

СЛАБЫЙ ФЕРРОМАГНЕТИЗМ ВДОЛЬ ОСИ ТРЕТЬЕГО ПОРЯДКА КРИСТАЛЛОВ FeBO₃

© A.A.Зенков, B.B.Руденко, Ю.М.Федоров

Институт физики им. Л.В.Киренского Сибирского отделения Российской академии наук, 660036 Красноярск, Россия

(Поступила в Редакцию 10 марта 1995 г.

В окончательной редакции 1 сентября 1995 г.)

Существование слабого ферромагнетизма вдоль тригональной оси в ромбоэдрических антиферромагнитных кристаллах предсказано И.Е.Дзялошинским. За его наличие ответствен инвариант четвертого порядка при константе t в разложении термодинамического потенциала [1]

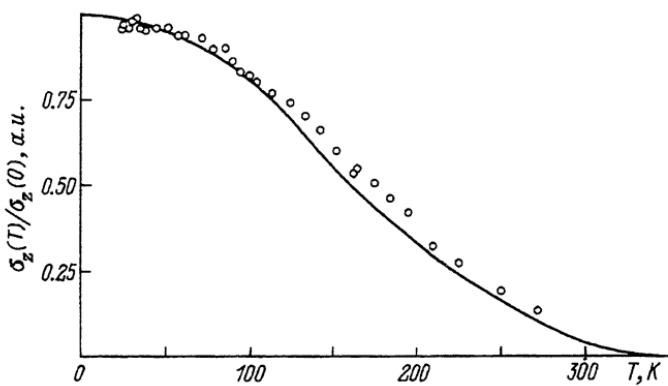
$$\Phi = (1/2)Bm^2 + (1/2)al_z^2 + (1/2)bm_z^2 + (1/2)cl_z^4 + d[lm]_z + \\ + q(l_x^3 - 3l_xl_y^2)l_z + t(3l_x^2l_y - l_y^3)m_z.$$

Здесь $m = (M_1 + M_2)/M$ и $l = (M_1 - M_2)/M$ — векторы ферромагнетизма и антиферромагнетизма соответственно, $m_z = (M_{1z} + M_{2z})/M$ — момент вдоль оси C_3 ; $M = 2|M_1| = 2|M_2|$, ось x системы координат xyz лежит в одной из плоскостей симметрии кристалла (рис. 1 в [2]). Вводя Θ и φ (сферические углы, определяющие направление вектора антиферромагнетизма в системе координат xyz), термодинамический потенциал можно представить в виде [1]

$$\Phi = (1/2)Bm^2 + (1/2)a\cos^2\theta + (1/2)bm_z^2 + d\sin\theta(m_y\cos\varphi - m_x\sin\varphi) + \\ + (1/2)c\cos^4\theta + q\sin^3\theta\cos\theta\cos 3\varphi + tm_z\sin^3\theta\sin 3\varphi. \quad (1)$$

Экспериментальные исследования слабого ферромагнетизма вдоль оси третьего порядка в ромбоэдрических антиферромагнитных кристаллах немногочисленны [3–5]. Это связано с необходимостью использования аппаратуры высокой чувствительности. Причем для соединений с S -ионами температурные измерения отсутствуют, а природа возникновения m_z не выяснена.

Измерения $\sigma_z = m_z M$ проведены методом магнитооптического эффекта Фарадея [6] при распространении света вблизи главной оси симметрии кристаллов и вращения внешнего магнитного поля H в базисной плоскости. При этом измерения выполнялись при нескольких значениях амплитуды поля H , которые позволили исключить его влияние на величину σ_z . Фарадеевское вращение φ_z измерялось в области прозрачности кристалла на длине волны $\Lambda = 510$ нм, что обеспечивает отсутствие влияния на экспериментальные результаты температурных зависимостей оптических констант. После соответствующей



Температурная зависимость относительного слабоферромагнитного момента $\sigma_z(T)/\sigma_z(0)$ для кристаллов FeBO_3 .
Светлые кружки — эксперимент, сплошная линия — расчет.

математической обработки [6] из результатов извлекались значения $\varphi_z(T) \sim \sigma_z$. Результаты приведены на рисунке (точки — эксперимент).

При рассмотрении качественной картины взаимодействий одним из вероятных микроскопических источников слабого ферромагнетизма вдоль тригональной оси FeBO_3 может быть связь спина с электрическими полями кристалла, учтенная во втором порядке теории возмущений. Однако расчет показывает пренебрежимо малый вклад такого механизма. Эта ситуация существенно изменяется, если в качестве возмущающих членов в гамильтониане [7] рассматривать не только спиновые операторы кристаллического поля, но и взаимодействие Дзялошинского. Поэтому спиновый гамильтониан представим в виде

$$H = H_0 + H' + V', \quad (2)$$

где H_0 и V' — обменная энергия и энергия Дзялошинского соответственно в приближении молекулярного поля, H' — энергия спина в электрических полях кристалла пространственной группы симметрии D_{3d}^6 [7].

Энергетические уровни, полученные с использованием гамильтониана (2), с точностью до второго порядка теории возмущений в приближении сильного обменного поля имеют вид

$$W_{j,\pm 1/2} = \pm (1/2)g\beta H^{\text{ex}} + 60a_{4j}^1 H_D \cos \Theta_j / H^{\text{ex}},$$

$$W_{j,\pm 3/2} = \pm (3/2)g\beta H^{\text{ex}} - 90a_{4j}^1 H_D \cos \Theta_j / H^{\text{ex}},$$

$$W_{j,\pm 5/2} = \pm (5/2)g\beta H^{\text{ex}} + 30a_{4j}^1 H_D \cos \Theta_j / H^{\text{ex}}.$$

Здесь опущены члены первого порядка теории возмущений, а также часть членов второго порядка, несущественных для m_z , H^{ex} — эффективное обменное поле,

$$a_{4j}^1 = (1/36) \left\{ a_{cf} \sqrt{2} \sin^2 \theta_j (4 \cos^2 \theta_j - 1) \cos 3(\varphi_j \pm \alpha) - \right. \\ \left. - [(a_{cf} - F_{cf})/2] \sin 2\theta_j (3 - 7 \cos^2 \theta_j) \right\},$$

a_{cf} — константа спинового гамильтониана при операторах кубической симметрии, $j = 1, 2$ соответствует ионам Fe^{3+} в позициях 1, 2 (рис. 1 в [2]), верхний знак перед α берется при $j = 1$, нижний при $j = 2$, α — угол между плоскостью симметрии кристалла и проекцией ближайшей кубической оси на плоскость (111) кристалла, F_{cf} — аксиальная константа спинового гамильтониана при операторе четвертого порядка, H_D — эффективное поле Дзялошинского.

Выражение для m_z определим из разложения свободной энергии кристалла

$$F = -(NkT/2) \sum_j \ln Z_j$$

и сравнения его с Φ , где

$$Z_j = \sum_m \exp[-W_{jm}/kT]$$

— сумма состояний иона j . Представим F в виде

$$F = -(NkT/2) \sum_j \ln \sum_m \exp(-g\beta H^{\text{ex}} m/kT) \exp[-G(m)/kT].$$

Здесь для краткости записи введено обозначение для членов второго порядка теории возмущений в выражениях для энергетических уровней в виде $G(m)$, m — магнитное квантовое число. Введем также обозначение $Y = \exp(-g\beta H^{\text{ex}}/kT)$. Суммируя по m и разлагая в ряд $\exp[-G(m)/kT]$ по малому параметру $G(m)/kT$, в области подходящих температур получим

$$\begin{aligned} F &= (-NkT/2) \sum_j \ln \left(Y^{1/2} + Y^{-1/2} \right) \left[1 - G(1/2)/kT \right] + \\ &+ \left(Y^{3/2} + Y^{-3/2} \right) \left[1 - G(3/2)/kT \right] + \left(Y^{5/2} + Y^{-5/2} \right) \left[1 - G(5/2)/kT \right]. \end{aligned}$$

Приводя к общему знаменателю и записывая $G(m)$ в явном виде, имеем

$$F = (-NkT/2) \sum_j \left\{ \ln Z_0 + \ln \left[1 + \frac{30a_4^1 H_D \cos \theta}{H^{\text{ex}} kT} (Z_2/Z_0) \right] \right\}.$$

Здесь $Z_0 = (Y^5 + Y^4 + Y^3 + Y^2 + Y + 1)/Y^{5/2}$, $Z_2 = (-Y^5 + 3Y^4 - 2Y^3 - 2Y^2 + 3Y - 1)/Y^{5/2}$. Разлагая в ряд

$$\ln \left[1 + \frac{30a_4^1 H_D \cos \theta_j}{H^{\text{ex}} kT} (Z_2/Z_0) \right] = \ln[1 + X]$$

по малому параметру X , записывая a_4^1 в явном виде и опустив несущественные члены, получим

$$F = (N/2) \sum_j (5\sqrt{2}/6)(H_D/H^{\text{ex}})a_{cf} \cos \theta_j \sin^2 \theta_j \cos 3(\varphi_j \pm \alpha)(Z_2/Z_0).$$

В пределе сильного обменного взаимодействия имеем для $j = 1, 2$ $\varphi_1 = \varphi, \theta_1 = \theta, \varphi_2 = \varphi + \pi, \theta_2 = \theta - \pi$. Суммируя по j , получим

$$F = (N\sqrt{2}/6)(H_D/H^{\text{ex}})a_{cf} \cos 3\alpha \sin^2 \theta \cos \theta \cos 3\varphi (Z_2/Z_0).$$

Минимизируя (1) по θ , получим

$$\cos \theta = -\frac{q \sin^4 \theta \cos 3\varphi}{a + (d^2/B)}.$$

Используя выражение для q , полученное в [7], имеем

$$\cos \theta = (N\sqrt{2}/3) \frac{a_{ef} \cos 3\alpha}{a + (d^2/B)} r(Y) \sin^4 \theta \cos 3\varphi.$$

Здесь $(5/2)(Z_2/Z_0) = r(Y) = r(M)$ — неявная функция подрешеточной намагниченности, введенная в [8], которая при $T = 0$ К может быть представлена в виде $r_0 = -(1/3)S(S - 1/2)(S - 1)(S - 3/2)$. Подставляя выражение для $\cos \theta$ в F , получаем

$$F = (2/9)(H_D/H^{\text{ex}}) \frac{a_{cf}^2 \cos^2 3\alpha N^2}{a + (d^2/B)} r^2(M) \sin^6 \theta \cos^2 3\varphi.$$

С другой стороны, минимизируя термодинамический потенциал (1) по m_z , имеем $m_z = -(t/B) \sin^3 \theta \sin 3\varphi$. Подставляя m_z в (1), получаем

$$\Phi = (1/2)(t^2/B) \sin^6 \theta \cos^2 3\varphi.$$

Из равенства $\Phi = F$ имеем

$$t^2 = (4/9)(H_D/H^{\text{ex}}) \frac{BN^2 a_{cf}^2 \cos^2 3\alpha}{a + (d^2/B)} r^2(M).$$

Окончательно для слабоферромагнитного кристалла пространственной группы симметрии D_{3d}^6 с $S = 5/2$ получаем

$$m_z = -(t/B) \sin^3 \theta \sin 3\varphi = \pm \left(4a_{cf} \cos 3\alpha / 15H^{\text{ex}} \right) \sqrt{H_D/[H_A + (H_D^2/H^{\text{ex}})]} \times \\ \times \left[M(0)/M(T) \right] r(M) \sin^3 \theta \sin 3\varphi. \quad (3)$$

Здесь константа a_{cf} выражена в эрстедах, H_A — эффективное поле одноосной анизотропии.

Используя данные для констант и эффективных полей, полученных в работах [2, 9, 10], находим для $\sigma_z(0) \approx 6 \cdot 10^{-3} \text{ Gs} \cdot \text{cm}^3/\text{g}$. Для относительной температурной зависимости слабоферромагнитного момента вдоль оси C_3 из (3) может быть записано выражение

$$\sigma_z(T)/\sigma_z(0) \approx \left[r(M)/r(M(0)) \right] \left[M(0)/M(T) \right].$$

Теоретическая температурная зависимость $\sigma_z(T)/\sigma_z(0)$ приведена на рисунке. Сплошная кривая — расчет. Измерения σ_z нормированы к теоретическому значению $\sigma_z(T)/\sigma(0)$ при 45 К.

Как следует из (2) и рис. 1 в [2], одним из основных источников слабого ферромагнетизма вдоль оси третьего порядка FeBO₃ является связь спина не ниже 2 с полем Дзялошинского и кубическим электрическим полем кристалла. Эта связь проявляется в том, что магнитные моменты ионов отклоняются от строгой антиферомагнитной ориентации полем Дзялошинского, а затем вращаются кубическим кристаллическим полем к кубическим осям и поэтому одновременно и периодически выходят из базисной плоскости кристалла при их повороте вокруг C₃ (рис. 1 в [2]). Экстремальные отклонения подрешеточных моментов к кубическим осям (или от осей) кристаллического поля оказываются возможными при углах

$$\varphi = (\pi/3)[(1/2) + n] \quad (n = 0, 1, 2, \dots).$$

В конце работы отметим, что как t_z , так и константа базисной анизотропии q бората железа определяется взаимодействием спина иона Fe³⁺ с кубическим кристаллическим полем. Однако константа q ведет себя аномально при низких температурах [11]. Наличие этой аномалии объясняется присутствием примесей Fe²⁺ [7,11–14], вклад которых выше вклада ионов Fe³⁺. Поэтому можно предполагать, что в области низких температур для t_z так же будет существовать аномалия.

Предварительные результаты этой работы опубликованы в [15].

Список литературы

- [1] Дзялошинский И.Е. ЖЭТФ **32**, 6, 1547 (1957).
- [2] Лукин С.Н., Руденко В.В., Селезнев В.Н., Цинцадзе Г.А. ФТТ **22**, 1, 51 (1980).
- [3] Бажан А.Н., Крейнес Н.М. Письма в ЖЭТФ **15**, 9, 533 (1972).
- [4] Flanders P.J., Appl. J. Phys. **4**, 5, 2430 (1972).
- [5] Бажан А.Н. ЖЭТФ **67**, 10, 1520 (1974).
- [6] Федоров Ю.М., Лексиков А.А., Аксенов А.Е. ФТТ **26**, 1, 220 (1984).
- [7] Руденко В.В. ФТТ **22**, 3, 775 (1980).
- [8] Wolf W. Phys. Rev. **108**, 5, 1152 (1957).
- [9] Барьяхтар В.Г., Дорошев В.Д., Ковтун Н.М., Сирюк В.М. Тез. 19 Всесоюз. совещ. по физике низких температур. Минск (1976). С. 561.
- [10] Великов Л.В., Прохоров А.С., Рудашевский Е.Г., Селезнев В.Н. ЖЭТФ **66**, 5, 1847 (1974).
- [11] Дорошев В.Д., Крыгин И.М., Лукин С.Н., Молчанов А.Н., Прохоров А.Д., Руденко В.В., Селезнев В.Н. Письма в ЖЭТФ **29**, 5, 286 (1970).
- [12] Петраковский Г.А., Руденко В.В., Соснин В.М. Препринт ИФ СО АН СССР, № 571Ф. Красноярск (1989).
- [13] Патрин Г.С., Великанов Д.А., Петраковский Г.А. ЖЭТФ **103**, 1, 234 (1993).
- [14] Руденко В.В. ФТТ **36**, 9, 2531 (1994).
- [15] Балаев А.Д., Зенков А.А., Петраковский Г.А., Руденко В.В., Соснин В.М., Федоров Ю.М. Тез. докл. 19 Всесоюз. конф. по ФМЯ. Ташкент (1991). Ч. 1. С. 78.