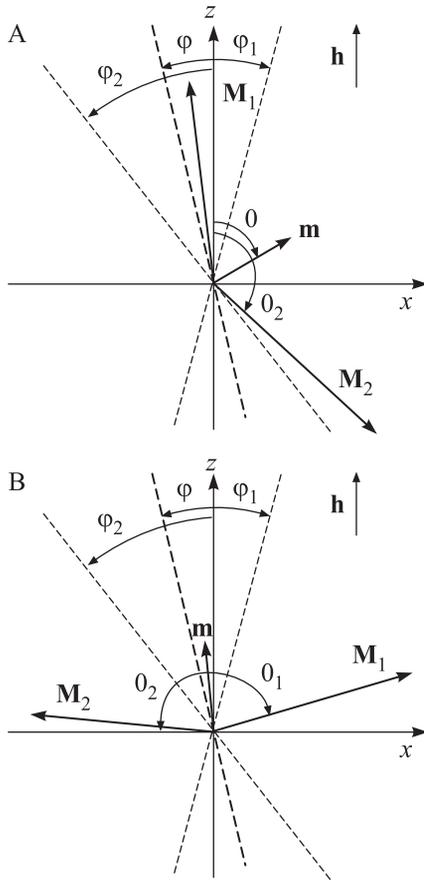


Рис. 1. Ориентации моментов антиферромагнитных подрешеток и суммарного магнитного момента в двух различных состояниях. При угле между легкими осями подрешеток $\delta < \pi/4$ основным при $h < h_{sf}$ является состояние А, а при $h > h_{sf}$ – состояние В

$$m = \frac{-KC(2\delta)S(2(\theta - \varphi)) + \Delta S(2\delta)C(2(\theta - \varphi))}{hS(\theta) + 2h_a}, \quad (4)$$

$$m = \frac{hC(\theta) + KS(2\delta)C(2(\theta - \varphi)) - \Delta C(2\delta)S(2(\theta - \varphi))}{2\tilde{h}_e},$$

а для состояния В

$$m = \frac{-KC(2\delta)S(2(\theta - \varphi)) + \Delta S(2\delta)C(2(\theta - \varphi))}{hS(\theta) - 2h_a}, \quad (5)$$

$$m = \frac{hC(\theta) - KS(2\delta)C(2(\theta - \varphi)) + \Delta C(2\delta)S(2(\theta - \varphi))}{2\tilde{h}_e},$$

где $\tilde{h}_e = h_e + KC(2\delta)C(2(\theta - \varphi)) + \Delta S(2\delta)S(2(\theta - \varphi))$ – обменное поле промодулированное полем анизотропии, $h_a = KS(2\delta)S(2(\theta - \varphi)) + \Delta C(2\delta)C(2(\theta - \varphi))$ – компонента поля анизотропии поперечная слабому моменту.

Прежде всего отметим периодичность одноионного вклада

$$m_I = \pm \frac{-KS(2\delta)C(2(\theta - \varphi)) + \Delta C(2\delta)S(2(\theta - \varphi))}{2\tilde{h}_e} \quad (6)$$

в полную относительную намагниченность как по углу 2θ , так и по параметру неколлинеарности осей анизотропии 2δ . Она означает периодическую смену знака этого вклада, характерную не только для случая тетрагонального кристалла [1], но и для других слабых ферромагнетиков с неколлинеарными осями анизотропии [2] и (или) различными абсолютными значениями анизотропии в разных позициях. В выражении (6) верхний знак соответствует состоянию А, а нижний – состоянию В. Зависимость угла ориентации полного момента θ от внешнего поля h в общем случае произвольных значений K, Δ, δ и ориентации кристалла φ может быть получена из равенства правых частей уравнений систем (4) и (5) для состояний А и В соответственно.

Для однопозиционного антиферромагнетика ($\Delta = 0$) среднее направление осей анизотропии φ и ортогональное ей направление становятся нечетными осями второго порядка, что соответствует случаю ромбического кристалла. В отсутствии внешнего магнитного поля каждая система (4) и (5) имеет два решения

$$S(2(\theta - \varphi)) = 0: \quad \theta = \varphi, \quad \theta = \varphi + \pi/2,$$

устойчивость которых зависит от знака $C(2\delta)$. При $\delta < \pi/4$ средним легким направлением является ось φ , вдоль которой ориентируется вектор \mathbf{l} . Соответственно, основным состоянием является состояние А с $\theta = \varphi + \pi/2$ и положительным одноионным слабым моментом

$$m_I^A(h=0) = -\frac{KS(2\delta)}{2(h_e - KC(2\delta))}. \quad (7)$$

При $\delta > \pi/4$ средней легкой осью становится ось $\varphi + \pi/2$, а основным состоянием – состояние В с $\theta = \varphi$. Одноионный момент остается положительным

$$m_I^B(h=0) = -\frac{KS(2\delta)}{2(h_e + KC(2\delta))}. \quad (8)$$

В обоих случаях одноионная анизотропия увеличивает обменное поле, так как направление среднего поля анизотропии совпадает с вектором антиферромагнетизма.

В малом магнитном поле для $\delta < \pi/4$ в состоянии А момент \mathbf{m} поворачивается к направлению магнитного поля. При этом уменьшается угол θ и величина

спонтанного момента m_I (6). При угле $\theta = \varphi + \pi/4$ спонтанный момент обращается в ноль. То же самое происходит и при уменьшении поля из больших значений, где основным состоянием является фаза В. Однако обращение в ноль спонтанного момента в разных состояниях происходит при различных значениях магнитного поля $h_c^{A,B}$

$$h_c^{A,B} = \mp \frac{2KS(2\delta)C(\varphi + \pi/4)}{C(2\varphi)} + \sqrt{\left(\frac{2KS(2\delta)C(\varphi + \pi/4)}{C(2\varphi)}\right)^2 - \frac{4h_eKC(2\delta)}{C(2\varphi)}}. \quad (9)$$

Верхний знак при первом слагаемом соответствует критическому полю состояния А, а нижний – состоянию В. Таким образом, поле при котором исчезает спонтанный момент в состоянии А превышает соответствующее поле состояния В, что указывает на гистерезис по полю абсолютной величины m_I . При отсутствии неколлинеарности осей анизотропии ($\delta = 0$) и ориентации внешнего поля вдоль оси второго порядка ($\varphi = 0$) выражение (9) дает поле СФ перехода легкоосного двухподрешеточного антиферромагнетика.

$$h_{sf} \approx \sqrt{-4h_eKC(2\delta) + 2K^2S^2(2\delta)}. \quad (10)$$

Анализ устойчивости состояний А и В при $\varphi = 0$ показывает, что в интервале полей $0 \leq h \leq h_c^A$ состояние А остается устойчивым в то время как состояние В устойчиво при $h \geq h_c^B$. При этом энергия состояния А в поле h_c^A уже выше энергии состояния В с $\theta = 0$ в этом же поле. В свою очередь при $h = h_c^B$ нижним по энергии является состояние А. Таким образом, переход между состояниями А и В происходит в окрестности поля спин-флоп перехода h_{sf} (10) и сопровождается гистерезисом в интервале полей $\Delta h \propto h_c^A - h_c^B$ (рис. 2). Интервал определяется областью устойчивости обоих состояний в окрестности изменения соотношения между их энергиями и, следовательно, носит оценочный характер.

Приложение поля ортогонально общей легкой оси (φ на рис. 1) эквивалентно замене $\delta \rightarrow \pi/2 - \delta > \pi/4$ и основным состоянием при любом поле остается состояние В с $\theta = \varphi = 0$. Полевая зависимость намагниченности в этом случае представляет собой прямую со спонтанным моментом m_I^B (8) (пунктирная прямая на рис. 2). Если ориентация общей легкой оси не совпадает с направлением внешнего магнитного поля ($\varphi \neq 0$), в состоянии В выше поля СФ перехода магнитный момент будет ориентирован между осью анизотропии φ и направлением внешнего поля, асимптотически приближаясь к последнему при

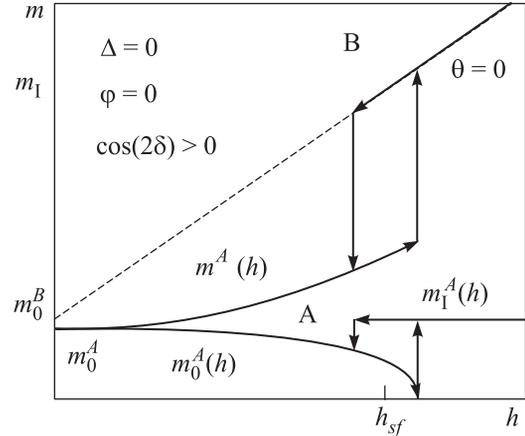


Рис. 2. Полевая зависимость величины полного магнитного момента m и спонтанного одноионного вклада m_I при $\delta < \pi/4$ в состояниях А и В до и после СФ перехода, соответственно

$h \rightarrow \infty$. При этом фазовый переход остается переходом первого рода с гистерезисом, что является его характерным отличием от СФ перехода в антиферромагнетике без слабого момента [2].

Для двухпозиционного антиферромагнетика ($\Delta \neq 0$) полевая зависимость ферромагнитного момента принципиально отличается от аналогичной зависимости в однопозиционном случае. Для последнего в состоянии после спин-флоп перехода всегда можно было сориентировать кристалл так, чтобы в первом уравнении системы (для $\delta < \pi/4$ – (5)) при $\theta = 0$ в ноль обращались и числитель и знаменатель. Такая ориентация соответствовала направлению общей оси анизотропии по полю ($\varphi = 0$). Вырождение системы уравнений в одно второе уравнение и обеспечивало независимость единственного внешнего параметра h от зафиксированного угла θ . Для двухпозиционного антиферромагнетика такую ориентацию подобрать в общем случае нельзя, так как невозможно одновременно обратить в ноль разные функции в числителе и знаменателе первого уравнения. Это нетрудно увидеть, если уравнение представить в виде

$$m = \frac{rS(2(\theta - \varphi) + \eta)}{hS(\theta) - 2\rho S(2(\theta - \varphi) + \gamma)}, \quad (11)$$

где

$$\begin{aligned} r &= \sqrt{K^2C^2(2\delta) + \Delta^2S^2(2\delta)}, \\ \rho &= \sqrt{K^2S^2(2\delta) + \Delta^2C^2(2\delta)}, \\ S(\eta) &= \frac{\Delta S(2\delta)}{r}, \quad C(\eta) = -\frac{KC(2\delta)}{r}, \\ S(\gamma) &= \frac{\Delta C(2\delta)}{\rho}, \quad C(\gamma) = \frac{KS(2\delta)}{\rho}. \end{aligned}$$

Так как при $\Delta \neq 0$ дополнительные сдвиги фаз разные ($\eta \neq \gamma$), при любой ориентации кристалла в системе уравнений, описывающей зависимость угла θ от h , остаются оба уравнения. Это означает, что для каждого значения поля будет своя ориентация суммарного ферромагнитного момента, не совпадающая с направлением поля. Следовательно, в рамках двухподрешеточной модели в двухпозиционном антиферромагнетике линейная зависимость $m(h)$ отсутствует при любой ориентации кристалла относительно внешнего магнитного поля.

Попытка описания полевых зависимостей намагниченности для двухподрешеточной модели двухпозиционного антиферромагнетика $\text{Pb}_2\text{Fe}_2\text{Ge}_2\text{O}_9$ [9] была предпринята в работе [10] с использованием разложения термодинамического потенциала. При этом слабый ферромагнетизм магнетика объяснялся одноионным механизмом. Как показывают вышеприведенные расчеты, в этом случае спин-флоп переход имеет характер фазового перехода первого рода и должен сопровождаться гистерезисом намагниченности в полевой зависимости. Однако экспериментальная кривая намагничивания в окрестности перехода имеет вид двух переходов второго рода, что характерно в случае доминирования двухионного взаимодействия Дзялошинского–Мория [2]. Кроме того, величина слабого ферромагнитного момента, экстраполированная к $h = 0$ из высокополевой части кривой намагничивания (выше спин-флоп перехода), почти вдвое превышает значение, полученное из низкополевой части. Различие значений слабого момента характерно для случая, когда работают оба механизма [2]. В этом случае при доминирующей роли взаимодействия Дзялошинского–Мория моменты для ортогональных ориентаций вектора антиферромагнетизма будут иметь вид

$$m_a \propto \frac{d_{12} - d_1}{A}, \quad m_c \propto \frac{d_{12} + d_1}{A}, \quad (12)$$

где d_{12} и d_1 – параметры разложения потенциала отвечающие за двух- и одноионный механизмы, со-

ответственно, а A – обменное поле. При $d_{12} > d_1$ суммарный спонтанный момент (12) остается положительным и без разворота вектора антиферромагнетизма – спин-флоп переход становится непрерывным. Детальный анализ полевых зависимостей работы [10] целесообразно проводить в рамках более реалистичной четырехподрешеточной модели. При анализе магнитных свойств слабых ферромагнетиков информацию необходимую для оценки вклада одноионного механизма и анизотропии g -факторов в полный спонтанный момент может дать анализ одноионных спектров ЭПР магнитных ионов в обеих кристаллографически неэквивалентных позициях в диамагнитном аналоге магнитного соединения.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований, грант # 16-02-00563. Автор благодарен А.Д. Балаеву, В.И. Зиненко и А.И. Панкрацу за полезные обсуждения.

1. Е. А. Туров, *Физические свойства магнитоупорядоченных кристаллов*, Изд. АН СССР, М. (1963).
2. Е. А. Туров, А. В. Колчанов, В. В. Меньшенин, И. Ф. Мирсаев, В. В. Николаев, *Симметрия и физические свойства антиферромагнетиков*, Физматлит, М. (2001).
3. Ю. А. Изюмов, В. Р. Сыромятников, *Фазовые переходы и симметрия кристаллов*, Наука, М. (1984).
4. А. Г. Гуревич, *Магнитный резонанс в ферритах и антиферромагнетиках*, Наука, М. (1972).
5. Т. А. Kaplan and N. Menyuk, *Philosoph. Mag.* **87**, 3711 (2007).
6. С. Н. Мартынов, *Письма в ЖЭТФ* **102**, 111 (2015).
7. S. N. Martynov, *JMMM* **398**, 121 (2016).
8. С. Н. Мартынов, *Письма в ЖЭТФ* **106**, 34 (2017).
9. J. Barbier and D. Levi, *Acta Cryst. C* **54**, 2 (1998).
10. Г. А. Петраковский, М. А. Попов, А. Д. Балаев, К. А. Саблина, О. А. Баюков, Д. А. Великанов, А. М. Воротынов, А. Ф. Бовина, А. Д. Васильев, М. Боем, *ФТТ* **51**, 1745 (2009).