

Диаграмма состояний антиферромагнитного фторида кобальта

© Е.М. Завражная, Г.К. Чепурных

Институт прикладной физики Национальной академии наук Украины,
40030 Сумы, Украина

E-mail: iarpuas@gluk.aps.org

(Поступила в Редакцию 18 августа 2005 г.)

Для антиферромагнитного фторида кобальта, для случая когда внешнее магнитное поле \mathbf{H} перпендикулярно оси легкого намагничивания \mathbf{A} , построена фазовая диаграмма в переменных $H-T$, с использованием которой построена фазовая диаграмма в переменных H_z, H_y . На этой диаграмме линии переходов второго рода (между угловой фазой и фазой, в которой вектор антиферромагнетизма $\mathbf{l} \perp \mathbf{A}$) начинаются и заканчиваются в полях spin-flip-перехода (т.е. в обменном поле). Особенностью этих линий фазовых переходов является также и то, что каждая из них имеет две трекритические точки, в которых происходит переход в линии фазовых переходов первого рода. Определен критический угол, между направлением магнитного поля и базисной плоскостью, в пределах которого происходит фазовый переход первого рода.

PACS: 75.50.Fe, 75.30.Kz

В течение нескольких десятков лет фазовым переходам в антиферромагнитном фториде кобальта уделяют внимание многие исследователи [1–6]. Относительно недавние экспериментальные работы [4,5] существенно изменили наши представления о фазовых переходах в легкоосных антиферромагнетиках, индуцированных внешним магнитным полем. Изучение [4,5] CoF_2 путем измерения намагниченности, антиферромагнитного резонанса, линейного двупреломления и фарадеевского вращения света, распространяющегося вдоль оси легкого намагничивания \mathbf{A} , показало, что с ростом магнитного поля $\mathbf{H} \parallel \mathbf{A}$ вместо обычного перехода вектора антиферромагнетизма \mathbf{l} из состояния $\mathbf{l} \parallel \mathbf{A}$ в состояние $\mathbf{l} \perp \mathbf{A}$ происходит переход \mathbf{l} из антиферромагнитной фазы в угловую. С использованием экспериментальных и теоретических исследований, выполненных в [4,5], в работах [6,7] было показано, что поведение магнитной подсистемы легкоосного тетрагонального антиферромагнетика в продольном магнитном поле определяется конкуренцией двух различных анизотропий в базисной плоскости: анизотропии, связанной с взаимодействием Дзялошинского (ВД) и обменно-усиленной анизотропией четвертого порядка $f l_x^2/l_y^2$. Если преобладает анизотропия, связанная с ВД, происходит переход в угловую фазу. Этот вывод является общим для всех тетрагональных антиферромагнетиков независимо от того, влияет внешнее магнитное поле на намагниченность подрешеток или нет.

Однако исследования CoF_2 проводились в основном в поле, параллельном и перпендикулярном \mathbf{A} . Экспериментальные исследования CoF_2 в магнитном поле произвольного направления относительно оси \mathbf{A} (обычно это ось Z) встретили определенные трудности. Поскольку изучение физических свойств магнитоупорядоченных кристаллов при произвольном направлении магнитного поля \mathbf{H} относительно оси \mathbf{A} наиболее продуктивно, если построена диаграмма состояний, цель данной работы —

построение диаграммы состояний антиферромагнитного CoF_2 в переменных H_z, H_y .

Для этого воспользуемся гамильтонианом вида

$$H = (2M_0) \left[\frac{1}{2} E \mathbf{m}^2 + \frac{1}{2} G (\mathbf{ml})^2 - D(l_x m_y + l_y m_x) + F(\mathbf{ml}) l_x l_y - \mathbf{mH} + \frac{1}{2} A_1 (l_x^2 + l_y^2) - \frac{1}{4} A_2 (l_x^2 + l_y^2)^2 \right], \quad (1)$$

где

$$\mathbf{l} = (\mathbf{M}_1 - \mathbf{M}_2)/2M_0,$$

$$\mathbf{m} = (\mathbf{M}_1 + \mathbf{M}_2)/2M_0, \quad \mathbf{A} \parallel OZ.$$

Условие $\mathbf{ml} = 0$ не выполняется.

Возможные состояния магнитной подсистемы указанного типа антиферромагнетиков при произвольной ориентации магнитного поля в плоскостях ZY представлены на рис. 1. В этом случае гамильтониан (1) рассматривается как функция переменных θ, φ и \mathbf{m} ,

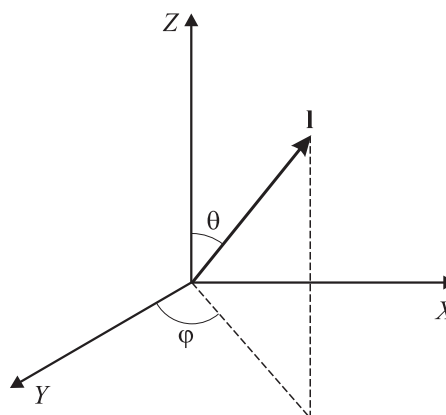


Рис. 1. Ориентация вектора антиферромагнетизма \mathbf{l} при произвольной ориентации внешнего магнитного поля в плоскости ZY . θ и φ – полярный и азимутальный углы вектора \mathbf{l} .

следовательно, возможные состояния определяются системой уравнений

$$\partial H/\partial \theta = 0, \quad \partial H/\partial \varphi, \quad \partial H/\partial \mathbf{m} = 0. \quad (2)$$

Используя третье уравнение системы (2), первое и второе уравнения системы (2) представим в виде

$$\begin{aligned} \partial H/\partial \theta = & -\frac{1}{E} H_y D l \cos \theta \sin \varphi + \frac{1}{2} \sin 2\theta \\ & \times \left\{ -\frac{(Dl)^2}{E} + A_1 l^2 - A_2 l^4 \sin^2 \theta + \frac{1}{E(E + Gl^2)} \right. \\ & \times \left[H_y^2 Gl^2 \cos \varphi - H_z^2 Gl^2 + \frac{1}{2} \sin^2 \theta \sin^2 2\varphi (-E(E l^3)^2 \right. \\ & + 4EDIFl^3 + 4(Dl)^2 Gl^2) + 3H_y \sin \theta \sin \varphi \cos^2 \varphi \\ & \left. \left. \times (EEl^3 + 2DIGl^2) \right] \right\} + \frac{H_z \cos \varphi}{E(E + Gl^2)} \left[H_y Gl^2 \cos 2\theta \right. \\ & \left. + \sin \theta \sin \varphi (EF l^3 + 2DIGl^2) (2 \cos^2 \theta - \sin^2 \theta) \right] = 0, \quad (3) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \partial H/\partial \varphi = & -\frac{1}{E} H_y D l \sin \theta \cos \varphi + \frac{1}{2E(E + Gl^2)} \\ & \times \left\{ -H_y^2 Gl^2 \sin^2 \theta \sin 2\varphi + \sin^4 \theta \sin 2\varphi \cos 2\varphi \right. \\ & \times (-E(F l^3)^2 + 4EDIFl^3 + 4(Dl)^2 Gl^2) \\ & - H_y H_z Gl^2 \sin 2\theta \sin \varphi \\ & + 2H_y \sin^3 \theta \cos \varphi (EF l^3 + 2DIGl^2) (\cos^2 \varphi - 2 \sin^2 \varphi) \\ & \left. + H_z \sin \theta \sin 2\theta \cos 2\varphi (EF l^3 + 2DIGl^2) \right\} = 0. \quad (4) \end{aligned}$$

Уравнения (3), (4), естественно, совпадают с уравнениями (10), (9), полученными в работе [5].

Если в уравнениях (3), (4) направить поле $\mathbf{H} \parallel \mathbf{A}$ ($H_y = 0$), для CoF_2 , согласно [6], с увеличением магнитного поля состояния $\mathbf{I} \perp \mathbf{A}$ ($\theta = \pi/2$, $\varphi = \pi/2$) не реализуется,¹ несмотря на то, что оно является решением уравнений (3), (4), так как это решение не удовлетворяет требованию минимума H . С ростом магнитного поля $\mathbf{H} \parallel \mathbf{A}$ реализуются состояния $\cos \theta \neq 0$, $\cos 2\varphi = 0$, т. е. реализуется угловая фаза.

При произвольной ориентации магнитного поля \mathbf{H} в плоскости ZY из уравнений (3), (4) следуют состояния $\cos \theta = 0$, $\sin 2\varphi = 0$, т. е. фаза $\mathbf{I} \perp \mathbf{A}$. Для определения значений поля, при которых реализуются эти состояния, воспользуемся теорией фазовых переходов Ландау. Для

¹ Точнее, состояние, когда результирующий магнитный момент \mathbf{m} параллелен \mathbf{A} , реализуется в поле spin-flip перехода, т. е. в обменном поле.

этого исключим из гамильтониана (1) \mathbf{m} , используя третье уравнение системы (2), и представим гамильтониан (1) как функцию переменных θ и φ . Полагая в уравнении (4) $\varphi = \pi/2 + \varphi_0$ и учитывая, что в области фазового перехода $\varphi_0 \ll 1$, находим

$$\varphi_0 = \frac{H_z (H_y Gl^2 + \sin \theta (EF l^3 + 2Gl^2 Dl)) \cos \theta}{H_y Dl (E + Gl^2) + \sin \theta \{H_y [H_y Gl^2 + 2 \sin \theta (EF l^3 + 2Gl^2 Dl)] + \sin^2 \theta (-E(F l^3)^2 + 4EDIFl^3 + 4Gl^2 (Dl)^2)\}}. \quad (5)$$

Используя формулу (5), представим гамильтониан (1) как функцию угла θ , а затем, полагая $\theta = \pi/2 - \theta_0$ и учитывая, что $\theta_0 \ll 1$, запишем

$$H = H_0 + A\theta_0^2 + B\theta_0^4, \quad (6)$$

где H_0 — часть гамильтониана, не зависящая от угла θ_0 , и угол θ_0 рассматривается как параметр порядка

$$A = \frac{1}{2} \left[\frac{1}{E} (H_y d + d^2) - a_1 + a_2 - \frac{H_z^2}{E(E + g)} (K_1 - g) \right], \quad (6a)$$

$$B = \frac{1}{6} \left[-\frac{1}{E} \left(\frac{1}{4} H_y d + d^2 \right) + a_1 - \frac{5}{2} a_2 + \frac{H_z^2}{(E(E + g))} (K_2 - g) \right], \quad (6b)$$

где

$$K_1 = \frac{(H_y g + Ef + 2dg)^2}{H_y^2 + H_y (Ed + 5dg + 2Ef) + Ef(F + 4d) + 4d^2 g}, \quad (6c)$$

$$K_2 = \frac{(H_y g + Ef + 2dg) [2H_y^3 g^2 + H_y^2 g (17dg + 5Ed + 6Ef) + 2E^2 f^2 (4d - f) + 4dg (4d^2 g + 6Edf - Ef^2)]}{2[H_y^2 g + H_y (Ed + 5dg + 2Ef) + Ef(F + 4d) + 4d^2 g]^2}. \quad (6d)$$

При написании выражений (6a)–(6d) учтены обозначения (8) из [5], т. е.

$$d = Dl, \quad f = Fl^3, \quad a_1 = A_1 l^2,$$

$$a_2 = A_2 l^4 \quad (\text{и, кроме того, положим } g = Gl^2). \quad (6e)$$

Этими обозначениями будем пользоваться и в дальнейшем для согласованности выводов работы [5] с выводом настоящей работы.

Уравнение

$$A = 0 \quad (7)$$

при $B > 0$ на фазовой диаграмме в переменных H_z , H_y определяет линию фазовых переходов второго рода, а при $B < 0$ — линию нижнего поля лабильностью фазовых переходов первого рода. Из совместного изучения уравнений (3), (4) в согласии с [5] и симметричным анализом [8] следует, что состояние $l = 0$ реализуется, если $H_y = 0$.

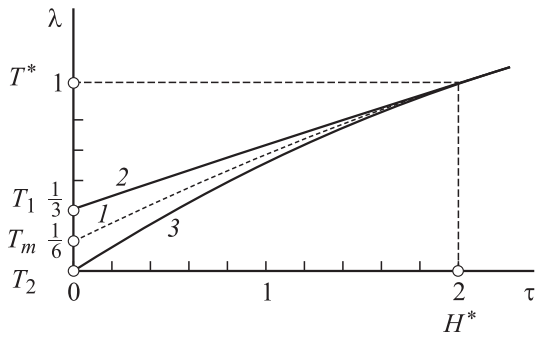


Рис. 2. Диаграмма состояний антиферромагнитного фторида кобальта для случая, когда внешнее магнитное поле \mathbf{H} перпендикулярно оси \mathbf{A} (фактически диаграмма в переменных $H-T$). I — линия равновесия двух фаз ($\tau = (2 \pm \sqrt{18\lambda - 2}) \times \{3\lambda - \frac{1}{2}[1 + \frac{1}{9}(-1 \pm \sqrt{18\lambda - 2})^2]\}/6$), линии 2 ($\lambda = (\tau + 1)/3$) и 3 ($\lambda = (\tau/2)^{2/3}$) ограничивают область существования метастабильных состояний. При $\tau > 2$ линия $\lambda = (\tau + 1)/3$ является линией переходов второго рода. (Линии I и 2 определены в [5]).

Для определения на фазовой диаграмме H_z, H_y трикритической точки помимо уравнения (7) и уравнения

$$B = 0 \tag{8}$$

необходимо для случая $\mathbf{H} \perp \mathbf{A}$ построить диаграмму состояний, в основном построенную в [5]. Это — диаграмма в переменных

$$\lambda = \frac{a_1 E - d^2}{3a_2 E}, \quad \tau = \frac{Hd}{a_2 E}, \tag{9}$$

которая представлена на рис. 2. Диаграмма на рис. 2 — это фактически диаграмма в переменных T и H , так как параметр λ изменяется с изменением температуры, а τ — приведенное магнитное поле.

Для определения верхнего поля лабильности при фазовом переходе первого рода воспользуемся уравнением (23) из [5]. Это уравнение имеет вид

$$H = \frac{(a_1 E - d^2) \sin \theta - a_2 E \sin^3 \theta}{d}. \tag{10}$$

Если в уравнении (10) положить $\theta = \pi/2$ и использовать переменные λ и τ , уравнение нижнего поля лабильности будет иметь вид

$$\lambda = \frac{\tau + 1}{3}.$$

Для определения верхнего поля лабильности продифференцируем уравнение (10) по $\sin \theta$ и получим

$$a_1 E - d^2 - 3a_2 E \sin^2 \theta = 0. \tag{10a}$$

Исключая из уравнений (10), (10a) $\sin \theta$ находим в переменных λ, τ

$$\lambda = \left(\frac{1}{2} \tau\right)^{2/3}.$$

Для определения трикритической точки на диаграмме H_z, H_y , воспользуемся уравнением (7), (8) и будем рассматривать случай $H_z \ll H_y$. Это означает, что на диаграмме λ, τ необходимо ограничиться окрестностью трикритической точки ($\lambda = 1, \tau = 2$), т.е. использовать условия

$$1 - \lambda \ll 1, \quad 2 - \tau \ll 1. \tag{11}$$

Определяя из уравнения (7) выражение для $H_y^A d$ и из уравнения (8) выражение для $H_y^B d$ и учитывая, что в трикритической точке на диаграмме H_z, H_y разность $H_y^B d - H_y^A d = 0$, находим

$$\frac{H_z^2}{(E + g)} [4(K_2 - g) - (K_1 - g)] + 3(a_1 E - 3a_2 E - d^2) = 0. \tag{12}$$

Используя выражение (9) для λ , можно записать

$$(a_1 E - 3a_2 E - d^2) = 3(\lambda - 1)a_2 E. \tag{12a}$$

Кроме того, учитывая условия (11) и условие $H_z \ll H_y$, в левой части уравнения (12) можно положить

$$H_y = (3\lambda - 1)a_2 E/d \cong 2a_2 E/d. \tag{12b}$$

В этом случае из уравнения (12) находим

$$H_z^2 = \frac{9(1 - \lambda)(E + g)}{[4(K_2 - g) - (K_1 - g)]} a_2 E. \tag{12c}$$

Из формулы (12c) следует, что величина критического угла $\Psi_{cr} = \pi/2 - \Psi$ ($H_z^2 = H^2 \cos^2 \Psi = H^2 \cos(90^\circ - \Psi_{cr}) = H^2 \sin^2 \Psi_{cr} \cong H^2 \Psi_{cr}^2$ и $H_y \cong 2a_2 E/d$) между направлением магнитного поля \mathbf{H} и осью Y , в пределах которого происходит фазовый переход первого рода, определяется выражением

$$\Psi_{cr} \cong \frac{3}{2} \sqrt{\frac{(1 - \lambda)(E + g)d^2}{[4(K_2 - g) - (K_1 - g)]a_2 E}}. \tag{13}$$

Из этого выражения следует, что по мере удаления от трикритической точки на диаграмме λ, τ в область фазового перехода первого рода (параметр λ при этом уменьшается) критический угол Ψ_{cr} на диаграмме H_z, H_y увеличивается.

Для определения критических линий фазового перехода первого рода на диаграмме в переменных H_z, H_y воспользуемся уравнениями (3), (4). Полагая в уравнении (3) $\varphi = \pi/2 + \varphi_0$, производя разложение тригонометрических функций в ряд с учетом малости φ_0 и исключая φ_0 с помощью формулы (5), получим уравнение относительно угла θ . Затем, полагая $\theta = \pi/2 - \theta_0$, с учетом малости θ_0 , получим, удерживая главные члены, следующее уравнение относительно $X = \theta_0^2$:

$$X^3 + \frac{63}{30} \frac{N_3}{N_4} X^2 + \frac{63}{6} \frac{[N_2 - 4 \frac{H_z^2}{(E+g)}(K_2 - g)]}{N_4} X + \frac{[N_1 + \frac{H_z^2}{(E+g)}(K_1 - g)]}{N_4} = 0 \tag{14}$$

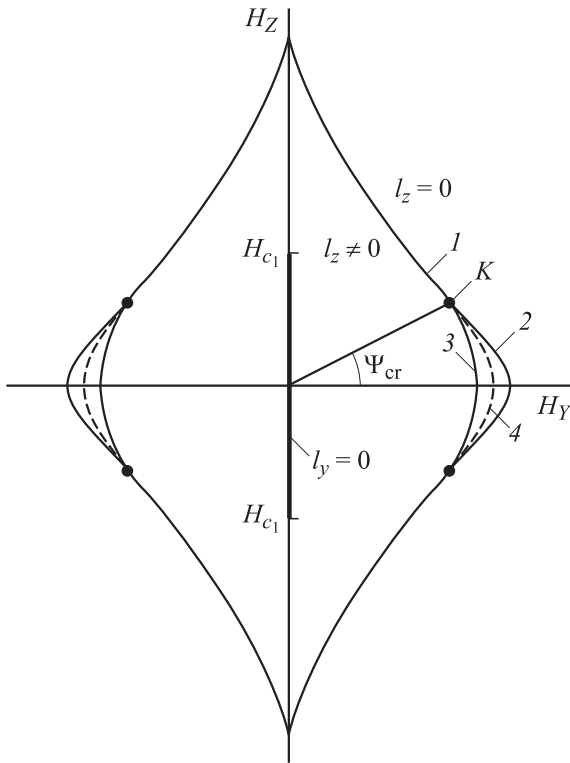


Рис. 3. Диаграмма состояний антиферромагнитного фторида кобальта при произвольной ориентации внешнего магнитного поля \mathbf{H} в плоскости ZY . 1 — линии переходов второго рода; 2 и 3 — линии, ограничивающие область метастабильных состояний; 4 — линии равновесных фазовых переходов первого рода. K — трикритические точки, в которых линии фазовых переходов второго рода переходят в линии фазовых переходов первого рода. H_{c1} — наибольшее значение магнитного поля, при котором реализуется антиферромагнитная фаза $\mathbf{I} \parallel \mathbf{A}$.

где

$$N_1 = -[H_y d - (a_1 E - d^2) + a_2 E],$$

$$N_2 = [N_y d - 4(a_1 E - d^2) + 10a_2 E],$$

$$N_3 = -\frac{1}{4}[H_y d - 16(a_1 E - d^2) + 136a_2 E],$$

$$N_4 = \frac{1}{80}[H_y d - 64(a_1 E - d^2) + 2080a_2 E]. \quad (14a)$$

При $X = 0$ уравнение (14) сводится к уравнению (7), если ограничить применимость уравнения (7) условиями (11), условием $H_z \ll H_y$ и использовать обозначения (9).

Если $\lambda = 1$, $\tau = 2$, то

$$N_1 = N_2 = 0, \quad N_3 = -\frac{45}{2}a_2 E, \quad N_4 = \frac{189}{8}a_2 E. \quad (14b)$$

Это означает, что в окрестности трикритической точки на диаграмме λ , τ при получении и анализе уравнения (14) необходимо учитывать условия

$$|N_1|, |N_2| \ll |N_3|, \quad |N_4|. \quad (14c)$$

Вообще говоря, благодаря условиям (11) и вытекающим из (11) условиям (14c), в уравнении (14) слагаемым X^3 можно также пренебречь. Поэтому, продифференцировав (14) по X , получаем

$$\frac{1}{15}N_3 X + \frac{1}{6} \left[N_2 - 4 \frac{H_z^2}{(E+g)} (K_2 - g) \right] = 0. \quad (14d)$$

Исключая X из уравнений (14), (14d), получаем

$$\left[H_y \frac{d}{a_2 E} - 4(3\lambda - 1) + 6 - H_z^2 \frac{4}{a_2 E (E+g)} (K_2 - g) \right]^2 - 108 \left[H_y \frac{d}{a_2 E} - (3\lambda - 1) + H_z^2 \frac{1}{a_2 E (E+g)} (g - K_1) \right] = 0. \quad (15)$$

При получении уравнения (15) было учтено, что $(a_1 E - d^2) = 2\lambda a_2 E$. Полагая $\lambda = 1 - \alpha$ и считая $\alpha \ll 1$, находим из (15)

$$H_y = \frac{1}{d} \left\{ 2a_2 E \left(1 - \frac{3}{2}\alpha + \frac{3}{8}\alpha^2 \right) - H_z^2 \frac{1}{(E+g)} \left[(g - K_1) + \frac{1}{12}\alpha (4(K_2 - g) + (g - K_1)) \right] + H_z^4 \frac{1}{108a_2 E (E+g)^2} [4(K_2 - g) + (g - K_1)]^2 \right\}. \quad (15a)$$

Из соотношения (15a) видно, что, если выполняется условие $g > K_1$, при $H_z \ll H_y$ уменьшение H_y с ростом H_z определяется параболой (рис. 3).

Приравнявая значения гамильтониана (1) как функции угла θ при $\theta = \pi/2$ и $0 < \theta < \frac{\pi}{2}$, получаем уравнение

$$X^2 + \frac{45}{6} \frac{[N_2 + 4 \frac{H_z^2}{(E+g)} (g - K_1)]}{N_3} X + \frac{90 [N_1 - \frac{H_z^2}{(E+g)} (g - K_1)]}{N_3} = 0, \quad (16)$$

где N_1, N_2, N_3 определяются соотношениями (14a).

Исключая X из уравнений (14), (16), получаем следующее уравнение, определяющее линию равновесного фазового перехода первого рода между фазой $\mathbf{I} \perp \mathbf{A}$ и угловой фазой

$$H_y = \frac{1}{d} \left\{ 2a_2 E \left(1 - \frac{3}{2}\alpha + \frac{9}{32}\alpha^2 \right) - H_z^2 \frac{1}{(E+g)} (g - K_1) \left(1 + \frac{1}{8}\alpha \right) + H_z^4 \frac{1}{9a_2 E (E+g)^2} \left[\frac{1}{16}(g - K_1)^2 - 4(g - K_2)^2 \right] \right\}. \quad (17)$$

Из (17) видно, что и в этом случае, если выполняется условие $g > K_1$, зависимость H_y от H_z определяется параболой при $H_z \ll H_y$.

При условии $H_z \ll H_y$ и при выполнении условий (11) из уравнения (14) при $x = 0$ получаем следующее уравнение для линии нижнего поля лабильности:

$$H_y = \frac{1}{d} \left\{ 2a_2 E \left(1 - \frac{3}{2} \alpha \right) - H_z^2 \frac{1}{(E + g)} (g - K_1) \right\}. \quad (18)$$

Обратим внимание, что, если в формулах (15а), (17), (18) положить $H_z = 0$, полученные выражения для H_y совпадают с теми, которые можно получить из уравнений для линий 3, 2 и 1 (рис. 2) при $\lambda = 1 - \alpha$ и $\alpha \ll 1$.

Таким образом, из выполненного исследования следует, что линии фазовых переходов второго рода на диаграмме H_z, H_y антиферромагнитного фторида кобальта начинаются и заканчиваются в полях spin-flip-перехода ($H_z = \pm H_E$). Особенностью этих линий фазовых переходов второго рода является также и то, что каждая из этих линий имеет две трикритические точки, в которых происходит переход в линии фазовых переходов первого рода.

Полученная диаграмма состояний может быть использована, например, при определении взаимодействия спиновых и упругих волн в антиферромагнитном фториде кобальта, а линии фазовых переходов первого рода необходимы при изучении возникающей в этом случае доменной структуры.

Кроме того, построив диаграмму состояний, мы получили дополнительные соотношения между пороговыми полями, определение которых позволяет найти конкретные значения для большего количества параметров, входящих в гамильтониан (1).

Список литературы

- [1] M.E. Lines. Phys. Rev. A **137**, 982 (1965).
- [2] S.J. Allen, H.J. Gignenheim. Phys. Rev. **134**, 950 (1971).
- [3] К.Г. Гуртовой. ФТТ **20**, 2666 (1978).
- [4] Н.Ф. Харченко, В.В. Еременко, Л.И. Белый. ЖЭТФ **82**, 3, 827 (1982).
- [5] К.Г. Гуртовой, А.С. Лагутин, В.И. Ожогин. ЖЭТФ **83**, 5 (1), 1941 (1982).
- [6] Г.К. Чепурных, О.Г. Медведовская, О.А. Никитина. ФНТ **26**, 1, 108 (2000).
- [7] Г.К. Чепурных, В.С. Иваний, О.Г. Медведовская, О.А. Никитина. ФТТ **41**, 11, 2044 (1999).
- [8] В.А. Львов, Д.А. Яблонский. ФНТ **8**, 9, 951 (1982).