Письма в ЖЭТФ, том 108, вып. 3, с. 196 – 200 

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

*С. Н. Мартынов*[1)]

*Институт физики им. Л.В. Киренского, ФИЦ КНЦ Сибирского отделенимя 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 ориентацию 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 $\mathbf{M}_1 \longleftrightarrow \mathbf{M}_2$, 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 центросимметричной обменной структуры с четной осью второго порядка вдоль оси b кристалла потенциал имеет вид

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

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

$$H = J\sum_{ij} \mathbf{S}_i \mathbf{S}_j + K_1 \sum_i {S_i^{\varphi 1}}^2 + K_2 \sum_j {S_j^{\varphi 2}}^2 + \\ + H_0\Big(\sum_i S_i^z + \sum_j S_j^z\Big) \qquad (1) \\ J > 0.$$

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 может 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 $\theta_1$ и $\theta_2$, а осей анизотропии – углами $\varphi 1$ и $\varphi 2$. 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

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

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 $m << 1$ 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

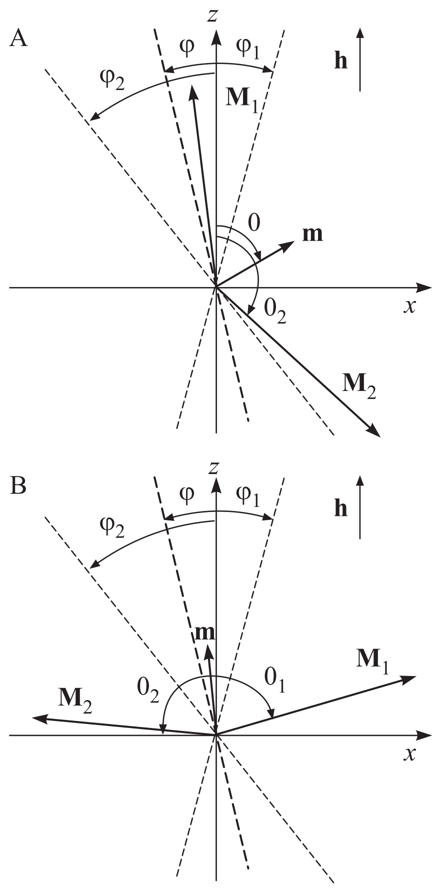


Рис. 1. Ориентации моментов антиферромагнитных подрешеток и суммарного магнитного момента в двух различных состояниях. При угле между легкими осями подрешеток $\delta < \pi/4$ основным при $h < h_{sf}$ является состояние A, а при $h > h_{sf}$ – состояние B

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

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

а для состояния B

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

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

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 $2\theta$, так и по параметру неколлинеарности осей анизотропии $2\delta$. 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 A, а нижний – состоянию B. Зависимость угла ориентации полного момента $\theta$ от внешнего поля h в общем случае произвольных значений $K, \Delta, \delta$ и ориентации кристалла $\varphi$ может быть получена из равенства правых частей уравнений систем (4) и (5) для состояний A и B соответственно.

Для однопозиционного антиферромагнетика ($\Delta = 0$) среднее направление осей анизотропии $\varphi$ 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 $\varphi$, вдоль которой ориентируется вектор **l**. Соответственно, основным состоянием является состояние A 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 B 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 A момент **m** поворачивается к направлению магнитного поля. При этом уменьшается угол $\theta$ 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 B. Однако обращение в ноль спонтанного момента в разных состояниях происходит при различных значениях магнитного поля $h_c^{A,B}$

$$h_c^{A,B} = \mp \frac{2KS(2\delta)C(\varphi+\pi/4)}{C(2\varphi)} + \\ + \sqrt{\Big(\frac{2KS(2\delta)C(\varphi+\pi/4)}{C(2\varphi)}\Big)^2 - \frac{4h_e KC(2\delta)}{C(2\varphi)}}. \qquad (9)$$

Верхний знак при первом слагаемом соответствует критическому полю состояния A, а нижний – состояния B. Таким образом, поле при котором исчезает спонтанный момент в состоянии A превышает соответствующее поле состояния B, 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.

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

Анализ устойчивости состояний A и B при $\varphi = 0$ показывает, что в интервале полей $0 \le h \le h_c^A$ состояние A остается устойчивым в то время как состояние B устойчиво при $h \ge h_c^B$. При этом энергия состояния A в поле $h_c^A$ уже выше энергии состояния B с $\theta = 0$ в этом же поле. В свою очередь при $h = h_c^B$ нижним по энергии является состояние A. Таким образом, переход между состояниями A и B 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 ($\varphi$ на рис. 1) эквивалентно замене $\delta \to \pi/2 - \delta > \pi/4$ и основным состоянием при любом поле остается состояние B 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 B выше поля СФ перехода магнитный момент будет ориентирован между осью анизотропии $\varphi$ и направлением внешнего поля, асимптотически приближаясь к последнему при

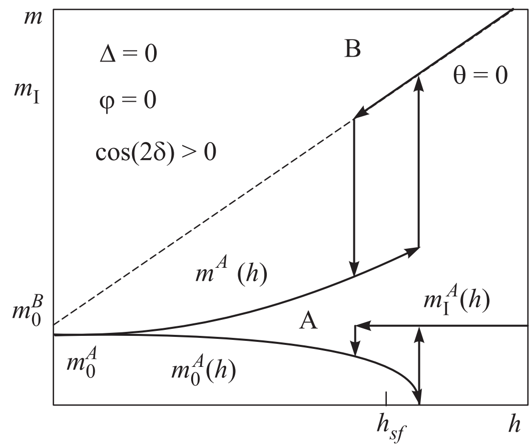


Рис. 2. Полевая зависимость величины полного магнитного момента $m$ и спонтанного одноионного вклада $m_I$ при $\delta < \pi/4$ в состояниях A и B до и после СФ перехода, соответственно

$h \to \infty$. 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 антиферомагнетика ($\Delta \neq \neq 0$) 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 $\theta$. 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

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

где

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

Так как при $\Delta \neq 0$ дополнительные сдвиги фаз разные ($\eta \neq \gamma$), при любой ориентации кристалла в системе уравнений, описывающей зависимость угла $\theta$ 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 $Pb_2Fe_2Ge_2O_9$ [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

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

где $d_{12}$ и $d_1$ – параметры разложения потенциала отвечающие за двух- и одноионный механизмы, соответственно, 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. T. A. 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).