

УДК 538.13.001

© 1992

ОРИЕНТАЦИОННАЯ ФАЗОВАЯ ДИАГРАММА КУБИЧЕСКИХ МАГНЕТИКОВ ПРИ УЧЕТЕ АНИЗОТРОПНЫХ ВЗАИМОДЕЙСТВИЙ ДЕСЯТОГО ПОРЯДКА

Е. А. Бирюкова, Ю. Г. Мамаладзе, А. Г. Манджавидзе

Для кубического магнетика в нулевом магнитном поле и при отсутствии внешних упругих напряжений рассчитана ориентационная фазовая диаграмма с учетом членов 10-го порядка в разложении энергии магнитной кристаллографической анизотропии. Определен характер спонтанных спин-переориентационных фазовых переходов между имеющимися фазами; рассмотрены характерные особенности полученной фазовой диаграммы в сравнении с фазовой диаграммой, построенной с учетом трех первых констант анизотропии.

До недавнего времени в феноменологическом разложении энергии магнитной кристаллографической анизотропии кубических кристаллов (см. ниже выражение (1)) было принято учитывать лишь члены 4-го и 6-го порядков. При этом предполагалось, что $K_{i+1} \ll K_i$, и рассматривались лишь константы K_1 и K_2 . Ориентационная фазовая диаграмма (ОФД) кубических магнетиков, построенная с учетом K_1 и K_2 [1], допускает существование только высокосимметричных магнитных фаз [100], [110] и [111] и удовлетворительно описывает свойства ряда магнетиков со структурами граната и шпинели.

Для объяснения необычных несимметричных («угловых») фаз $[uiv]$ и $[uv0]$, наблюдаемых в интерметаллических кубических соединениях, оказалось необходимым привлечь константу K_3 [2]. Авторы [2] рассчитали ОФД с учетом трех констант анизотропии (при $K_3 > 0$); полученная ОФД допускала существование угловых фаз $[uiv]$ и $[uv0]$ в кубических магнетиках. В [3] приводится уточненная фазовая диаграмма при $K_3 > 0$ и рассматривается случай $K_3 < 0$, когда допускается, как и в случае двух констант, существование только высокосимметричных фаз.

В работе [4] предложен метод для определения кубических констант магнитной анизотропии любого требуемого порядка и определены константы K_i , $i = 1, \dots, 5$ в интервале температур 0—300 К для ряда моделей энергетических уровней. Показано, что в большинстве случаев нельзя пренебрегать константами K_3 и K_4 , так как в некоторых температурных интервалах они оказываются сравнимыми с K_1 и K_2 или даже превосходят их по величине.

Естественно, возникает вопрос о том, как повлияет на ОФД учет K_4 . Задача построения фазовой диаграммы в четырехконстантном приближении интересна как сама по себе, так и с точки зрения возможности объяснения некоторых экспериментальных факторов, не нашедших объяснения в трехконстантной модели. Так, например, в [2] показано, что в кубическом ферритмагнетике CeFe_2 , имеющем структуру типа фаз Лавеса, угол ϑ отклонения магнитных моментов от направлений [100] при переходе [100] \rightarrow $[uiv]$ меняется скачком от 0 до $\sim 20^\circ$ и затем остается практически постоянным в довольно большом температурном интервале. Подобное поведение угла ϑ обнаружено и для тербий-иттриевых

ферритов-гранатов $Tb_xY_{3-x}Fe_5O_{12}$ ($x = 0.26, 0.4$) [6]: при переходе $[100] \rightleftharpoons$

$\rightleftharpoons [uiw]$ угол ϑ скачком достигает значения $\sim 45^\circ$ и практически не зависит от температуры в области существования фазы $[uiw]$.

Такое поведение угла ϑ в принципе не допускается ОФД, построенной в трехконстантном приближении, поскольку при переходе $[100] \rightarrow [uiw] \rightarrow [111] \rightarrow$ невозможно сохранение постоянного угла ϑ в угловой фазе, а сам переход $[100] \rightarrow [uiw]$, являясь фазовым переходом 2-го рода, не может быть скачкообразным [3]. Можно предположить, что за указанные особенности в поведении угла ϑ ответственны члены более высокого порядка в разложении энергии анизотропии. Как будет показано ниже, для их объяснения достаточно учета K_4 .

В настоящей работе приводятся результаты расчета ОФД кубических магнетиков в нулевом магнитном поле и при отсутствии внешних напряжений с учетом членов 10-го порядка. Подход к решению задачи аналогичен примененному в работе [2].

Феноменологическое разложение энергии кристаллографической магнитной анизотропии однодоменного кубического кристалла с учетом членов 10-го порядка можно представить в следующем виде:

$$E_A(n) = K_0 + K_1(\alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2 + \alpha_1^2\alpha_3^2) + K_2\alpha_1^2\alpha_2^2\alpha_3^2 + K_3(\alpha_1^4\alpha_2^4 + \alpha_2^4\alpha_3^4 + \alpha_1^4\alpha_3^4) + K_4(\alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2 + \alpha_1^2\alpha_3^2)\alpha_1^2\alpha_2^2\alpha_3^2 + \dots \quad (1)$$

или, следуя [4],

$$E_A(n) = K_0^1 + K_1^1\Phi + K_2^1Q + K_3^1\Phi^2 + K_4^1\Phi Q + \dots, \quad (2)$$

где

$$\Phi = \alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2 + \alpha_1^2\alpha_3^2, \quad Q = \alpha_1^2\alpha_2^2\alpha_3^2.$$

Выражение (2) можно свести к (1) путем перенормировки константы K_2 : $K_2 = -K_2^1 + 2K_3^1$, при этом $K_0 = K_0^1$, $K_1 = K_1^1$, $K_3 = K_3^1$, $K_4 = K_4^1$; $n = M/|M|$, где M — намагниченность; $\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3$ — направляющие косинусы n по отношению к главным кубическим осям — $\cos \alpha, \cos \beta, \cos \gamma$.

Минимизация (1) по β и γ дает условия существования различных случаев направления вектора намагниченности относительно главных кристаллографических осей. Возможные магнитные фазы, т. е. возможные значения углов β и γ , определяются из решения уравнений

$$\frac{\partial E_A}{\partial \beta} = 0, \quad \frac{\partial E_A}{\partial \gamma} = 0.$$

Условием устойчивости полученных фаз является выполнение следующих неравенств:

$$\frac{\partial^2 E_A}{\partial \gamma^2} \frac{\partial^2 E_A}{\partial \beta^2} - \left(\frac{\partial^2 E_A}{\partial \beta \partial \gamma} \right)^2 > 0, \quad \frac{\partial^2 E_A}{\partial \beta^2} > 0, \quad \frac{\partial^2 E_A}{\partial \gamma^2} > 0.$$

Равенство нулю в этих выражениях определяет границы устойчивости фаз.

Ниже приведены окончательные результаты (простые, но довольно громоздкие вычисления опускаются). Для возможности графического представления константы анизотропии выражены в относительной форме: $K_i' = K_i/K_4$. Минимизация определяет пять магнитных фаз и области их существования

1. $n \parallel [100]$, $K_1' > 0$,
2. $n \parallel [110]$, $K_1' + K_2'/2 - K_3'/2 + 1/8 > 0$, $K_1' + K_3'/2 < 0$,
3. $n \parallel [111]$, $K_1' + K_2'/3 + 4/27 < 0$,
4. $n \parallel [uv0]$, $K_1' - 2K_2'K_3' + 4K_3'^2 < 0$, $-K_3'/2 < K_1' < 0$, $K_3' > 0$.

Намагниченность в фазе $[uv0]$ лежит в плоскости типа (100) под углом φ к направлению типа $[100]$; угол φ определяется соотношением

$$\sin^2 2\varphi = -2K_1'/K_3', \quad (3)$$

откуда следует, что $0^\circ < \varphi < 45^\circ$.

5. $n \parallel [uiw]$, n лежит в плоскостях типа (110) под углом ϑ к направлениям типа $[100]$ ($\vartheta \equiv \gamma$, когда угол в угловой фазе $[uiw]$ отсчитывается от оси z , т. е. от направления $[001]$). Введем обозначение: $\cos^2 \beta = x$. В фазе $[uiw]$ выполняется условие $\cos^2 \gamma = 1 - 2x$, и для x получается уравнение

$$5x^3 + 3(3K_3' - 1)x^2 - (2K_3' + K_2')x - K_1' = 0. \quad (4)$$

Фаза $[uiw]$ — общее обозначение для двух фаз: фазы $[uiw]_1$ и фазы $[uiw]_2$. Фаза $[uiw]_1$, где $0 < x < 1/3$, т. е. $0^\circ < \vartheta < \vartheta_0$, устойчива при условиях

$$2K_3'(6x - 1) + 3x(5x - 2) < K_2' < 2K_3' + x(3x - 2), \quad K_3' + x > 0.$$

Фаза $[uiw]_2$, где $1/3 < x < 0.5$, т. е. $\vartheta_0 < \vartheta < 90^\circ$, устойчива при условиях

$$2K_3' + x(3x - 2) < K_2' < 2K_3'(6x - 1) + 3x(5x - 2), \quad K_3' + x > 0,$$

$\vartheta_0 = 54.7^\circ$ и соответствует ориентации вектора намагниченности вдоль $[111]$.

Получены выражения для энергий этих пяти фаз

$$\begin{aligned} E_{[100]} &= K_0', \\ E_{[110]} &= K_0' + K_1'/4 + K_3'/16, \\ E_{[111]} &= K_0' + K_1'/3 + K_2'/27 + K_3'/27 + 1/81, \\ E_{[uv0]} &= K_0' - K_1'^2/4K_3', \\ E_{[uiw]} &= K_0' + K_1'(2 - 3x)x + K_2'(1 - 2x)x^2 + \\ &\quad + K_3'(2 - 8x + 9x^2)x^2 + (2 - 3x)(1 - 2x)x^3. \end{aligned} \quad (5)$$

Для определения поверхностей фазовых переходов проведено сравнение энергий соответствующих фаз и получены следующие уравнения:

фазовые переходы 1-го рода

$$[100] \rightleftharpoons [111], \quad K_1' = -(K_2' + K_3')/9 - 1/27,$$

$$[100] \rightleftharpoons [110], \quad K_1' = -K_3'/4, \quad (K_3' < 0),$$

$$[100] \rightleftharpoons [uuv], \quad K_2' = [K_3'(9x^2 - 10x + 2) + x(2 - 3x)^2]/(x - 1), \\ (K_3' < 1/3),$$

$$[uuv]_1 \rightleftharpoons [uv0], \quad K_2' = x(5x - 3 + 4K_3') - 2(2x - 1)\sqrt{K_3'(K_3' + x)},$$

$$[uuv] \rightleftharpoons [111], \quad K_2' = K_3'(9x - 1) + 9x^2 - 3x - 1/3,$$

$$[100] \rightleftharpoons [111], \quad K_1' = (11K_3' - 16K_2')/36 - 4/27,$$

$[uuv]_1 \rightleftharpoons [uuv]_2$, поверхность фазового перехода описывается системой двух одинаковых уравнений (5), но с разными значениями x , соответствующими фазами $[uuv]_1$ и $[uuv]_2$;
фазовые переходы 2-го рода

$$[110] \rightleftharpoons [uuv]_2, \quad K_1' = -(K_2' - K_3')/2 - 1/8,$$

$$[100] \rightleftharpoons [uuv]_1, \quad K_1' = 0, \quad (K_3' > 0, \quad -2K_3' < K_2' < 2K_3'),$$

$$[100] \rightleftharpoons [uv0], \quad K_1' = 0, \quad (K_3' > 0, \quad K_2' > 2K_3'),$$

$$[110] \rightleftharpoons [uv0], \quad K_1' = -K_3'/2, \quad (K_2' > 2K_3' - 1/4).$$

Уравнения, содержащие x , решаются совместно с уравнением (4). Род фазовых переходов определялся из анализа критических линий фазовой диаграммы согласно [7].

На основе полученных соотношений была построена ориентационная фазовая диаграмма кубического магнетика. Область пространства, занятая несимметричными угловыми фазами, представляет собой геометрическое тело довольно сложной формы, большей своей частью находящееся в области положительных значений K_1' . Оно неограниченно простирается в направлении положительных K_2' и K_3' , а в направлении отрицательных — сужается, заканчиваясь в точке с координатами $K_1' = -K_3'/4$, $K_2' = 5K_3'/4 - 1/3$, $K_3' = -0.5$.

Отметим характерные особенности полученной фазовой диаграммы в сравнении с ОФД в трехконстантном приближении. Будем рассматривать отдельные сечения ОФД плоскостями, параллельными координатной плоскости $K_1'K_2'$ (рис. 1—4). Области фазовых диаграмм в плоскости $K_1'K_2'$, занятые различными фазами, разделены линиями фазовых переходов (ЛФП) 1-го или 2-го рода. Линии потери устойчивости (ЛПУ) фаз в случае фазовых переходов 1-го рода на рис. 1, 3 не показаны, так как они почти на всем своем протяжении в пределах рисунков проходят близко к ЛФП, а в ряде случаев практически сливаются с ними. При фазовых переходах 2-го рода ЛПУ совпадают с ЛФП.

В четырехконстантном приближении безгистерезисные фазовые переходы 1-го рода $[uuv]_1 \rightleftharpoons [uuv]_2$ и $[uuv]_1 \rightleftharpoons [uv0]$ приобретают гистерезис и возникает

Рис. 1. Ориентационная фазовая диаграмма кубического магнетика в плоскости $K_1'K_2'$ при $K_3' = 0.1$.

Приведены только линии фазовых переходов: 1 — ЛФП 1-го рода, 2 — ЛФП 2-го рода.

переход 1-го рода $[uiw]_1 \leftrightarrow$

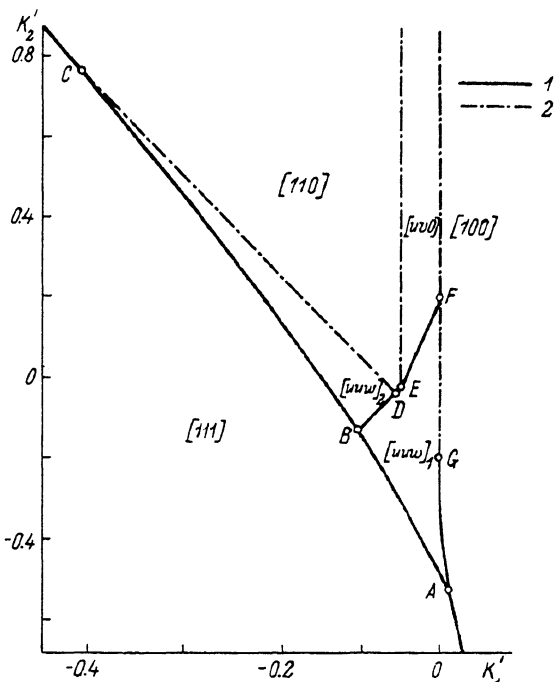
$[110]$. На рис. 1 представлена фазовая диаграмма при $K_3' = 0.1$, а на рис. 2 показаны отдельные ее участки в увеличенном масштабе с указанием ЛПУ и линий постоянного угла, рассчитанных по формулам (3) и (4) для фаз $[uv0]$ и $[uiw]$ соответственно. Как видно из рис. 2, а, перекрытие фаз $[uiw]_1$ и $[uiw]_2$, а также $[uv0]$ и $[uiw]_1$ уменьшается по мере приближения к точкам B и F соответственно. В самих этих точках переходы осуществляются непрерывным образом.

При $K_3' > 0.5$ фазовые диаграммы в остальном подобны фазовой диаграмме в трехконстантном приближении [3] и при увеличении K_3' изменяются лишь количественно. Когда K_3' , уменьшаясь, проходит значение 0.5, появляются качественные изменения.

При $K_3' > 0.5$, как и в трехконстантном приближении, граница фазы $[uiw]$ с фазой $[100]$ представляет собой линию постоянного угла $\vartheta = \vartheta_c = 0^\circ$ и, следовательно, согласно [7], является ЛФП 2-го рода. При $0 < K_3' < 0.5$ эта граница может быть разделена на два участка (рис. 1 и 2, б): один при $-2K_3' < K_2' < 2K_3'$, $K_1' = 0$ (линия FG), где она остается линией нулевого угла, т. е. ЛФП 2-го рода, и второй при $K_2' < -2K_3'$ (линия GA'), где она уже не является линией $\vartheta = 0^\circ$ и представляет собой ЛПУ метастабильных состояний фазы $[uiw]$. В этой области при $-1/3 < K_3' < 1/3$ наблюдается перекрытие фаз $[100]$ и $[uiw]$ и переход между ними является фазовым переходом 1-го рода с гистерезисом, определяемым границами областей метастабильных фаз (линия GA). ЛПУ метастабильных фаз $[100]$ и $[uiw]$ сходятся в трикритической точке ($K_2' = -2K_3'$, $K_1' = 0$) фазовой диаграммы, где ЛФП 1-го рода переходит в ЛФП 2-го рода (рис. 1 и 2, б, точка G). С уменьшением K_3' область фазового перехода 2-го рода уменьшается и при $K_3' = 0$ исчезает полностью — между фазами $[100]$ и $[uiw]$ может происходить только фазовый переход 1-го рода (рис. 3, линия EA).

При фазовом переходе 1-го рода $[100] \leftrightarrow [uiw]$ угол ϑ меняется скачком от 0° до некоторого конечного значения, зависящего от конкретных значений констант; при этом интервал возможных углов определяется константой K_3' : $0^\circ < \vartheta < \vartheta_A$ при $0 < K_3' < 1/3$ и $\vartheta_A < \vartheta < 90^\circ$ при $-1/3 < K_3' < 0$; угол ϑ_A — значение угла ϑ в фазе $[uiw]$ в точке A

$$\vartheta_A = \arccos \sqrt{(1 + 3K_3')/2}.$$



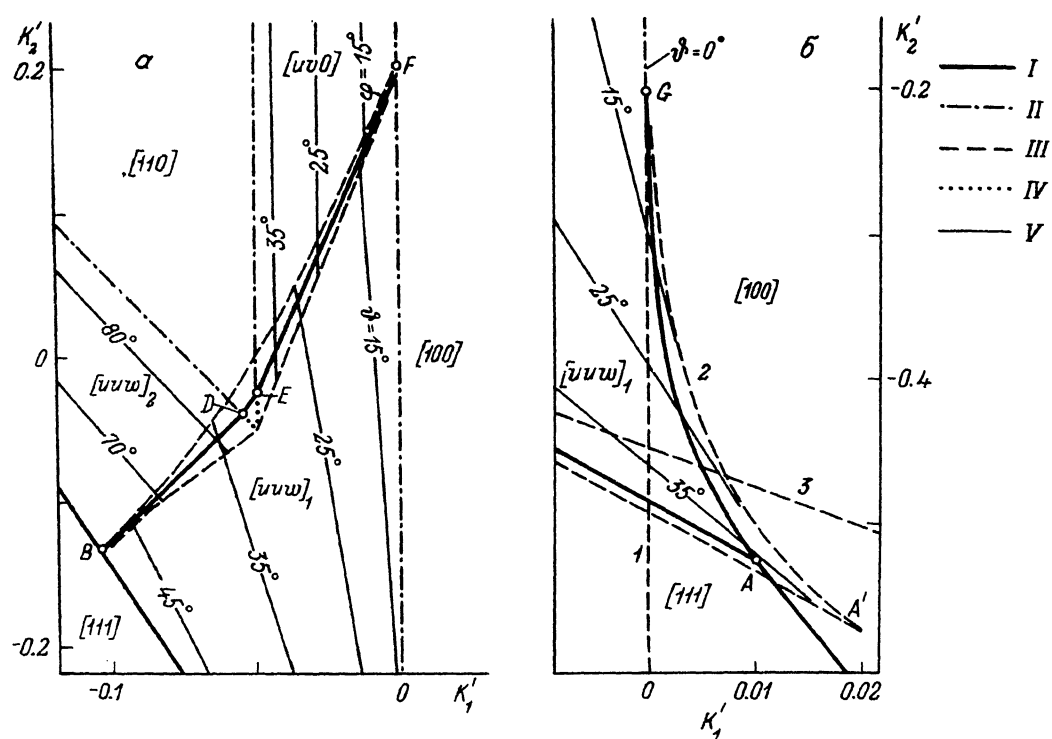


Рис. 2. Фрагменты ОФД при $K_3' = 0.1$, изображенной на рис. 1.

α — участок ОФД в области фазовых переходов $[uvw]_1 \rightleftharpoons [uvw]_2$, $[uvw]_1 \rightleftharpoons [110]$ и $[uvw]_1 \rightleftharpoons [100]$; β — участок ОФД в области фазового перехода $[uvw]_1 \rightleftharpoons [100]$. I — ЛФП 1-го рода, II — ЛФП 2-го рода, III — ЛПУ, IV — ЛФП между метастабильными фазами, V — линии постоянных углов. 1 — ЛПУ фазы [100], 2 — ЛПУ фазы $[uvw]_1$, 3 — ЛПУ фазы [111].

Так, например, в интервале $-0.058 \leq K_3' < 0.25$ может происходить фазовый переход 1-го рода $[100] \rightleftharpoons [uvw]$, при котором угол ϑ скачком принимает значение 20° . Для $\vartheta = 45^\circ$ получаем интервал $-0.25 \leq K_3' < 0$. Таким образом, отмеченное в [5,6] скачкообразное изменение угла ϑ получает объяснение.

При $K_3' < 1/3$ на фазовых диаграммах появляются участки, где могут сосуществовать три состояния (одно устойчивое, остальные два метастабильные). Такой является область вокруг точки A (рис. 2, б), ограниченная штриховыми линиями, представляющими собой ЛПУ сосуществующих фаз $[uvw]_1$, [100] и [111]. На фазовых диаграммах имеются также отдельные точки сосуществования трех фаз — это точки пересечения линий трех различных фазовых переходов (рис. 1, точки A, B, C, D, E, F). Координаты этих точек ограничивают интервалы значений констант, в которых возможны соответствующие фазовые переходы. При уменьшении K_3' после перехода ее через 0 число таких точек последовательно сокращается, и при $K_3' \leq -0.5$ на фазовой диаграмме остается лишь одна точка пересечения линий трех фазовых переходов (рис. 4, точка A).

При переходе K_3' в область отрицательных значений ОФД претерпевает дальнейшие изменения. При $K_3' = 0$ исчезает фаза $[u\bar{v}0]$ и становится возможным непосредственный переход между фазами [110] и [100] — фазовый переход

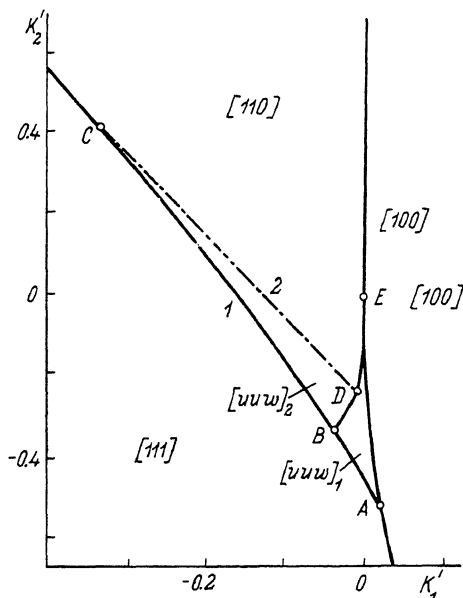


Рис. 3. Ориентационная фазовая диаграмма кубического магнетика в плоскости $K_1'K_2'$ при $K_3' = 0$.

Показаны только ЛФП. 1 — ЛФП 1-го рода, 2 — ЛФП 2-го рода.

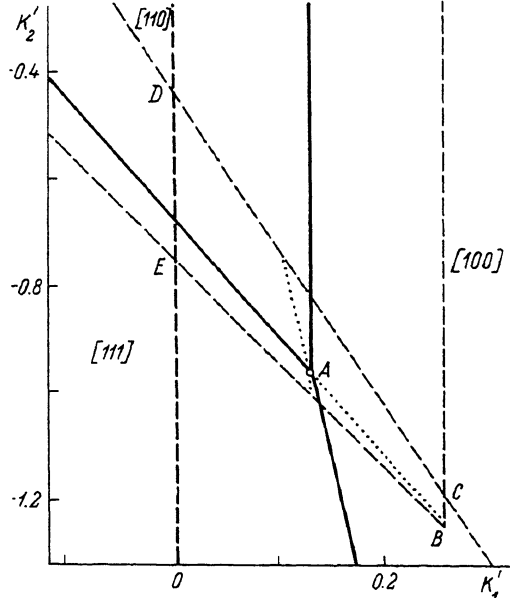


Рис. 4. Ориентационная фазовая диаграмма кубического магнетика в плоскости $K_1'K_2'$ при $K_3' = -0.5$.

Обозначение линий то же, что и на рис. 2.

1-го рода с шириной гистерезиса $\Delta K_1' = -2K_3'/4$. Однако, пока имеется перекрытие фаз $[110]$ и $[uuv]_1$ (рис. 3), возможен переход и через угловую фазу $[uuv]_1$. Исчезает область состояний фазы $[uuv]$, для которых

$$\vartheta < \arccos \sqrt{1 + 2K_3'}$$

В интервале $-0.5 < K_3' < -1/3$ фаза $[uuv]$ является метастабильной, а при $K_3' = -0.5$ исчезает полностью.

При $K_3' \leq -0.5$ (рис. 4) на фазовых диаграммах полностью отсутствуют несимметричные (угловые) фазы и все спин-переориентационные переходы между симметричными фазами являются фазовыми переходами 1-го рода с гистерезисом, определяемым границами областей сосуществования фаз. Внутри четырехугольника $BCDE$ сосуществуют три состояния. Между метастабильными фазами также могут происходить фазовые переходы. Все линии фазовых переходов пересекаются в точке A с координатами

$$K_1' = -K_3'/4, \quad K_2' = 5K_3'/4 - 1/3.$$

Фазовые диаграммы при $K_3' \leq -0.5$ имеют такой же вид, как и фазовая диаграмма, построенная в трехконстантном приближении $K_3 < 0$ [3].

Итак, учет K_4 приводит к следующим основным изменениям ОФД в плоскости $K_1'K_2'$ по сравнению с ОФД в трехконстантном приближении: появляется гистерезис при фазовых переходах 1-го рода $[uuv]_1 \leftrightarrow [u0]$ и $[uuv]_1 \leftrightarrow [uuv]_2$;

возникают фазовый переход 1-го рода $[110] \rightleftharpoons [uuv]_1$ и переход из фазы $[110]$ непосредственно в фазу $[100]$ (при $K_3' \leq 0$); род фазового перехода $[100] \rightleftharpoons \rightleftharpoons [uuv]$ зависит от значения K_3' : при $K_3' > 1/3$ — это переход 2-го рода, при $K_3' < 0$ — 1-го рода, а в интервале $0 < K_3' < 1/3$ имеется возможность переходов как 1-го, так и 2-го родов; область устойчивости угловых фаз $[uuv]$ и $[uv0]$ уменьшается до 0 с уменьшением K_3' (фаза $[uv0]$ исчезает при $K_3' = 0$, фаза $[uuv]$ — при $K_3' = -0.5$); при $K_3' \leq -0.5$ на ОФД имеются лишь симметричные фазы.

Таким образом, учет K_4 , хотя и не приводит к появлению новых фаз, существенно влияет на вид ОФД, особенно при $-0.5 < K_3' < 0.5$. Полученная ОФД более полно описывает магнитные состояния кубических магнетиков и позволяет объяснить все многообразие спин-переориентационных переходов, которые могут в них наблюдаться. Вид фазовых переходов и их последовательность при изменении температуры для конкретного магнетика зависят от значений констант анизотропии и их температурного хода, определяющих траекторию движения на фазовой диаграмме.

Список литературы

- [1] Белов К. П., Звездин А. К., Левитин Р. З., Маркосян А. С., Миль Б. В., Мухин А. А., Перов А. П. // ЖЭТФ. 1975. Т. 68. № 3. С. 1189—1202.
- [2] Atzmony U., Dariel M. // Phys. Rev. B. 1976. V. 3. N 9. P. 4006—4014.
- [3] Бородин В. А., Дорошев В. Д., Тарасенко Т. Н. // ФММ. 1983. Т. 56. № 2. С. 220—225.
- [4] Rudovich Cz. // JMMM. 1983. V. 30. N 4. P. 285—294.
- [5] Atzmony U., Dariel M. // Phys. Rev. 1974. V. B10. N 5. P. 2060—2067.
- [6] Цицкишвили К. Ф., Манджавидзе А. Г., Баазов Н. Г., Бирюкова Е. А., Акопов Ф. Х., Федоров В. М. // ФТТ. 1982. Т. 24. № 11. С. 3456—3458.
- [7] Белов К. П., Звездин А. К., Кадомцева А. М., Левитин Р. З. Ориентационные переходы в редкоземельных магнетиках. М., 1979. 317 с.

Институт физики АН Грузии
Тбилиси

Поступило в Редакцию
10 октября 1990 г.
В окончательной редакции
27 марта 1991 г.