

## Магнитострикция однородного и многодоменного состояний антиферромагнетика $\text{NiCl}_2$

В. М. Калита, А. Ф. Лозенко, П. А. Троценко

*Институт физики НАН Украины, пр. Науки, 46, г. Киев, 03650, Украина*  
E-mail: lozenko@iop.kiev.ua

Статья поступила в редакцию 19 октября 2001 г.

Проанализированы экспериментальные данные измерений вынужденной магнитострикции (МС) легкоплоскостного двухподрешеточного слоистого антиферромагнетика  $\text{NiCl}_2$  в однородном и многодоменном состояниях при  $T = 4,2$  К. Показано, что в  $\text{NiCl}_2$  преобладающими являются межподрешеточные магнитоупругие взаимодействия. Вынужденная МС однодоменного состояния связана со скосом спинов подрешеток к направлению магнитного поля. Вынужденная МС многодоменного состояния связана с перестройкой доменной структуры и не зависит от малой внутрислоистой анизотропии. В обоих случаях величины вынужденной МС прямо пропорциональны квадрату напряженности внешнего магнитного поля.

Проаналізовано еспериментальні дані вимірювань вимушеної магнітострикції (МС) легкоплоскостного двохпідграткового шаруватого антиферромагнетика  $\text{NiCl}_2$  в однорідному і багатодоменному станах при  $T = 4,2$  К. Показано, що в  $\text{NiCl}_2$  переважними є міжпідграткові магнітопружні взаємодії. Вимушена МС однодоменного стану зв'язана зі скосом спінів підграток до напрямку магнітного поля. Вимушена МС багатодоменного стану зв'язана з перебудовою доменної структури і не залежить від малої внутрішньоплощинної анизотропії. В обох випадках величини вимушеної МС прямо пропорційні квадрату напруженності зовнішнього магнітного поля.

PACS: 75.50.Ee

Магнитострикция (МС) антиферромагнетиков (АФ) связана с процессами перестройки многодоменного состояния, изменения ориентации спинов подрешеток и изменения величин спинов при упорядочении и действии магнитного поля. В кристалле  $\text{NiCl}_2$  антиферромагнитное упорядочение реализуется при температурах меньших  $T_N = 49,6$  К [1]. В антиферромагнитном состоянии кристалл разбивается на домены — области с однородным вектором антиферромагнетизма в них и с различными его направлениями в разных доменах [2].  $\text{NiCl}_2$  относится к легкоплоскостным двухподрешеточным АФ со слоистой структурой и малым межподрешеточным антиферромагнитным (межслоевым) обменом [1]. При  $T = 4,2$  К поле схлопывания спинов подрешеток  $\text{NiCl}_2$  равно 129 кЭ [3].

В [4,5] были проведены исследования вынужденной МС АФ  $\text{CoCl}_2$ , свойства которого близки

$\text{NiCl}_2$ . Величина вынужденной МС  $\text{CoCl}_2$  в многодоменном состоянии прямо пропорциональна квадрату величины напряженности внешнего магнитного поля. Этот результат был проинтерпретирован с использованием магнитоупругого механизма многодоменности [4]. Вынужденная МС однородного состояния  $\text{CoCl}_2$  линейно зависит от квадрата величины напряженности поля [5], которая была описана в модели с магнитоупругими взаимодействиями, записанными с использованием направляющих косинусов спинов подрешеток.

Согласно данным наблюдений нейтронного рассеяния [6], в этих АФ в многодоменном состоянии спины в разных доменах преимущественно повернуты на  $120^\circ$ . Учитывая симметрию кристаллов, образование такой многодоменности можно связать с наличием в легкой плоскости двух наборов (по три в каждом) осей второго порядка.

Направления вдоль осей одного из этих наборов могут оказаться предпочтительными для спинов. Такое выделение направлений спинов в легкой плоскости связано с действием внутрислойной анизотропии. При описании МС многодоменного состояния CoCl<sub>2</sub> в [4] использовано приближение о непрерывном распределении доменов. Действие внутрислойной анизотропии в [4] не учитывалось. При изучении антиферромагнитного резонанса в [7] отмечалось, что внутрислойная анизотропия в CoCl<sub>2</sub> мала и при описании полевой зависимости низкочастотной ветви антиферромагнитного резонанса ее не рассматривали. Внутрислойная анизотропия в CoCl<sub>2</sub> из-за малости не была обнаружена экспериментально. Согласно данным нейтронного рассеяния [6] и предложенной в [8] структуре доменов, действие внутрислойной анизотропии исключать нельзя.

В этой работе приведены и проанализированы наблюдения вынужденной МС NiCl<sub>2</sub> в многодоменном и однородном состояниях, полученные во внешних магнитных полях до 60 кЭ при  $T = 4,2$  К. При анализе МС многодоменного состояния рассмотрено действие малой внутрислойной анизотропии, которая, воздействуя на распределение доменов, не оказывает влияния на среднюю величину МС, оставляя ее независимой от направления магнитного поля в легкой плоскости.

### Экспериментальные зависимости магнитострикции от величины магнитного поля

Чтобы исключить влияние остаточной стрикции [9], будем анализировать данные измерений вынужденной МС NiCl<sub>2</sub> при первом вводе магнитного поля  $H$ . На рис. 1 приведены относительные

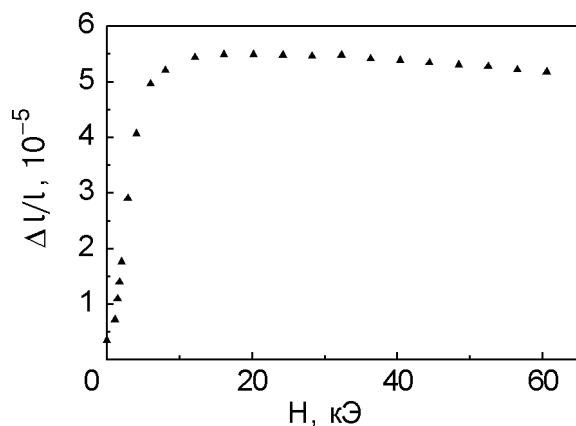


Рис. 1. Полевая зависимость относительного удлинения кристалла NiCl<sub>2</sub>, измеренная при  $T = 4,2$  К вдоль магнитного поля, ориентированного в легкой плоскости.

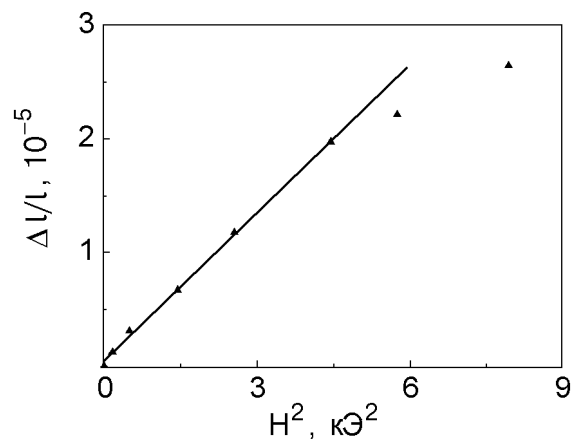


Рис. 2. Вынужденная МС многодоменного состояния NiCl<sub>2</sub> от квадрата напряженности магнитного поля  $H^2$ .

удлинения размеров кристалла  $\Delta l/l$ , определенные вдоль  $H$ . Магнитное поле ориентировано в легкой плоскости. В полях до 10 кЭ реализуется МС многодоменного состояния, а в больших полях — МС однородного состояния.

На рис. 2 приведена зависимость МС многодоменного состояния NiCl<sub>2</sub> от квадрата величины напряженности внешнего магнитного поля  $H^2$ . В многодоменном состоянии МС прямо пропорциональна  $H^2$ . Эту зависимость, как и в случае кристалла CoCl<sub>2</sub> [4], можно представить в виде

$$\varepsilon = \varepsilon_s \frac{H^2}{H_d^2}, \quad (1)$$

где  $H_d^2$  — параметр, величина которого равна  $H_d^2 \approx 13$  кЭ<sup>2</sup>. Зависимость (1) на рис. 2 обозначена сплошной линией.

Зависимость МС NiCl<sub>2</sub> от  $H^2$  в однородном состоянии приведена на рис. 3. Магнитострикция од-

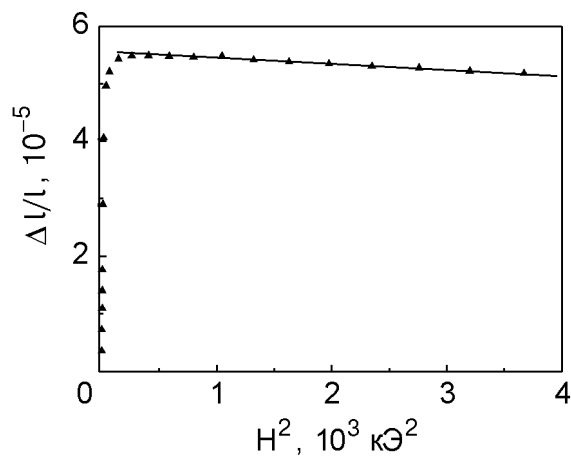


Рис. 3. Вынужденная МС кристалла NiCl<sub>2</sub> от квадрата напряженности магнитного поля  $H^2$  в однодоменном состоянии.

нородного состояния описывается выражением

$$\varepsilon = \varepsilon_s [1 - \xi(H/H_{ff})^2], \quad (2)$$

где  $\xi$  — экспериментально определенный параметр, величина которого равна  $\approx 0,3$ ,  $H_{ff}$  — поле схлопывания спинов подрешеток. Зависимость (2) на рис. 3 обозначена сплошной линией. Параметр  $\varepsilon_s$  в (1) и (2) равен спонтанной анизотропной МС однородного состояния при  $H = 0$ , которая определяется при экстраполяции зависимости  $\varepsilon(H^2)$  однородного состояния в  $H \rightarrow 0$ .

### Вынужденная стрикция однодоменного состояния

При описании вынужденной МС однородного состояния магнитоупругий вклад в энергию зададим с помощью направляющих косинусов спинов подрешеток [5]. Ограничимся рассмотрением плоской задачи. Равновесную стрикцию определим, минимизируя сумму магнитоупругого и упругого вкладов в энергию:

$$E = \sum_{\alpha\beta} \gamma_{\alpha\beta} (n_{\alpha x} n_{\beta x} - n_{\alpha y} n_{\beta y}) (U_{xx} - U_{yy}) + \sum_{\alpha\beta} \lambda_{\alpha\beta} (n_{\alpha x} n_{\beta y} + n_{\beta x} n_{\alpha y}) U_{xy} + \sum_{\alpha\beta} \delta_{\alpha\beta} (n_{\alpha x}^2 + n_{\alpha y}^2) (U_{xx} + U_{yy}) + \frac{1}{2} C_{11} (U_{xx}^2 + U_{yy}^2) + C_{12} U_{xx} U_{yy} + (C_{11} - C_{12}) U_{xy}^2, \quad (3)$$

где  $\alpha, \beta = 1, 2$  — номера подрешеток,  $\alpha \geq \beta$ ;  $\gamma, \lambda, \delta$  — параметры магнитоупругих взаимодействий;  $n_{\alpha x}, n_{\alpha y}$  и  $n_{\beta x}, n_{\beta y}$  — направляющие косинусы векторов спинов подрешеток  $\mathbf{s}_1$  и  $\mathbf{s}_2$ . Оси  $x$  и  $y$  ориентированы в легкой плоскости. Первое и второе слагаемые в (3) описывают анизотропные магнитоупругие взаимодействия, а третье слагаемое — изотропное взаимодействие в слое. При  $\alpha = \beta$  параметры  $\gamma, \lambda, \delta$  задают внутрисловую магнитоупругость. Когда  $\alpha \neq \beta$ , речь идет о межслоевой (межподрешеточной) магнитоупругости. В (3) малая внутрислоевая анизотропия не рассматривается.

В однодоменном состоянии  $\mathbf{L} \perp \mathbf{H}$ , а спины подрешеток симметричны относительно направления магнитного поля. Векторы спинов  $\mathbf{s}_1$  и  $\mathbf{s}_2$  составляют с  $\mathbf{H}$  угол  $\varphi$ , величина которого задается равенством  $\cos \varphi = H/H_{ff}$  [10]. Из (3) полу-

чим выражение для деформации  $U_{yy}$ , когда  $\mathbf{H}$  ориентировано вдоль оси  $y$  либо оси  $x$ :

$$U_{yy}(\mathbf{H} \parallel y, x) = A_0 \mp A_{12} + (A_p \pm A_{11}) \left[ 1 - 2 \left( \frac{H}{H_{ff}} \right)^2 \right], \quad (4)$$

где приняты обозначения

$$A_0 = -\frac{2\delta_{11}}{C_{11} + C_{12}}, \quad A_p = \frac{\delta_{12}}{C_{11} + C_{12}}, \quad (5)$$

$$A_{12} = \frac{\gamma_{12}}{C_{11} - C_{12}}, \quad A_{11} = \frac{2\gamma_{11}}{C_{11} - C_{12}}.$$

В (4) верхний знак отвечает ориентации  $\mathbf{H}$  вдоль оси  $y$ , нижний — вдоль  $x$ . Слагаемые, включающие  $A_{12}$  и  $A_{11}$ , описывают анизотропную стрикцию, зависящую от направления  $\mathbf{H}$ . Она изменяет знак при изменении направления поля от оси  $x$  к  $y$ . Вклад в спонтанную стрикцию от  $A_p$  и  $A_0$  изотропен. Из сравнения (4) с экспериментальными зависимостями МС при вводе  $\mathbf{H}$  вдоль  $x$ , а потом вдоль  $y$  [9], следует, что в  $\text{NiCl}_2$  вкладом в МС от слагаемых, содержащих  $A_p$  и  $A_0$ , можно пренебречь. В этом случае выражение для стрикции однородного состояния можно записать в виде

$$U_{yy} = \mp (A_{12} - A_{11}) \left[ 1 + \frac{2A_{11}}{A_{12} - A_{11}} \left( \frac{H}{H_{ff}} \right)^2 \right]. \quad (6)$$

Сравнивая (6) с (2) получаем, что  $\varepsilon_s = A_{12} - A_{11}$ , а  $\xi = 2A_{11}/(A_{12} - A_{11})$ . Модуль  $|A_{11}|$  меньше  $A_{12}$ , так что  $|A_{11}| \approx 0,13A_{12}$ , причем  $A_{12} > 0$ , а  $A_{11} < 0$ . В  $\text{NiCl}_2$  основной вклад в вынужденную МС дает межподрешеточная магнитоупругость, тогда как в  $\text{CoCl}_2$  [5] основной является внутрислоевая магнитоупругость.

### Вынужденная стрикция многодоменного состояния

Описание вынужденной МС многодоменного состояния АФ проведем в соответствии с разработанным в [11] принципом минимальности свободной энергии кристалла, когда равновесная многодоменность должна отвечать минимуму свободной энергии. Как и в [4], будем считать, что распределение доменов непрерывно. Определим выражение для свободной энергии многодоменного состояния, которое представим в виде суммы вкладов от реакции спиновой системы на ввод поля с

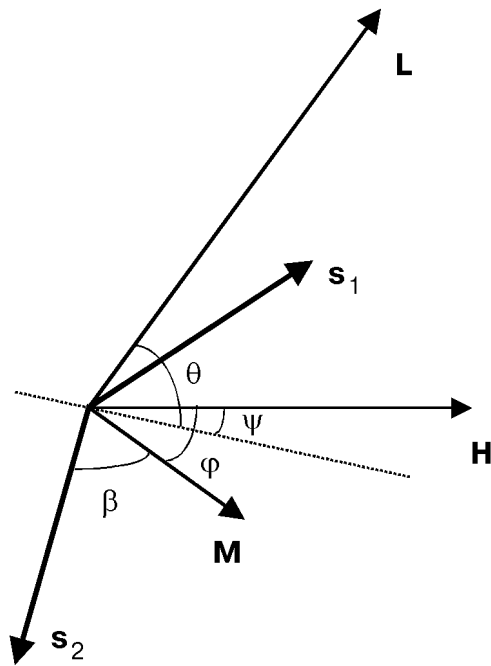


Рис. 4. Ориентации спинов подрешеток  $\mathbf{s}_1$  и  $\mathbf{s}_2$ , векторов намагниченности  $\mathbf{M}$  и антиферромагнетизма  $\mathbf{L}$  относительно магнитного поля  $\mathbf{H}$ .

учетом внутрислопостной анизотропии и слагаемого, характеризующего вклад в свободную энергию за счет источника многодоменности.

Спиновую энергию домена в расчете на одну элементарную ячейку запишем в виде суммы межподрешеточного обмена, внутрислопостной анизотропии и зеемановского слагаемого

$$e = zI_{12}\mathbf{s}_1\mathbf{s}_2 + AL^6 \cos 6\theta - \mathbf{H}(\mathbf{s}_1 + \mathbf{s}_2), \quad (8)$$

где  $\mathbf{s}_1$  и  $\mathbf{s}_2$  — спины подрешеток,  $z$  — число ближайших соседей,  $I_{12}$  — константа межподрешеточного обмена,  $L$  — модуль вектора антиферромагнетизма  $\mathbf{L} = \mathbf{s}_1 - \mathbf{s}_2$ ,  $A$  — константа анизотропии,  $\theta$  — угол между  $\mathbf{L}$  и кристаллографической осью, которую на рис. 4 обозначим пунктирной линией. Угол  $\theta$  запишем в виде  $\theta = \pi/2 + \psi - \phi$ , где  $\psi$  — угол между  $\mathbf{H}$  и осью анизотропии, а  $\phi$  — угол между  $\mathbf{H}$  и вектором намагниченности  $\mathbf{M} = \mathbf{s}_1 + \mathbf{s}_2$ . Считая, что модули векторов  $\mathbf{s}_1$  и  $\mathbf{s}_2$  одинаковы ( $s = |\mathbf{s}_1| = |\mathbf{s}_2|$ ), углы между  $\mathbf{s}_1$  и  $\mathbf{M}$ ,  $\mathbf{s}_2$  и  $\mathbf{M}$  равны  $\beta$ , а вектор  $\mathbf{M}$  перпендикулярен  $\mathbf{L}$ , энергию (8) запишем в виде

$$e = zI_{12}s^2(2 \cos^2 \beta - 1) - AL^6 \cos 6(\phi - \psi) - 2Hs \cos \beta \cos \phi. \quad (9)$$

Минимизируя (9) по  $\beta$ , определяем энергию домена с ориентацией  $\phi$

$$e = -\frac{H^2 \cos^2 \phi}{2zI_{12}} - AL^6 \cos 6(\phi - \psi). \quad (10)$$

С учетом (10) спиновую энергию многодоменного состояния АФ запишем в виде суммы

$$E = -\frac{V}{V_0} \sum_i P_i \left[ \frac{H^2 \cos^2 \phi_i}{2zI_{12}} + AL^6 \cos 6(\phi_i - \psi) \right], \quad (11)$$

где  $V$ ,  $V_0$  — объем кристалла и объем элементарной ячейки. В (11) суммирование проводится по доменам с разными углами ориентации  $\phi_i$ , вероятность которых обозначена  $P_i$ , причем  $P_i = V_i/V$ , где  $V_i$  — объем таких доменов. Спиновую энергию (11) можно записать в виде интеграла по  $\phi$

$$E = -\frac{1}{\pi} \frac{V}{V_0} \int_{-\pi/2}^{\pi/2} \left\{ p(\phi) \left[ \frac{H^2 \cos^2 \phi}{2zI_{12}} + AL^6 \cos 6(\phi - \psi) \right] \right\} d\phi, \quad (12)$$

где  $p(\phi)$  — плотность распределения доменов.

Выражение для свободной энергии запишем в виде суммы спиновой энергии  $E$  и вклада от источника многодоменности [4]:

$$F = \frac{1}{\pi} \frac{V}{V_0} \int_{-\pi/2}^{\pi/2} \left[ -p(\phi) \left( \frac{H^2 \cos^2 \phi}{2zI_{12}} + AL^6 \cos 6(\phi - \psi) \right) + f(p(\phi)) \right] d\phi, \quad (13)$$

где  $f$  задает в общем виде вклад в свободную энергию от источника многодоменности.

При  $H = 0$  и отсутствии анизотропии домены распределены равномерно [4]. В малых полях введем малое отклонение  $\Delta p(\phi)$  от равномерного распределения доменов  $p(\phi) = 1 + \Delta p(\phi)$ . Для такого отклонения (13) примет вид

$$F = \frac{1}{\pi} \frac{V}{V_0} \int_{-\pi/2}^{\pi/2} \left\{ -\Delta p(\phi) \left[ \frac{H^2 \cos^2 \phi}{2zI_{12}} + AL^6 \cos 6(\phi - \psi) \right] + \frac{1}{2} \eta(\Delta p(\phi))^2 \right\} d\phi, \quad (14)$$

где  $\eta$  — положительный параметр, равный второй производной  $\eta = d^2f/dp^2$ , определенной при  $p = 1$ . Учет в (13), (14) анизотропии не является необходимым условием образования многодоменности. Она рассматривается как дополнительное условие, при котором происходит перестройка многодоменного состояния. Минимизируя  $F$ , определяем выражение для плотности распределения доменов при  $H \neq 0$

$$p(\varphi) = 1 + \frac{H^2}{2zI_{12}\eta} \left( \cos^2 \varphi - \frac{1}{2} \right) + \frac{AL^6}{\eta} \left( \cos 6(\varphi - \psi) + \frac{\sin 6\psi}{3\pi} \right). \quad (15)$$

Внутриплоскостная анизотропия и внешнее магнитное поле приводят к анизотропии распределения доменов. При  $H = 0$  плотность вероятности имеет вид

$$p(\varphi) = 1 + \frac{AL^6}{\eta} \cos 6\varphi. \quad (16)$$

Такая анизотропия в распределении доменов при  $H = 0$  согласуется с данными нейтронографических наблюдений [6].

Перестройка доменной структуры происходит в полях, когда вкладом в стрикцию домена от скоса спинов к полю можно пренебречь. В этом случае относительное вдоль  $\mathbf{H}$  удлинение  $\varepsilon$  домена с  $\mathbf{L}$  не перпендикулярным  $\mathbf{H}$ , определенное в многодоменном состоянии, равно

$$\varepsilon = \varepsilon_s (\cos^2 \varphi - \sin^2 \varphi) = \varepsilon_s \cos 2\varphi. \quad (17)$$

Усреднив (17), определим среднюю МС многодоменного состояния

$$\bar{\varepsilon} = \frac{1}{\pi} \int_{-\pi/2}^{\pi/2} \varepsilon_s \cos 2\varphi p(\varphi) d\varphi. \quad (18)$$

Подставляя в (18) выражение для плотности вероятности (15), получаем выражение для средней МС кристалла вдоль поля  $\mathbf{H}$  в зависимости от его величины

$$\bar{\varepsilon} = \varepsilon_s \frac{H^2}{8zI_{12}\eta}. \quad (19)$$

При перестройке многодоменного состояния МС прямо пропорциональна квадрату величины приложенного поля, что согласуется с экспериментальными данными, приведенными на рис. 2. Величина МС (19) не зависит от величины угла  $\psi$ , то есть от ориентации поля в легкой плоскости, и от величины внутрислоскостной анизотропии.

### Заключение

Экспериментальные зависимости (1) и (2) вынужденной МС от величины магнитного поля кристалла  $\text{NiCl}_2$  подобны таким зависимостям для кристалла  $\text{CoCl}_2$  [4,5]. В однородной области вынужденная МС обоих кристаллов определяется ориентацией спинов подрешеток. Сходство МС кристаллов  $\text{NiCl}_2$  и  $\text{CoCl}_2$  при перестройке многодоменного состояния указывает на общую природу многодоменности этих кристаллов.

Из-за внутрислоскостной анизотропии распределение доменов в многодоменном состоянии анизотропно. Это соответствует данным нейтронографических наблюдений для ориентаций доменов. Вынужденная МС многодоменного состояния (19) не зависит от ориентации поля в легкой плоскости.

Авторы выражают благодарность профессору С. М. Рябченко за высказанные замечания при обсуждении работы.

Работа выполнена при поддержке Государственного фонда фундаментальных исследований Министерства образования и науки Украины, грант 02.07/014.

1. P. A. Lingard, R. J. Birgenau, J. Als-Nielsen, and H. J. Guggenheim, *J. Phys.* **C8**, 1059 (1975).
2. М. М. Фарзтдинов, *УФН* **84**, 611 (1964).
3. J. Gunzbourg, S. Papassimacopoulos, A. Miedengros, and A. Allain, *J. Phys.* **32**, 125 (1971).
4. В. М. Калита, А. Ф. Лозенко, *ФНТ* **27**, 872 (2001).
5. В. М. Калита, А. Ф. Лозенко, С. М. Рябченко, *ФНТ* **26**, 671 (2000).
6. M. K. Wilkinson, J. W. Cable, E. O. Wollan, and W. C. Koehler, *Phys. Rev.* **113**, 497 (1959).
7. А. Ф. Лозенко, П. Е. Пархомчук, С. М. Рябченко, П. А. Троценко, *ФНТ* **14**, 941 (1988).
8. В. М. Калита, А. Ф. Лозенко, *ФНТ* **27**, 489 (2001).
9. В. М. Калита, А. Ф. Лозенко, С. М. Рябченко, П. А. Троценко, *УФЖ* **43**, 1469 (1998).
10. Л. Неель, *Известия АН СССР, Сер. физ.* **21**, 890 (1957).
11. В. Г. Барьяхтар, А. Н. Богданов, Д. А. Яблонский, *УФН* **156**, 47 (1988).

**Magnetostriction of homogeneous and polydomain states of the NiCl<sub>2</sub> antiferromagnet**

V. M. Kalita, A. F. Lozenko, and P. A. Trotsenko

The experimental data on forced magnetostriction (MS) of the easy-plane two-sublattice lamellar antiferromagnet NiCl<sub>2</sub> in homogeneous and polydomain states at  $T = 4.2$  K are analysed. It is shown that for NiCl<sub>2</sub>, the inter-

sublattice magnetoelastic interactions are dominant. The forced MS of the single-domain state results from the spins skew of the sublattices to the magnetic field direction. The forced MS of the polydomain state is responsible for the transformation of the domain structure and it does not depend on small intraplane anisotropy. In both cases the values of forced MS are quadratic in external magnetic field.