”Скрытый” парамагнетизм и несоразмерные структуры в трехподрешеточных магнетиках

© Ю.Д. Заворотнев, Л.И. Медведева

Донецкий физико-технический институт Национальной академии наук Украины,
83114 Донецк, Украина

E-mail: zavorot@host.dipt. donetsk.ua

(Поступила в Редакцию 16 января 2001 г.
В окончательной редакции 16 апреля 2001 г.)

Рассмотрена возможность образования сверхструктур, обусловленных двумя взаимодействующими одно- и двухкомпонентными параметрами порядка в трехподрешеточных магнетиках. Показано, что в общем случае вектор распространения располагается в плоскости XOY, а неприводимые векторы могут вращаться как в одной, так и в двух взаимно перпендикулярных плоскостях. При наличии ”скрытого” парамагнетизма сверхструктура образоваться не может.

В настоящее время теория, описывающая возникновение длиннопериодических структур, достаточно хорошо разработана. Показано [1–3], что их возникновение, в частности, может быть обусловлено конкуренцией взаимодействий, описываемых квадратичными по первым пространственным производным инвариантами от моментов спиновой плотности и инвариантами второй или четвертой степени по этим производным в плотности неравновесного термодинамического потенциала (НТДП). Еще одним условием существования длиннопериодической структуры является малость линейного по первым пространственным производным инварианта, которая может быть обеспечена резкой пространственной анизотропией обменного или обменно-релятивистского взаимодействия [4]. В [4] рассмотрены также симметрийные условия существования таких инвариантов. В дальнейшем было установлено [5], что в отличие от ситуации, рассмотренной в [4], в процессе образования сверхструктуры могут быть вовлечены два параметра порядка (ПП), преобразующиеся по разным неприводимым представлениям пространственной группы симметрии парамагнитой фазы. Кроме того, при изучении условий формирования сверхструктур в Cr_2BeO_4 оказалось [6], что в НТДП могут иметь место также инварианты типа Дзялошинского, но имеющие чисто обменную природу. Это возможно в том случае, если в разложении прямого произведения трех неприводимых представлений, по которым преобразуются два ПП (магнитные векторы), и координаты, по которой вычисляется первая производная, содержится полносимметричное представление. В данном случае группой, относительно которой вычисляются ПП, является группа перестановки магнитных ионов в элементарной ячейке. Нейденные в [6] инварианты обменной природы составлены из двух однокомпонентных ПП. Здесь же установлены закономерности возникновения и условия существования несоразмерных структур. Оказалось, что при однокомпонентных ПП вектор распространения всегда располагается вдоль одной из координатных осей. Следует ожидать, что при наличии двухкомпонентного ПП этот вектор может иметь произвольное направление в одной из координатных плоскостей. Такая ситуация может реализоваться в трехподрешеточных магнетиках. В данных соединениях число ПП может быть три или меньше. В частности, в фосфиде железа (Fe_2P), относительно которого известно, что в нем возможна несоизмеримая структура [7], имеются два ПП [8]: однокомпонентный (вектор ферромагнетизма $\mathbf{F}$) и двухкомпонентный, состоящий из двух векторов антиферромагнетизма $\mathbf{L}_1$ и $\mathbf{L}_2$, которые преобразуются по разным строкам одного двумерного неприводимого представления группы перестановок. В работе [8] приведен только явный вид НТДП и отмечена принципиальная возможность образования сверхструктуры, но никаких подтверждающих вычислений не проведено.

Как упоминалось выше, в кристаллах с треугольной структурой типа Fe_2P [8] имеют место два ПП: ферромагнитный $\mathbf{F} = \mathbf{S}_1 + \mathbf{S}_2 + \mathbf{S}_3$ (однокомпонентный) и шестимерный вектор $\mathbf{L}$ с двумя составляющими антиферромагнитными векторами $\mathbf{L}_1 = 2^{-1/2} \cdot (\mathbf{S}_2 - \mathbf{S}_3)$, $\mathbf{L}_2 = 6^{-1/2} \cdot (2\mathbf{S}_1 - \mathbf{S}_2 - \mathbf{S}_3)$, где $\mathbf{S}_i (i = 1, 2, 3)$ — спин i-го магнитного иона. Векторы $\mathbf{L}_1$ и $\mathbf{L}_2$ преобразуются по разным строкам одного двумерного неприводимого представления E', так же как и Y-, X-компоненты полярного вектора, а вектор $\mathbf{F}$ — по полносимметричному неприводимому представлению группы перестановок D_{3h}. Как показано в [8], плотность потенциала в отсутствие магнитного поля можно представить в виде

$$\Phi = \delta_1 \mathbf{F}^2 + \delta_2(\mathbf{L}_1^2 + \mathbf{L}_2^2) + \Delta\left(\mathbf{F}\frac{\partial \mathbf{L}_1}{\partial y} - \mathbf{L}_1\frac{\partial \mathbf{F}}{\partial y} + \mathbf{F}\frac{\partial \mathbf{L}_2}{\partial x} - \mathbf{L}_2\frac{\partial \mathbf{F}_1}{\partial x}\right) + \alpha_1\left(\frac{\partial \mathbf{F}}{\partial x}\right)^2 + \alpha_2\left(\frac{\partial \mathbf{F}}{\partial y}\right)^2 + \alpha_3\left(\frac{\partial \mathbf{L}_1}{\partial y}\right)^2 + \alpha_4\left(\frac{\partial \mathbf{L}_2}{\partial x}\right)^2. \quad (1)$$

Соответствующая система уравнений Остроградского для определения экстремумов имеет вид

$$\begin{cases} \alpha_1 F''_{i(xx)} + \alpha_2 F''_{i(yy)} - \Delta(L'_{i1(y)} + L'_{i2(x)}) - \delta_1 F_i = 0, \\ \alpha_3 L''_{i1(yy)} + \Delta F'_{i(y)} - \delta_2 L_{i1} = 0, \\ \alpha_4 L''_{i2(xx)} + \Delta F'_{i(x)} + \delta_2 L_{i2} = 0, \end{cases} \tag{2}$$

где $i = x, y, z$ обозначают проекции векторов, индексы в скобках показывают, по каким переменным вычисляются производные (ось Z совпадает с кристаллографической осью третьего порядка).

Перейдем в (2) к сферическим координатам согласно соотношениям

$$F_z = |\mathbf{F}|\cos\theta_3,\ L_{1z} = |\mathbf{L_1}|\cos\theta_1,\ L_{2z} = |\mathbf{L}_2|\cos\theta_2,$$

$$F_x = |\mathbf{F}|\sin\theta_3\cos\varphi_3,\ L_{1x} = |\mathbf{L}_1|\sin\theta_1\cos\varphi_1,$$

$$L_{2x} = |\mathbf{L}_2|\sin\theta_2\cos\varphi_2,$$

$$F_y = |\mathbf{F}|\sin\theta_3\sin\varphi_3,\ L_{1y} = |\mathbf{L}_1|\sin\theta_1\sin\varphi_1,$$

$$L_{2y} = |\mathbf{L}_2|\sin\theta_2\sin\varphi_2,$$

где θ_1 и $\varphi_1 (i = 1, 2, 3)$ — полярные и азимутальные углы.

Из преобразованной системы уравнений следует, что для азимутальных углов имеют место независимые друг от друга решения

$$\varphi_i = \pm\frac{\pi}{4}. \tag{3}$$

Соотношения (3) показывают, что возможны следующие варианты вращения неприводимых векторов.

1) Все три вектора вращаются в одной плоскости, если знаки при $\varphi_i (i = 1, 2, 3)$ одинаковы.

2) Два вектора из трех, имеющие одинаковые знаки φ, вращаются в одной плоскости, а третий вектор с противоположным знаком φ — в перпендикулярной плоскости.

Решение системы уравнений Остроградского при учете соотношений (3) ищем в виде

$$\theta_3 = k_x x + k_y y,\ \theta_1 = \theta_3 + \rho_1,\ \theta_2 = \theta_3 + \rho_2, \tag{4}$$

где $\rho_i (i = 1, 2)$ — постоянные величины, обусловливающие сдвиг фазы, k_x и k_y — проекции вектора распространения на оси OX и OY. Из условия минимума потенциала следует, что при $\Delta > 0\,(\Delta < 0)$ имеют место соотношения $\rho_j = -\pi/2\,(\rho_j = \pi/2)\,(j = 1, 2)$. Очевидно, что фазы полярных углов антиферромагнитных векторов совпадают друг с другом и сдвинуты по отношению к ферромагнитному вектору на угол $\pi/2$.

Подставляя (4) в систему (2), записанную в сферических координатах, получаем систему из трех однородных уравнений для определения модулей трех неприводимых векторов $\mathbf{F}, \mathbf{L}_1, \mathbf{L}_2$. Приравнивая детерминант системы к нулю, находим

$$-(\alpha_3 k_x^2 + \delta_2)(\alpha_4 k_y^2 + \delta_2)(\alpha_1 k_x^2 + \alpha_2 k_y^2 + \delta_1) + \Delta^2 k_x^2(\alpha_4 k_y^2 + \delta_2) + \Delta^2 k_y^2(\alpha_3 k_x^2 + \delta_2) = 0. \tag{5}$$

Из (5) следует, что вектор распространения сверхструктуры располагается в плоскости XOY, в которой он имеет произвольное направление. Это уравнение дает связь между компонентами k_x и k_y. Для нахождения из конкретных значений необходимо найти производную по k_x или по k_y от НТДП. Поскольку в уравнения для определения величин k_x и k_y входит температура T, с ее изменением будет меняться не только модуль вектора $|\mathbf{k}|$, но и его направление. Как показано выше, азимутальные углы φ не зависят от темпераутры и являются постоянными величинами. Поэтому вектор распространения $\mathbf{k}$ может не совпадать ни с одной из возможных плоскостей вращения неприводимых векторов, а полученные в этом случае структуры являются скошенными спиральными, если все ПП вращаются в одной плоскости, или смешанными (вращение в разных плоскостях).

Следует отметить, что в теории, учитывающей одномерные ПП, вектор распространения сверхструктуры $\mathbf{k}$ располагается только вдоль одной из кристаллографических осей и при изменении температуры меняется только его модуль, но не направление [3].

Проведем анализ уравнения (5). Для простоты положим $\alpha_1 = \alpha_2$, $\alpha_3 = \alpha_4$. Тогда при $\delta_1 = 0$ имеем

$$\alpha_4^2\alpha_1 k_x^2 k_y^2 k^2 + \alpha_4\delta_2\alpha_1 k^4 - 2\Delta^2\alpha_4 k_x^2 k_y^2 + k^2(\alpha_1\delta_2^2 - \Delta^2\delta_2) = 0, \tag{6}$$

где $k^2 = k_x^2 + k_y^2$. Аналогично при $\delta_2 = 0$ получаем

$$\alpha_1\alpha_4 k^2 = 2\Delta^2 - \alpha_4(T_N - T_C). \tag{7}$$

Рассмотрим следующие случаи.

1) $T_N > T_C$.

a) $\delta_2 = 0$. Тогда решение уравнения (7) возможно только в случае $\alpha_4(T_N - T_C) < 2\Delta^2$, т.е. T_N и T_C не должны быть "разнесены" достаточно далеко. В противном случае образование сверхструктуры становится невозможным.

b) $\delta_1 = 0$; $\delta_2 < 0$. В уравнении (6) имеются два изменения знака в ряду коэффициентов, что дает два различных положительных решения для k_x^2. Следовательно, при выполнении условий устойчивости вблизи T_C могут иметь место две сверхструктуры с разными векторами распространения.

2) $T_C > T_N$.

a) $\delta_1 = 0$, $\delta_2 > 0$. Если $\alpha_1(T_C - T_N) > \Delta^2$, то в уравнении (6) имеются два изменения знака в ряду коэффициентов и соответственно два положительных решения, в противном случае — одно. В этом случае возникает требование достаточно большой "разнесенности" температур Кюри и Нееля. Аналогичное условие имеет место и при рассмотрении сверхструктур, образованных двумя однокомпонентными ПП [9].

b) $\delta_2 = 0$, $\delta_1 < 0$. Уравнение (7) имеет решения при любых значениях параметров, т. е. сверхструктура может возникнуть вне зависимости от величины "разнесенности" температур Кюри и Нееля.

Очевидно кардинальное различие условий возникновения сверхструктур при $T_N > T_C$ и $T_C > T_N$. В первом случае длиннопериодическая структура может существовать только при условии не слишком большой "разнесенности" температур Кюри и Нееля, а во втором случае эти температуры должны быть "разнесены" достаточно далеко.

Необходимо отметить, что выше общее рассмотрение сверхструктур проводилось без конкретизации конфигурации, которая породила сверхструктуру. Такая конкретизация при наличии двухкомпонентного ПП может существенно повлиять на полученные результаты. В частности, в трехподрешеточных магнетиках может возникнуть антиферромагнитно-ферримагнитное состояние, при котором $\mathbf{L}_1 = 0$ [8]. В этом случае $\mathbf{S}_2 = \mathbf{S}_3$, $\mathbf{S}_1 = -2\mathbf{S}_3 + \mathbf{S}_4$, где $\mathbf{S}_4$, как показано в [8], появляется в результате наличия инвариантов четвертой степени, содержащих произведение $\mathbf{F}\mathbf{L}_2^3$ в неравновесном потенциале. Очевидно, что в НТДП (1) останутся только пространственные производные по X, т.е. вектор распространения будет располагаться по оси OX. Образующаяся при этом сверхструктура может быть либо спиральной, либо циклоидальной. Кроме этого, возможна конфигурация со "скрытым" парамагнетизмом [8,10]. При такой магнитной конфигурации в системе кристаллографически эквивалентных в парамагнитной фазе ионов эффективное обменное поле в одной из трех подрешеток оказывается полностью скомпенсированным, и спиновый момент первого порядка этой подрешетки обращается в нуль. В самом деле, при данной конфигурации $\mathbf{F} = \mathbf{L}_2 = 0$, откуда следует, что $\mathbf{S}_1 = 0$, $\mathbf{S}_2 = -\mathbf{S}_3$, т.е. ионы первой подрешетки парамагнитны, а ионы остальных образуют антиферромагнитную структуру. Поскольку $\mathbf{F} = \mathbf{L}_2 = 0$ и в НТДП (1) отсутствуют инварианты другой природы при конфигурации со "скрытым" парамагнетизмом возникновение сверхструктуры будет невозможно.

Таким образом, можно утверждать, что для трехподрешеточных магнетиков характерно следующее.

1) В них могут существовать четыре типа сверхструктур: циклоидальная; спиральная; смешанная; скошенная спиральная. В первых двух вектор $\mathbf{L}_2$ равен нулю (антиферромагнитно-ферримагнитное состояние), а векторы $\mathbf{F}$, $\mathbf{L}_1$ вращаются в одной плоскости; в третьем и четвертом типах все ПП отличны от нуля и векторы $\mathbf{F}$, $\mathbf{L}_1$, $\mathbf{L}_2$ могут вращаться как в разных, взаимно перпендикулярных, плоскостях, так и в одной и той же плоскости.

2) Вектор распространения $\mathbf{k}$ располагается в плоскости XOY в произвольном направлении. Модуль этого вектора и его направление могут меняться в зависимости от температуры. При наличии антиферромагнитно-ферримагнитного состояния этот вектор имеет только компоненту k_x.

3) При наличии конфигурации со "скрытым" парамагнетизмом длиннопериодическая структура образоваться не может.

4) Для структур, полученных в настоящей работе при всех отличных от нуля ПП, вектор распространения в общем случае не располагается ни в плоскости вращения неприводимых векторов, ни в перпендикулярном направлении. Это свидетельствует о том, что данные структуры не являются спиральными или циклоидальными в общепринятом смысле.

Авторы выражают благодарность Е.П. Стефановскому за обсуждение результатов работы.

Список литературы

[1] T.A. Kaplan. Phys. Rev. **116**, 888 (1959).
[2] A. Yoshimori. J. Phys. Soc. Jap. **14**, 807 (1959).
[3] Ю.А. Изюмов. УФН **144**, 439 (1984).
[4] И.Е. Дзялошинский. ЖЭТФ **47**, 992 (1964).
[5] Е.П. Стефановский. ФТТ **28**, *11*, 3452 (1986).
[6] В.Г. Барьяхтар, Е.П. Стефановский, Д.А. Яблонский. Письма в ЖЭТФ **42**, *6*, 258 (1985).
[7] H. Fujii, T. Hokabe, K. Eguchi, H. Fujiwara, T. Okamoto. J. Phys. Soc. Jap. **51**, 414 (1982).
[8] D.A. Yablonski, L.I. Medvedeva. Physica **B167**, 125 (1990).
[9] В.Г. Барьяхтар, Е.П. Стефановский. ФНТ **22**, 904 (1996).
[10] Ю.М. Гуфман, Е.И. Кутьин, В.Л. Лорман, А.М. Прохоров. Письма в ЖЭТФ **46**, 228 (1987).