Доклады Академии наук СССР
1974. Том 219, № 6

УДК 538.115 ***ФИЗИКА***

Л. В. ВЕЛИКОВ, Ю. М. ГУФАН, А. С. ПРОХОРОВ, Е. Г. РУДАШЕВСКИЙ

О ПРОБЛЕМЕ АДЕКВАТНОГО ФЕНОМЕНОЛОГИЧЕСКОГО ОПИСАНИЯ МАГНИТНЫХ ДИЭЛЕКТРИКОВ

(Представлено академиком А. М. Прохоровым 27 IX 1974)

Существует проблема адекватного описания магнитоупорядоченных веществ. Если для ферромагнитных диэлектриков в принципе возможно построение микроскопической теории и определение основного состояния системы, то для магнитоупорядоченных диэлектриков других типов (ферри-, антиферро- и др.) настоящая проблема остается открытой. Особо важную роль имеет феноменологическое описание статических и динамических свойств магнитных диэлектриков, которое предполагает исследование термодинамического потенциала и уравнений движения, удовлетворяющих только принципам симметрии. Однако реально осуществляются только модельные описания статических свойств веществ, основанные на замене полного разложения термодинамического потенциала в бесконечный ряд ограниченным числом членов этого ряда; при этом динамические свойства также описываются модельными уравнениями движения типа уравнений Ландау — Лифшица ([1], [2]), которые предполагают сохранение величины спина при отклонении его от положения равновесия.

Хотя модельный подход и позволяет объяснить целый ряд экспериментальных фактов, в особенности для магнитоупорядоченных веществ с замороженным орбитальным движением, существуют экспериментальные данные, в частности, для веществ с большим вкладом орбитального движения ([3], [4]), которые нельзя описать в рамках такого подхода. Прогресс в области эксперимента привел к открытию целого ряда магнитных фазовых переходов, индуцированных магнитным полем. Каждый раз для описания конкретного перехода в модельный потенциал, представляющий собой первые члены разложения в принципе бесконечного ряда по степеням параметров, определяющих состояние системы, обычно добавляют один или два члена, допускаемые симметрией, при этом не принимаются во внимание 10—20 (в зависимости от типа симметрии) членов разложения того же порядка, что и добавленные. Отбор добавляемых членов определяется не столько физическими соображениями, сколько математическими трудностями решения систем нелинейных уравнений с большим числом членов ([5]). Нельзя строго сделать вывод о величине вклада опускаемых при модельном описании членов разложения. При таком подходе величины эффективных магнитных полей, определяемые в одном и том же веществе, оказываются сильно зависящими от принятой модели.

В настоящей работе предлагается подход к решению проблемы о термодинамически полном описании статики и линейной динамики магнитоупорядоченных диэлектриков. Любое экспериментальное исследование зависимостей намагниченности и собственных частот колебаний от внешнего магнитного поля проводится с некоторой конечной точностью, ограничивающей степень полинома относительно H (P=const, T=const), который эмпирически описывает соответствующий экспериментальный результат. Поэтому принципиальным оказывается построение теории, учитывающей в термодинамическом потенциале полностью все члены разложения в ряд по внутреннему параметру перехода и получение теоретических формул, описывающих экспериментальные результаты в виде полиномов по степеням H. Причем наивысшая степень такого разложения должна определяться только экспериментально оправданной точностью. В настоящей работе полный теоретический анализ и выводы формул, описывающих некоторые конкретные эффекты, проведены для случая диэлектрических антиферромагнетиков типа «легкая плоскость» — наиболее простых объектов, в которых перечисленные выше трудности феноменологической теории проявляются в полной мере ([5], [6]).

В антиферромагнетиках средняя по времени микроскопическая плотность магнитного момента $m(r)$ внутри элементарной ячейки отлична от нуля, а полный магнитный момент элементарной ячейки $\mathbf{M}(\mathbf{R})=\int_{\Omega_\mathbf{R}}\mathbf{m}(\mathbf{r})\,dV$ ($\Omega_\mathbf{R}$ — объем элементарной ячейки номера $\mathbf{R}$) либо равен нулю, либо мал по сравнению с некоторым интегралом вида $\mathbf{L}(\mathbf{R})=\int_{\Omega_\mathbf{R}}\mathbf{m}(\mathbf{r})\varphi(\mathbf{r})\,dV$, где $\varphi(\mathbf{r})$ — нормированная на единицу функция координат. Вид функции $\varphi(\mathbf{r})$ обычно не требуется конкретизировать, а достаточно лишь указать, по какому представлению группы G, описывающей симметрию парамагнитной фазы данного антиферромагнетика, она преобразуется. Интегралы $\mathbf{L}(\mathbf{R})$ называют спиновыми плотностями ([7]). В этом случае, если функция $\varphi(\mathbf{r})$ преобразуется по тому же представлению, что и некоторые компоненты симметричного тензора n-го ранга, об антиферромагнитном упорядочении можно говорить как о магнитном мультипольном. Антиферромагнетики с магнитным мультипольным упорядочением, однако, не могут обладать магнитоэлектрическим эффектом, если группа G содержит центр инверсии (таковы, например, Cr_2O_3, Ti_2O_3). Т. е. описание антиферромагнитного упорядочения как магнитного мультипольного не является общим. Для того чтобы получить обычное неелевское описание с помощью подрешеток, достаточно предположить, что $\varphi(\mathbf{r})=\sum_\alpha A(\mathbf{r})\delta(\mathbf{r}-\mathbf{r}_\alpha)$, где α — номер магнитного иона в магнитной элементарной ячейке. Пусть функция $\varphi(\mathbf{r})$ преобразуется по одномерному неприводимому представлению группы G, тогда антиферромагнетик можно описать двумя подрешетками. В случае когда $\varphi(\mathbf{r})$ преобразуется по одной из строк многомерного неприводимого представления, число подрешеток должно быть увеличено. В частности, для кубических кристаллов число подрешеток в этом случае не может быть меньше четырех. Для примера рассмотрим антиферромагнетики, которые можно описать двумя подрешетками. Будем предполагать, что неравновесный термодинамический потенциал в теории фазовых переходов Ландау может быть записан в виде целой рациональной функции компонент векторов $L_i(\mathbf{R})$ и $M_j(\mathbf{R})$:

$$\Phi=\Phi(L_i,\ M_j)=\Phi(J_1,\ldots,J_n),\tag{1}$$

где $J_1,\ldots J_n$ образуют целый рациональный базис инвариантов (ЦРБИ) компонент L_i и M_j ([8]). Для тригональных антиферромагнетиков типа $FeBO_3$, $CoCO_3$, $MnCO_3$, $NiCO_3$ и др., если пренебречь кристаллографической анизотропией в базисной плоскости, ЦРБИ содержит семь инвариантов

$$\begin{gathered}J_1=\mathbf{L}^2,\quad J_2=\mathbf{M}^2,\quad J_3=(\mathbf{LM})^2,\quad J_4=L_z^2,\\ J_5=M_z^2,\quad J_6=L_7M_z(\mathbf{LM}),\quad J_7=L_xM_y-L_yM_x.\end{gathered}\tag{2}$$

Формулы, описывающие статику (зависимость магнитного момента образца $\mathbf{M}$ от магнитного поля $\mathbf{H}$), получаются как решения системы шести нелинейных уравнений

$$\frac{\partial\Phi}{\partial L_i}=\frac{\partial\Phi}{\partial J_k}\frac{\partial J_k}{\partial L_i}=0,\qquad \frac{\partial\Phi}{\partial M_i}=\frac{\partial\Phi}{\partial J_k}\frac{\partial J_k}{\partial M_i}=H_i;\qquad k,i=x,y,z.\tag{3}$$

Обозначим $\partial\Phi/\partial J_k=\Phi_k$, $\partial^2\Phi/\partial J_k\partial J_l=\Phi_{kl}$ и т. д.

Для $H\|x$, $L\|y$ уравнения (3) принимают вид

$$2L_y\Phi_1-M_x\Phi_7=0,\qquad 2M_x\Phi_2-L_y\Phi_7=H_x,\tag{4}$$

где с точностью до $(M/L)^2$ $(M \ll L)$, например,

$$\Phi_1=\tilde{\Phi}_1+\tilde{\Phi}_{12}\mathbf{M}^2+\tilde{\Phi}_{13}(\mathbf{LM})^2+\tilde{\Phi}_{71}(L_xM_y-L_yM_x); \qquad (5)$$

знак тильда над буквой обозначает сумму бесконечного ряда членов, не содержащих M_i, например, для Φ_1

$$\tilde{\Phi}_1=\Phi_{11}L_0^2+{}^1/_2\Phi_{111}L_0^4+\ldots+\Phi_{14}L_{0z}^2+{}^1/_2\Phi_{144}L_{0z}^4+\Phi_{114}L_0^2L_{0z}^2+\ldots$$

Решение (4) для M с точностью до $(M/L)^2$ принимает вид

$$L=L_0+\frac{M_1(\tilde{\Phi}_7+3\tilde{\Phi}_{71}L_0^2)-2\tilde{\Phi}_{12}L_0M_1^2}{4L_0^2\tilde{\Phi}_{11}}, \qquad (6)$$

$$M=M_1+\frac{M_1^2}{L_0}\frac{\tilde{\Phi}_{27}^2L_0^2}{\tilde{\Phi}_2+\tilde{\Phi}_{21}L_0^2}, \qquad M_1=\frac{H_x+L_0\tilde{\Phi}_7}{2\tilde{\Phi}_2}.$$

Здесь введен новый по сравнению с обычным термодинамическим подходом феноменологический параметр L_0, который является решением нелинейного уравнения $\tilde{\Phi}_1=0$.

Если для антиферромагнетика записать термодинамические уравнения, соответствующие по приближению линеаризованным уравнениям Ландау — Лифшица для ферромагнетиков, то эти уравнения могут иметь только такой вид ([9], [10]):

$$\dot{\mathbf{m}}=\tilde{g}_1[\mathbf{M}\times\Phi_M]+\tilde{g}_2[\mathbf{L}\times\Phi_L], \qquad \dot{\mathbf{l}}=\tilde{g}_2[\mathbf{L}\times\Phi_M]+\tilde{g}_3[\mathbf{M}\times\Phi_L]; \qquad (7)$$

здесь $\Phi_M=\partial\Phi/\partial\mathbf{M}$, $\Phi_L\equiv\partial\Phi/\partial\mathbf{L}$, а $\tilde{g}_1$, $\tilde{g}_2$, $\tilde{g}_3$ — феноменологические параметры, которые можно записать в виде бесконечного ряда по степеням L.

Уравнения (7) можно записать через отклонения магнитных подрешеток от положения равновесия

$$\dot{\mathbf{S}}_1=(\tilde{g}_1+\tilde{g}_2+\tilde{g}_3)[\mathbf{S}_1^0\times\mathbf{H}_1]+(\tilde{g}_1-2\tilde{g}_2+\tilde{g}_3)[\mathbf{S}_2^0\times\mathbf{H}_1]+(\tilde{g}_2-\tilde{g}_1)[(\mathbf{S}_1^0+\mathbf{S}_2^0)\times H_2], \qquad (8)$$

$$\dot{\mathbf{S}}_2=(\tilde{g}_1+2\tilde{g}_2+\tilde{g}_3)[\mathbf{S}_2^0\times\mathbf{H}_2]+(\tilde{g}_1-2\tilde{g}_2+\tilde{g}_3)[\mathbf{S}_1^0\times\mathbf{H}_1]+(\tilde{g}_2-\tilde{g}_3)[(\mathbf{S}_1^0+\mathbf{S}_2^0)\times\mathbf{H}_1];$$

здесь $\mathbf{S}_i^0$ и $\mathbf{S}_i$ — равновесный спин и отклонение от положения равновесия подрешетки i, Φ_S. В парамагнитной фазе эти уравнения для спинов подрешеток должны совпадать и вблизи точки перехода $\tilde{g}_2-\tilde{g}_1\sim\tilde{g}_2-\tilde{g}_3\sim\sim L_0^2+O(L^4)$. При низких температурах полагать $\tilde{g}_1=\tilde{g}_2=\tilde{g}_3$ нет никаких оснований ([6], [9]). Хотя различие между $\tilde{g}_1$, $\tilde{g}_2$ и $\tilde{g}_3$ имеет место уже в обменном приближении, иногда наряду с ним необходимо учитывать анизотропию в коэффициентах уравнений движения, которая для веществ с большим вкладом орбитального движения в $\mathbf{m}(\mathbf{r})$ не мала (т. е. учитывать анизотропию g-факторов) ([3], [4]). В тех случаях, когда анизотропные взаимодействия существенно превышают обменные, справедливы уравнения с тензорным g-фактором ([2]).

Для частот антиферромагнитного резонанса при ориентации магнитного поля в базисной плоскости получаем с точностью до $(M/L)^2$ ([6]):

$$\omega_1^2=\frac{\tilde{\Phi}_2+\tilde{\Phi}_5}{\tilde{\Phi}_2}\Bigg\{(\tilde{g}_1-\tilde{g}_2)^2\tilde{\Phi}_7^2L_0^2\left(1+\frac{\tilde{\Phi}_3}{\tilde{\Phi}_2}L_0^2\right)+$$

$$+\tilde{\Phi}_7H_xL_0\left[\tilde{g}_2^2+2\tilde{g}_2(\tilde{g}_1-\tilde{g}_2)+2(\tilde{g}_1-\tilde{g}_2)^2\left(1+\frac{\tilde{\Phi}_3}{\tilde{\Phi}_2}L_0^2\right)\right]+$$

$$+H_x^2\left[(\tilde{g}_2^2+2\tilde{g}_2(\tilde{g}_1-\tilde{g}_2)+(\tilde{g}_1-\tilde{g}_2)^2\left(1+\frac{\tilde{\Phi}_3}{\tilde{\Phi}_2}L_0^2\right)\right], \qquad (9)$$

$$\omega_2^2=\tilde{g}_2^2L_0^2[4\tilde{\Phi}_2\tilde{\Phi}_4-\tilde{\Phi}_7(\tilde{\Phi}_7+H_x/L_0)]. \qquad (10)$$

Если же поле направлено вдоль оси z, то

$$\omega_1^2=\frac{\tilde{\Phi}_2+\tilde{\Phi}_5}{\tilde{\Phi}_2}(\tilde{g}_1-\tilde{g}_2)^2\tilde{\Phi}_7^2L_0^2\frac{\tilde{\Phi}_2+\tilde{\Phi}_3L_0^2}{\tilde{\Phi}_2},$$

$$\omega_2^2=\tilde{g}_2^2L_0^2[4\tilde{\Phi}_2\tilde{\Phi}_4-\tilde{\Phi}_7^2]+$$

$$+H_z^2\frac{\tilde{\Phi}_2}{(\tilde{\Phi}_2+\tilde{\Phi}_5)^2}\{\tilde{g}_1^2(\tilde{\Phi}_2+L_0^2\tilde{\Phi}_3)+\tilde{g}_2^2L_0^2\tilde{\Phi}_3-2\tilde{g}_1\tilde{g}_2L_0^2\tilde{\Phi}_3\}. \qquad (11)$$

Из теории следует, что для описания статических и динамических экспериментов с точностью, ограниченной второй степенью магнитного поля, необходимо и достаточно только 8 феноменологических параметров, которые и должны определиться экспериментально:

$$\tilde{g}_1,\ \tilde{g}_2,\ \tilde{\Phi}_2,\ \tilde{\Phi}_3,\ \tilde{\Phi}_5,\ \tilde{\Phi}_7,\ L_0,\ \tilde{\Phi}_4. \qquad (12)$$

При произвольной ориентации магнитного поля новые параметры не появляются. Если провести измерения $M_z(H_z)$, $M_x(H_x)$, $\omega_1(H_x)$, $\omega_2(H_x)$, $\omega_1(H_z)$, $\omega_2(H_z)$, то они дают уже 11 коэффициентов соответствующих экстраполяционных полиномов, т. е. больше, чем необходимо для определения численных величин 8 феноменологических параметров (12). Обобщение всех формул до более высоких степеней отношения $M/L\sim H$ очевидно. Современные эксперименты, упомянутые выше, не обеспечивают большей точности, чем $(M/L)^2\sim H^2$, что и обусловило точность приводимых в данной статье формул.

Таким образом, впервые на примере тригонального антиферромагнетика типа $FeBO_3$ построена замкнутая теория, описывающая в единой схеме статику и линейную динамику. Предлагаемое рассмотрение является замкнутым в том смысле, что максимальное число феноменологических параметров теории принципиально ограничено симметрией и связано с точностью экспериментов. Число вводимых независимых параметров оказывается существенно меньше числа мыслимых экспериментов. Это позволяет при заранее заданной степени точности экспериментов указать те из них, проведение которых необходимо и достаточно для построения модельного термодинамического потенциала, содержащего конечное число членов. Такой потенциал будет адекватно описывать свойства магнетиков в том смысле, что с его помощью возможны количественные предсказания для любых других экспериментов, проводимых с той же самой степенью точности.

В предлагаемом подходе полностью решается вопрос об учете всех допустимых инвариантов любых степеней. Также решен вопрос о написании с любой необходимой для описания экспериментов точностью безмодельных уравнений движения. Несмотря на такую общность, число феноменологических параметров меньше числа принципиально измеренных величин.

Физический институт им. П. Н. Лебедева
Академии наук СССР
Москва

Поступило
27 IX 1974

ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

[1] *А. С. Боровик-Романов*, Сборн. Итоги науки, Физ.-матем. науки, т. 4, Антиферромагнетизм, Изд. АН СССР, 1962. [2] *Е. А. Туров*, Физические свойства магнитоупорядоченных кристаллов, Изд. АН СССР, 1963. [3] *Ю. М. Гуфан, К. Н. Кочарян и др.*, Тр. Международн. конфер. по магнетизму МКМ-73, т. 4, «Наука», 1974, стр. 109. [4] *Ю. М. Гуфан, К. Н. Кочарян и др.*, ЖЭТФ, т. 66, 1155 (1974). [5] *С. В. Миронов, Е. Г. Рудашевский, Р. А. Восканян*, Тр. Физич. инст. им. П. Н. Лебедева АН СССР, т. 67, 103 (1973). [6] *Л. В. Великов, Ю. М. Гуфан и др.*, Тез. XVIII Всесоюзн. совещ. по физике низких температур, Киев, 1974. [7] *И. Е. Дзялошинский*, ЖЭТФ, т. 46, 1420 (1964). [8] *Ю. М. Гуфан*, ФТТ, т. 13, 225 (1971). [9] *Ю. М. Гуфан*, Физ. мет. и металловед., т. 27 787 (1969). [10] *Ю. М. Гуфан*, ЖЭТФ, т. 60, 1537 (1971).