

## ФАЗОВЫЕ ПЕРЕХОДЫ В ТЕТРАГОНАЛЬНЫХ АНТИФЕРРОМАГНЕТИКАХ

© Г.К.Чепурных, О.Г.Медведовская, О.А.Никитина

Институт прикладной физики Академии наук Украины,  
 244000 Сумы, Украина

(Поступило в Редакцию 28 июля 1995 г.

В окончательной редакции 22 декабря 1995 г.)

В настоящее время существует большое количество экспериментальных и теоретических исследований ориентационных фазовых переходов, индуцированных продольным магнитным полем в тетрагональных антиферромагнетиках (АФМ)  $\text{CoF}_2$ ,  $\text{FeF}_2$ ,  $\text{MnF}_2$  (см., например, соответственно [1-7], [8,9], [10-15]). Характерной особенностью указанных легкоосных АФМ является наличие в них взаимодействия Дзялошинского (ВД) [16], которое неинвариантно относительно поворота магнитный подсистемы вокруг легкой оси (ЛО). Вместе с тем результаты экспериментального изучения (намагниченности, магнитооптических свойств, резонансных свойств) всех трех кристаллов оказались качественно различны. Более того, трактовка экспериментальных данных различными авторами даже для одних и тех же кристаллов оказалась не во всем совпадающей. Значительное внимание уделяется обнаруженному переходу вектора антиферромагнетизма  $\mathbf{l}$  из антиферромагнитной фазы ( $\mathbf{l} \parallel \text{ЛО}$ ) в угловую фазу. В связи с этим было обращено внимание на работу [12], в которой для случая сверхслабого ВД (что, по мнению авторов [12], реализуется в АФМ  $\text{MnF}_2$ ) доказывалось, что если поле Дзялошинского  $d$  больше определенного критического значения ( $d_{cr}$ ), то этот фазовый переход является переходом второго рода, а если меньше, то переходом первого рода.

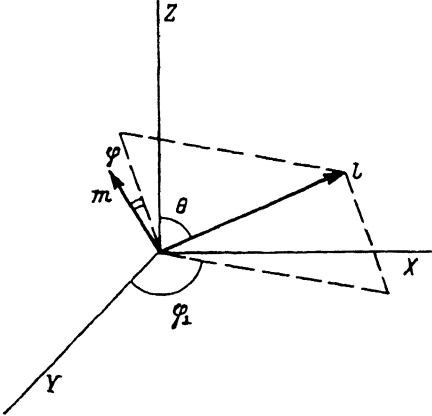
Целью данной работы является изучение фазовых переходов в поле  $\mathbf{H} \parallel \text{ЛО}$  путем последовательного учета конкуренции двух различных анизотропий в базисной плоскости (анизотропии, связанной с ВД, и обменно-усиленной анизотропии четвертого порядка  $fl_x^2l_y^2$ ), а также учета того, что любое ВД приводит к новым индуцированным фазовым переходам [17-19]. Кроме того, поскольку в АФМ  $\text{MnF}_2$ ,  $\text{FeF}_2$  не было обнаружено в антиферромагнитной фазе зависимости намагниченности подрешеток  $\mathbf{M}_1$  и  $\mathbf{M}_2$  от магнитного поля, то мы вначале не будем учитывать нарушение ортогональности между вектором суммарной намагниченности  $\mathbf{m}$  и вектором  $\mathbf{l}$  и термодинамический потенциал запишем в виде

$$F = (2M_0) \left[ \frac{E}{2} m^2 + \frac{b}{2} l_z^2 - d(l_x m_y + l_y m_x) - \frac{1}{4} a_2 l_z^4 + fl_x^2 l_y^2 - \mathbf{mH} \right], \quad (1)$$

где

$$\mathbf{l} = (\mathbf{M}_1 - \mathbf{M}_2)/2M_0, \quad \mathbf{m} = (\mathbf{M}_1 + \mathbf{M}_2)/2M_0, \quad b < 0, \quad f > 0,$$

ЛО  $\parallel OZ$  ( $T \ll T_N$ ).



Ориентация вектора антиферромагнетизма  $l$  и вектора намагниченности  $m$  при  $H \parallel OZ \parallel \text{ЛО}$ .

$\theta$  и  $\varphi_{\perp}$  — полярный и азимутальный углы вектора  $l$ ,  $\varphi$  — угол, характеризующий направление вектора  $m$  в плоскости, перпендикулярной  $l$  (этот угол отсчитывается от линии пересечения указанной плоскости с плоскостью, проходящей через ось  $Z$  и вектор  $l$ ).

Вначале рассмотрим случай, когда поле Дзялошинского  $d$  превышает анизотропию, связанную с инвариантом  $fl_x^2l_y^2$ , и этот инвариант не будем учитывать. Ограничимся полями, когда все еще можно считать  $m^2 \ll 1$ .

Определяя необходимые условия существования минимума потенциала (1) как функции переменных  $m, \varphi, \theta, \varphi_{\perp}$  (см. рисунок), получаем систему уравнений

$$\frac{\partial F}{\partial m} = 0, \quad \frac{\partial F}{\partial \varphi} = 0, \quad \frac{\partial F}{\partial \theta} = 0, \quad \frac{\partial F}{\partial \varphi_{\perp}} = 0. \quad (2)$$

Определяя из первого и второго уравнений системы (2) соответственно  $m$  и  $\varphi$ , а затем исключая  $m$  и  $\varphi$  из третьего и четвертого уравнений, мы получаем два громоздких уравнения относительно углов  $\theta$  и  $\varphi_{\perp}$ . Эти два уравнения имеют решения (фаза I  $\parallel$  ЛО)

$$\sin \theta = 0, \quad \cos 2\varphi_{\perp} = 0. \quad (3)$$

Из достаточных условий следует, что наибольшее значение магнитного поля  $H = H_{c1}$ , при котором существует антиферромагнитная фаза, дается выражением

$$H_{c1} = \sqrt{|b|E + a_2E} - d. \quad (4)$$

Уравнения относительно  $\theta$  и  $\varphi_{\perp}$  допускают также решения (фаза I  $\perp$  ЛО)

$$\cos \theta = 0, \quad \sin 2\varphi_{\perp} = 0. \quad (5)$$

Однако решения (5) не удовлетворяют требованию минимума  $F$ . Эти же уравнения при  $\cos 2\varphi_{\perp} = 0$  не допускают решения  $\cos \theta = 0$ . Таким образом, мы приходим к выводу о том, что в полях  $H \geq H_{c1}$  при указанных условиях реализуется только состояние

$$0 < \cos \theta \leq 1, \quad \cos 2\varphi_{\perp} = 0, \quad (6)$$

т. е. существует угловая фаза при  $\cos 2\varphi_{\perp} = 0$ .

Существование вышеприведенных решений проверялось с помощью ЭВМ, и при этом не было обнаружено решений, при которых изменением полярного угла  $\theta$  изменяется и азимутальный угол  $\varphi_{\perp}$ . Невозможность таких решений (при указанных условиях) мы покажем далее аналитически.

Для определения характера перехода между антиферромагнитной и угловой фазами достаточно (помимо поля  $H_{c_1}$ ) определить поле  $H_{t_1}$  равновесного перехода. Поэтому, приравнивая значения потенциала (1) для этих двух фаз, находим

$$H_{t_1} = \sqrt{|b|E + \frac{1}{2}a_2E(1 + \cos^2 \theta) - d \cos \theta}. \quad (7)$$

В окрестности трикритической точки угол  $\theta \ll 1$ , и, разлагая  $\cos \theta$  в ряд, разность  $H_{c_1} - H_{t_1}$  можно записать в виде

$$H_{c_1} - H_{t_1} = \frac{1}{2} \left[ \frac{1}{2} \left( \frac{a_2}{|b| + a_2} \right)^{\frac{1}{2}} (a_2 E)^{\frac{1}{2}} - d \right] \theta^2. \quad (8)$$

Фазовый переход первого рода имеет место, если  $H_{c_1} - H_{t_1} > 0$ , а переход второго рода, если  $H_{c_1} - H_{t_1} < 0$ . Поэтому критическое значение поля Дзялошинского  $d_{cr}$ , при котором изменяется характер фазового перехода, определяется соотношением

$$d_{cr_1} \simeq \frac{1}{2} \left( \frac{a_2}{|b| + a_2} \right)^{\frac{1}{2}} (a_2 E)^{\frac{1}{2}}. \quad (9)$$

Теперь рассмотрим случай, когда между  $d^2$  и  $fE$  возможны различные соотношения и, кроме того,  $d, \sqrt{fE} < |b| \ll E$ . Поскольку при дальнейших расчетах мы имеем в виду главным образом АФМ  $MnF_2$ , то в потенциале (1) вместо инварианта  $-\frac{1}{4}a_2 l_z^4$  мы будем учитывать инвариант  $\frac{1}{2}am_z^2$ . Повторив всю выполненную ранее процедуру над системой (2), получим на этот раз два существенно менее громоздких уравнения относительно углов  $\theta$  и  $\varphi_{\perp}$ . Эти два новых уравнения также допускают решения (3), (5), (6). Кроме того, из второго из этих уравнений следует

$$\sin 2\varphi_{\perp} = -\frac{2dH \cos \theta}{(2d^2 + fE) \sin^2 \theta}. \quad (10)$$

Используя (10), получаем следующее относительно простое уравнение для полярного угла  $\theta$ :

$$\begin{aligned} \cos \theta \left\{ \sin \theta \left[ \frac{a+b}{E} H^2 \sin^2 \theta + |b|E \left( 1 + \frac{a \sin^2 \theta - b \cos^2 \theta}{E} \right) - H^2 \right] + \right. \\ \left. + \frac{2d^2 H^2}{(2d^2 + fE) \sin \theta} \left[ 2 \cos^2 \theta \left( \frac{fE}{2d^2 + fE} - 1 \right) + \sin^2 \theta \right] \right\} = 0. \quad (11) \end{aligned}$$

Это уравнение соответствует случаю, когда изменение полярного угла  $\theta$  приводит к изменению и азимутального угла  $\varphi_{\perp}$ . Полагая в уравнении (11)  $\theta = \pi/2$ , находим, что наименьшее значение магнитного поля  $H = H_{c_2}$ , при котором существует фаза  $1 \perp$  ЛО, определяется формулой

$$H_{c_2}^2 = |b|E \left( 1 + \frac{a}{E} \right) \left( 1 - \frac{a+b}{E} - \frac{2d^2}{2d^2 + fE} \right)^{-1}. \quad (12)$$

Особенность уравнения (11) состоит в том, что оно при  $H \neq 0$  имеет решения  $\theta = 0$ , т.е. при появлении магнитного поля  $\mathbf{H} \parallel$  ЛО вектор антиферромагнетизма  $\mathbf{l}$  отклоняется от ЛО. Однако из уравнения (11) также следует, что это отклонение становится меньше с уменьшением отношения  $d^2/fE$ . И если отношение  $d^2/fE$  настолько мало, что  $d^2/fE \sim |a+b|/E \ll 1$ , и соответственно в уравнении (11) можно пренебречь членом  $\sim (d^2/fE)^2 H^2$  (т.е. положить  $d^2 H^2 / (2d^2 + fE) [fE / (2d^2 + fE) - 1] = 0$ ), то роль поля Дзялошинского  $d$  сведется к незначительной и одинаковой перенормировке полей лабильности. По-видимому, этот случай и имеет место в АФМ  $\text{MnF}_2$ . Для определения характера перехода из угловой фазы в фазу  $1 \perp$  ЛО с ростом поля  $\mathbf{H} \parallel$  ЛО также достаточно определить поле  $H_{t_2}$  равновесного перехода между этими двумя фазами. Исключая из потенциала (1)  $m$ ,  $\varphi$ ,  $\varphi_{\perp}$  и приравнивая значения потенциала в фазе  $1 \perp$  ЛО и угловой фазе, находим

$$H_{t_2}^2 = |b|E \left[ 1 - \frac{2d^2}{2d^2 + fE} \left( 2 - \frac{fE}{2d^2 + fE} \right) - \frac{a+b}{E} \sin^2 \theta - \frac{a}{E} \right]^{-1}. \quad (13)$$

Если  $d^2 \sim fE$ , то очевидно, что  $H_{t_2} > H_{c_2}$ , поэтому переход между угловой фазой и фазой  $1 \perp$  ЛО является переходом первого рода. Если  $d^2/fE \ll 1$ , то условие  $H_{t_2}^2 - H_{c_2}^2 > 0$  сводится к условию

$$-\frac{a+b}{E} \cos^2 \theta + 2 \left( \frac{d^2}{fE} \right)^2 > 0. \quad (14)$$

При  $a+b < 0$  условие (14) выполняется при любых малых  $d^2/fE$ . Если же  $a+b > 0$  (т.е. при  $d = 0$  переход между фазами  $1 \parallel$  ЛО и  $1 \perp$  ЛО происходит в виде двух переходов второго рода [20]), то переход первого рода реализуется при

$$d^2 > d_{cr_2}^2 = \left( \frac{1}{2} \frac{a+b}{E} \right)^{\frac{1}{2}} fE. \quad (15)$$

Таким образом, изучение фазовых переходов в случае  $fE > d^2$  позволяет объяснить поведение магнитных подсистем в кристаллах  $\text{FeF}_2$

<sup>1</sup> При  $fE > d^2$  вектор  $\mathbf{l}$  в фазе  $1 \perp$  ЛО ориентируется [13] вдоль оси  $Ox$ .

и  $MnF_2$ . Что касается АФМ  $CoF_2$ , то рассмотренный в первой половине работы случай  $d^2 > fE$  при жестком ограничении на соотношения между величинами параметров потенциала (1) ( $m^2 \ll 1$ ) показывает, что обнаруженные в эксперименте фазы и особенности оптических и резонансных свойств хорошо описываются на основе традиционной феноменологической теории. Что касается объяснения намагничивания продольным магнитным полем, то достаточно [7] к термодинамическому потенциалу (1) добавить инвариант  $\frac{1}{2}G(ml)^2$ , т.е. отказаться [7] от условия  $m \perp l$ .

### Список литературы

- [1] Richards P.L. J. Appl. Phys. **35**, 850 (1964).
- [2] Lines M.E. Phys. Rev. **A137**, 982 (1965).
- [3] Allen S.J., Guggenheim H.J. Phys. Rev. **B4**, 950 (1971).
- [4] Шапиро В.Г., Ожогин В.И., Гуртовой К.Г. Изв. АН СССР. Сер. физ. **36**, 1559 (1972).
- [5] Кочарян К.Н., Рудашевский Е.Г. Изв. АН СССР. Сер. физ. **36**, 1556 (1972).
- [6] Харченко Н.Ф., Еременко В.В., Белый Л.И. ЖЭТФ **82**, 3, 827 (1982).
- [7] Гуртовой К.Г., Лагутин А.С., Ожогин В.И. ЖЭТФ **83**, 5(11), 1941 (1983).
- [8] Литвиненко Ю.Г., Шапиро В.В. ФНТ **2**, 233 (1976).
- [9] King A.R., Jaccarino V., Sakakibara T., Motokawa M., Date M. Phys. Rev. Lett. **47**, 117 (1981).
- [10] De Gurnbourg J., Krebs J.P. J. de Phys. **29**, 1, 42 (1968).
- [11] Melcher R.L. Phys. Rev. **B1**, 11, 4493 (1970).
- [12] Кулешов В.С., Попов В.А. ФТТ **15**, 3, 973 (1973).
- [13] Еременко В.В., Канер Н.Е., Литвиненко Ю.Г., Шапиро В.В. ЖЭТФ **89**, 4(10), 1289 (1985).
- [14] Еременко В.В., Шапиро В.В. ФНТ **16**, 12, 1499 (1990).
- [15] Чепурных Г.К., Колесник М.И., Медведовская О.Г. ФТТ **36**, 8, 2289 (1994).
- [16] Дзялошинский И.Е. ЖЭТФ **32**, 6, 1547 (1957).
- [17] Ожогин В.И., Шапиро В.Г. Письма в ЖЭТФ **6**, 1, 467 (1967).
- [18] Левитин Р.З., Шуруп В.А. Письма в ЖЭТФ **7**, 2, 142 (1968).
- [19] Медведовская О.Г., Чепурных Г.К. ФТТ **27**, 3, 718 (1985); **27**, 10, 3144 (1985); **28**, 10, 3203 (1986).
- [20] Туров Е.А. Физические свойства магнитоупорядоченных кристаллов. М.-Л. (1963).