

УДК 548:537. 611. 45

©1994

**ФЕНОМЕНОЛОГИЧЕСКОЕ ОПИСАНИЕ  
ТРЕХПОДРЕШЕТОЧНЫХ АНТИФЕРРОМАГНЕТИКОВ  
В ОБМЕННОМ ПРИБЛИЖЕНИИ**

Ю.М.Гуфан, А.Н.Садков, В.М.Тилес,

С помощью теоретико-групповых методов проведена классификация магнитных структур трехподрешеточных магнетиков в обменном приближении во внешнем магнитном поле. Построена фазовая  $H-T$  диаграмма трехподрешеточного обменного антиферромагнетика в феноменологической модели четвертой степени. Определены допустимые симметрией линеаризованные термодинамические бездиссипативные уравнения, описывающие динамику магнитной подсистемы трехподрешеточных магнетиков, из которых следует, что в резонансном спектре некомпланарной фазы трехподрешеточных магнетиков должна наблюдаться резонансная мода, существование которой не предсказывает теория, основанная на уравнениях движения Ландау-Лифшица. Исследованы качественные характеристики зависимости резонансных частот трехподрешеточного антиферромагнетика от температуры и внешнего поля, а также условия их возбуждения в «зонтичной» антиферромагнитной фазе соединения типа  $Mn_3NiN$  со структурой первовскита.

В последнее время возрос интерес к теоретическому изучению магнитоупорядоченных кристаллов, содержащих несколько магнитных ионов в элементарной ячейке. Дело в том, что большинство используемых в технике сверхвысоких частот магнитоупорядоченных веществ являются многоподрешеточными. В качестве примера можно назвать гексаферриты, гранаты, шпинели, редкоземельные ортоферриты и многие другие [1]. Возможности современного эксперимента, в частности исследования по антиферромагнитному резонансу, в принципе позволяют выделить и изучить те особенности, которые обязаны многоподрешеточности. Так, в антиферромагнетиках и ферритах, кроме ферромагнитоподобной ветви спектра, должна существовать дополнительная ветвь, обязанная своим происхождением разбиению магнитной подсистемы на две подрешетки, в магнитоупорядоченных фазах [2].

Создание микроскопической теории магнетиков, содержащих более чем два магнитных атома в элементарной ячейке, технически сложно. Значительные трудности вызывает даже описание спектра элементарных возбуждений такого магнетика. Поэтому обычно принимают упрощающие модельные предположения, которые, вообще говоря, могут приводить к трудноконтролируемым ошибкам теории [3,4]. Кроме того, модель необходимо проверять на структурную устойчивость. Так, принимаемые при формулировке модели упрощения могут при-

водить к тому, что некоторые ответы будут их прямым следствием и небольшие вариации модели качественно изменяют результаты [3,5]. Считается, что модельное описание претендует на раскрытие механизма явления. Но разные модели могут приводить к одним и тем же результатам в силу того, что ряд выводов есть следствие общих законов, связанных только с симметрией исследуемого объекта. Эти обстоятельства делают актуальной разработку симметрийной теории, в основу которой положены лишь первые принципы физики, такие как принцип Кюри, принцип минимума функционала свободной энергии (лагранжиана при  $T = 0$ ), закон сохранения полной энергии и т.д. Фундамент такого описания был заложен в работе [6].

Сочетание этого метода Ландау с применением теоретико-групповых соображений, в частности, позволяет адекватно описать статические свойства реальных многоподрешеточных магнетиков. Так, в работе [7] была описана реально существующая киттлевская треугольная структура [8], в работах [9,10] рассматривались четырехподрешеточные структуры в кубическом кристалле  $\text{UO}_2$ . В последние годы появился ряд обзоров и статей, в которых изучались свойства и возможные магнитные структуры многоподрешеточных магнетиков [11–14]. Однако в настоящее время нет полного решения проблемы стабильных состояний даже трехподрешеточных антиферромагнетиков, тем более во внешнем магнитном поле.

При исследовании динамического поведения многоподрешеточных магнетиков обычно используют уравнения движения Ландау–Лифшица [15]. В этом случае магнитная подсистема рассматривается как суперпозиция нескольких вставленных друг в друга, взаимодействующих, но динамически независимых ферромагнитных подрешеток [16]. Следствием этого упрощения являются дополнительные законы сохранения, которые не соответствуют симметрии задачи, в частности закон сохранения величины намагниченности подрешетки в динамике. Видоизменение уравнений типа Ландау–Лифшица с учетом анизотропии динамических феноменологических параметров было сделано в работе [17]. Влияние анизотропии  $g$ -фактора на спектр антиферромагнитного резонанса было убедительно показано в [18,19]. В работе [20] были предложены линеаризованные термодинамические уравнения движения, структура которых определяется только соображениями симметрии. Применение этих уравнений движения к двухподрешеточному антиферромагнетику показывает, что в его резонансном спектре должна наблюдаться еще одна (третья) частота, на два порядка более низкая ( $10^9 \text{ Hz}$ ), чем нижняя резонансная частота, существование которой следует из уравнений движения типа Ландау–Лифшица [20].

Цель нашей работы состоит в предсказании третьей обменной резонансной моды в спектре некомпланарной фазы трехподрешеточных антиферромагнетиков, существование которой не следует из теории, основанной на уравнениях движения типа Ландау–Лифшица, а также в исследовании качественных характеристик зависимости резонансных частот от температуры и внешнего поля, условий их возбуждений в «зонтичной» антиферромагнитной фазе соединений типа  $\text{Mn}_3\text{NiN}$  со структурой перовскита.

# 1. Магнитные структуры трехподрешеточного обменного антиферромагнетика во внешнем магнитном поле

Изучению магнитных свойств трехподрешеточных магнетиков посвящено большое количество работ [21–24]. Трехподрешеточные упорядочения возможны в кубических, гексагональных и ромбоэдрических классах кристаллов при условии, что мультиплекция решетки соответствует условию Лифшица возможности существования переходов второго рода. В случае если отказаться от этого ограничения, то трехподрешеточное упорядочение возникает и при утройении периода вдоль выделенной оси одноосных кристаллов.

Рассмотрим кристалл со структурой перовскита (например,  $Mn_3NiN$ ). Для простоты предположим, что магнитная спиновая плотность локализована в центре расположения ионов переходных элементов, входящих в структуру, и определяется только средним значением спина иона

$$S_i, \quad m(r) = \sum_i \mu_B S_i \delta(r - r_i),$$

где  $\mu_B$  — магнетон Бора. Магнитные ионы расположены в правильной системе точек (*c*) группы  $O_h^1$ :  $1(0, \tau, \tau)$ ,  $2(\tau, 0, \tau)$ ,  $3(\tau, \tau, 0)$ . Основные периоды решетки:  $a_1 = (2\tau, 0, 0)$ ,  $a_2 = (0, \tau, 0)$ ,  $a_3 = (0, 0, 2\tau)$ .

Экспериментальные данные [24] по  $Mn_3NiN$  говорят о том, что при  $T < 180$  К в нем реализуется треугольная антиферромагнитная структура со спинами, ориентированными вдоль  $[110]$ ,  $[\bar{1}01]$  и  $[01\bar{1}]$ . В интервале температур  $180 < T < 266$  К спины разворачиваются в плоскости  $(111)$ , и при  $T > 266$  К они направлены уже вдоль  $[1\bar{1}2]$ ,  $[\bar{1}2\bar{1}]$ ,  $[2\bar{1}\bar{1}]$  (рис. 1). При  $T = 266$  К наблюдается переход первого рода из антиферромагнитной фазы в парамагнитную.

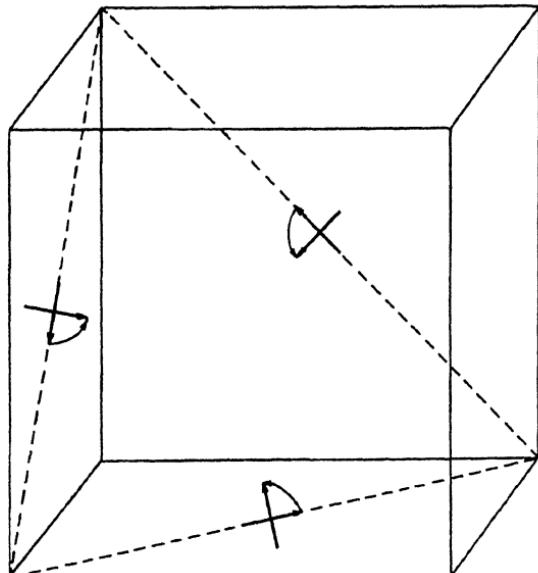


Рис. 1. Спиновая переориентация в  $Mn_3NiN$ .

Заметим, что две магнитоупорядоченные структуры имеют одинаковую обменную энергию и составляют так называемый обменный мультиплет [23]. В работе [25] была проведена классификация чисто антиферромагнитных структур в обменном приближении, в числе которых была найдена и треугольная киттлевская структура. Цель этого раздела — установить, какие изменения в эти конфигурации вносит внешнее магнитное поле.

Рассмотрим магнитные переходы в  $Mn_3NiN$ , которые происходят без мультиплекции примитивной ячейки, т.е. с  $k_{12} = 0$  [26]. Тогда неравновесный потенциал можно записать как функцию трех естественных координат  $S_1$ ,  $S_2$  и  $S_3$  или трех симметрических координат, называемых спиновыми плотностями: одной ферромагнитной  $M = (1/\sqrt{3})(S_1 + S_2 + S_3)$  и двух антиферромагнитных  $L_1 = (1/\sqrt{6})(2S_1 - S_2 - S_3)$  и  $L_2 = (1/\sqrt{2})(S_2 - S_3)$  [27].

В обменном приближении неравновесный потенциал остается инвариантным при всех вращениях в спиновом пространстве и любых перестановках номеров подрешеток. Тогда целый рациональный базис инвариантов относительно группы  $L = C_{3v} \times O_3^+$  [28], составленный из компонент векторов  $M$ ,  $L_1$ ,  $L_2$ , есть

$$\begin{aligned} J_1 &= L_1^2 + L_2^2, \\ J_2 &= (L_1^2 - L_2^2)^2 + 4(L_1 L_2)^2, \\ J_3 &= (L_1^2 - L_2^2)^3 - 12(L_1^2 - L_2^2)(L_1 L_2)^2, \\ J_4 &= M^2, \\ J_5 &= (L_1^2 - L_2^2)(ML_1) - 2(L_1 L_2)(ML_2), \\ J_6 &= (L_1^2 - L_2^2)(ML_1) - 4(L_1 L_2)^2(ML_1) + 8(L_1^2 - L_2^2)(L_1 L_2)(ML_2), \\ J_7 &= (ML_1)^2 + (ML_2)^2, \\ J_8 &= (ML_1)^3 - 3(ML_2)^2(ML_1), \\ J_9 &= (ML_1)^2(L_1^2 - L_2^2) - (ML_2)^2(L_1^2 - L_2^2) + 4(ML_1)(ML_2)(L_1 L_2). \end{aligned} \quad (1)$$

Инварианты  $J_1$ ,  $J_2$  и  $J_3$  описывают обменные взаимодействия антиферромагнитных спиновых плотностей; инварианты  $J_5$  и  $J_6$  — линейные по вектору ферромагнетизма и отвечают за явление скрытого антиферромагнетизма [9, 29]; инварианты  $J_7$ ,  $J_8$  и  $J_9$  учитывают нелинейные взаимодействия ферромагнитной  $M$  и антиферромагнитных  $L_1$  и  $L_2$  спиновых плотностей.

Тогда в общем случае неравновесный потенциал Ландау как функция магнитного поля  $H$  и спиновых плотностей имеет вид

$$\Phi = \Phi(J_1, J_2, \dots, J_9) - MH. \quad (2)$$

Анализ, аналогичный [25], показывает, что уравнения состояния, соответствующие потенциальному (2), допускают восемь типов решений, которые в терминах компонент параметров порядка имеют вид

I.  $\mathbf{L}_1 = 0, \mathbf{L}_2 = 0, \mathbf{M} \neq 0, \mathbf{S}_1 = \mathbf{S}_2 = \mathbf{S}_3,$

II.  $(\mathbf{L}_1 \mathbf{L}_2) = (\mathbf{L}_1 \mathbf{M}) = (\mathbf{L}_2 \mathbf{M}) = 0, \mathbf{L}_1^2 = \mathbf{L}_2^2, \mathbf{S}_1^2 = \mathbf{S}_2^2 = \mathbf{S}_3^2,$

$$(\mathbf{S}_1 \mathbf{S}_2) = (\mathbf{S}_1 \mathbf{S}_3) = (\mathbf{S}_2 \mathbf{S}_3),$$

III.  $(\mathbf{L}_1 \mathbf{L}_2) = (\mathbf{L}_2 \mathbf{M}) = 0, \mathbf{M} \times \mathbf{L}_1 = 0, \mathbf{L}_1^2 > \mathbf{L}_2^2, \mathbf{S}_2^2 = \mathbf{S}_3^2,$

$$(\mathbf{S}_1 \mathbf{S}_2) = (\mathbf{S}_1 \mathbf{S}_3), (\mathbf{S}_1 - \mathbf{S}_3)^2 > (\mathbf{S}_2 - \mathbf{S}_3)^2,$$

IV.  $(\mathbf{L}_1 \mathbf{L}_2) = (\mathbf{L}_2 \mathbf{M}) = 0, \mathbf{M} \times \mathbf{L}_1 = 0, \mathbf{L}_1^2 < \mathbf{L}_2^2, \mathbf{S}_2^2 = \mathbf{S}_3^2,$

$$(\mathbf{S}_1 \mathbf{S}_2) = (\mathbf{S}_1 \mathbf{S}_3), (\mathbf{S}_1 - \mathbf{S}_3)^2 < (\mathbf{S}_2 - \mathbf{S}_3)^2,$$

V.  $\mathbf{L}_1 \neq 0, \mathbf{L}_2 = 0, \mathbf{M} \neq 0, (\mathbf{M} \mathbf{L}_1) = +|\mathbf{M}| |\mathbf{L}_1|,$

$$\mathbf{S}_2 = \mathbf{S}_3, \mathbf{S}_1 \times \mathbf{S}_2 = 0, \mathbf{S}_1^2 > \mathbf{S}_2^2,$$

VI.  $\mathbf{L}_1 \neq 0, \mathbf{L}_2 = 0, \mathbf{M} \neq 0, (\mathbf{M} \mathbf{L}_1) = -|\mathbf{M}| |\mathbf{L}_1|,$

$$\mathbf{S}_2 = \mathbf{S}_3, \mathbf{S}_1 \times \mathbf{S}_2 = 0, \mathbf{S}_1^2 < \mathbf{S}_2^2,$$

VII.  $\mathbf{L}_1 \times \mathbf{L}_2 = \mathbf{L}_1 \times \mathbf{M} = \mathbf{L}_2 \times \mathbf{M} = 0,$

$$\mathbf{S}_1 \times \mathbf{S}_2 = \mathbf{S}_1 \times \mathbf{S}_3 = \mathbf{S}_2 \times \mathbf{S}_3 = 0,$$

VIII.  $\mathbf{L}_1 \neq 0, \mathbf{L}_2 \neq 0, \mathbf{M} \neq 0, \mathbf{S}_1 \neq 0, \mathbf{S}_2 \neq 0, \mathbf{S}_3 \neq 0.$  (3)

Первое из решений уравнений состояния описывает парамагнитную или ферромагнитную фазу. Второй тип симметрии соответствует «зонтичному» антиферромагнитному упорядочению. Третий и четвертый типы симметрии описывают две антиизоструктурные фазы с неколлинеарной антиферромагнитной структурой. Пятый, шестой и седьмой типы решений соответствуют трем разным коллинеарным антиферромагнитным упорядочениям (фазы V и VI антиизоструктурные). И наконец, восьмое решение описывает самую низкосимметричную фазу.

Сравнительный анализ магнитных структур, найденный в [25], с фазами (3) показывает, что магнитное поле искажает киттелевскую структуру, превращает ее в «зонтичную», а также приводит к исчезновению фазы с так называемым «скрытым» парамагнетизмом, в которой намагниченность одной из подрешеток обращается в нуль ( $S_1 = 0$ ).

## 2. Термодинамические бездиссипативные уравнения движения трехподрешеточного антиферромагнетика в обменном приближении

Для описания динамических свойств многоподрешеточных магнетиков обычно используют уравнения первого порядка от обобщенных координат системы по времени. Тогда секулярное уравнение системы динамических уравнений, описывающее зависимость собственных частот  $\omega_i$  магнитной подсистемы от внешних условий и феноменологических параметров, в общем случае с учетом затухания имеет вид [30]

$$\omega^{3n} + \omega^{3n-1} SpR_1 + \omega^{3n-2} SpR_2 + \dots + \omega SpR_{3n-1} + SpR_{3n} = 0. \quad (4)$$

Здесь  $n$  — число магнитных подрешеток;  $SpR_i$  представляют сумму определителей матриц размерности  $i \times i$ , полученных из матриц  $3n$ -го порядка, элементы которых

$$J_{ik} = \sum_{j=1}^{3n} \gamma_{ij} \alpha_{jk},$$

где  $\|\gamma_{ik}\|$  — матрица феноменологических коэффициентов уравнений движения,  $\|\alpha_{ik}\|$  — матрица, определяющая устойчивость фазы, т.е. матрица вторых производных  $\Phi$  по  $L_i$  и  $M_k$  [30].  $SpR_{3n}$  распадается на произведение определителей матриц  $\|\gamma_{ik}\|$  и  $\|\alpha_{ik}\|$ , т.е. свободный член секулярного уравнения пропорционален определителю матрицы устойчивости. Из этого видно, что, как и должно быть в общем случае, на линиях потери устойчивости один из корней секулярного уравнения обращается в нуль. Если этот корень действительный, то говорят о мягкой mode в магнитной подсистеме; если же он мнимый, то говорят о мягком релаксаторе. Равенство нулю определителя  $|\gamma_{ik}|$  означает, что существуют некоторые интегралы движения, связанные с кинематикой магнитной подсистемы [31]. Для описания таких кинематически нестабильных систем исключают из рассмотрения циклические координаты. При этом вид секулярного уравнения, описывающего динамику нециклических обобщенных координат, сохранится, но степень уравнения понизится.

Соображения симметрии позволяют найти самый общий вид термодинамически допустимых уравнений движения для трехподрешеточного магнетика. В обменном приближении система этих уравнений должна быть инвариантна относительно произвольных вращений спинового пространства и любых перестановок номеров подрешеток. Учитывая это, легко получить, что бездиссипативные уравнения движения, содержащие только линейные по равновесным спиновым плотностям кинетические коэффициенты, в общем случае имеют вид

$$\mathbf{m} = g_1 \mathbf{M}_0 \times \mathbf{F} + g_2 (\mathbf{L}_{10} \times \mathbf{N}_1 + \mathbf{L}_{20} \times \mathbf{N}_2),$$

$$\mathbf{l}_1 = g_2 \mathbf{L}_{10} \times \mathbf{F} + g_3 \mathbf{M}_0 \times \mathbf{N}_1 + g_4 (\mathbf{L}_{10} \times \mathbf{N}_1 - \mathbf{L}_{20} \times \mathbf{N}_2),$$

$$\mathbf{l}_2 = g_2 \mathbf{L}_{20} \times \mathbf{F} + g_3 \mathbf{M}_0 \times \mathbf{N}_2 - g_4 (\mathbf{L}_{10} \times \mathbf{N}_2 + \mathbf{L}_{20} \times \mathbf{N}_1). \quad (5)$$

Здесь  $\mathbf{m} = \mathbf{M} - \mathbf{M}_0$ ,  $\mathbf{l}_1 = \mathbf{L}_1 - \mathbf{L}_{10}$ ,  $\mathbf{l}_2 = \mathbf{L}_2 - \mathbf{L}_{20}$  — отклонения спиновых плотностей от равновесных значений;  $\mathbf{F} = \partial\Delta\Phi/\partial\mathbf{m}$ ,  $\mathbf{N}_1 = \partial\Delta\Phi/\partial\mathbf{l}_1$ ,  $\mathbf{N}_2 = \partial\Delta\Phi/\partial\mathbf{l}_2$  — термодинамические силы;  $\Delta\Phi$  — добавка к термодинамическому потенциалу за счет отклонения системы от равновесного состояния.

Заметим, что уравнения Ландау–Лифшица можно формально получить из термодинамических, если положить  $g_1 = g_2 = g_3 = g$ ,  $g_4 = g/\sqrt{2}$ . Однако эти равенства не должны иметь место в общем случае. Более того, отклонения от них существенны, так как описывают влияние термодинамической силы, возникающей за счет отклонения в одной подрешетке, на движение другой; изменение влияния силы, возникающей при отклонении в какой-либо подрешетке, на движения ее самой за счет существования других подрешеток [32].

Нетрудно убедиться, что термодинамические уравнения движения (5) имеют один кинематический интеграл движения

$$g_3(\mathbf{M}_0\mathbf{m}) + g_2[(\mathbf{L}_{10}\mathbf{l}_1) + (\mathbf{L}_{20}\mathbf{l}_2)] = 0. \quad (6)$$

Следовательно, уравнение (4) для определения собственных частот магнитной подсистемы трех магнитных подрешеток принимает вид

$$\omega(\omega^8 - SpR_2\omega^6 + SpR_4\omega^4 - SpR_6\omega^2 + SpR_8) = 0. \quad (7)$$

Присутствие только четных степеней  $\omega$  является следствием инвариантности уравнений (5) относительно операций инверсии времени, соответствующей закону сохранения энергии [31].

Из (7) следует, что бездиссипативный трехподрешеточный антиферромагнетик, динамика которого определяется обменными уравнениями движения, может иметь максимум восемь отличных от нуля собственных частот:  $\pm\omega_1, \pm\omega_2, \pm\omega_3, \pm\omega_4$ . Уравнения Ландау–Лифшица тоже соответствуют обменному приближению, но они содержат дополнительное предположение, что спин каждой магнитной подрешетки (т.е. макроскопическая переменная) сохраняет свою величину при отклонении от положения равновесия, что заведомо неверно при температурах, близких к температурам магнитных переходов. Согласно этой дополнительной гипотезе, заложенной в уравнениях Ландау–Лифшица, есть три закона сохранения (соответствующие сохранению квадратов намагниченности подрешеток при отклонении от положения равновесия)

$$\begin{aligned} &(\mathbf{M}_0\mathbf{m}) + (\mathbf{L}_{10}\mathbf{l}_1) + (\mathbf{L}_{20}\mathbf{l}_2) = 0, \\ &\sqrt{2}[(\mathbf{M}_0\mathbf{l}_2) + (\mathbf{L}_{20}\mathbf{m})] - [(\mathbf{L}_{10}\mathbf{l}_2) + (\mathbf{L}_{20}\mathbf{l}_1)] = 0, \\ &(1/\sqrt{2})(\mathbf{M}_0\mathbf{m}) + \sqrt{2}(\mathbf{L}_{20}\mathbf{l}_2) - [(\mathbf{M}_0\mathbf{l}_1) + (\mathbf{L}_{10}\mathbf{m})] = 0. \end{aligned} \quad (8)$$

Первый из этих интегралов движения соответствует (6), а два других не связаны ни с какими реальными свойствами симметрии системы и поэтому являются лишними. В соответствии с этим при описании динамики с помощью уравнений Ландау–Лифшица мы получим, что ни в одной из фаз не может существовать более шести частот в спектре антиферромагнитного резонанса, даже если в гамильтониане системы учесть анизотропию. В связи с этим возникает вопрос: в каких фазах

могут проявляться дополнительные ветви в спектре уже в обменном приближении? Для этого необходимо определить те магнитные конфигурации, для которых ранг матрицы  $\|\gamma_{ik}\|$  феноменологических коэффициентов термодинамических уравнений движения (5) равен восьми. Обозначим через  $A_i$  матрицы, полученные из матрицы  $\|\gamma_{ik}\|$  вычертыванием  $i$ -го столбца и  $i$ -й строки. Тогда

$$\begin{aligned} \det A_9 &= g_2^2(g_2^2g_3 - 2g_1g_4^2)^2 L_{20z}^2 (\mathbf{L}_{20}[\mathbf{L}_{10} \times \mathbf{M}_0])^2, \\ \det A_8 &= g_2^2(g_2^2g_3 - 2g_1g_4^2)^2 L_{20y}^2 (\mathbf{L}_{20}[\mathbf{L}_{10} \times \mathbf{M}_0])^2, \\ \det A_7 &= g_2^2(g_2^2g_3 - 2g_1g_4^2)^2 L_{20x}^2 (\mathbf{L}_{20}[\mathbf{L}_{10} \times \mathbf{M}_0])^2, \\ \det A_i &= 0, \quad i = 1-6. \end{aligned} \quad (9)$$

Из анализа соотношений (9) можно сделать вывод, что дополнительные ветви спектра собственных колебаний могут проявляться только в некомпланарных магнитных структурах. Число собственных частот магнитной подсистемы определяется рангом матрицы  $\|J_{ik}\|$  и зависит от рангов обеих матриц  $\|\gamma_{ik}\|$  и  $\|\alpha_{ik}\|$ . Ранг же матрицы  $\|\alpha_{ik}\|$  определяется числом степеней свободы системы и в обменном приближении равен шести в соответствии с числом обобщенных координат, необходимых для ее описания (три длины векторов  $\mathbf{M}$ ,  $\mathbf{L}_1$ ,  $\mathbf{L}_2$  и три угла между ними). Следовательно, в спектре антиферромагнитного резонанса не может проявиться более шести обменных мод. Заметим, что в теории, опирающейся на уравнения Ландау–Лифшица, возможны всего четыре обменные моды. Для доказательства этого факта остановимся на более подробном описании свойств «зонтичной» некомпланарной фазы.

### 3. Фазовая диаграмма трехподрешеточного обменного антиферромагнетика во внешнем магнитном поле (модель)

При решении вопроса о термодинамической устойчивости фаз и построении фазовой диаграммы будем основываться на явном виде потенциала  $\Phi$ . Ограничимся феноменологической моделью четвертой степени

$$\Phi = A_1 J_1 + A_2 J_1^2 + C_1 J_2 + B_1 J_4 + C_2 J_5 + D_1 J_7 + D_2 J_1 J_4 - \mathbf{M} \mathbf{H}. \quad (10)$$

Уравнения состояния, соответствующие (10), допускают те же шесть разных по симметрии решений, что и уравнения для полного потенциала Ландау. Точнее, модель (10) не различает только антиизоструктурные фазы III и IV, отличие между которыми присутствует в более полной теории. Особенностью модели является и то, что в ее рамках нельзя описать коллинеарную фазу VII и наиболее низкосимметричную фазу VIII. Это обусловлено тем, что (10) не позволяет изучать систему вблизи  $C_1 \approx 0$ ,  $C_2 \approx 0$  и  $D_1 \approx 0$ .

В качестве базы деформации [5] в потенциале (10) допустимо выбрать только  $A_1$  и  $\mathbf{H}$ . Это приближение вполне соответствует экспериментальной ситуации вблизи температуры антиферромагнитного упорядочения. Поэтому, согласно теории Ландау, можно положить  $A_1 = \alpha(T - T_N)$ .

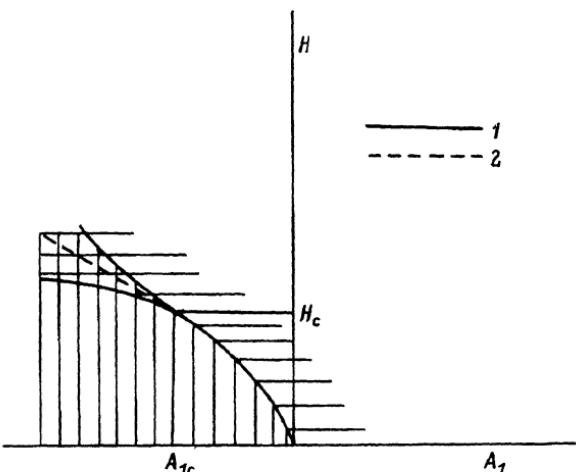


Рис. 2. Фазовая  $H$ - $T$  диаграмма потенциала (10).

Вертикально заштрихованная область — область устойчивости «зонтичной» фазы; горизонтально заштрихованная область — область устойчивости парамагнитной фазы;  $A_{1c}$ ,  $H_c$  — координаты трикритической точки; 1 — линия устойчивости фаз; 2 — линия равенства энергий фаз.

На рис. 2 изображена фазовая диаграмма потенциала (10). Граница устойчивости парамагнитной фазы — парабола

$$A_1 = -(D_2/4B_1^2)H^2. \quad (11)$$

Эта же линия соответствует устойчивости «зонтичной» фазы до трикритической точки с координатами

$$H_c = 2\sqrt{A_2 B_1^3 / D_2}, \quad A_{1c} = -A_2 B_1 / D_2. \quad (12)$$

В более сильных полях и при более низких температурах ( $H > H_c$ ,  $A_1 < A_{1c}$ ) «зонтичная» фаза теряет устойчивость. Линия потери устойчивости «зонтичной» фазы от трикритической точки — полукубическая парабола

$$A_1 = (A_2/D_2) \left[ 2B_1 - 3\sqrt[3]{D_2^2/A_2} (H/2)^{2/3} \right] \quad (13)$$

— проходит по области стабильности парамагнитной фазы. Поэтому область метастабильного существования «зонтичной» фазы перекрывается с областью существования парамагнитной. Приравняв энергии «зонтичной» и парамагнитной фаз, находим, что линия переходов первого рода проходит на плоскости ( $A_1$ ,  $H$ ) по прямой

$$A_1 = -A_{1c} - (D_2/2B_1^2)H_c H. \quad (14)$$

Рассмотрим теперь вопрос о полевом и температурном поведении резонансных частот в «зонтичной» фазе и условия их возбуждения.

#### 4. Спектр антиферромагнитного резонанса. Тензор магнитной восприимчивости

Резонансные частоты магнитной подсистемы — это собственные значения матрицы  $\|J_{ik}\|$ . Отклонения векторов ферромагнетизма и антиферромагнетизма от равновесных значений преобразуются по разным неприводимым представлениям группы симметрии «зонтичной»

фазы, и, следовательно, движение нормальных координат происходит независимо. Колебания нормальных координат  $\psi_1 = (l_{1x} + l_{2y})$ ,  $\psi_2 = (l_{1y} - l_{2x})$  и  $\psi_3 = \sqrt{2}m_z$ , преобразующихся по полносимметричному представлению, происходит с тремя «нулевыми» (при  $g \rightarrow 0$ ) частотами, что является проявлением общего свойства колебательных систем с нарушенной симметрией, которое известно как теорема Голдстоуна [33]. Для нормальных координат

$$\begin{aligned}\varphi_1 &= m_x + im_y, & \varphi_2 &= (1/\sqrt{2})[(l_{1x} - l_{2y}) - i(l_{1y} + l_{2x})], \\ \varphi_3 &= l_{1z} + il_{2z}, & \varphi_4 &= \varphi_1^*, & \varphi_5 &= \varphi_2^*, & \varphi_6 &= \varphi_3^*\end{aligned}$$

уравнения для нахождения частот антиферромагнитного резонанса принимают следующий вид

$$\omega^3 \pm A\omega^2 + B\omega \pm C = 0, \quad (15)$$

где

$$\begin{aligned}A &= 2M[-g_1(B_1 + 2D_2L^2 + D_1L^2) + 2(g_2D_1 + 4g_3C_1 - 2g_4C_2)L^2], \\ B &= 8g_1g_3M^2L^2[(C_2^2 - 8C_1D_2 - 4C_1D_1)L^2 - 4C_1B_1] + \\ &+ 4M^2L^2(B_1 + 2D_2L^2)(4g_1g_4C_2 - g_2^2D_1) + 16M^2L^4(4C_1D_1 - C_2^2)(g_2g_3 - g_4^2), \\ C &= 8(4C_1D_1 - C_2^2)M^2L^4H(2g_1g_4^2 - g_2^2g_3), \\ L_1^2 &= L_2^2 = L^2, \quad |\mathbf{M}| = M.\end{aligned}$$

Очевидно, что если теория опирается на уравнения Ландау–Лифшица для описания динамики магнитной подсистемы, то  $C = 0$  и секулярные уравнения (15) становятся квадратными. Из (15) следует также, что в соответствии с соображениями симметрии система трех эквивалентных в парафазе магнитных подрешеток обладает тремя обменными модами.

Решение уравнений (15) ищем по теории возмущений, используя отклонения коэффициентов  $g_i$  от их значений в уравнениях Ландау–Лифшица как малый параметр. Ограничивааясь первым неисчезающим при  $\Delta g_i \rightarrow 0$  приближением, получаем две ландау–лифшицевские моды  $\omega_1^{(0)}, \omega_2^{(0)}$  и дополнительную  $\omega_1^{(1)}$  ветвь в спектре «зонтичной» антиферромагнитной структуры

$$\begin{aligned}\omega_1^{(0)} &= g^2H^2, \quad \omega_2^{(0)} = 4g^2M^2L^4(8C_1 - 2\sqrt{2}C_2 + D_1)^2, \\ \omega_3^{(1)} &= 16M^2L^4[(4C_1D_1 - C_2^2)/(8C_1 - 2\sqrt{2}C_2 + D_1)]^2 \times \\ &\times (\Delta g_1 - 2\Delta g_2 - \Delta g_3 + 2\sqrt{2}\Delta g_4)^2,\end{aligned}$$

где индексы 0 и 1 вверху в скобках означают степень по малому параметру  $\Delta g_i$ .

Представляет интерес проанализировать поведение собственных частот в различных областях фазовой диаграммы. Для этого определим собственные частоты в парамагнитной фазе, граничащей с «зонтичной» антиферромагнитной. В парамагнитной фазе ( $L = 0$ ) матрица  $\|J_{ik}\|$  становится блочно-диагональной и движение в переменных  $m_i$ ,  $l_1$  и  $l_2$  разделяются. Частоты определяются формулами

$$\omega_1^2 = g_1^2 H^2, \quad \omega_2^2 = (g_3 H / B_1)^2 (A_1 + D_2 H^2 / 4B_1^2)^2, \quad (17)$$

где  $\omega_1$  представляет собой хорошо известную частоту парамагнитного резонанса. На эксперименте по парамагнитному резонансу наблюдается одна ветвь спектра. Здесь нет никакого противоречия, поскольку колебания, соответствующие  $\omega_2$ , в парамагнитной области не возбуждаются внешним переменным полем, т.е. соответствующая «оптическая» нормальная координата не взаимодействует с полем, однородным на размерах элементарной ячейки.

Отметим ряд качественных особенностей поведения резонансных частот трехподрешеточного обменного магнетика. Из (16) и (17) следует, что на линии переходов второго рода, на которой  $L = 0$ , обрашаются в нуль частоты  $\omega_2$  и  $\omega_3$ . Заметим, что  $\omega_1$  и  $\omega_2$ , пересекаясь в парамагнитной фазе, не расталкиваются, так как обладают различной симметрией. В антиферромагнитной фазе все частоты имеют одну симметрию и не пересекаются. В отношении особенностей проявления третьей ветви спектра можно выделить следующее. В общем случае частоты  $\omega_2$  и  $\omega_3$  по мере приближения к границе фазового перехода могут стать сравнимыми. Если при этом ширина линии, соответствующей  $\omega_2$ , невелика, то возникает возможность обнаружить поглощение на третьей ветви спектра. Для более детального исследования нужно знать силы осцилляторов соответствующих  $\omega_2$  и  $\omega_3$ , т.е. восприимчивости. Качественно температурное и полевое поведение резонансных частот для двух термодинамических путей, проходящих через линию переходов второго рода «зонтичной» и парамагнитной фазами, представлено на рис. 3.

Для полноты рассмотрения особенностей проявления третьей ветви спектра необходимо выяснить, чем отличается характер движения спинов в ней по сравнению с движением спинов, определяющих  $\omega_1$  и  $\omega_2$ .

Выражения для собственных частот магнитной подсистемы в первом неисчезающем по малому  $\Delta g_i$  приближении позволяют выяснить, какие феноменологические параметры определяют каждую из собственных частот. Сам характер движения спинов подрешеток (будем рассматривать их как классические векторы) определяется собственными векторами матрицы  $\|J_{ik}\|$ . Именно собственные векторы позволяют установить, чем отличаются движения с различными частотами.

Рассмотрим сначала характер движения магнитной подсистемы для парамагнитной фазы. В этом случае нахождение собственных векторов сильно упрощается, поскольку движение  $m$ ,  $l_1$  и  $l_2$  происходит независимо. Собственные векторы для каждой из двух частот принимают вид

$$m = (1; \mp i; 0) e^{\pm i\omega_1 t}, \quad l_1 = 0, \quad l_2 = 0,$$

$$m = 0, \quad l_1 = (1; \mp i; 0) e^{\pm i\omega_2 t}, \quad l_2 = (1; \mp i; 0) e^{\pm i\omega_2 t}. \quad (18)$$

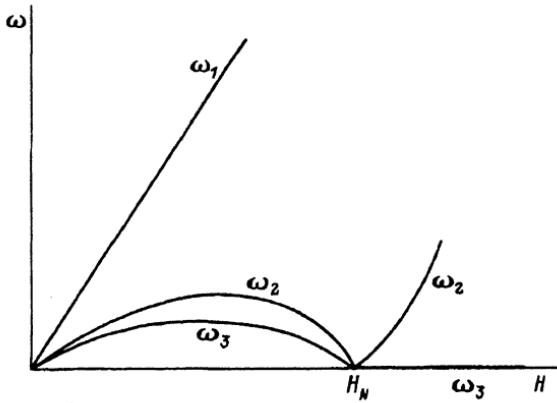
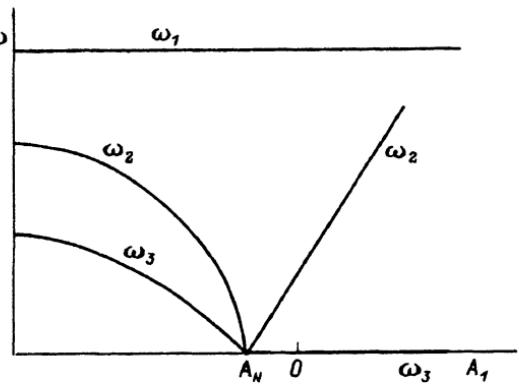


Рис. 3. Качественная температурная и полевая зависимости частот трехподрешеточного антиферромагнетика.

$A_N$ ,  $H_N$  — температура и поле Нееля.

Чтобы изобразить собственные движения, нужно учесть, что реальное движение представляются действительными частями комплексных векторов (18) [2]. Тогда становится очевидным, что для частоты  $+\omega_1$  вектор  $\mathbf{m}$  имеет круговую поляризацию с правым вращением и для частоты  $+\omega_2$  векторы  $\mathbf{l}_1$  и  $\mathbf{l}_2$  имеют также круговую поляризацию с правым вращением. Собственные движения векторов ферромагнетизма  $\mathbf{M}$  и антиферромагнетизма  $\mathbf{l}_1$  и  $\mathbf{l}_2$  имеют вид, представленный на рис. 4, a, b (цифрами обозначены положения концов векторов в одинаковые моменты времени). Заметим, что для частот  $-\omega_1$  и  $-\omega_2$  собственные движения имеют точно такой же вид, но левополяризованы.

Магнитная подсистема в «зонтичной» антиферромагнитной фазе имеет шесть собственных частот и соответственно шесть собственных векторов. Для наглядности изображения движения дчостаточно ограничиться первым неисчезающим при  $\Delta q_i \rightarrow 0$  приближением, в рамках которого получено выражение (16).

Тогда шесть собственных векторов можно записать как

$$\mathbf{m} = (1, \mp i, 0) e^{\pm i\omega_1 t},$$

$$\mathbf{l}_1 = \left(0, 0, -\frac{L}{M}\right) e^{\pm i\omega_1 t}, \quad \mathbf{l}_2 = \left(0, 0, \pm i \frac{L}{M}\right) e^{\pm i\omega_1 t},$$

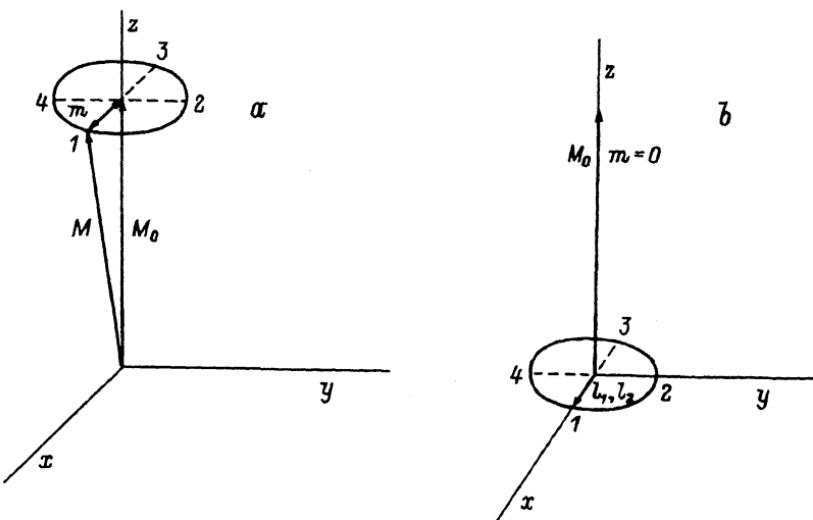


Рис. 4. Движение векторов ферро- и антиферромагнетизма в парамагнитной фазе с частотой  $\omega_1$ (a) и  $\omega_2$ (b).

$$\mathbf{m} = 0,$$

$$\begin{aligned} \mathbf{l}_1 &= \left(1, \mp i, -\sqrt{2} \frac{L}{M}\right) e^{\pm i\omega_2 t}, & \mathbf{l}_2 &= \left(\mp i, -1, \mp i\sqrt{2} \frac{L}{M}\right) e^{\pm i\omega_2 t}, \\ \mathbf{m} &= \varepsilon(1, \pm i, 0) e^{\pm i\omega_3 t}, \\ \mathbf{l}_1 &= (1, \mp i, \xi) e^{\pm i\omega_3 t}, & \mathbf{l}_2 &= (\mp i, -1, \pm i\xi) e^{\pm i\omega_3 t}, \end{aligned} \quad (19)$$

где

$$\begin{aligned} \xi &= -\frac{L}{M} \frac{8C_1 - \sqrt{2}C_2}{C_2 - D_1/\sqrt{2}}, \\ \varepsilon &= \frac{4ML^2(4C_1D_1 - C_2^2)(\Delta g_1 - \Delta g_2)}{\omega_1(C_2 - D_1/\sqrt{2})}. \end{aligned}$$

Из (19) видно, что при движении, соответствующем собственной частоте  $\omega_1$ , вектор намагниченности  $M$  прецессирует вокруг направления внешнего магнитного поля  $H$  ( $H \parallel z$ ), а векторы антиферромагнетизма  $L_1$  и  $L_2$  совершают асинхронные колебания около своих равновесных положений вдоль направления  $H$ . При переходе через границу устойчивости «зонтичной» фазы по линии фазового перехода второго рода колебания, соответствующие  $L_1$  и  $L_2$ , исчезают, а прецессия намагниченности  $M$  сохраняется и нормальная мода антиферромагнетика переходит в движение, возбуждаемое при парамагнитном резонансе (рис. 5, a).

В нормальной моде, соответствующей  $\omega_2$ , вектор намагниченности не колеблется, а векторы  $L_1$  и  $L_2$  врачаются вокруг своих равновесных положений по эллипсам, составляющим углы  $\alpha_1 = -\arctg(\sqrt{2}L/M)$  и  $\alpha_2 = \arctg(\sqrt{2}L/M)$  с плоскостью  $xy$  соответственно. При движении вдоль термодинамического пути, пересекающего линию фазового перехода второго рода в парамагнитную фазу, прецессия векторов  $L_1$  и  $L_2$

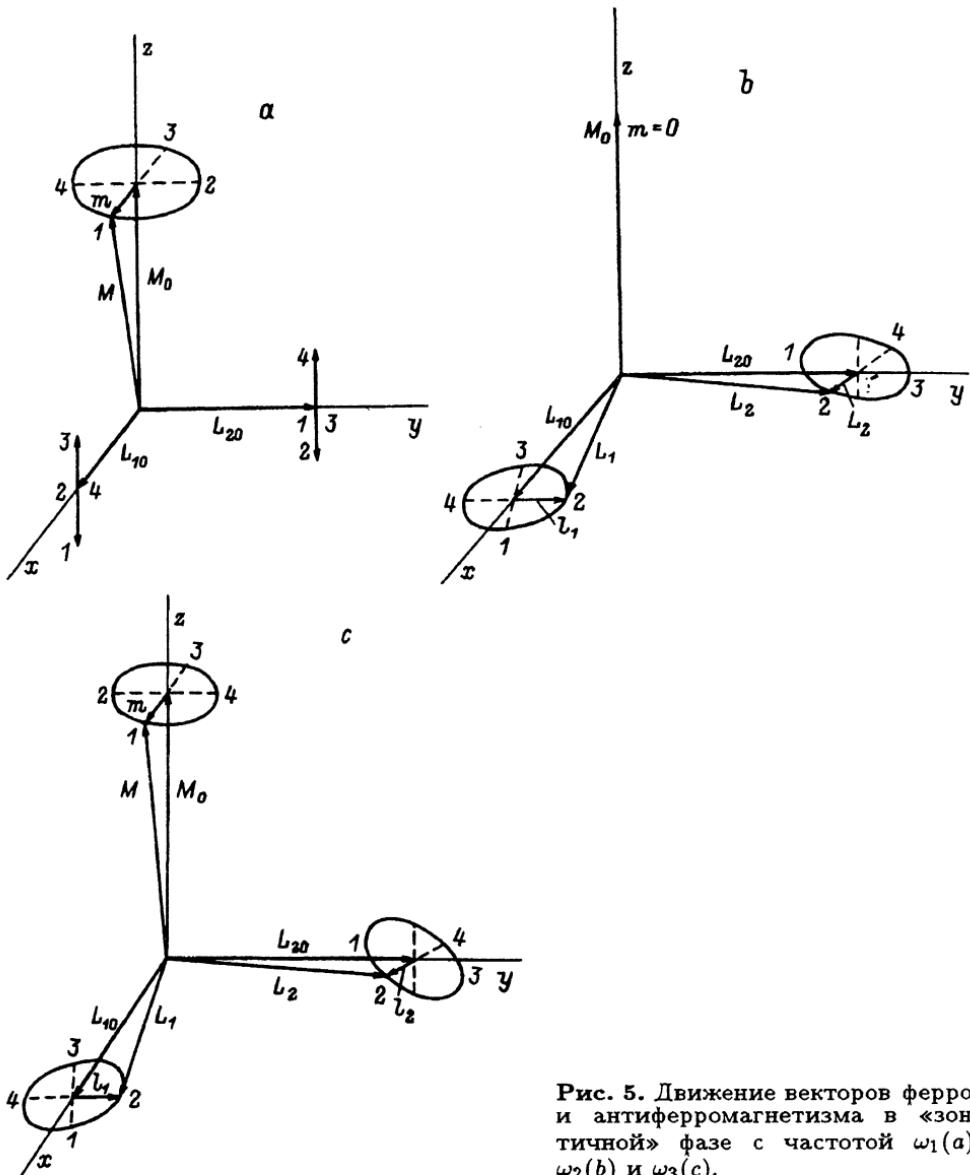


Рис. 5. Движение векторов ферро- и антиферромагнетизма в «зонантической» фазе с частотой  $\omega_1(a)$ ,  $\omega_2(b)$  и  $\omega_3(c)$ .

сохранится. Сами же равновесные значения  $L_{10}$  и  $L_{20}$  уменьшаются, а затем обращаются в нуль, углы  $\alpha_1$  и  $\alpha_2$  стремятся к нулю, а эллипсы переходят в окружности (рис. 5, б). Как мы видим, с частотой  $\omega_2$  движутся компоненты параметра порядка в парамагнитной фазе. Это обуславливает то, что  $\omega_2$  мягкая.

Движение, соответствующее  $\omega_3$ , представляет собой прецессии вектора  $M$  по окружности вокруг  $H$ , а векторов  $L_1$  и  $L_2$  — по эллипсам вокруг своих равновесных положений. При подходе к переходу в парамагнитную фазу эти движения «замерзают», что соответствует еще одной смягчающейся моде (рис. 5, с). В парамагнитной фазе соответствующая частота тождественно равна нулю.

Теоретическое предсказание в рамках линейной динамики третьей ветви спектра в антиферромагнитной «зонтичной» фазе ставит принципиальный вопрос об условиях наблюдения соответствующего резонанса.

Для вычисления магнитной восприимчивости, как обычно, включаем в потенциал (10) малое высокочастотное поле  $\mathbf{h}(t)$  и ищем решения уравнений движения в виде

$$\mathbf{M} = \mathbf{M}_0 + \mathbf{m}(t), \quad \mathbf{L}_1 = \mathbf{L}_{10} + \mathbf{l}_1(t), \quad \mathbf{L}_2 = \mathbf{L}_{20} + \mathbf{l}_2(t), \quad \chi_{il} = \partial m_i / \partial h_k.$$

В таком подходе становятся очевидными качественные результаты, описанные выше. Так, вторая ветвь спектра в парамагнитном состоянии хотя и мягкая, принципиально не возбуждается внешним магнитным полем  $\mathbf{h}(t)$  и тензор высокочастотной восприимчивости есть

$$\begin{aligned} \chi_{xx} = \chi_{yy} &= \frac{g_1 M \omega_1}{\omega_1^2 - \omega^2}, & \chi_{xy} = \chi_{yx}^* &= i \frac{g_1 M \omega}{\omega_1^2 - \omega^2}, \\ \chi_{xz} = \chi_{zx} = \chi_{yz} = \chi_{zy} &= \chi_{zz} = 0. \end{aligned} \quad (20)$$

Для получения в явном виде резонансного вклада от каждой из частот в тензор динамической восприимчивости в «зонтичной» фазе перейдем к нормальным координатам, диагонализующим  $\|J_{ik}\|$ . Поскольку собственные частоты найдены с точностью до первого порядка по малым параметрам  $\Delta g_i$ , то при определении тензора высокочастотной восприимчивости  $\chi_{ik}$  ограничимся такой же точностью и проведем вычисления, пользуясь теорией возмущений. Тогда получаем

$$\begin{aligned} \chi_{xx} = \chi_{yy} &= \frac{Z_1 \omega_1}{\omega^2 - \omega_1^2} + \frac{Z_2 \omega_2}{\omega^2 - \omega_2^2} + \frac{Z_3 \omega_3}{\omega^2 - \omega_3^2}, \\ \chi_{xy} = \chi_{yx}^* &= -i \left( \frac{Z_1 \omega}{\omega^2 - \omega_1^2} + \frac{Z_2 \omega}{\omega^2 - \omega_2^2} + \frac{Z_3 \omega}{\omega^2 - \omega_3^2} \right), \\ \chi_{zz} &= \frac{\sqrt{2} g_2 L}{\omega^2}, \quad \chi_{xz} = \chi_{zx} = \chi_{yz} = \chi_{zy} = 0, \\ Z_1 = Z_2 - g_1 M, \quad Z_3 &= \frac{\delta}{\omega_1 \omega_2} + \frac{\omega_3}{\omega_1 \omega_2} [\Delta g_1 M \omega_2 - Z_2 (\omega_1 + \omega_2)], \\ Z_2 &= \frac{g M \omega_3 - 2 g M^2 L^2 [8 C_1 \Delta g_3 - 4 C_2 \Delta g_4 + D_1 (2 \Delta g_2 - \Delta g_1)]}{\omega_1 + \omega_2}, \end{aligned}$$

$$\delta = 8 g M^3 L^4 (4 C_1 D_1 - C_2^2) (2 \sqrt{2} \Delta g_1 \Delta g_4 - 2 \Delta g_2 \Delta g_3 + 2 \Delta g_4^2 - \Delta g_2^2). \quad (21)$$

Из (21) следует, что резонанс на «третьей» частоте должен проявиться в  $xx$ ,  $yy$  и  $zz$  компонентах тензора восприимчивости. Следует также отметить, что третья ветвь спектра вносит вклад в термодинамику системы, а ее проявление в резонанском эксперименте вполне наблюдаемый эффект. Экспериментальные данные по рассеянию нейтронов, измерению намагниченности во внешнем поле, парамагнитной восприимчивости, скрытой теплоты, исследование спектров антиферромагнитного резонанса в принципе позволяют восстановить неравновесный термодинамический потенциал и коэффициенты термодинамических уравнений движения, на основании которых возможно провести численные расчеты полевой и температурной зависимости частот при нескольких вариантах соотношений между феноменологическими параметрами теории. Качественные же выводы теории (см. выше), основанной на принципе симметрии, останутся в силе.

## Список литературы

- [1] Изюмов Ю.А., Озеров Р.П. Магнитная нейтронография. М., 1966. 532 с.
- [2] Гуревич А.Г. Магнитный резонанс в ферритах и антиферромагнетиках. М., 1973. 592 с.
- [3] Ведяшкин А.В., Гуфан Ю.М. // ФТТ. 1992. Т. 34. № 3. С. 714–728.
- [4] Гранкина А.И., Грудский И.М., Гуфан Ю.М. // ФТТ. 1987. Т. 29. № 11. С. 3456–3459.
- [5] Арнольд В.И., Варченко В.Н., Гуссейн-заде С.М. Особенности дифференцируемых отображений. М., 1982. Т. 1. 304 с.
- [6] Ландау Л.Д. К теории фазовых переходов. Собр. тр. М., 1969. Т. 1. С. 234–261.
- [7] Недлин Г.М. // ФТТ. 1964. Т. 6. № 9. С. 2708–2711.
- [8] Kittel Ch. // Phys. Rev. 1952. V. 82. N 2. P. 565–581.
- [9] Дзялошинский И.Е., Манько В.И. // ЖЭТФ. 1964. Т. 46. № 4. С. 1352–1359.
- [10] Барьяхтар В.Г., Витебский И.М., Яблонский Д.А. // Препринт ИТФ-84-111Р. Киев, ИТФ АН УССР, 1984. 46 с.
- [11] Гехт Р.С. // УФН. 1989. Т. 159. № 2. С. 261–296.
- [12] Яблонский Д.А., Медведева Л.И. // Препринт ДонФТИ-89-53. Донецк, ДонФТИ АН УССР, 1989. 42 с.
- [13] Гомонай Е.В. // Препринт ИТФ-88-89Р. Киев, ИТФ АН УССР, 1988. 36 с.
- [14] Алистратов А.Л., Яблонский Д.А. // ЖЭТФ. 1988. Т. 94. № 1. С. 194–207.
- [15] Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. К теории дисперсии магнитной проницаемости ферромагнитных тел. Собр. тр. М., 1969. Т. 2. С. 128–143.
- [16] Каганов М.И., Цукерник В.М. // ЖЭТФ. 1958. Т. 34. № 1. С. 106–109.
- [17] Туров Е.А. Физические свойства магнитоупорядоченных кристаллов. М., 1963. 224 с.
- [18] Gurevich A.G., Golovenchits E.I., Sanina V.A. // J. Appl. Phys. 1968. V. 39. P. 1023–1024.
- [19] Gurevich A.G., Golovenchits E.I., Sanina V.A. et al. // J. Appl. Phys. 1969. V. 40. P. 1512–1517.
- [20] Гуфан Ю.М. // ЖЭТФ. 1971. Т. 60. № 4. С. 1537–1547.
- [21] Fujii H., Uwatoko I., Motoya K. et al. // J. Phys. Soc. Jap. 1988. V. 57. P. 2143–2156.
- [22] Fujii H., Hokabe T., Kamigachi T. et al. // J. Phys. Soc. Jap. 1977. V. 43. P. 41–46.
- [23] Изюмов Ю.Ф., Найш В.Е., Скрябин Ю.Н. и др. // ФТТ. 1981. Т. 23. № 4. С. 1101–1106.
- [24] Fruchart D., Bertaut E.F. // Solid State Comm. 1971. V. 9. P. 1793–1797.
- [25] Гуфан Ю.М., Кутынин Е.И., Лорман В.Л., Прохоров А.М., Рудашевский Е.Г. // Письма в ЖЭТФ. 1987. Т. 46. № 6. С. 228–230.
- [26] Ковалев О.В. Неприводимые и индуцированные представления и копредставления федоровских групп. М., 1986. 368 с.
- [27] Гуфан Ю.М., Дзялошинский И.Е. // ЖЭТФ. 1967. Т. 52. № 2. С. 604–610.
- [28] Гуфан Ю.М. Структурные фазовые переходы. М., 1982. 304 с.
- [29] Дзялошинский И.Е. // ЖЭТФ. 1957. Т. 32. № 6. С. 1547–1562.
- [30] Гуфан Ю.М. // ЖЭТФ. 1971. Т. 60. № 4. С. 1537–1547.
- [31] Гуфан Ю.М. // Автореф. канд. дис. М., ИТФ им. Л.Д. Ландау, 1968.
- [32] Гуфан Ю.М., Прохоров А.С., Рудашевский Е.Г. // ЖЭТФ. 1979. Т. 77. № 6. С. 2396–2409.
- [33] Славнов А.А., Фаддеев Л.Д. Введение в квантовую теорию калибровочных полей. М., 1988. 267 с.

Северо-Кавказский  
научный центр высшей школы  
Ростов-на-Дону

Поступило в Редакцию  
12 апреля 1994 г.