05,04

Магнитоэлектрический эффект и магнитная динамика в антиферромагнетике Gd_2CuO_4

© В.В. Меньшенин[1,2], Д.И. Радзивончик[1]

[1] Институт физики металлов УрО РАН,
Екатеринбург, Россия
[2] Уральский федеральный университет им. Б.Н. Ельцина,
Екатеринбург, Россия

E-mail: menshenin@imp.uran.ru, radzivonchik@imp.uran.ru

(Поступила в Редакцию в окончательном виде 11 февраля 2013 г.)

Исследуются магнитоэлектрический эффект и магнитная динамика в Gd_2CuO_4 с помощью феноменологического подхода и теоретико-групповых методов. На основе четырех магнитных подрешеток вводятся векторные параметры порядка. Находятся инвариантные произведения параметров порядка, из которых строится плотность термодинамического потенциала. Применяя спин-волновое представление, расчеты можно значительно упростить, а также получить возможность предположить основное ориентационное магнитное состояние. Магнитная динамика описывается уравнениями Ландау–Лифшица, из которых определяется частота антиферромагнитного резонанса и динамические восприимчивости, а именно магнитная, антиферромагнитная, магнитоэлектрическая и антиферроэлектрическая. Показано, что частота и восприимчивости управляются приложенным электрическим полем.

Работа выполнена при частичной финансовой поддержке гранта УрО РАН № 12-П-2-1041 в рамках программы Президиума РАН „Квантовые мезоскопические и неупорядоченные структуры“.

1. Введение

Магнитные свойства соединений R_2CuO_4 (R = Nd, Pr, Sm, Eu, Gd) представляют существенный интерес. Связано это в первую очередь с тем, что при легировании этих оксидов примесями Ce и Th они становятся сверхпроводниками электронного типа [1]. При этом считается, что антиферромагнетизм CuO_2-плоскостей играет важную роль в возникновении сверхпроводимости [2]. Соединение Gd_2CuO_4 стоит особняком в этом классе оксидов. Допирование его примесями Ce и Th не приводит к возникновению сверхпроводимости. Причина, по которой не происходит сверхпроводящий переход, остается до конца не выясненной [3]. До 1994 г. предполагалось, что все перечисленные выше оксиды сохраняют тетрагональную симметрию до самых низких температур, при которых проводились исследования [4]. Более того, для соединения Nd_2CuO_4 пока окончательно не решен вопрос о том, предшествует ли магнитному упорядочению спинов ионов меди структурный фазовый переход из симметричной фазы с пространственной группой $I4/mmm$ в фазу с пространственной группой $P4_2/mnm$ либо сохраняется симметрия $I4/mmm$, а обнаруженные искажения решетки связаны с магнитострикционными деформациями [5]. В работе [6] исследование нейтронной дифракции на монокристалле Gd_2CuO_4 показало в фазе с пространственной симметрией $I4/mmm$ существование сверхструктурных ядерных рефлексов. Существование этих рефлексов авторы связали с разворотами ионов кислорода O(1) вокруг ионов меди. Это означает, что в соединении Gd_2CuO_4 имеет место структурный фазовый переход в орторомбическую фазу с пространственной группой $Acam$ (в стандартной установке $Cmca$, в новых обозначениях $Cmce$). Магнитное упорядочение соединения Gd_2CuO_4 детально исследовалось в работе Томпсона и др. [7]. Авторами установлено существование трех температур магнитного упорядочения: 6.5, 20 и 270 K. При этом первая из этих температур относится к редкоземельной подсистеме. В работе было показано, что антиферромагнитное упорядочение слоев CuO_2 сопровождается появлением слабоферромагнитного момента, величина которого пропорциональна температуре. Это обстоятельство является для нас важным, поскольку для кристаллической симметрии $I4/mmm$ в R_2CuO_4 существование слабоферромагнитного момента невозможно [7]. Нейтронографические исследования, магнитные измерения и изучение антиферромагнитного резонанса на монокристалле Gd_2CuO_4 проведены в работах [3,4]. Эксперименты по нейтронной дифракции и антиферромагнитному резонансу (АФМР) позволили сделать авторам заключение о магнитной структуре и основном состоянии этого соединения в рамках предположения о тетрагональной симметрии кристалла. По утверждению авторов, Gd_2CuO_4 относится к классу „легкоплоскостных“ коллинеарных антиферромагнетиков с малой анизотропией в базисной плоскости. Важным результатом данных работ является обнаружение магнитного рассеяния в этом соединении, соответствующего волновому вектору $\mathbf{k} = 0$, устанавливающего существование ферромагнитных слоев гадолиния в **ab**-плоскости тетрагонального кристалла. При этом слои оказываются антиферромагнитно упорядоченными вдоль направления [0,0,1].

Дальнейшее нейтронографическое исследование Gd_2CuO_4 с помощью поляризованных нейтронов проведено в работе [8]. Для последующей интерпретации результатов пространственная группа $Cmca$ заменялась в работе двумя пространственными группами $Acam$ и $Bbcm$ для двух „двойников", которые можно сформировать из тетрагональной фазы с целью сохранить ось c элементарной тетрагональной ячейки. Авторы работы еще раз подтвердили, что сильная антиферромагнитная связь между ионами меди в плоскостях 001 совместно с анизотропией, формирующейся вследствие структурных искажений, ведет к формированию слабоферромагнитных слоев CuO_2. Ферромагнитные моменты этих слоев при температурах от 275 до 18 K упорядочены параллельно друг другу, давая слабоферромагнитную фазу. Межслоевое взаимодействие плоскостей CuO_2 является слабым. С понижением температуры ниже 18 K увеличивающаяся поляризация ионов Gd изменяет межслоевое взаимодействие на антиферромагнитное, что приводит к формированию антиферромагнитной структуры без слабого ферромагнетизма при 16 K. Авторы работы [8], используя формфакторы и геометрические константы, приводят оценки магнитных моментов гадолиния и меди при этой температуре в поле $0.5\,\mathrm{T}: 0.47\mu_\mathrm{B}/\mathrm{Gd}$, $0.03\mu_\mathrm{B}/\mathrm{Cu}$. Ниже 7 K происходит упорядочение подрешеток Gd, что подтверждается быстрым увеличением интенсивностей рефлексов. При этом авторы [8] делают вывод о том, что упорядочение подрешеток гадолиния и меди происходит с одним и тем же волновым вектором. Однако этот вывод не согласуется с анализом магнитного упорядочения Gd_2CuO_4 в работе [9]. Далее в работе [8] предполагается, что ионы Gd в позициях $(0, 0, \pm z)$ неэквивалентны и магнитные моменты на этих ионах не равны по модулю. Это предположение, согласно замечанию самих авторов, не имеет прямого экспериментального обоснования.

В работе [9] исследован магнитоэлектрический (МЭ) эффект в соединении Gd_2CuO_4. Возможность существования МЭ-эффекта, по мнению авторов работы, связана с тем, что антиферромагнитное упорядочение спинов меди ведет к удвоению кристаллической ячейки, сохраняя симметрию системы по отношению к пространственной инверсии. В противоположность этому ферромагнитные плоскости редкоземельных спинов, будучи антиферромагнитно связанными, нарушают симметрию по отношению к пространственной инверсии, но не влияют на трансляционную симметрию. При анализе МЭ-эффекта авторы работы полагали, что это соединение относится к орторомбическому магнитному классу $mm'm$. Этот магнитный класс допускает существование МЭ-эффекта и характеризуется двумя независимыми компонентами магнитоэлектрического тензора. Однако обоснование выбора магнитного класса в работе не дано. Дальнейшие исследования МЭ-эффекта в этом соединении проведены в [10]. В работе установлено, что двухподрешеточная модель гадолиниевой подсистемы и термодинамический потенциал для описания МЭ-эффекта, предложенные в предыдущей работе, оказываются недостаточными для описания магнитоэлектрической связи компонент M_x намагниченности и E_y электрического поля, обнаруженной экспериментально. В настоящей работе, исходя из известных экспериментальных данных с учетом пространственной симметрии, задаваемой группой $Cmce$, в рамках четырехподрешеточной модели для редкоземельных спинов изучен МЭ-эффект в Gd_2CuO_4, описаны магнитная динамика спинов, локализованных на ионах гадолиния, и влияние на нее внешних электрических полей.

При анализе МЭ-эффекта в температурном интервале ниже 7 K принимается во внимание только Gd-подсистема, поскольку, как указано выше, магнитные моменты, локализованные на этих ионах, значительно превосходят по величине моменты на ионах меди.

2. Термодинамический потенциал и симметрия

Поскольку при низких температурах в Gd_2CuO_4 волновой вектор $\mathbf{k}$ равен нулю, магнитная и кристаллохимическая решетки Браве совпадают (пример рассмотрения систем с $\mathbf{k} \neq 0$ приведен в [11]). Магнитная решетка Браве состоит из атомных магнитных моментов, полученных из одного момента в элементарной магнитной ячейке путем трансляции на целые периоды. Для рассмотрения магнитных свойств с учетом симметрии кристалла удобно пользоваться понятием магнитной подрешетки. Количество подрешеток в общем случае равно числу магнитных моментов в магнитной элементарной ячейке.

Гадолиний занимает кратную позицию Викоффа $8d$; другими словами, в элементарной ячейке имеется восемь ионов. Без принципиального ущерба для изучения магнитных свойств не будем использовать центрирующую трансляцию как элемент симметрии. Тогда вместо элементарной ячейки можно рассматривать примитивную [12]. Это приходится делать по ряду основных причин: неизвестно, как ведут себя магнитные моменты атомов при действии центрирующей трансляции (они могут поменять направление); с меньшим количеством атомов гораздо удобнее работать.

В примитивной ячейке Gd_2CuO_4 находится четыре атома гадолиния. Каждый j-й атом обладает магнитным моментом $\mathbf{m}_j$, поэтому с учетом трансляционной симметрии они образуют четыре магнитные подрешетки. Введем локальную подрешеточную намагниченность $\mathbf{M}_\nu(\mathbf{r})$ в точке с радиус-вектором $\mathbf{r}$, которая является суммой всех магнитных моментов ν-й подрешетки в физически малом объеме ΔV_r в окрестности точки $\mathbf{r}$:

$$\mathbf{M}_\nu(\mathbf{r}) = \frac{1}{\Delta V_r} \sum_j \mathbf{m}_{\nu j}, \tag{1}$$

Объем ΔV_r должен удовлетворять условию $a^3 \ll \Delta V_r \ll \lambda^3$, где λ — характерный размер неоднородностей распределения (длина спиновой волны, толщина доменной стенки), a — межатомное расстояние. Левая часть неравенства означает, что число частиц в объеме

Таблица 1. Перестановка атомов

Номер атома i	Элементы симметрии							
	g_1	g_2	g_3	g_4	g_{25}	g_{26}	g_{27}	g_{28}
1	1	2	4	3	4	3	1	2
2	2	1	3	4	3	4	2	1
3	3	4	2	1	2	1	3	4
4	4	3	1	2	1	2	4	3

ΔV_r достаточно велико. Усреднение (1) с учетом условия позволяет использовать как в статике, так и в динамике приближение сплошной среды. Локальная макроскопическая намагниченность кристалла (магнитный момент на единицу объема) будет определяться суммой намагниченностей четырех подрешеток

$$\mathbf{M} = \mathbf{M}_1 + \mathbf{M}_2 + \mathbf{M}_3 + \mathbf{M}_4. \qquad (2)$$

Для четырех магнитных подрешеток вводятся три вектора антиферромагнетизма

$$\mathbf{L}_a = \mathbf{M}_1 + \mathbf{M}_2 - \mathbf{M}_3 - \mathbf{M}_4, \qquad (3)$$

$$\mathbf{L}_b = \mathbf{M}_1 - \mathbf{M}_2 + \mathbf{M}_3 - \mathbf{M}_4, \qquad (4)$$

$$\mathbf{L}_c = \mathbf{M}_1 - \mathbf{M}_2 - \mathbf{M}_3 + \mathbf{M}_4. \qquad (5)$$

В введенной четырехподрешеточной модели $\mathbf{L}_a, \mathbf{L}_b$, $\mathbf{L}_c$ являются векторными параметрами антиферромагнитного порядка, $\mathbf{M}$ — векторным параметром ферромагнитного порядка, который возникает при наложении внешних полей.

Под действием пространственных элементов симметрии атом с координатами $\mathbf{r}_i$ переходит на место другого атома с координатами $\mathbf{r}_j$ или остается на месте:

$$g_\nu \mathbf{r}_i = h_\nu \mathbf{r}_i + \mathbf{t}_h = \mathbf{r}_j + \mathbf{a}_k,$$

где g_ν — элемент симметрии пространственной группы, h_ν — элемент симметрии точечной группы, $\mathbf{t}_h$ — вектор нетривиальной трансляции, $\mathbf{a}_k$ — вектор возвращающей трансляция. Запишем координаты четырех атомов гадолиния в установке $Cmce$:

$$1 - (x, 0, 0), \qquad 2 - (-x, 0, 0),$$

$$3 - (x, 1/2, 1/2), \quad 4 - (-x, 1/2, 1/2). \qquad (6)$$

Поочередно подействовав элементами симметрии пространственной группы $Cmce$ на четыре атома, получим схемы их взаимных перестановок, а следовательно, узнаем, как переставляются подрешетки. Информация о перестановках представлена в табл. 1, где элементы симметрии обозначены так же, как в [13].

Теперь построим таблицу преобразований $\mathbf{M}$, $\mathbf{L}_a$, $\mathbf{L}_b$, $\mathbf{L}_c$. Компоненты векторных параметров порядка преобразуются только по определенным неприводимым представлениям (НП) группы $Cmce$ [14] (в группе $Cmce$ только одномерные НП). Чтобы распределить компоненты по соответствующим НП, нужно знать, как они меняются при преобразованиях, переводящих кристаллическую решетку саму в себя. Такие преобразования симметрии действуют на векторный параметр порядка двумя путями. С одной стороны, элемент симметрии g_ν, действуя на вектор, производит над ним обычные повороты, отражения и инверсию. С другой стороны, он может переставлять атомы местами, тем самым меняя направление намагниченности подрешеток. При этом направление векторного параметра порядка может либо поменяться на противоположное, либо остаться таким же. Чтобы учесть такое двоякое действие, вводится понятие четного и нечетного элементов симметрии. Пусть элемент симметрии g_ν, который не меняет знак параметра порядка, называется четным, а элемент симметрии, который меняет знак, — нечетным. Обозначим четные и нечетные элементы как $g_\nu(+)$ и $g_\nu(-)$ соответственно. Любые перестановки подрешеток не изменяют знак макроскопической намагниченности кристалла $\mathbf{M}$, поскольку она состоит из суммы намагниченностей подрешеток, поэтому для нее все элементы четные.

В итоге симметрийные преобразования можно свести к формуле, которая показывает, как изменяются компоненты некоторого вектора $\mathbf{A}$:

$$g_\nu(\pm)\mathbf{A} = \pm\delta(g_\nu)\begin{pmatrix} R_{xx}(g_\nu) & 0 & 0 \\ 0 & R_{yy}(g_\nu) & 0 \\ 0 & 0 & R_{zz}(g_\nu) \end{pmatrix}\begin{pmatrix} A_x \\ A_y \\ A_z \end{pmatrix}, \qquad (7)$$

где $\mathbf{A} = \mathbf{M}, \mathbf{L}_\alpha, \mathbf{L}_b, \mathbf{L}_c$; $\delta(g_\nu)$ — множитель,равный -1, если вектор $\mathbf{A}$ — аксиальный и на него воздействуют элементы, которые содержат в себе пространственную инверсию (т. е. элементы, начиная с g_{25}), во всех остальных случаях он равен $+1$. Перед выражением ставится знак плюс, если элемент четный, и знак минус, если элемент нечетный. Компоненты вектора преобразуются поворотными матрицами $R(g_\nu)$, каждая из которых соответствует элементу g_ν. В нашем случае все поворотные матрицы $R(g_\nu)$ являются диагональными.

Применим формулу (7) для магнитного поля $\mathbf{H}$ и электрического поля $\mathbf{E}$,а также для электрической поляризации кристалла $\mathbf{P}$, которую мы изначально рассматриваем в приближении сплошной среды, т. е. вектор $\mathbf{A} = \mathbf{H}$, $\mathbf{E}$, $\mathbf{P}$. При этом следует учитывать, что $\mathbf{P}$ и $\mathbf{E}$ являются полярными векторами в отличие от всех остальных рассматриваемых векторов. Векторы, для которых не играет роли понятие четного и нечетного элемента, преобразуются одинаково, например $\mathbf{M}$ и $\mathbf{H}$ или $\mathbf{P}$ и $\mathbf{E}$. Преобразования компонент $\mathbf{M}$, $\mathbf{L}_a$, $\mathbf{L}_b$, $\mathbf{L}_c$, $\mathbf{H}$, $\mathbf{E}$, $\mathbf{P}$, полученные с помощью (7), представлены в табл. 2.

В то же время данная таблица представляет собой таблицу характеров для пространственной группы $Cmce$, что позволяет распределить компоненты векторов, зная их преобразования, по соответствующим НП. В табл. 2 НП обозначено как τ_ν, в скобках указаны обозначения, используемые в [15]. Смене знака компоненты соответствует -1; 1 соответствует случаю, когда компонента не

Таблица 2. Преобразование базисных функций для *Cmce*

Неприводимое представление	Элементы симметрии								Базисные функции
	g_1	g_2	g_3	g_4	g_{25}	g_{26}	g_{27}	g_{28}	
$\tau_1(A_g)$	1	1	1	1	1	1	1	1	L_{ax}
$\tau_2(A_u)$	1	1	1	1	−1	−1	−1	−1	L_{bx}
$\tau_3(B_{3g})$	1	1	−1	−1	1	1	−1	−1	M_x, H_x
$\tau_4(B_{3u})$	1	1	−1	−1	−1	−1	1	1	L_{cx}, P_x, E_x
$\tau_5(B_{2g})$	1	−1	1	−1	1	−1	1	−1	M_y, L_{az}, H_y
$\tau_6(B_{2u})$	1	−1	1	−1	−1	1	−1	1	L_{bz}, L_{cy}, P_y, E_y
$\tau_7(B_{1g})$	1	−1	−1	1	1	−1	−1	1	M_z, L_{ay}, H_z
$\tau_8(B_{1u})$	1	−1	−1	1	−1	1	1	−1	L_{by}, L_{cz}, P_z, E_z

поменяла знак. Распределенные по НП компоненты векторных параметров порядка, электрической поляризации и внешних полей являются базисными функциями этого НП.

Прежде чем строить термодинамический потенциал, необходимо найти инвариантные комбинации базисных функций (инварианты) относительно операций симметрии пространственной группы и инверсии времени. Произведение базисных функций будет являться инвариантом, если произведение соответствующих им неприводимых представлений содержит единичное представление: $\tau_1 \in \tau_{\nu_1} \times \tau_{\nu_2} \times \ldots \times \tau_{\nu_n}$. С помощью табл. 2 можно выяснить, какие инварианты, удовлетворяющие данному условию, могут существовать. В термодинамическом потенциале будут присутствовать только четные степени по параметрам порядка, так как он должен быть инвариантен относительно инверсии времени. В нашем рассмотрении ограничимся инвариантами степенью не выше второй по параметрам порядка. Можно найти такие комбинации, которые бы не удовлетворяли симметрии группы, но при добавлении в произведение множителя, состоящего из какой-либо компоненты вектора $\mathbf{P}$, становились бы инвариантными. Такие инварианты называются магнитоэлектрическими или антиферроэлектрическими. Они отвечают соответственно за магнитоэлектрический и антиферроэлектрический эффекты в термодинамическом потенциале. Запишем в табл. 3 все возможные инвариантные произведения относительно симметрии пространственной группы и операции инверсии времени.

Плотность термодинамического потенциала нашей системы схематически можно записать как $\Phi = \Phi_M + \Phi_P + \Phi_{MP} + \Phi_{LP} - \mathbf{MH} - \mathbf{PE}$, где Φ_M подразумевает под собой плотность энергии магнитной подсистемы, Φ_P — электрической, Φ_{MP} — магнитоэлектрической, Φ_{LP} — антиферроэлектрической, инвариант $\mathbf{MH}$ описывает энергию взаимодействия магнитной подсистемы с внешним магнитным полем (зеемановская энергия), а инвариант $\mathbf{PE}$ — энергию взаимодействия электрической подсистемы с внешним электрическим полем. Если расписывать конкретно, подставляя в выражение найденные инварианты, получим

$$\begin{aligned}\Phi = {} & J_0\mathbf{M}^2 + J_1\mathbf{L}_a^2 + J_2\mathbf{L}_b^2 + J_3\mathbf{L}_c^2 + K_1M_x^2 + K_2M_y^2 + K_3M_z^2 \\ & + K_4L_{ax}^2 + K_5L_{ay}^2 + K_6L_{az}^2 + K_7L_{bx}^2 + K_8L_{by}^2 + K_9L_{bz}^2 \\ & + K_{10}L_{cx}^2 + K_{11}L_{cy}^2 + K_{12}L_{cz}^2 + D_1M_yL_{az} + D_2M_zL_{ay} \\ & + D_3L_{by}L_{cz} + D_4L_{bz}L_{cy} + \kappa_1^{-1}P_x^2 + \kappa_2^{-1}P_y^2 + \kappa_3^{-1}P_z^2 \\ & + \gamma_1L_{bx}M_xP_x + \gamma_2L_{bx}M_yP_y + \gamma_3L_{bx}M_zP_z \\ & + \gamma_4L_{by}M_xP_y + \gamma_5L_{cz}M_xP_y + \gamma_6L_{by}M_yP_x \\ & + \gamma_7L_{cz}M_yP_x + \gamma_8L_{bz}M_xP_z + \gamma_9L_{cy}M_xP_z \\ & + \gamma_{10}L_{bz}M_zP_x + \gamma_{11}L_{cy}M_zP_x + \gamma_{12}L_{cx}M_zP_y \\ & + \gamma_{13}L_{cx}M_yP_z + \xi_1L_{ay}L_{bz}P_x + \xi_2L_{ay}L_{cx}P_x \\ & + \xi_3L_{ay}L_{cy}P_x + \xi_4L_{az}L_{cz}P_x + \xi_5L_{ay}L_{cx}P_y + \xi_6L_{az}L_{bx}P_y \\ & + \xi_7L_{ay}L_{bx}P_z + \xi_8L_{az}L_{cx}P_z - \mathbf{MH} - \mathbf{PE}, \end{aligned} \tag{8}$$

где J_0, J_1, J_2, J_3 — константы обменного взаимодействия, $K_1, K_2, \ldots, K_{12}, D_1, D_2, D_3, D_4$ — константы магнитной анизотропии, $\kappa_1, \kappa_2, \kappa_3$ — электрические восприимчивости, $\gamma_1, \gamma_2, \ldots, \gamma_{13}$ — коэффициенты магнитоэлектрического взаимодействия, $\xi_1, \xi_2, \ldots, \xi_8$ — коэффициенты антиферроэлектрического взаимодействия. В записанном потенциале члены с коэффициентами γ_4, γ_5 отвечают зависимости M_x от E_y, которая была найдена в эксперименте и не описывалась двухподрешеточной моделью в [10], что позволяет сделать заключение о состоятельности выбранного подхода для описания МЭ-эффекта. Использование полученного термодинамического потенциала затруднительно, однако далее мы применим метод спин-волновых представлений [16], позволяющий упростить потенциал и рассмотрение задачи в целом.

В обменном приближении Gd_2CuO_4 обладает коллинеарной антиферромагнитной структурой. Это означает, что магнитные моменты ионов могут ориентироваться только параллельно или антипараллельно какому-либо одному направлению. Такое направление тоже может иметь определенную ориентацию относительно кристаллографических осей. В таком случае рассматривают различные ориентационные состояния (фазы) одной и той же обменной магнитной структуры. Какое из возможных ориентационных состояний для данной структуры реализуется при тех или иных условиях, определяется магнитоанизотропными взаимодействиями, имеющими релятивистское происхождение, которое для Gd_2CuO_4 мало по сравнению с обменным взаимодействием. Благодаря этому ориентационное состояние обычно может быть изменено магнитным полем, давлением, температурой, а в нашем случае и электрическим полем. Такие переходы от одного равновесного ориентационного состояния к другому носят название ориентационных (или переориентационных) магнитных фазовых переходов.

Таблица 3. Инвариантные произведения базисных функций

Произведение представлений	Инвариантные комбинации	
	магнитные	электрические
$\tau_1 \times \tau_1$	L_{ax}^2	
$\tau_2 \times \tau_2$	L_{bx}^2	
$\tau_3 \times \tau_3$	M_x^2	
$\tau_4 \times \tau_4$	L_{cx}^2	P_x^2
$\tau_5 \times \tau_5$	$M_y^2, L_{az}^2, M_yL_{az}$	
$\tau_6 \times \tau_6$	$L_{bz}^2, L_{cy}^2, L_{bz}L_{cy}$	P_y^2
$\tau_7 \times \tau_7$	$M_z^2, L_{ay}^2, M_zL_{ay}$	
$\tau_8 \times \tau_8$	$L_{by}^2, L_{cz}^2, L_{by}L_{cz}$	P_z^2
	магнитоэлектрические	антиферроэлектрические
$\tau_2 \times \tau_3 \times \tau_4$	$L_{bx}M_xP_x$	
$\tau_2 \times \tau_5 \times \tau_6$	$L_{bx}M_yP_y$	$L_{az}L_{bx}P_y$
$\tau_2 \times \tau_7 \times \tau_8$	$L_{bx}M_zP_z$	$L_{ay}L_{bx}P_z$
$\tau_3 \times \tau_6 \times \tau_8$	$L_{by}M_xP_y, L_{bz}M_xP_z, L_{cy}M_xP_z, L_{cz}M_xP_y$	
$\tau_4 \times \tau_5 \times \tau_8$	$L_{by}M_yP_x, L_{cx}M_yP_z, L_{cz}M_yP_x$	$L_{az}L_{by}P_x, L_{az}L_{cx}P_z, L_{az}L_{cz}P_x$
$\tau_4 \times \tau_6 \times \tau_7$	$L_{bz}M_zP_x, L_{cx}M_zP_y, L_{cy}M_zP_x$	$L_{ay}L_{bz}P_x, L_{ay}L_{cx}P_y, L_{ay}L_{cy}P_x$

Каждой фазе (или энергии, которой она обладает) должно соответствовать НП [15]. Спин-волновое представление — прямое произведение двух неприводимых представлений, определяющее неприводимое представление фазы. Поскольку энергия основного состояния — постоянная величина, базисные функции, входящие в НП фазы, являются константами. Каждому спин-волновому представлению соответствует набор независимых динамических переменных (спин-волновые моды). Динамические переменные — базисные функции, зависящие от времени, которые преобразуются по представлениям, определяющим данное спин-волновое представление. Все базисные функции, кроме динамических переменных и функций основного ориентационного состояния, равны нулю. Исследование магнитной динамики значительно упрощается, если использовать подход, основанный на нахождении спин-волновых представлений для рассматриваемой фазы. Например, динамические переменные можно найти еще до записи уравнений движения, что позволяет записать независимую систему уравнений Ландау–Лифшица для каждого набора. В работе ограничимся такими членами в потенциале, в которых произведение динамических переменных дает степень не выше второго порядка.

Выберем фазу $\tau_6(\overline{L}_{bz}, \overline{L}_{cy})$, где основными магнитными ориентационными состояниями являются $\overline{L}_{bz}, \overline{L}_{cy}$ (черта над буквой указывает на то, что это константа). С равной возможностью симметрия разрешает существование $\overline{L}_{bz}$- и $\overline{L}_{cy}$-состояний. В реальной системе одна из этих компонент значительно больше другой. Узнать, какая именно, можно только из микроскопической теории или из эксперимента. Это выходит за рамки феноменологической теории, но если учесть, что могут существовать слабые релятивистские взаимодействия, дающие малую неколлинеарность, то обе величины можно рассматривать вместе, при этом в обменном приближении антиферромагнетик по-прежнему будет коллинеарным.

НП фазы можно получить с помощью прямого произведения НП $\tau_3(M_x)$ и НП $\tau_8(L_{by}, L_{cz})$: $\tau_6(\overline{L}_{bz}, \overline{L}_{cy}) = \tau_3(M_x) \times \tau_8(L_{by}, L_{cz})$. Другими словами, $\tau_{38}(M_x, L_{by}, L_{cz})$ является модой, где M_x, L_{by}, L_{cz} — динамические переменные, зависящие от времени t. Основная причина выбора фазы τ_6 и соответствующей ей моды τ_{38} заключается в том, что они оставляют в потенциале необходимые магнитоэлектрические члены, которые были найдены в эксперименте, а именно M_x (E_y) и M_x (E_z). В других фазах экспериментальные зависимости присутствуют не полностью или дают более высокие порядки, чем необходимо. Заметим, что поля E_y, E_z, H_x с точки зрения симметрии не будут менять основное состояние, поскольку они преобразуются по НП фазы и моды.

Для фазы $\tau_6(\overline{L}_{bz}, \overline{L}_{cy})$ количество членов, входящих в полный термодинамический потенциал, значительно уменьшается. С учетом спин-волновой моды $\tau_{38}(M_x, L_{by}, L_{cz})$ плотность термодинамического потенциала (энергию основного магнитного состояния) можно переписать в следующем виде:

$$\begin{aligned}\Phi = {} & \Phi_0\left(\overline{L}_{bz}^2, \overline{L}_{cy}^2, \overline{L}_{bz}\overline{L}_{cy}\right) + (J_0 + K_1)M_x^2 + (J_2 + K_8)L_{by}^2 \\ & + (J_3 + K_{12})L_{cz}^2 + D_3 L_{by}L_{cz} + \kappa_1^{-1}P_x^2 + \kappa_2^{-1}P_y^2 \\ & + \kappa_3^{-1}P_z^2 + \gamma_4 L_{by}M_xP_y + \gamma_5 L_{cz}M_xP_y + \gamma_8 \overline{L}_{bz}M_xP_z \\ & + \gamma_9 \overline{L}_{cy}M_xP_z - M_xH_x - P_xE_x - P_yE_y - P_zE_z, \end{aligned} \qquad (9)$$

где $\Phi_0(\overline{L}_{bz}^2, \overline{L}_{cy}^2, \overline{L}_{bz}\overline{L}_{cy})$ — константа, состоящая из инвариантов, не зависящих от динамических переменных.

Воспользуемся условиями равновесия для термодинамического потенциала: $\partial\Phi/\partial P_x = 0$, $\partial\Phi/\partial P_y = 0$,

$\partial\Phi/\partial P_z = 0$. Минимизируя его по P_x, P_y, P_z, получаем систему уравнений, из которой можно выделить зависимость P_x, P_y, P_z от динамических переменных моды $\tau_{38}(M_x, L_{by}, L_{cz})$,

$$\begin{cases} P_x = \frac{1}{2}\kappa_1 E_x, \\ P_y = \frac{1}{2}\kappa_2 E_y - \frac{1}{2}\kappa_2\gamma_4 L_{by}M_x - \frac{1}{2}\kappa_2\gamma_5 L_{cz}M_x, \\ P_z = -\frac{1}{2}\kappa_3 E_z - \frac{1}{2}\kappa_3\gamma_8 L_{bz}M_x - \frac{1}{2}\kappa_3\gamma_9 L_{cy}M_x. \end{cases} \tag{10}$$

Применение этих условий допустимо, потому что для упрощения мы предполагаем, что поляризация **P** успевает достаточно быстро измениться вслед за изменениями динамических переменных.

Существует еще одна возможность упростить расчеты, если рассматривать равномодульную модель, которая заключается в том, что длины магнитных моментов равны между собой и не изменяются

$$\mathbf{M}_1^2 = \mathbf{M}_2^2 = \mathbf{M}_3^2 = \mathbf{M}_4^2 = M_0^2 = \text{const}. \tag{11}$$

где M_0 — модуль намагниченности одной подрешетки. Из этого условия следуют выражения, связывающие между собой параметры порядка, а именно для четырехподрешеточной модели получаются три системы уравнений

$$\begin{cases} \mathbf{M}\mathbf{L}_a + \mathbf{L}_b\mathbf{L}_c = 0, \\ \mathbf{M}\mathbf{L}_b + \mathbf{L}_a\mathbf{L}_c = 0, \\ \mathbf{M}\mathbf{L}_c + \mathbf{L}_a\mathbf{L}_b = 0. \end{cases} \tag{12}$$

Учитывая то, что мы рассматриваем фазу $\tau_6(\overline{L}_{bz}, \overline{L}_{cy})$ и моду $\tau_{38}(M_x, L_{by}, L_{cz})$, получаем из условия (12) следующую связь: $L_{cz} = -\overline{L}_{cy}\overline{L}_{bz}^{-1}L_{by}$, благодаря которой в рассматриваемой задаче остаются всего две динамические переменные. Теперь запишем окончательный вид термодинамического потенциала, подставив в него все полученные соотношения,

$$\begin{aligned} \Phi = {} & \frac{\kappa_3}{4}\left(4\kappa_3^{-1}J_0 - \gamma_8^2\overline{L}_{bz}^2 - \gamma_9^2\overline{L}_{cy}^2 - 3\gamma_8\gamma_9\overline{L}_{bz}\overline{L}_{cy}\right)M_x^2 \\ & + \left(J_2 + K_8 + (J_3 + K_{12})\frac{\overline{L}_{cy}^2}{\overline{L}_{bz}^2} - D_3\frac{\overline{L}_{cy}}{\overline{L}_{bz}}\right)L_{by}^2 \\ & + \frac{3\kappa_2}{4}\left(\gamma_4 - \gamma_5\frac{\overline{L}_{cy}}{\overline{L}_{bz}}\right)E_y L_{by}M_x \\ & + \left(\frac{3\kappa_3}{4}\left(\gamma_8\overline{L}_{bz} + \gamma_9\overline{L}_{cy}\right)E_z - H_x\right)M_x \\ & - \frac{1}{4}\left(\kappa_1 E_x^2 + \kappa_2 E_y^2 + \kappa_3 E_z^2\right). \end{aligned} \tag{13}$$

3. АФМР и динамические восприимчивости

Динамика векторных параметров порядка $\mathbf{M}$, $\mathbf{L}_a$, $\mathbf{L}_b$, $\mathbf{L}_c$ описывается с помощью уравнений Ландау–Лифшица, составленных для четырехподрешеточной модели,

$$\begin{aligned} \frac{1}{\gamma}\dot{\mathbf{M}} &= \left[\mathbf{M}, \frac{\partial\Phi}{\partial\mathbf{M}}\right] + \left[\mathbf{L}_a, \frac{\partial\Phi}{\partial\mathbf{L}_a}\right] + \left[\mathbf{L}_b, \frac{\partial\Phi}{\mathbf{L}_b}\right] + \left[\mathbf{L}_c, \frac{\partial\Phi}{\partial\mathbf{L}_c}\right], \\ \frac{1}{\gamma}\dot{\mathbf{L}}_a &= \left[\mathbf{M}, \frac{\partial\Phi}{\partial\mathbf{L}_a}\right] + \left[\mathbf{L}_a, \frac{\partial\Phi}{\partial\mathbf{M}}\right] + \left[\mathbf{L}_b, \frac{\partial\Phi}{\mathbf{L}_c}\right] + \left[\mathbf{L}_c, \frac{\partial\Phi}{\partial\mathbf{L}_b}\right], \\ \frac{1}{\gamma}\dot{\mathbf{L}}_b &= \left[\mathbf{M}, \frac{\partial\Phi}{\partial\mathbf{L}_b}\right] + \left[\mathbf{L}_a, \frac{\partial\Phi}{\partial\mathbf{L}_c}\right] + \left[\mathbf{L}_b, \frac{\partial\Phi}{\mathbf{M}}\right] + \left[\mathbf{L}_c, \frac{\partial\Phi}{\partial\mathbf{L}_a}\right], \\ \frac{1}{\gamma}\dot{\mathbf{L}}_c &= \left[\mathbf{M}, \frac{\partial\Phi}{\partial\mathbf{L}_c}\right] + \left[\mathbf{L}_a, \frac{\partial\Phi}{\partial\mathbf{L}_b}\right] + \left[\mathbf{L}_b, \frac{\partial\Phi}{\mathbf{L}_a}\right] + \left[\mathbf{L}_c, \frac{\partial\Phi}{\partial\mathbf{M}}\right], \end{aligned} \tag{14}$$

где γ — скалярное магнитомеханическое отношение. Из двенадцати уравнений Ландау–Лифшица для выбранной нами фазы $\tau_6(\overline{L}_{bz}, \overline{L}_{cy})$ и спин-волновой моды $\tau_{38}(M_x, L_{by}, L_{cz})$ сразу выделяется независимая система уравнений для двух динамических переменных

$$\begin{cases} \dot{M}_x = -\gamma\overline{L}_{bz}\frac{\partial\Phi}{\partial L_{by}}, \\ \dot{L}_{by} = \gamma\overline{L}_{bz}\frac{\partial\Phi}{\partial M_x}. \end{cases} \tag{15}$$

Приложим к кристаллу поля $E_y = \text{const}$, $E_z(t) = E_z^0\exp(-i\omega t)$, $H_x(t) = H_x^0\exp(-i\omega t)$, где ω — частота внешних полей, которые, как уже указывалось, не меняют основное ориентационное состояние. Тогда, подставляя в уравнения (15) плотность термодинамического потенциала, получим

$$\begin{cases} \dot{M}_x = 2\gamma\overline{L}_{bz}\big(D_3\overline{L}_{bz}\overline{L}_{cy} - (J_2 + K_8)\overline{L}_{bz}^2 \\ \qquad - (J_3 + K_{12})\overline{L}_{cy}^2\big)L_{by} - \frac{3\gamma\kappa_2}{4}\left(\gamma_5\overline{L}_{cy} - \gamma_4\overline{L}_{bz}\right)E_y M_x, \\ \dot{L}_{by} = -\frac{2\gamma\kappa_3\overline{L}_{bz}}{4}\big(\gamma_8^2\overline{L}_{bz}^2 + \gamma_9^2\overline{L}_{cy}^2 + 3\gamma_8\gamma_9\overline{L}_{bz}\overline{L}_{cy} \\ \qquad - 4\kappa_3^{-1}J_0\big)M_x + \frac{3\gamma\kappa_2}{4}\left(\gamma_5\overline{L}_{cy} - \gamma_4\overline{L}_{bz}\right)E_y L_{by} \\ \qquad + \frac{3\gamma\kappa_3\overline{L}_{bz}}{4}\left(\gamma_8\overline{L}_{bz} - \gamma_9\overline{L}_{cy}\right)E_z - \gamma\overline{L}_{bz}H_x. \end{cases} \tag{16}$$

Решением этой простой системы уравнений при нулевых полях будут $M_x(t) = M_x^0\exp(-i\Omega_0 t)$ и $L_{by}(t) = L_{by}^0\exp(-i\Omega_0 t)$, где M_x^0 и L_{by}^0 — амплитуды колебаний динамических переменных. Члены с коэффициентами γ_8 и γ_9 приравниваем к нулю, так как при отсутствии внешнего электрического поля и спонтанной поляризации МЭ-эффект не проявляется. Находим из системы собственную частоту АФМР

$$\Omega_0^2 = 4\gamma^2 J_0\big((J_2 + K_8)\overline{L}_{bz}^2 + (J_3 + K_{12})\overline{L}_{cy}^2 - D_3\overline{L}_{bz}\overline{L}_{cy}\big). \tag{17}$$

При приложенном электрическом поле $E_y = \text{const}$ к собственной частоте АФМР добавляется член, зависящий от этого поля,

$$\Omega_E^2 = \left(\frac{3\gamma\kappa_2}{4}\left(\gamma_4\overline{L}_{bz} - \gamma_5\overline{L}_{cy}\right)\right)^2 E_y^2. \tag{18}$$

Чтобы найти теперь динамические восприимчивости, выражаем M_x из системы уравнений (16) через внешние поля E_z, H_x и получаем

$$M_x^0 = \frac{3\kappa_3 L(\gamma_8 \overline{L}_{bz} + \gamma_9 \overline{L}_{cy})}{2(\omega_0^2 - \omega^2)} E_z^0 - \frac{2L}{\omega_0^2 - \omega^2} H_x^0, \qquad (19)$$

где

$$L = \gamma^2 \left(D_3 \overline{L}_{bz} \overline{L}_{cy} - (J_2 + K_8)\overline{L}_{bz}^2 - (J_3 + K_{12})\overline{L}_{cy}^2 \right), \quad (20)$$

а $\omega_0^2 = \Omega_0^2 + \Omega_E^2$ — частота колебаний динамических переменных (при полях E_z и H_x нужно включить в Ω_0 члены с γ_8 и γ_9). Зависимость намагниченности от внешнего магнитного поля и внешнего электрического поля выражается через соотношение $M_i = \alpha_{ij} E_j + \chi_{ij} H_j$, а с учетом выбранных полей это соотношение можно переписать: $M_x = \alpha_{xz} E_z + \chi_{xx} H_x$. Сравнивая эту зависимость с выражением для намагниченности, можно найти динамическую магнитоэлектрическую восприимчивость α_{xz}

$$\alpha_{xz} = \frac{3\kappa_3 L \left(\gamma_8 \overline{L}_{bz} + \gamma_9 \overline{L}_{cy}\right)}{2(\omega_0^2 - \omega^2)} \qquad (21)$$

и динамическую магнитную восприимчивость χ_{xx}

$$\chi_{xx} = -\frac{2L}{\omega_0^2 - \omega^2}. \qquad (22)$$

Поступая так же, как в случае M_x, выразим L_{by} через внешние поля. Тогда получаем, что $L_{by} = \beta_{yz}^{(L_b)} E_z^0 + \delta_{yx}^{(L_b)} H_x^0$, где β_{yz} — динамическая антиферроэлектрическая восприимчивость, а δ_{yx} — динамическая антиферромагнитная восприимчивость. Для двух последних величин имеем следующие выражения:

$$\beta_{yz} = -i\omega \frac{3\gamma\kappa_3 \overline{L}_{bz} \left(\gamma_8 \overline{L}_{bz} + \gamma_9 \overline{L}_{cy}\right)}{4\omega_0^2 - \omega^2}, \qquad (23)$$

$$\delta_{yx} = i\omega \frac{\gamma \overline{L}_{bz}}{\omega_0^2 - \omega^2}. \qquad (24)$$

4. Заключение

В работе было продемонстрировано использование теоретико-групповых методов на примере четырехподрешеточной модели для гадолиниевой подсистемы в Gd_2CuO_4. Теоретико-групповой анализ потенциала показал, что в нем содержатся члены МЭ-взаимодействий, соответствующие зависимостям M_x от E_y и M_x от E_z, найденным в эксперименте. Учет четности элементов $g_\nu(\pm)$ позволил распределить базисные функции по НП для пространственной группы $Cmce$. Последние в сочетании с экспериментальными данными по МЭ-эффекту позволяют сделать предположение об ориентационном состоянии магнитных подрешеток при низких температурах, а именно были предложены фаза $\tau_6(\overline{L}_{bz}, \overline{L}_{cy})$ и спин-волновая мода $\tau_{38}(M_x, L_{by}, L_{cz})$. С помощью табл. 2 можно сделать предположения о том, какие внешние поля могут изменить ориентационное состояние в кристалле, например: поле E_x может поменять состояние на L_{cx}, поле H_y — на L_{az}, поле H_z — на L_{ay}.

Теория спин-волновых представлений позволила найти динамические величины и получить для них систему уравнений Ландау–Лифшица, а также существенно уменьшить количество членов в термодинамическом потенциале. Из системы уравнений была определена собственная частота АФМР Ω_0. Учет МЭ-взаимодействия позволил говорить о существовании сдвига собственной частоты внешним электрическим полем E_y.

Были получены динамические восприимчивости $\alpha_{xz}, \chi_{xx}, \beta_{yz}, \delta_{yx}$, которые имеют резонансный характер, при этом резонанс может управляться внешним полем E_y. Альтернативные вычисления динамических восприимчивостей весьма непростые, требуют сложного математического аппарата или численных методов. Антиферроэлектрическая и антиферромагнитная восприимчивости позволяют учесть потери на тепло, связанные с возбуждением антимагнонов внешними полями. Чтобы получить остальные тензорные компоненты динамических восприимчивостей, необходимо изменить ориентационное состояние, например приложить внешние поля, не входящие в фазу $\tau_6(\overline{L}_{bz}, \overline{L}_{cy})$ и в моду $\tau_{38}(M_x, L_{by}, L_{cz})$. При другом ориентационном состоянии следует рассматривать новые фазы и спин-волновые моды, для которых термодинамический потенциал и уравнения Ландау–Лифшица будут другими. Следует отметить, что в уравнениях для магнитной динамики не учитывалась релаксация, иначе описание магнитодинамики становится более сложной задачей, а условия равномодульной модели могут перестать выполняться [16]. Учет релаксации не позволил бы использовать теоретико-групповые методы в таком простом применении. Данный подход — один из немногих, который позволяет построить термодинамический потенциал и в дальнейшем его анализировать. В дополнение отметим, что представленный в работе подход можно применять для рассмотрения и предсказания большого количества эффектов, например для предсказания фотогальванического эффекта в центроантисимметричном антиферромагнитке [17].

Список литературы

[1] Y. Tokura, H. Takagi, S. Uchida. Nature **337**, 345 (1989).
[2] М.Ю. Изюмов. УФН **161**, 1 (1991).
[3] T. Chattopadhyay, P.J. Brown, A.A. Stepanov, P. Wyder, J. Voiron, A.I. Zvyagin, S.N. Barilo, D.I. Zhigunov, I. Zobkalo. Phys. Rev. B **44**, 9486 (1991).
[4] T. Chattopadhyay, P.J. Brown, B. Roessli, A.A. Stepanov, S.N. Barilo, D.I. Zhigunov. Phys. Rev. B **46**, 5731 (1992).
[5] A.A. Stepanov, P. Wyder, T. Chattopadhyay, P.J. Brown, G. Fillion, I.M. Vitebsky, A. Deville, B. Gaillard, S.N. Barilo, D.I. Zhigunov. Phys. Rev. B **48**, 12 979 (1993).

[6] M. Braden, W. Paulus, A. Cousson, P. Vigoureux, G. Heger, A. Goukassov, P. Bourges, D. Petitgrand. Europhys. Lett. **25**, *8*, 625 (1994).
[7] J.D. Thompson, S.W. Cheong, S.E. Brown, Z. Fisk, S.B. Oseroff, M. Tovar, D.C. Vier, S. Schults. Phys. Rev. B **39**, 6660 (1989).
[8] P.J. Brown, T. Chatterji. arXiv:1105.6196v1 (2011).
[9] H. Wiegelmann, A.A. Stepanov, I.M. Vitebsky, A.G.M. Jansen, P. Wyder. Phys. Rev. B **49**, 10 039 (1994).
[10] А.И. Смирнов, И.Н. Хлюстиков. ЖЭТФ, **10**, *2(8)*, 706 (1995).
[11] В.В. Меньшенин. ФТТ **54**, 1891 (2012).
[12] Е.А. Туров, А.В. Колчанов, В.В. Меньшенин, И.Ф. Мирсаев, В.В. Николаев. Симметрия и физические свойства антиферромагнетиков. Физматлит, М. (2001). 512 с.
[13] О.В. Ковалев. Неприводимые и индуцированные представления и копредставления федоровских групп. Наука, М. (1986), 368 с.
[14] Е.А. Туров, В.В. Николаев. УФН **175**, 457 (2005).
[15] Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. Квантовая механика (нерелятивистская теория). Физматлит, М. (2004). 800 с.
[16] Е.А. Туров, А.В. Колчанов, В.В. Меньшенин, И.Ф. Мирсаев, В.В. Николаев. УФН **168**, 1303 (1998).
[17] В.В. Меньшенин. ФТТ **46**, 2014 (2004).