

05

Модулированная магнитная фаза структурно неоднородных легкоплоскостных слабых ферромагнетиков

© Д.Р. Джураев, Л.Н. Ниязов, Б.Ю. Соколов

Национальный университет Узбекистана им. Улугбека,
100174 Ташкент, Узбекистан
e-mail: bsoptic@rambler.ru

(Поступило в Редакцию 21 сентября 2015 г.)

В рамках термодинамической теории фазовых переходов Ландау проведено рассмотрение модулированной магнитной фазы структурно неоднородного легкоплоскостного слабого ферромагнетика. Определены температурная и полевая зависимости основных параметров модуляции магнитного порядка. Сравнение полученных результатов с данными экспериментальных исследований выполнено на примере ориентационного фазового перехода в модулированное магнитное состояние в кристаллах гематита и бората железа, состав которых для создания структурной неоднородности допировался диамагнитными ионами. Показано, что предложенная теоретическая модель с некоторыми оговорками позволяет непротиворечиво описать всю совокупность имеющихся экспериментальных результатов.

Известно, что при определенных условиях в кристалле во внешнем магнитном поле возможно устойчивое состояние с длиннопериодической пространственной модуляцией магнитного порядка [1]. В частности, индуцированные магнитным полем модулированные магнитные структуры (ММС) наблюдались экспериментально в легкоплоскостных слабых ферромагнетиках — борате железа и гематите, состав которых для создания дефектов кристаллической решетки допировался диамагнитными примесями (в структурно неоднородных кристаллах $\text{FeVO}_3:\text{Mg}$ и $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3:\text{Ga}$ соответственно) [2]. В номинально чистых (беспримесных) кристаллах гематита и бората железа при тех же условиях эксперимента ММС не наблюдается.

К настоящему времени ММС обнаружены у большого числа кристаллов с различным типом магнитного упорядочения и основные микроскопические механизмы, ответственные за модуляцию магнитного порядка, считаются известными. Так, например, для изоляторов и полупроводников — это либо обменные взаимодействия разных знаков между ближайшими атомными соседями и следующими за ближайшими, либо релятивистское взаимодействие Дзялошинского–Мория, существующее в кристаллах специальной симметрии [3]. Однако ММС, реализующиеся в $\text{FeVO}_3:\text{Mg}$ и $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3:\text{Ga}$, имеют ряд особенностей: в частности, с ростом напряженности магнитного поля H их пространственный период d уменьшается, тогда как в большинстве случаев для ММС кристаллов характерна обратная зависимость $d(H)$ [3]. Поэтому выяснение причин, приводящих к модуляции магнитного порядка в $\text{FeVO}_3:\text{Mg}$ и $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3:\text{Ga}$, требует дополнительного рассмотрения, которое проведем в рамках известной термодинамической теории фазовых переходов, основывающейся на разложении функционала Гинзбурга–Ландау кристалла по степеням параметра магнитного порядка.

Поскольку в реальных магнитоупорядоченных кристаллах ММС возникают вдоль некоторых выделенных кристаллографически эквивалентных направлений, то, как правило, при поиске соответствующей неоднородной магнитной фазы можно учитывать в функционале лишь инварианты с производными по одной координате. Если переход в модулированное магнитное состояние происходит во внешнем магнитном поле (ориентационный фазовый переход), то естественно, что неоднородную магнитную фазу следует искать среди решений уравнения минимизации функционала Гинзбурга–Ландау с учетом взаимодействия магнитной подсистемы кристалла с полем H .

По имеющимся экспериментальным данным ММС кристаллов $\text{FeVO}_3:\text{Mg}$ и $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3:\text{Ga}$ представляется статичной поперечной спиновой волной, линейно поляризованной в плоскости (111), в которой азимут локального вектора слабого ферромагнетизма осциллирует при смещении вдоль направления поля \mathbf{H} [2,4]. В этом случае при рассмотрении модулированной магнитной фазы кристалла может быть использован функционал Гинзбурга–Ландау с однокомпонентным параметром порядка [3]:

$$\Phi = \int dx \left[r\eta^2 + u\eta^4 + \sum_n \omega_n \eta^n + \varepsilon(\dot{\eta})^2 + \beta(\ddot{\eta})^2 \right], \quad (1)$$

где x — текущая координата вдоль оси структуры (вдоль направления ее волнового вектора \mathbf{k}), η — параметр порядка (точки над η означают соответствующую производную по x), константы r и u удовлетворяют стандартным условиям теории фазовых переходов Ландау. $r \propto (T - T_c)$ (T_c — температура магнитного упорядочения), $u > 0$, а знак константы ω при третьем слагаемом, описывающем анизотропию n -го порядка, может быть произвольным. Слагаемые, содержащие пространственные производные, учитывают неоднородную часть термодинамического потенциала, причем константа $\beta > 0$

не зависит от температуры, а константа ε может менять знак при изменении температуры и/или напряженности внешнего магнитного поля.

Поскольку отличия размеров примесных и матричных ионов приводят к локальным искажениям кристаллической решетки в некоторой области кристалла вблизи примесей и как следствие — к локальным упругим напряжениям, очевидно, что в нашем случае неоднородная часть термодинамического потенциала должна включать в себя слагаемые, описывающие как магнитную, так и упругую неоднородности кристалла.

Для преобразования функционала (1) к удобному для анализа экспериментальных результатов виду учтем, что в слабых ферромагнетиках вклады в термодинамический потенциал от ферромагнитного момента \mathbf{m} незначительны, и он определяется лишь компонентами вектора антиферромагнетизма \mathbf{l} [5]. Основываясь на экспериментальных фактах, будем предполагать, что во внешнем магнитном поле устойчивым может оказаться магнитное состояние ромбоэдрического слабого ферромагнетика, в котором вектор ферромагнетизма \mathbf{m} отклонен от направления \mathbf{H} на некоторый угол. Поскольку в легкой плоскости исследованных кристаллов (в плоскости (111)) $\text{FeVO}_3:\text{Mg}$ и $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3:\text{Ga}$ имеется три направления, вблизи которых возникает ММС (вблизи направлений, перпендикулярных трем осям C_2), для определенности направим внешнее магнитное поле вдоль одного из этих направлений, которое примем за ось X . Тогда без потери общности рассмотрения можно предположить, что вблизи перехода в модулированную фазу вектор антиферромагнетизма \mathbf{l} (по определению $\mathbf{l} \perp \mathbf{m}$) во внешнем магнитном поле ориентирован около направления, перпендикулярного вектору $\mathbf{H} \parallel \mathbf{Y} \perp C_2$. При небольших углах φ , определяющих отклонение локального вектора \mathbf{m} в ММС от направления средней намагниченности кристалла (согласно экспериментальным данным, максимальная величина $\varphi \sim 10^\circ$), в выбранной системе координат проекция вектора антиферромагнетизма на ось $X - l_x = |\mathbf{l}| \sin \varphi \approx |\mathbf{l}| \varphi \ll |\mathbf{l}|$, а перпендикулярная этой оси компонента $l_y \approx |\mathbf{l}| = \text{const}$. Поэтому достаточно разложить термодинамический потенциал кристалла по l_x и учитывать лишь инварианты с производными по текущей координате вдоль оси X . Такое приближение позволяет записать функционал Гинзбурга–Ландау (1) с учетом магнитных и упругих неоднородностей так

$$\Phi = \int \left[r l_i^2 + u l_i^4 + \omega_2 l_i^2 + \omega_4 l_i^4 + a l_i^2 + b \dot{l}_i^2 + \delta (l_i \sigma_{ij} - \dot{\sigma}_{ij} l_i) + 1/2 v \sigma_{ij}^2 + 1/2 \xi \dot{\sigma}_{ij}^2 \right] dx, \quad (2)$$

где $l_i \equiv l_x$; a, b, δ, v, ξ — коэффициенты разложения, σ_{ij} — компонента тензора деформации такая, что существует инвариант с коэффициентом δ (линейный инвариант Лифшица), учитывающий взаимодействие l и σ . Инвариант такого вида (с заменой компоненты вектора антиферромагнетизма на соответствующую компоненту вектора поляризации) использовался, например,

в [6] для описания перехода в модулированную фазу в сегнетоэлектриках. Там же приведена аргументация ограничения числа слагаемых в термодинамическом потенциале, учитывающих упругие напряжения кристалла.

Минимизация потенциала (2) по σ приводит к уравнению

$$v \sigma_{ij} + \delta \dot{l}_i = 0.$$

Подставляя отсюда σ и $\dot{\sigma}$ в (2) и учитывая слагаемые, содержащие лишь четные степени, получим

$$\Phi = \int \left[r l_i^2 + u l_i^4 + \omega_2 l_i^2 + \omega_4 l_i^4 + \left(a + \frac{\delta^2}{4v} \right) \dot{l}_i^2 + \left(b + \frac{\delta^2 \xi}{16v^2} \right) \ddot{l}_i^2 \right] dx = \int dx \left[r l_x^2 + u l_x^4 + \omega_2 l_x^2 + \omega_4 l_x^4 + \gamma (\dot{l}_x)^2 + \alpha (\ddot{l}_x)^2 \right]. \quad (3)$$

Как видно из (3), простого физического смысла α и γ не имеют: они представляют собой некоторые комбинации констант неоднородного обмена и констант, характеризующих упругое и магнитоупругое взаимодействие.

Согласно термодинамической теории, модулированное магнитное состояние кристалла становится энергетически выгодным, когда коэффициент при квадрате первой производной в (3) становится отрицательным (т.е. при $\gamma < 0$). Поскольку в нашем случае переход в модулированное магнитное состояние происходит во внешнем магнитном поле, следует считать коэффициент γ зависящим от H . Как следует из эксперимента, модулированное магнитное состояние кристалла возникает в процессе увеличения H при достижении напряженности магнитного поля некоторого критического значения [2]. Учитывая этот экспериментальный факт, можно представить полевою зависимость коэффициента γ в простейшем (линейном по H) случае так

$$\gamma = \gamma_0 - \mu(\mathbf{H}) \approx \gamma_0 - \mu H, \quad (4)$$

где $\gamma_0, \mu > 0$ — независимые от H константы, а множитель \mathbf{l} обеспечивает инвариантность второго слагаемого к операциям обращения времени и инверсии координат. Следовательно, согласно (4), переход из однородного в модулированное магнитное состояние произойдет при достижении полем критического значения $H_1 = \gamma_0/\mu l$.

Поскольку ММС кристаллов $\text{FeVO}_3:\text{Mg}$ и $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3:\text{Ga}$ возникает в процессе вращения векторов \mathbf{m} и \mathbf{l} в легкой плоскости, а энергия однородного обменного взаимодействия не зависит от ориентации подрешеточных магнитных моментов в кристалле, то основное изменение в термодинамическом потенциале кристаллов в процессе их намагничивания будет определяться изменением энергии магнитокристаллической анизотропии, а обменные слагаемые в (3) $r l_x^2$ и $u l_x^4 = \text{const}$ (фазовый

переход происходит в магнитоупорядоченной фазе кристалла вдали от температуры Нееля). Кроме этого необходимо учесть в потенциале Φ зеемановскую энергию

$$-2M_0mH \cos \varphi \approx -2M_0mH + 2M_0mH\varphi^2,$$

где M_0 — подрешеточный магнитный момент. Тогда, выбрав в качестве параметра магнитного порядка малый угол φ , характеризующий отклонение вектора \mathbf{l} от оси Y , зависящую от ориентации \mathbf{l} в кристалле (анизотропную) часть термодинамического потенциала, можно записать с учетом лишь одноосной анизотропии

$$\Phi(\varphi) = \int \left[1/2(K_{2u} + 2M_0mH)\varphi^2 + 1/4 K_{4u}\varphi^4 + 1/2(\gamma_0 - \mu lH)(\dot{\varphi})^2 + 1/4 \alpha(\dot{\varphi})^2 \right] dx, \quad (5)$$

где K_{2u}, K_{4u} — константы одноосной анизотропии второго и четвертого порядка соответственно. Как и везде, выше считается, что в интересующем нас интервале температур $|\mathbf{l}| = \text{const}$, а коэффициенты, входящие в (5), соответствуют стандартным условиям теории магнитных фазовых переходов: $K_{2u} < 0$, $K_{2u} \propto (T - T_c)$; $K_{4u}, \alpha > 0$ — не зависят от температуры и магнитного поля.

Из условия минимума потенциала (5) ($d\Phi/d\varphi = 0$, $d^2\Phi/d\varphi^2 > 0$) следует, что пространственное распределение параметра порядка удовлетворяет дифференциальному уравнению

$$L\varphi + 2K_{4u}\varphi^3 = 0, \quad (6)$$

где

$$L = \alpha \frac{d^4}{dx^4} - (\gamma_0 - \mu lH) \frac{d^2}{dx^2} + K_{2u} + mH$$

— дифференциальный оператор четвертого порядка.

Точного решения уравнения (6) не существует [7], однако, очевидно, что это решение должно представляться некоторой периодической функцией от пространственной координаты x . Поэтому, следуя работам [8,9], будем искать решение уравнения (6) в виде ряда

$$\Phi(\varphi) = 1/2 \sum_k A_k |\varphi_k|^2,$$

где A_k — коэффициенты разложения.

Используя результаты, полученные в [8,9], можно показать, что при $(\gamma_0 - \mu lH) < 0$ вблизи точки фазового перехода функционал $\Phi(\varphi)$ минимизируется гармонической функцией типа

$$\varphi(x) = \sum_j [C_j \exp(ik_j x) + \text{к.с.}] \quad (7)$$

(C_j — амплитуда соответствующей гармоники, к.с. — комплексно сопряженная величина), причем в первом приближении пространственное распределение параметра порядка описывается одной гармоникой:

$$\varphi(x) = 2(-A/3 K_{4u})^{1/2} \cos kx, \quad (8)$$

$$A = (K_{2u} + 2M_0mH) + (\gamma_0 - \mu lH)k^2 + 1/2 \alpha k^4,$$

где $k = 2\pi/d = [-(\gamma_0 - \mu lH)/2\alpha]^{1/2}$ — модуль волнового вектора ММС.

Как уже отмечалось, в модулированном магнитном состоянии кристаллов $\text{FeVO}_3:\text{Mg}$ и $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3:\text{Ga}$ азимут локального вектора \mathbf{l} в базисной плоскости представляется гармонической функцией от координаты [2,4]:

$$\varphi = \varphi_0 \cos(2\pi x/d),$$

где φ_0 — амплитуда отклонения вектора \mathbf{l} от оси $Y \perp \mathbf{H}$. Следовательно, можно заключить, что соотношение (8) хорошо описывает экспериментальную ситуацию, если положить $\varphi_0 = 2(-A/3 K_{4u})^{1/2}$.

Из (8) видно, что полученное для k выражение, по крайней мере, качественно, без учета эффектов пиннинга и гистерезиса, характерных для зависимости $d(H)$, описывает экспериментально наблюдаемое уменьшение с ростом напряженности магнитного поля периода ММС кристаллов $\text{FeVO}_3:\text{Mg}$ и $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3:\text{Ga}$. Период ММС кристаллов $\text{FeVO}_3:\text{Mg}$ и $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3:\text{Ga}$ изменяется при изменении H скачкообразно, причем на обратном ходе намагничивания величина d оказывается меньше наблюдаемой при росте поля от нуля [2]. При этом в рамках сделанных выше приближений величина d не зависит от температуры, что согласуется с результатами наблюдений ММС в $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3:\text{Ga}$ [2], но не соответствует температурной зависимости $d(T)$, полученной для $\text{FeVO}_3:\text{Mg}$ [2,10]. Для описания температурной зависимости волнового вектора ММС в рамках рассмотренного теоретического подхода требуется учет следующих гармоник в (7) [3].

Подстановка (8) в функционал (5) позволяет найти значение термодинамического потенциала в одноосной магнитной фазе кристалла

$$\Phi = \Phi_1 = -(K_{2u} + 2M_0mH)^2/6K_{4u}$$

и в его модулированной магнитной фазе

$$\Phi = \Phi_2 = -[(K_{2u} + 2M_0mH) - (\gamma_0 - \mu lH)^2/2\alpha]^2/4K_{4u}.$$

Следовательно, модулированное магнитное состояние кристалла будет энергетически выгодным при

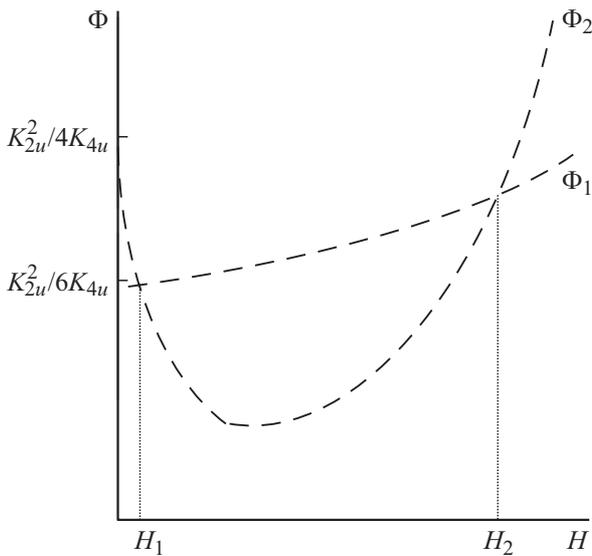
$$\begin{aligned} & [(K_{2u} + 2M_0mH) - (\gamma_0 - \mu lH)^2/2\alpha]^2/4K_{4u} \\ & < (K_{2u} + 2M_0mH)^2/6K_{4u}, \end{aligned}$$

что при $(K_{2u} + 2M_0mH) < 0$ и $(\gamma_0 - \mu lH) < 0$ (при $H > \gamma_0/\mu l$) эквивалентно условию

$$\begin{aligned} (\sqrt{6} - 2)(K_{2u} + 2M_0mH)\alpha & \approx 0.4(K_{2u} + 2M_0mH)\alpha \\ & > (\gamma_0 - \mu lH)^2, \end{aligned} \quad (9)$$

откуда следует, что в интервале полей

$$H_1 = \gamma_0/\mu l \leq \Delta H \leq [\gamma_0 + \sqrt{0.4(K_{2u} + 2M_0mH)\alpha}]/\mu l = H_2 \quad (10)$$



Полевая зависимость потенциалов Φ_1 (однородная магнитная фаза) и Φ_2 (модулированная магнитная фаза). Интервал $H_1 \leq H \leq H_2$ — область существования устойчивой модулированной магнитной фазы кристалла.

в кристалле будет существовать ММС. Область существования устойчивой модулированной магнитной фазы кристалла иллюстрирует рисунок, где схематически показана полевая зависимость потенциалов Φ_1 и Φ_2 .

Согласно (10), граничное поле $H_1 = \gamma_0/\mu l$ не зависит от температуры, что согласуется с результатами наблюдений [2,10], а температурная зависимость поля H_2 определяется зависимостью $\sqrt{K_{2u}(T)}$. Нам не известна температурная зависимость константы анизотропии K_{2u} в исследованных кристаллах, но если предположить, что эти зависимости близки к соответствующим зависимостям константы гексагональной анизотропии в номинально чистых борате железа (K_{2u} уменьшается с повышением температуры [11]) и гематите (в температурной области существования слабого ферромагнетизма $K_{2u} \approx \text{const}$ [12]) то, согласно (10), величина поля H_2 , при котором исчезает модуляция магнитного порядка в $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3:\text{Ga}$, не должна изменяться во всем исследованном температурном интервале, а в $\text{Fe-VO}_3:\text{Mg}$ величина H_2 должна уменьшаться с ростом T , что соответствует данным эксперимента, приведенным в [2,10].

Обратимся теперь к температурной и полевой зависимостям угла φ_0 , вытекающим из рассмотренной модели. Из формулы (8) следует что

$$\varphi_0 = \left\{ [(\gamma_0 - \mu l H)^2 / 2\alpha + (K_{2u} + 2M_0 m H)] / 3K_{4u} \right\}^{1/2}, \quad (11)$$

откуда $\varphi_0^2(T) \propto K_{2u} + \text{const}$, $\varphi_0^2(H) \propto \text{const} - (H_1 - H)^2$. При $H > H_1$ эти зависимости $\varphi_0(T)$ и $\varphi_0(H)$ не противоречат экспериментально наблюдаемому уменьшению амплитуды модуляции азимута вектора \mathbf{m} в неоднородной магнитной фазе исследованных кристаллов с

ростом напряженности магнитного поля и температуры (последнее только для $\text{FeVO}_3:\text{Mg}$) [2,10].

Подставляя в (11) выражение для волнового вектора ММС из (8), получим

$$\varphi_0 = 2[(K_{2u} - 2M_0 m H - 2\pi^4 \gamma / d^4) / 3K_{4u}]^{1/2}. \quad (12)$$

Из (12) видно, что в случае скачкообразного изменения периода модуляции (как это наблюдается экспериментально [2]) угол φ_0 также будет меняться скачкообразно. Поскольку магнитооптические эффекты в кристаллах $\text{FeVO}_3:\text{Mg}$ и $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3:\text{Ga}$ зависят от ориентации векторов \mathbf{m} и \mathbf{l} в легкой плоскости (см. [13,14]), на основании (12) можно объяснить отмечавшуюся в [15,16] корреляцию между положением ступенек на полевой и температурной зависимостях пространственного периода ММС $\text{FeVO}_3:\text{Mg}$ и скачками на соответствующих зависимостях магнитооптических эффектов в этом кристалле.

Таким образом асимптотическое решение уравнения (6) в форме (8) позволяет описать (на качественном уровне) всю совокупность (за исключением температурной зависимости пространственного периода ММС $\text{FeVO}_3:\text{Mg}$) экспериментальных результатов, полученных при исследовании параметров и структуры модулированного магнитного состояния кристаллов $\text{FeVO}_3:\text{Mg}$ и $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3:\text{Ga}$.

Список литературы

- [1] Витебский И.М. // ЖЭТФ. 1982. Т. 82. Вып. 2. С. 357–361.
- [2] Соколов Б.Ю. // ЖЭТФ. 2004. Т. 126. Вып. 2(8). С. 467–478.
- [3] Изомов Ю.А. // УФН. 1984. Т. 144. Вып. 3. С. 439–474.
- [4] Соколов Б.Ю. // ФТТ. 2005. Т. 47. Вып. 2. С. 252–254.
- [5] Дзялошинский И.Е. // ЖЭТФ. 1964. Т. 47. № 2. С. 992.
- [6] Санников Д.Г. // ФТТ. 2008. Т. 50. Вып. 4. С. 715–717.
- [7] Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. Статистическая физика. М.: Наука, 1964. 567 с.
- [8] Michelson A. // Phys. Rev. B. 1977. Vol. 16. N 1. P. 585–592.
- [9] Michelson A. // Phys. Rev. B. 1977. Vol. 16. N 11. P. 5121–5124.
- [10] Соколов Б.Ю. // ФТТ. 2005. Т. 47. Вып. 10. С.1818–1825.
- [11] Дорошев В.Д., Крыгин И.М., Лукин С.Н. // Письма в ЖЭТФ. 1979. Т. 29. № 5. С. 286–290.
- [12] Петраковский Г.А., Панкрац А.И., Соснин В.М., Васильев В.Н. // ЖЭТФ. 1983. Т. 85. Вып. 2(8). С. 691–699.
- [13] Федоров Ю.М., Лексиков А.А., Аксенов А.Е. // ФТТ. 1984. Т. 26. Вып. 1. С. 220–226.
- [14] Бойдедаев С.Р., Джураев Д.Р., Соколов Б.Ю., Шарипов М.З. // Опт. и спектр. 2008. Т. 104. № 4. С. 670–676.
- [15] Бойдедаев С.Р., Соколов Б.Ю. // ФТТ. 2008. Т. 50. Вып. 12. С. 2198–2200.
- [16] Бойдедаев С.Р., Джураев Д.Р., Соколов Б.Ю., Файзи-ев Ш.Ш. // Опт. и спектр. 2009. Т. 107. № 2. С. 321–325.