

К теории формирования равновесной доменной структуры в антиферромагнетиках

Е.В. Гомонай

*Национальный технический университет Украины «КПИ»
пр. Перемоги, 37, г. Киев, 03056, Украина
E-mail: malyshen@ukrpack.net*

В.М. Локтев

*Институт теоретической физики им. Н.Н. Боголюбова НАН Украины
ул. Метрологическая, 14-б, г. Киев, 03143, Украина
E-mail: vloktev@bitp.kiev.ua*

Статья поступила в редакцию 12 февраля 2004 г.

Предложена модель, описывающая формирование и обратимую перестройку равновесной доменной структуры в массивных антиферромагнетиках с достаточно сильным магнитоупругим взаимодействием. Модель основана на предположении о существовании микроскопического параметра порядка тензорной природы — тензора микронапряжений, возникающего в процессе формирования магнитного момента вследствие магнитоупругих взаимодействий. Учет такого параметра необходим для адекватного описания как макроскопических внутренних напряжений и соответствующих им спонтанных деформаций, так и микроструктуры кристалла (например, доменной структуры). Возникающие локально в каждой элементарной ячейке микронапряжения, с формальной точки зрения, эквивалентны упругим диполям и создают дальнедействующие поля, вклад которых в свободную энергию кристалла аналогичен вкладу магнитостатической энергии в ферромагнетиках и благоприятствует уменьшению макроскопической деформации образца за счет формирования равновесной доменной структуры. Соответствующий вклад назван нами «энергией раздеформирования». Показано, что учет этой энергии в антиферромагнитных кристаллах позволяет не только объяснить причины формирования доменной структуры, но и проследить ее зависимость от формы кристалла и внешних полей.

Запропоновано модель, яка описує формування та зворотню перебудову рівноважної доменної структури в масивних антиферромагнетиках з достатньо сильною магнітопружною взаємодією. Модель засновано на припущенні про існування мікроскопічного параметра порядку тензорної природи — тензора мікронапруг, який виникає в процесі формування магнітного моменту внаслідок магнітопружних взаємодій. Урахування такого параметра необхідно для адекватного опису як макроскопічних внутрішніх напруг та відповідних їм спонтанних деформацій, так і микроструктури кристала (наприклад, доменної структури). Мікронапруги, які виникають локально у кожній елементарній комірці, з формальної точки зору, еквівалентні пружним диполям та створюють далекосяжні поля, внесок яких у вільну енергію кристала аналогічний до внеску магнітостатичної енергії в ферромагнетиках та сприяє зменшенню макроскопічної деформації зразка за рахунок формування рівноважної доменної структури. Відповідний внесок названо нами «енергією роздеформування». Показано, що врахування цієї енергії в антиферромагнітних кристалах дозволяє не тільки пояснити причини формування доменної структури, але й простежити її залежність від форми кристала та зовнішніх полів.

PACS: 75.50.Ee, 75.60.Ch

1. Введение

Возможность формирования и обратимой перестройки доменной структуры в антиферромагнитных кристаллах была предсказана Неелем [1] более полувека назад. В пользу ее возникновения говорит эксперимент, тем не менее причины, приводящие к формированию доменной структуры при фазовых переходах в кристаллах, не обладающих макроскопическим магнитным моментом, но характеризующихся заметными спонтанными деформациями, до сих пор не выяснены.

Как правило, причиной неоднородного распределения векторов антиферромагнетизма и сопутствующих спонтанных деформаций решетки считают либо исходную неоднородность образца (технологические дефекты), либо существование граничных условий определенного типа (например, жесткая связь между образцом и немагнитной подложкой), либо, наконец, энтропийный фактор. К сожалению, модели, основанные на этих допущениях, не позволяют объяснить ряд экспериментальных фактов (см., например, [2–7]), связанных с обратимой перестройкой доменной структуры в антиферромагнитных кристаллах при наличии внешних воздействий (например, магнитного поля либо механических напряжений). Кроме того, при описании самого фазового перехода спонтанные деформации, сопровождающие переход, рассматриваются точно так же, как и макроскопические деформации, возникающие при наложении на образец внешних нагрузок, без анализа микроскопических причин их появления.

Авторами [8–10] были сделаны попытки объяснить причины формирования доменной структуры в антиферромагнетиках их внутренними свойствами и, в частности, наличием анизотропной поверхностной энергии [8], на важность учета которой впервые было указано в работе [11], а также несовместностью спонтанных деформаций на поверхности образца и в его объеме [9,10]. Однако такой подход применим лишь при достаточно сильных ограничениях на свойства поверхности (так, ее свойства должны существенно отличаться от свойств объема) и, кроме того, не проясняет микроскопической природы явления.

В работах [12,13], касающихся формирования доменной структуры в ферромагнетиках с достаточно сильным (по сравнению с энергией магнитной анизотропии) магнитоупругим взаимодействием, впервые

была высказана идея о том, что при переходах такого рода возникают внутренние напряжения, аналогичные напряжениям, производимым дефектами (например, дислокациями либо включениями), однако ничего не говорилось о микроскопической природе этих напряжений. И хотя на сегодняшний день микроскопический характер спонтанных деформаций, обусловленных магнитоупругостью, не вызывает сомнений, фактически остается открытым вопрос о влиянии вызывающих эти деформации внутренних напряжений на термоупругие* фазовые переходы в антиферромагнетиках и других веществах и формировании в них макроскопической (в частности, доменной) структуры.

Рассмотрим в общих чертах процесс возникновения магнитного порядка в так называемом гейзенберговском магнетике. Согласно установившимся представлениям, при критической температуре в каждом узле решетки, т.е. *локально*, спонтанно формируются магнитные моменты, взаимное направление которых согласовано в результате обменного взаимодействия. Совершенно очевидно, что при наличии магнитоупругой связи (включающей взаимодействия спин-орбитальной природы) возникновение спиновых моментов должно приводить к изменению величины потенциала взаимодействия между атомом, на котором, собственно, и возник спиновый момент, и его ближайшими соседями, т.е. к возникновению таких же *локальных* напряжений, которые можно охарактеризовать некоторым параметром $\hat{\sigma}^{\text{mag}}$ тензорной природы. В простейшем случае (при учете только парных взаимодействий) это тензор второго ранга, симметрия которого должна соответствовать локальной симметрии кристаллической решетки, пониженной благодаря возникновению спинового упорядочения. Таким образом, наряду с «основным» микроскопическим параметром порядка, каковым в данном случае является (и считается) вектор антиферромагнетизма, относящийся к данной элементарной ячейке, можно ввести «дополнительный», но вполне равноправный, микроскопический параметр порядка, характеризующий локальные напряжения (сосредоточенные силы) и соответствующий, по терминологии Клемана [12,13], квазидефектам.

Следует подчеркнуть, что введенные здесь локальные микронапряжения и рассматриваемые в теории упругости глобальные макронапряжения, характеризующие состояние кристалла в целом, — совершенно разные физические величины. Их связывает лишь то,

* Термоупругими называют такие переходы, при которых вызванные переходом внутренние напряжения настолько малы, что могут рассматриваться как упругие, т.е. не приводят к макроскопическим пластическим деформациям кристалла. Как правило, эти условия реализуются при фазовых переходах в магнетиках (ферромагнетиках, антиферромагнетиках) и во многих случаях — при мартенситных фазовых переходах, например, в кристаллах In–Tl, Co–Pt и т.п.

что обе эти величины характеризуют изменение упругого состояния кристалла при фазовом переходе. В то же время микронапряжения и создаваемые ими микродоформации можно рассматривать, скорее, как некоторые «степени свободы» кристалла, принимающие участие в магнитных фазовых переходах и влияющие на магнитокристаллические структуры, которые в результате образуются. Учет этих степеней свободы оправдан там, где он приводит к нетривиальным результатам, в частности, при описании фазовых переходов в ферро- и антиферромагнитных кристаллах с вырожденным направлением оси легкого намагничивания.

В данной работе предлагается модель, которая дает возможность последовательно описать возникновение и обратимую перестройку равновесной доменной структуры в массивных антиферромагнетиках с достаточно сильным магнитоупругим взаимодействием исходя из представлений об упомянутых выше микронапряжениях, а также опираясь на формализм описания полей упругих диполей, хорошо известный в теории упругости [14].

Структура работы такова. В разд. 2 с позиции теории сплошных сред проанализировано взаимодействие двух существенно удаленных (по сравнению с их собственными размерами) областей, в которых спонтанно возник антиферромагнитный порядок, и показано, что при определенных условиях энергетически выгодным может оказаться состояние с различной (неколлинеарной) ориентацией векторов антиферромагнетизма в каждой из областей. В разд. 3 рассмотрен микроскопический механизм, основанный на предположении о возникновении внутренних микронапряжений, которые обусловлены магнитоупругими взаимодействиями, и получено общее выражение, описывающее вклад далекодействующих упругих полей в свободную энергию кристалла — так называемая энергия раздеформирования. В разд. 4 рассмотрены примеры расчета энергии раздеформирования для образцов в форме тонкой пластины с различной кристаллографической симметрией. В разд. 5 развитая модель применена для анализа процесса формирования и перестройки доменной структуры в антиферромагнитных кристаллах разного типа. И, наконец, в заключительном разделе сформулированы основные результаты работы и выводы.

2. Внутренние напряжения и взаимодействие двух «магнитоупругих диполей»

Рассмотрим фазовый переход в антиферромагнитное состояние с учетом магнитоупругих взаимодействий в кристалле. Предположим, что в однородном кристалле, находящемся в парамагнитном состоянии

при температуре $T \geq T_N$, вследствие флуктуаций в области физически малого объема ΔV с центром в точке \mathbf{r}_0 установился порядок, характеризуемый так называемым вектором антиферромагнетизма $\mathbf{L}(\mathbf{r}) = \mathbf{L}_0 \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0)$, где в пределе $\Delta V \rightarrow 0$ функция формы $\delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0)$ является функцией Дирака.

Наличие магнитоупругой связи приводит, как известно, к изменению потенциала межатомного взаимодействия в области ΔV , что в свою очередь создает локальные внутренние напряжения, которые можно описать с помощью зависящего от координаты \mathbf{r} тензора $\hat{\sigma}^{\text{mag}}(\mathbf{r})$, связанного с магнитным параметром порядка соотношениями

$$\hat{\sigma}^{\text{mag}}(\mathbf{r}) = \hat{\Lambda} \mathbf{L}_0 \otimes \mathbf{L}_0 \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0) \rightarrow \rightarrow \sigma_{jk}^{\text{mag}}(\mathbf{r}) = \Lambda_{jklm} \mathbf{L}_{0l} \mathbf{L}_{0m} \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0), \quad (1)$$

где тензор 4-го ранга $\hat{\Lambda}$ характеризует магнитоупругие взаимодействия и отражает магнитокристаллическую симметрию решетки. В (1) и ниже, как всегда, предполагается суммирование по повторяющимся индексам.

Согласно теории упругости [14,15], на расстояниях, существенно превышающих линейные размеры области ΔV , внутренние напряжения (1), сосредоточенные в точке \mathbf{r}_0 , создают поле смещений

$$u_j(\mathbf{r}) = \frac{\partial}{\partial r_k} \int_{\Delta V} G_{jl}(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \sigma_{kl}^{\text{mag}}(\mathbf{r}') d\mathbf{r}' = = \Lambda_{klmn} L_m L_n \frac{\partial}{\partial r_k} G_{jl}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0), \quad (2)$$

причем функция Грина $G_{jk}(\mathbf{r})$ бесконечной упругой среды удовлетворяет уравнению

$$\frac{\partial}{\partial r_k} c_{jklm} \frac{\partial}{\partial r_l} G_{nm}(\mathbf{r}) + \delta_{jn} \delta(\mathbf{r}) = 0, \quad (3)$$

в котором c_{jklm} — тензор модулей упругости.

В полной аналогии с ферромагнетиками можно сказать, что тензор $\hat{\sigma}^{\text{mag}}(\mathbf{r})$ характеризует «дипольный» момент среды, а вектор смещений $\mathbf{u}(\mathbf{r})$ — потенциал упругого поля, создаваемого этим диполем на достаточно больших расстояниях.

Предположим теперь, что антиферромагнитное упорядочение возникло в двух областях ΔV_1 и ΔV_2 , определяющих соответственно окрестности точек \mathbf{r}_1 и \mathbf{r}_2 , расстояние между которыми также намного превосходит размеры самих областей спонтанного упорядочения. Индуцированные магнитоупругим переходом поля упругих напряжений (1) и поля смещений (2) в деформированных областях взаимодействуют друг с другом. Соответствующий вклад Φ_{dd} в термодинами-

ческий потенциал Гиббса может быть вычислен как энергия взаимодействия двух упругих диполей [14,15]:

$$\Phi_{dd} = \frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial r_{1j} \partial r_{1k}} G_{ml}(\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2) \sigma_{jl}^{\text{mag}}(\mathbf{r}_1) \sigma_{km}^{\text{mag}}(\mathbf{r}_2). \quad (4)$$

Заметим, что независимо от направлений векторов антиферромагнетизма в точках \mathbf{r}_1 и \mathbf{r}_2 след обоих тензоров $\hat{\sigma}^{\text{mag}}(\mathbf{r}_1)$ и $\hat{\sigma}^{\text{mag}}(\mathbf{r}_2)$, определяющий спонтанную дилатацию (объемное расширение), одинаков:

$$\text{Tr } \hat{\sigma}^{\text{mag}}(\mathbf{r}_1) = \text{Tr } \hat{\sigma}^{\text{mag}}(\mathbf{r}_2) = \text{Tr } \hat{\sigma}^{\text{mag}}.$$

Нетривиальный вклад в энергию взаимодействия, зависящий от взаимной ориентации упругих диполей и, следовательно, локальных направлений векторов антиферромагнетизма, определяется сдвиговой (девиаторной) частью тензора напряжений, которую мы обозначим как

$$\hat{\sigma}^{(\alpha)} \equiv \hat{\sigma}^{\text{mag}}(\mathbf{r}_\alpha) - \frac{\hat{\mathbf{1}}}{3} \text{Tr } \hat{\sigma}^{\text{mag}}, \quad \alpha = 1, 2,$$

где $\hat{\mathbf{1}}$ — единичная матрица. Подставляя в выражение (4) функцию Грина для изотропной среды [14]

$$G_{jk}(\mathbf{r}) = \frac{1}{16\pi\mu(1-\nu)r} \left[(3-4\nu)\delta_{jk} + \frac{r_j r_k}{r^2} \right] \quad (5)$$

(где $\mu \equiv c_{44}$ и ν — модуль сдвига и коэффициент Пуассона соответственно) и полагая без ограничения общности $\mathbf{r}_1 = \mathbf{r}$, $\mathbf{r}_2 = 0$ и $\mathbf{e} = \mathbf{r}/r$, получаем, что

$$\begin{aligned} \Phi_{dd} = & -\frac{1}{16\pi\mu(1-\nu)r^3} [(1-2\nu)\text{Tr}(\hat{\sigma}^{(1)}\hat{\sigma}^{(2)}) + \\ & + 6\nu(\mathbf{e}\hat{\sigma}^{(1)}, \hat{\sigma}^{(2)}\mathbf{e}) - \frac{15}{2}(\mathbf{e}\hat{\sigma}^{(1)}\mathbf{e})(\mathbf{e}\hat{\sigma}^{(2)}\mathbf{e}) + \\ & + \text{Tr } \hat{\sigma}^{\text{mag}}(\mathbf{e}(\hat{\sigma}^{(1)} + \hat{\sigma}^{(2)})\mathbf{e})]. \quad (6) \end{aligned}$$

В случае среды, изотропной как в упругом, так и в магнитоупругом отношении (здесь и далее для симметричных тензоров 4-го ранга приняты обозначения Фойхта) ($\Lambda_{11} - \Lambda_{12} = 2\Lambda_{44}$),

$$\text{Tr } \hat{\sigma}^{\text{mag}} = (\Lambda_{11} + 2\Lambda_{12})\mathbf{L}^2$$

и сдвиговая часть тензора напряжений выражается через компоненты вектора антиферромагнетизма предельно просто:

$$\begin{aligned} \hat{\sigma}^{(\alpha)} &= 2\Lambda_{44}[\mathbf{L}^{(\alpha)} \otimes \mathbf{L}^{(\alpha)} - \frac{\hat{\mathbf{1}}}{3}\mathbf{L}^2] \rightarrow \\ \rightarrow \sigma_{jk}^{(\alpha)} &= 2\Lambda_{44}[L_j^{(\alpha)}L_k^{(\alpha)} - \frac{\delta_{jk}}{3}\mathbf{L}^2]. \quad (7) \end{aligned}$$

Подставляя (7) в (6), находим, что энергия взаимодействия двух антиферромагнитно упорядоченных областей («антиферромагнитных диполей») состоит из трех вкладов:

$$\Phi_{dd} = \Phi_{\text{is}} + \Phi_{\text{an}} + \Phi_{\text{afm}}. \quad (8)$$

Первое слагаемое в (8) описывает энергию, не зависящую от ориентации магнитных моментов, а потому не играет никакой роли при установлении равновесного направления векторов антиферромагнетизма:

$$\Phi_{\text{is}} = \frac{\Lambda_{44}\mathbf{L}^4}{12\pi\mu(1-\nu)r^3} [\Lambda_{44}(1-4\nu) + \Lambda_{11} + 2\Lambda_{12}]. \quad (9)$$

Второе слагаемое в (8) определяется ориентацией каждого из векторов $\mathbf{L}^{(\alpha)}$ относительно вектора \mathbf{e} :

$$\begin{aligned} \Phi_{\text{an}} = & \frac{\Lambda_{44}^2}{8\pi\mu(1-\nu)r^3} \{15(\mathbf{L}^{(1)}, \mathbf{e})^2, (\mathbf{L}^{(2)}, \mathbf{e})^2 - \\ & - \mathbf{L}^2[5-4\nu + \frac{\Lambda_{11} + 2\Lambda_{12}}{\Lambda_{44}}][(\mathbf{L}^{(1)}, \mathbf{e})^2 + (\mathbf{L}^{(2)}, \mathbf{e})^2]\}. \quad (10) \end{aligned}$$

Этот вклад можно рассматривать как энергию анизотропии, влияющую на равновесное направление векторов антиферромагнетизма.

Наконец, последнее слагаемое содержит скалярные произведения векторов антиферромагнетизма на различных узлах и, таким образом, определяет их взаимную ориентацию, обусловленную косвенным взаимодействием через упругую подсистему:

$$\begin{aligned} \Phi_{\text{afm}} = & -\frac{\Lambda_{44}^2}{4\pi\mu(1-\nu)r^3} [(1-2\nu)(\mathbf{L}^{(1)}, \mathbf{L}^{(2)})^2 + \\ & + 6\nu(\mathbf{L}^{(1)}, \mathbf{L}^{(2)})(\mathbf{L}^{(1)}, \mathbf{e})(\mathbf{L}^{(2)}, \mathbf{e})]. \quad (11) \end{aligned}$$

Из выражений (9)–(11) видно, что «диполь-дипольная» энергия (8), как и должно быть, не меняется при изменении знака какого-либо из векторов $\mathbf{L}^{(\alpha)} \rightarrow -\mathbf{L}^{(\alpha)}$ и, следовательно, в отличие от ферромагнетиков не «различает» антифазные домены*. В

* Антифазными называют домены, в которых параметры порядка (в случае антиферромагнетиков — вектор антиферромагнетизма) переходят друг в друга благодаря трансляции (см., например, [16]). Формально они аналогичны коллинеарным доменам в ферромагнетиках, которые переходят друг в друга под действием операции обращения времени. Кроме того, и в ферро-, и в антиферромагнетиках могут существовать домены, переходящие друг в друга под действием пространственных поворотов, — это ориентационные домены. Экспериментально наблюдаются и те, и другие типы, однако в данной работе рассмотрены только ориентационные домены.

то же время при фазовых переходах, сопровождающихся понижением пространственной симметрии, вектор \mathbf{L} и, соответственно, тензор $\hat{\sigma}^{\text{mag}}$ могут иметь несколько равновесных ориентаций, отличающихся поворотом на 60° , 90° или 120° .

Предположим, например, что равновесные ориентации $\mathbf{L}^{(1)}$ и $\mathbf{L}^{(2)}$ могут отличаться на 90° (как в случае, например, антиферромагнитных диэлектриков KNiF_3 , KCoF_3 , K_2NiF_4 , а также слабодопированных высокотемпературных сверхпроводников Y-Ba-Cu-O , La-Sr-Cu-O). Анализ слагаемых выражения (8) показывает, что при определенных ориентациях вектора \mathbf{e} более низкой энергией взаимодействия будет обладать конфигурация с параллельным направлением векторов $\mathbf{L}^{(1)} \parallel \mathbf{L}^{(2)}$, а при других — конфигурация со взаимно перпендикулярным упорядочением, $\mathbf{L}^{(1)} \perp \mathbf{L}^{(2)}$.

Действительно, если вектор \mathbf{e} параллелен одному из «легких» направлений для вектора \mathbf{L} , т.е. $\mathbf{e} \parallel \mathbf{L}^{(1)}$, то разность энергий параллельного (\parallel) и перпендикулярного (\perp) упорядочений

$$\Phi_{dd}^{\parallel} - \Phi_{dd}^{\perp} = \frac{\Lambda_{44}^2 \mathbf{L}^4 (2 - \nu)}{2\pi\mu(1 - \nu)r^3} > 0, \quad (12)$$

и в результате более выгодным оказывается взаимно перпендикулярная ориентация магнитоупругих диполей. Это соответствует принципу Ле-Шателье: если возникновение антиферромагнитного порядка в области ΔV_1 приводит к удлинению решетки вдоль $\mathbf{L}^{(1)}$, то создаваемые в удаленной области ΔV_2 напряжения будут также растягивающими в этом же направлении и могут быть уменьшены за счет сжимающих напряжений в случае, если вектор $\mathbf{L}^{(2)}$ «повернется боком».

В другом предельном случае вектор \mathbf{e} направлен под одинаковым углом к обоим антиферромагнитным векторам ($\mathbf{e}, \mathbf{L}^{(1)} = \mathbf{e}, \mathbf{L}^{(2)}$), что соответствует «трудному» направлению \mathbf{L} . Тогда

$$\Phi_{dd}^{\parallel} - \Phi_{dd}^{\perp} = -\frac{\Lambda_{44}^2 \mathbf{L}^4 (1 + \nu)}{4\pi\mu(1 - \nu)r^3} < 0, \quad (13)$$

т.е. меньшей энергией обладает параллельная ориентация этих векторов в разных точках кристалла (что, вообще говоря, не исключает формирования антифазных доменов).

Таким образом, как и в случае ферромагнитных диполей, в магнитоупругих кристаллах с антиферромагнитным упорядочением существуют определенные направления, в которых энергетически выгодным является возникновение диполей разного типа, соответствующих эквивалентным, но неколлинеарным ориентациям спонтанно деформированных областей. Существенным отличием от ферромагнитных диполей

является выбор этой ориентации. Для диполей векторной природы (магнитных, электрических) наиболее существенные различия возникают в направлениях, параллельном и перпендикулярном оси диполя, а для упругих и, соответственно, антиферромагнитных диполей, которые характеризуются тензорами второго ранга, — вдоль «легких» и «трудных» осей антиферромагнитного вектора, угол между которыми может составлять, в частности, и 45° .

3. Энергия раздеформирования в антиферромагнетике

В предыдущем разделе взаимодействие двух магнитоупругих диполей было фактически сведено (в приближении сплошной среды) к взаимодействию двух пространственно удаленных включений деформированной антиферромагнитной фазы в парамагнитную матрицу. Такой подход применим, если температура парамагнитного состояния лишь незначительно превышает критическую. В данном разделе изучим вопрос о том, как можно обобщить использованный формализм на случай, когда вектор антиферромагнетизма и соответствующие ему напряжения возникают в каждой элементарной ячейке кристалла.

Начнем с простейшего примера плоской квадратной решетки, в которой магнитные ионы сорта А (\mathbf{r}_0) окружены немагнитными ближайшими соседями сорта В ($\mathbf{r}_n = \mathbf{r}_0 + \boldsymbol{\rho}_n$, $n = 1, 2, 3, 4$, см. рис. 1). Подобную структуру имеют, например, купратные слои высокотемпературных сверхпроводников, где парамагнитные ионы меди Cu^{2+} ($S = 1/2$) окружены немагнитными лигандами O^{2-} . Возникновение спинового момента, направленного вдоль оси Ox , на узле А

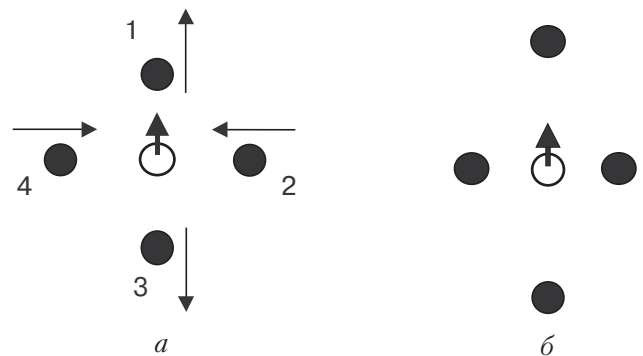


Рис. 1. Смещения атомов квадратной решетки под действием локальных напряжений, обусловленных возникновением спина на атоме сорта А (светлый кружок): недеформированное (а) и деформированное (б) состояния. Стрелки указывают направление смещений атомов сорта В (темные кружки) из исходного состояния в деформированное.

приводит к смещению атомов 1 и 3 вдоль той же оси ($u_x(\mathbf{r}_1) = -u_x(\mathbf{r}_3) = u_0$) и атомов 2 и 4 вдоль перпендикулярного направления ($u_y(\mathbf{r}_2) = -u_y(\mathbf{r}_4) = u_0$). Суммарное изменение конфигурации атомов сорта В, приводящее к сдвиговой деформации, может быть охарактеризовано величиной

$$\varepsilon(\mathbf{r}_0) = \frac{1}{4}[u_x(\mathbf{r}_1) - u_y(\mathbf{r}_2) - u_x(\mathbf{r}_3) + u_y(\mathbf{r}_4)], \quad (14)$$

которая преобразуется по тому же неприводимому представлению локальной группы симметрии*, что и линейная комбинация компонент тензора второго ранга $\varepsilon_{xx} - \varepsilon_{yy}$. В общем случае эту величину можно представить как

$$\hat{\varepsilon}(\mathbf{r}_0) = \frac{1}{z} \sum_{n=1}^z \mathbf{u}(\mathbf{r}_0 + \boldsymbol{\rho}_n) \otimes \boldsymbol{\rho}_n, \quad (15)$$

где векторы $\boldsymbol{\rho}_n$ характеризуют положение z ($= 4$) ближайших соседей. Сопряженный этой величине тензор определяет изменение потенциала межатомного взаимодействия V^{mag} , вызванного магнитным упорядочением, и может рассматриваться как тензор микронапряжений в окрестности заданного узла:

$$\sigma_{jk}^{\text{micro}}(\mathbf{r}_0) = \frac{\partial V^{\text{mag}}(\mathbf{r}_0)}{\partial \varepsilon_{jk}}. \quad (16)$$

Для антиферромагнетика нетривиальные компоненты тензора $\hat{\sigma}^{\text{micro}}$ связаны с ориентацией спиновых моментов соотношением типа (1), где компоненты тензора 4-го ранга Λ_{jk} инвариантны относительно преобразований локальной группы симметрии. В общем случае изменение локального окружения магнитного атома может определяться тензорами более высоких рангов (при учете соседей, следующих за ближайшими).

Напомним, что введенные выше тензоры локальных деформаций и напряжений существенно отличаются от соответствующих макроскопических величин, которые используются при описании состояния кристалла в теории упругости. Так, величины, задаваемые выражением (15), зависят от корреляционных функций распределения на соседних узлах и фактически приписывают каждой точке среды тензорную характеристику. В то же время деформации в стандартной теории упругости определяются как

градиенты от средних векторов смещений, т.е. зависят от первых, а не вторых моментов функций распределения. Кроме того, соответствующие локальным напряжениям $\hat{\sigma}^{\text{micro}}$ деформации можно в каком-то смысле считать квазипластическими (терминология [13]), поскольку они возникают в отсутствие внешней нагрузки и могут быть сняты только за счет изменения всего термодинамического состояния образца (к примеру, путем повышения температуры кристалла). Другими словами, относительно тензора микронапряжений можно принять те же предположения, что и относительно магнитных моментов («микротоков» Ампера) в магнитных средах — раз сформировавшись в точке фазового перехода и магнитный момент, и тензор микронапряжений сохраняют свою величину; действие внешних сил может привести только к их переориентации относительно осей кристалла. Существование магнитного момента не приводит к возникновению макроскопических токов проводимости, а существование тензора микронапряжений — к возникновению пластических течений образца в целом.

Для феноменологического описания упругого состояния, которое возникает при фазовом переходе, перейдем от микроскопических напряжений (16) к напряжениям, усредненным по макроскопическим, но физически малым объемам кристалла. Тогда для случая магнитного перехода (ср. с (1))

$$\sum_{\mathbf{r}_l} \hat{\sigma}^{\text{micro}}(\mathbf{r}_l) \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_l) \rightarrow \hat{\sigma}^{\text{mag}}(\mathbf{r}) = \frac{1}{v_0} \langle \hat{\sigma}^{\text{micro}} \rangle, \quad (17)$$

где v_0 — объем элементарной ячейки, а угловые скобки означают усреднение.

Выражение (17) наряду с (1) фактически постулирует существование при магнитоупругих фазовых переходах двух первичных** параметров порядка, имеющих микроскопическое происхождение: магнитного, представленного в данном случае вектором антиферромагнетизма \mathbf{L} , и (магнито)упругого, характеризуемого тензором $\hat{\sigma}^{\text{mag}}(\mathbf{r})$. В отличие от этого, при традиционном описании переходов такого типа в качестве первичного, микроскопического параметра порядка рассматривают только магнитные векторы, а спонтанные деформации и вызвавшие их напряжения считают вторичными, макроскопическими величинами.

* В этом легко убедиться, если заметить, что при повороте кристаллографических осей на 90° вокруг оси Oz $x \rightarrow y$, $y \rightarrow -x$ и $\boldsymbol{\rho}_1 \rightarrow \boldsymbol{\rho}_2 \rightarrow \boldsymbol{\rho}_3 \rightarrow \boldsymbol{\rho}_4$.

** Следуя терминологии, введенной в [16], первичным, или истинным, называют такой параметр, возникающий в точке перехода, трансформационные свойства которого полностью описывают наблюдаемое изменение симметрии при фазовом переходе и аномалии физических свойств.

Зависящий от напряжений (17) вклад в свободную энергию кристалла содержит слагаемые разной природы. Наиболее существенными для формирования упорядоченного состояния являются локальные взаимодействия, которые в окрестности фазового перехода хорошо аппроксимируются билинейной формой по компонентам тензора $\hat{\sigma}^{\text{mag}}(\mathbf{r})$, инвариантной относительно точечной группы симметрии кристалла:

$$\Phi_{\text{afm}} = \int dV \left[\frac{1}{2} \sigma_{jk}^{\text{mag}} s_{jklm} \sigma_{lm}^{\text{mag}} - \lambda_{jklm} \sigma_{jk}^{\text{mag}} L_l L_m \right]. \quad (18)$$

Первое слагаемое в (18) моделирует энергию образования упругого диполя (с силовым коэффициентом \hat{s}), а второе — магнитоупругие взаимодействия, собственно и приводящие к возникновению $\hat{\sigma}^{\text{mag}}(\mathbf{r})$ (см. выражение (1), где $\hat{\Lambda} = \hat{s}^{-1}\hat{\lambda}$) при магнитном упорядочении. Взаимодействие типа (18) вместе с обменными взаимодействиями чисто магнитной природы приводит к «параллельному» (однородному) упорядочению упругих диполей и поэтому, по аналогии с магнетизмом, может трактоваться как «обменное».

Более слабым, но не менее важным, является вклад, обусловленный взаимодействием упругих диполей, на микроскопическом уровне описываемый выражением (4). Для перехода к интегрированию по всему кристаллу заметим, что на малых (порядка межатомных) расстояниях взаимодействия между упругими диполями носят существенно нелинейный характер и для их детального описания требуется учет межатомных потенциалов, электронной структуры кристалла и т.п. Однако из физических соображений ясно, что при наличии дальнего магнитного порядка эти взаимодействия отвечают за ориентацию упругих диполей по отношению к осям кристалла и магнитным моментам в данной точке, т.е., по сути, определяют упругую анизотропию. Феноменологически локальная ориентация упругих диполей описывается выражением (18) при условии, что коэффициенты λ_{jklm} зависят не только от взаимной ориентации векторов антиферромагнетизма \mathbf{L} , но и от их ориентации по отношению к кристаллографическим направлениям, или магнитной анизотропии.

С учетом сказанного макроскопическая энергия упругого дипольного взаимодействия может быть представлена в виде интеграла

$$\Phi_{dd} = \frac{1}{2} \int d\mathbf{r} \int_{|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|>\rho} d\mathbf{r}' \sigma_{jk}^{\text{mag}}(\mathbf{r}) \sigma_{lm}^{\text{mag}}(\mathbf{r}') \frac{\partial^2}{\partial r_j \partial r_l} G_{km}(\mathbf{r}-\mathbf{r}'), \quad (19)$$

где функция Грина определяется выражением (3), а физически малая макроскопическая длина ρ существенно превышает межатомные расстояния a (на которых определяющим является вклад (18)), но много меньше, чем характерный размер d_D упругих (и магнитных*) доменов: $a \ll \rho \ll d_D$.

Выражение (19) имеет важную особенность, позволяющую свести проблему доменообразования при термоупругом фазовом переходе к аналогичной задаче образования доменов с противоположным направлением вектора намагниченности в ферромагнитных кристаллах [19]. Так, известно, что функция Грина, входящая в выражение (19), независимо от симметрии кристалла асимптотически убывает как $G_{km}(\mathbf{r}) \approx 1/r$, обеспечивая таким образом дальнедействующий характер дипольных сил**. Это приводит к двум существенным следствиям: во-первых, в системе упругих диполей взаимодействия носят нелокальный характер и, значит, возможно возникновение неоднородных (доменных) структур; во-вторых, как будет видно из дальнейшего (см. формулу (22)), величина Φ_{dd} пропорциональна объему кристалла и, следовательно, ее вклад в свободную энергию кристалла сопоставим с обусловленным фазовым превращением изменением его химического потенциала.

Используем теперь полученное выражение (19) для описания упругого состояния, возникающего в кристалле при термоупругом фазовом переходе, и покажем, что (по аналогии с ферромагнетизмом) учет дипольных взаимодействий действительно позволяет объяснить разбиение антиферромагнитного кристалла конечных размеров на магнитоупругие домены с различной ориентацией упругих диполей.

Для начала введем величину, определяющую макроскопическую деформацию, созданную сосредоточенными «силами» $\hat{\sigma}^{\text{mag}}$:

* В большинстве экспериментально наблюдаемых случаев упругие домены в антиферро- и ферромагнетиках совпадают с магнитными, как это имеет место, например, в кристаллах NiO [17], Ni₂GaMn [18].

** Продолжая аналогию с ферромагнетизмом, следует сказать, что таким же образом ведет себя функция Грина оператора Лапласа, входящая в выражение для энергии магнитных диполей [19].

$$u_{jk}(\mathbf{r}) = -\frac{1}{2} \int_V \left[\frac{\partial}{\partial r_k} G_{jl}(\mathbf{r} - \mathbf{r}') + \frac{\partial}{\partial r_j} G_{kl}(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \right] \frac{\partial \sigma_{ml}^{\text{mag}}(\mathbf{r}')}{\partial r'_m} d\mathbf{r}', \quad (20)$$

где интегрирование производится по всему объему кристалла V . Нетрудно убедиться в том, что если функция $G(\mathbf{r})$ задается выражением (3), то тензор $u_{jk}(\mathbf{r})$ (20) удовлетворяет уравнению

$$\frac{\partial}{\partial r_k} c_{jklm} u_{lm}(\mathbf{r}) = \frac{\partial}{\partial r_k} \sigma_{jk}^{\text{mag}}(\mathbf{r}). \quad (21)$$

Таким образом, тензор $\hat{\sigma}^{\text{mag}}$ имеет смысл макроскопических напряжений, а введенный в (20) симметричный тензор \hat{u} — соответствующих спонтанных деформаций, возникающих при фазовом переходе. Подчеркнем, что в отличие от стандартной теории упругости $\hat{\sigma}^{\text{mag}}$ является результатом исключительно внутренних изменений в кристалле, а не приложенной к нему внешней нагрузки. В каком-то смысле полученные выражения напоминают выражения для поля напряжений и деформаций, создаваемых точечными дефектами, однако, в отличие от последних, рассматриваемые нами внутренние напряжения $\hat{\sigma}^{\text{mag}}$ возникают спонтанно и существуют во всех точках среды, а не в отдельных изолированных ее точках, образующих множество меры нуль.

В том случае, когда тензор $\hat{\sigma}^{\text{mag}}$ не зависит от \mathbf{r} , в образце бесконечных размеров спонтанные деформации \hat{u} также являются однородными и определяются формулой

$$\hat{u} = \hat{\epsilon}^{-1} \hat{\sigma}^{\text{mag}}.$$

Для образца же конечных размеров интегралы в (19) и (20) зависят от его формы. При этом распределение внутренних напряжений, отвечающее минимуму свободной энергии, должно определяться из решения самосогласованной задачи с учетом как «обменных» и анизотропных взаимодействий (18), дипольных взаимодействий (19), так и вклада спиновой подсистемы. В простейшем случае образца, имеющего форму тонкой пластины, поле внутренних напряжений однородно на масштабах, превышающих размеры отдельных доменов, но меньших

толщины пластины $d \gg d_D$. В этом случае глобальная деформация образца

$$u_{jk}^{\text{macro}} = \mathfrak{S}_{jklm} \langle \sigma_{lm}^{\text{mag}} \rangle \quad (22)$$

определяется усредненным по разным типам доменов тензором

$$\langle \hat{\sigma}^{\text{mag}} \rangle \equiv \frac{1}{V} \int_V \hat{\sigma}^{\text{mag}}(\mathbf{r}) d\mathbf{r}$$

и не зависящим от координат тензором 4-го ранга

$$\mathfrak{S}_{jklm} \equiv \frac{\partial^2}{\partial r_k \partial r_m} \int_V G_{jl}(\mathbf{r} - \mathbf{r}') d\mathbf{r}', \quad (23)$$

который по аналогии с магнетизмом можно назвать тензором «раздеформирующих» коэффициентов*.

В этом случае энергия дипольного взаимодействия приобретает достаточно простой вид:

$$\Phi_{dd} = \frac{V}{2} \langle \sigma_{jk}^{\text{mag}} \rangle \mathfrak{S}_{jklm} \langle \sigma_{lm}^{\text{mag}} \rangle. \quad (24)$$

Усредненный тензор внутренних напряжений $\langle \hat{\sigma}^{\text{mag}} \rangle$ описывает некоторое эффективное («молекулярное» или самосогласованное) поле, порожденное фазовым переходом и приводящее к спонтанным деформациям (22). Чрезвычайно важно, что, как в рассмотренном частном, так и в общем случае, энергия дипольного взаимодействия (24) оказывается пропорциональной объему образца, что фактически и приводит к возможности понизить свободную энергию кристалла за счет возникновения неоднородной структуры, т.е. магнитоупругих доменов, несмотря на некоторое повышение энергии вследствие неизбежного образования доменных стенок.

При проведенном выше анализе упругого состояния, возникающего в кристалле при фазовом переходе со спонтанными деформациями, неявным образом предполагалось, что в образце отсутствуют внешние напряжения (граничные условия соответствуют свободной поверхности кристалла). Полученный результат, однако, легко обобщить на случай, когда к кристаллу приложены внешние нагрузки (например, механические напряжения или магнитное поле) или каким-то внешним образом фиксированы смещения на поверхности образца (кристалл приклеен, имеется когерентная межфазная/межзеренная граница,

* Предлагаемые термины «раздеформирующий» (destressing) тензор и энергия «раздеформирования» отражают роль соответствующего вклада в свободную энергию при формировании микроструктуры образца. Так, влияние дальнедействующих полей (22) приводит к уменьшению макроскопической деформации образца за счет образования доменов различной ориентации, несмотря на то, что локальные значения тензора деформаций в доменах остаются неизменными. Введенный нами ранее в работе [10] термин «раздвойникование» (detwinning) является, с этой точки зрения, неудачным, поскольку предполагает как раз обратный процесс — исчезновение доменной структуры.

поверхность обладает повышенной жесткостью и т.п.), т.е. граничные условия носят более общий характер. Так, при наличии внешних напряжений $\hat{\sigma}^{\text{ext}}$ эффективное поле внутри кристалла будет содержать вклад как от полей раздеформирования $\langle \hat{\sigma}^{\text{mag}} \rangle$, так и от внешних полей:

$$\hat{\sigma}^{\text{eff}} = \langle \hat{\sigma}^{\text{mag}} \rangle + \hat{\sigma}^{\text{ext}}.$$

Фиксированные смещения на границе образца могут быть учтены введением дополнительных деформаций \hat{u}^{add} , обеспечивающих выполнение граничных условий и условий совместности. В этом случае суммарные деформации образца равны

$$u_{jk}^{\text{tot}}(\mathbf{r}) = u_{jk}(\mathbf{r}) + u_{jk}^{\text{add}}(\mathbf{r}), \quad (25)$$

где первое слагаемое определяется формулой (20), а второе является дополнительной деформацией, удовлетворяющей стандартным уравнениям теории упругости, в том числе и уравнениям совместности. Требование совместности суммарных деформаций на границе образца произвольной формы приводит к уравнению

$$\text{rot}(\text{rot} \hat{u}^{\text{add}}(\mathbf{r}))^T = \hat{e}_{\text{el}}(\mathbf{r}), \quad (26)$$

$$\hat{e}_{\text{el}}(\mathbf{r}) = -\mathbf{n} \times \hat{u}(\mathbf{r}_S) \times \mathbf{n} \delta'[\mathbf{n}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_S)], \quad (27)$$

где δ' — производная дельта-функции Дирака по аргументу, $\mathbf{n}(\mathbf{r}_S)$ — нормаль к поверхности образца в точке \mathbf{r}_S , а тензор \hat{e}_{el} играет роль «зарядов несовместности», возникающих благодаря несовместности упругих деформаций в объеме и на поверхности образца. Частное решение уравнения (26) имеет вид

$$\hat{u}^{\text{add}}(\mathbf{r}) = \frac{1}{4\pi} \int_V d\mathbf{r}_1 \frac{\hat{e}_{\text{el}}(\mathbf{r}_1) - \hat{\mathbf{1}} \text{Tr} \hat{e}_{\text{el}}(\mathbf{r}_1)}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_1|}. \quad (28)$$

Подстановка (28) в (24) позволяет выразить дипольную энергию в терминах спонтанных деформаций (а не напряжений). В обсуждавшемся выше частном случае тонкой пластины это приводит к выражению, полученному авторами ранее в модели образца с жесткой поверхностью [9,10] (ср. с (24)):

$$\Phi_{dd} = \frac{V}{2} \langle \hat{u} \rangle \mathfrak{N}^{-1} \langle \hat{u} \rangle, \quad (29)$$

где тензор раздеформирования определяется выражением

$$\hat{\mathfrak{N}}^{-1} = \hat{c} + \mathbf{n} \otimes \mathbf{n} \text{Tr} c - \mathbf{n} \otimes (\hat{c}\mathbf{n}) - (\hat{c}\mathbf{n}) \otimes \mathbf{n}, \quad (30)$$

или

$$\mathfrak{N}_{jklm}^{-1} = c_{jklm} + n_j n_k c_{lmpp} - n_j c_{klmp} n_p - n_p c_{jpkl} n_m,$$

а доменная структура — средним по образцу значением тензора деформации $\langle \hat{u} \rangle$.

4. Тензор раздеформирующих коэффициентов и энергия раздеформирования в случае тонкой пластины со свободной поверхностью

Вычисление энергии диполь-дипольного взаимодействия (19) в образце произвольной формы опирается на знание функции Грина, вычисление которой само по себе является непростой задачей. Исключение снова составляет случай тонкой пластины, для которой тензор раздеформирующих коэффициентов \mathfrak{N} , введенный выражением (23), можно вычислить в явном виде.

Предположим, что нормаль к плоскости пластины задана вектором \mathbf{n} , координаты которого определены по отношению к кристаллографическим осям. Тогда тензор раздеформирования выражается через компоненты так называемой динамической матрицы $D_{jk}^{-1} \equiv c_{ijkl} n_i n_l$ (см., например, [14,20]) как

$$\mathfrak{N}_{jklm} = D_{jln} n_k n_m. \quad (31)$$

Энергия раздеформирования, соответственно, приобретает вид

$$\Phi_{dd} = \frac{V}{2} \langle \mathbf{n} \hat{\sigma}^{\text{mag}} \rangle \hat{D} \langle \hat{\sigma}^{\text{mag}} \mathbf{n} \rangle. \quad (32)$$

Существенно, что вклад в свободную энергию кристалла, обусловленный диполь-дипольными взаимодействиями (32), всегда является положительно-определенной квадратичной формой по компонентам вектора $\langle \hat{\sigma}^{\text{mag}} \mathbf{n} \rangle$. Это следует из положительной определенности динамической матрицы D_{jk}^{-1} , определяющей спектр длинноволновых акустических колебаний. Кроме того, этот вклад пропорционален объему кристалла и поэтому, как уже отмечалось выше, может конкурировать с вкладом, обусловленным собственно фазовым переходом, при любых размерах образца.

В качестве примера рассмотрим упруго-изотропную среду. Как следует из соображений симметрии, в этом случае матрица D_{jk} (явный вид которой можно найти в [20]) имеет один собственный вектор в направлении нормали к плоскости пластины \mathbf{n} , соответствующий собственному значению $1/c_{11}$, и два взаимно перпендикулярных вектора (\mathbf{e}_1 и \mathbf{e}_2), лежащих в плоскости пластины и соответствующих собственному значению $1/c_{44}$. Учитывая упомянутую выше связь матрицы D_{jk} с динамической матрицей, можно сказать, что собственные векторы этой матрицы определяют поляризации трех акустических мод — продольной и двух поперечных, распространяющихся в направлении нормали. С учетом

сказанного, выражение для дипольной энергии (32) приобретает вид

$$\Phi_{dd} = \frac{V}{2} \left[\frac{1}{c_{11}} \langle \mathbf{n} \hat{\sigma}^{\text{mag}} \mathbf{n} \rangle^2 + \frac{1}{c_{44}} (\langle \mathbf{e}_1 \hat{\sigma}^{\text{mag}} \mathbf{n} \rangle^2 + \langle \mathbf{e}_2 \hat{\sigma}^{\text{mag}} \mathbf{n} \rangle^2) \right]. \quad (33)$$

Очевидно, что этот вклад в энергию неотрицателен и, следовательно, как и в случае ферромагнетика, в отсутствие внешних полей может быть уменьшен только при обращении в нуль соответствующих усредненных компонент тензора $\hat{\sigma}^{\text{mag}}$. Подчеркнем, что, в отличие от случая ферромагнетика, тензор раздеформирования зависит не только от формы образца (в данном случае — от ориентации вектора \mathbf{n}), но и от величины модулей упругости. Следовательно, направления \mathbf{n} , при которых эффект формы будет проявляться наиболее сильно, зависят не только от геометрии образца, но и от его материальных констант.

В общем случае выражение (32) может быть записано в виде, аналогичном (33), если только нормаль к плоскости пластины параллельна одному из так называемых чистых направлений кристалла, т.е. если \mathbf{n} — собственный вектор матрицы \hat{D} . Выражая собственные числа матрицы \hat{D} через эффективные модули, соответствующие продольной c_l и двум поперечным $c_{t1,2}$ поляризациям, находим, что

$$\Phi_{dd} = \frac{V}{2} \left[\frac{1}{c_l} \langle \mathbf{n} \hat{\sigma}^{\text{mag}} \mathbf{n} \rangle^2 + \frac{1}{c_{t1}} \langle \mathbf{e}_1 \hat{\sigma}^{\text{mag}} \mathbf{e}_1 \rangle^2 + \frac{1}{c_{t2}} \langle \mathbf{e}_2 \hat{\sigma}^{\text{mag}} \mathbf{e}_2 \rangle^2 \right]. \quad (34)$$

Выражения (33), (34) позволяют сделать довольно общие заключения об относительном вкладе диполь-дипольной энергии в зависимости от формы образца. Поскольку во многих кристаллах модули упругости, соответствующие поперечным волнам, заметно меньше, чем в случае продольных волн, $c_t < c_l$, последние два слагаемые в (33) и (34) могут быть много больше первого. Таким образом, для достижения максимального эффекта раздеформирования образец следует вырезать так, чтобы во всех доменах выполнялось условие $\hat{\sigma}^{\text{mag}} \mathbf{n} = 0$. В противоположном случае, когда $\hat{\sigma}^{\text{mag}} \mathbf{e}_{1,2} = 0$, энергия раздеформирования мала и, как будет показано в следующем разделе, образец может быть легко переведен в монодоменное состояние за счет внешних воздействий.

5. Доменная структура антиферромагнетиков

Применим теперь полученные в предыдущем разделе выражения (32)–(34) для выяснения условий формирования и обратимой перестройки равновесной доменной структуры при термоупругих фазовых переходах.

В качестве первого примера рассмотрим антиферромагнитный кристалл, группа симметрии которого принадлежит тетрагональной сингонии (например, слабодопированные соединения Y–Ba–Cu–O или La–Sr–Cu–O). Для простоты будем считать, что в плоскости симметрии кристалл изотропен ($c_{11} - c_{12} = 2c_{66}$). В случае бесконечного кристалла имеется два эквивалентных равновесных направления вектора \mathbf{L} , лежащих в плоскости симметрии (базисной плоскости) кристалла: $\mathbf{L} \parallel O_x$ (X-домен) и $\mathbf{L} \parallel O_y$ (Y-домен). Эти направления определяются из условий минимума той части свободной энергии, которая имеет чисто магнитное происхождение, и в нашем рассмотрении считаются заданными. Эквивалентность доменов в отсутствие внешних полей означает, что в области однородного упорядочения удельный термодинамический (химический) потенциал обоих доменов одинаков: $\mu_X = \mu_Y$. При наличии магнитного поля \mathbf{H} , лежащего в плоскости симметрии, домены становятся неэквивалентными и их химические потенциалы отличаются на величину, определяемую энергией Зеемана:

$$\mu_X - \mu_Y = \frac{1}{2} \chi (H_x^2 - H_y^2), \quad (35)$$

где χ — магнитная восприимчивость антиферромагнитной фазы в направлении, перпендикулярном легкой оси кристалла.

В неограниченном образце, содержащем домены обоих типов с объемными долями ξ и $(1 - \xi)$, термодинамический потенциал является линейной функцией ξ :

$$\begin{aligned} \Phi_{\infty} &= V [\xi \mu_X + (1 - \xi) \mu_Y] = \\ &= \Phi_0 + \frac{V}{2} \left(\xi - \frac{1}{2} \right) \chi (H_y^2 - H_x^2), \end{aligned} \quad (36)$$

где Φ_0 — несущественная для данной задачи константа.

Очевидно, что в отсутствие внешнего поля ($\mathbf{H} = 0$) энергия кристалла не зависит от соотношения долей доменов и возникновение доменной структуры термодинамически невыгодно, поскольку связано с энергетическими затратами на образование междоменных границ. Включение поля приводит к стабилизации одного, более «выгодного» из монодоменных состояний, для которого потенциал (36) будет минимальным (домен X ($\xi = 1$), если $\mathbf{H} \parallel O_y$, и домен Y ($\xi = 0$), если $\mathbf{H} \parallel O_x$).

В образце конечных размеров термодинамический потенциал наряду со слагаемым (36) должен включать и диполь-дипольную энергию (32). Для вычисления последней определим усредненный по объему тензор внутренних напряжений:

$$\begin{aligned} \langle \sigma_{xx}^{\text{mag}} \rangle &= \mathbf{L}^2 \left[\frac{\Lambda_{11} + \Lambda_{12}}{2} + \Lambda'(1 - 2\xi) \right], \\ \langle \sigma_{yy}^{\text{mag}} \rangle &= \mathbf{L}^2 \left[\frac{\Lambda_{11} + \Lambda_{12}}{2} - \Lambda'(1 - 2\xi) \right], \\ \langle \sigma_{zz}^{\text{mag}} \rangle &= \Lambda_{13} \mathbf{L}^2, \quad 2\Lambda' \equiv \Lambda_{11} - \Lambda_{12}. \end{aligned} \quad (37)$$

Очевидно, что если нормаль к плоскости образца направлена вдоль оси Oz (группа симметрии образца совпадает с точечной группой высокосимметричной фазы), то величина

$$\langle \hat{\sigma}^{\text{mag}} \rangle \mathbf{n} = \Lambda_{13} \mathbf{L}^2 \mathbf{n}$$

одинакова во всех доменах. Это означает, что энергия диполь-дипольного взаимодействия (32) в свободном от внешних напряжений образце вообще не зависит от доли домена, т.е. не приводит к раздеформированию*.

Однако если нормаль к плоскости пластины перпендикулярна оси Oz (группа симметрии образца может быть ниже, чем точечная группа высокосимметричной фазы), то основной вклад в энергию диполь-дипольного взаимодействия квадратичным образом зависит от относительной доли доменов ξ :

$$\Phi_{dd} = \frac{1}{2} \Lambda'^2 \mathbf{L}^4 V \left(\xi - \frac{1}{2} \right)^2 \left[\frac{(n_x^2 - n_y^2)^2}{4c_{11}} + \frac{n_x^2 n_y^2}{c_{66}} \right]. \quad (38)$$

Как видно из (38), энергия раздеформирования существенным образом зависит от ориентации пластины по отношению к кристаллографическим осям. Поскольку при этом модуль сдвига c_{66} обычно меньше модуля c_{11} в 3–10 раз (см., например, [20]), значение энергии раздеформирования будет максимальным в том случае, когда плоскость пластины совпадает с плоскостью двойникования (т.е. с плоскостью доменной границы, $\mathbf{n} \parallel [110]$). Существенно меньшее значение энергии Φ_{dd} получается тогда, когда пластина вырезана перпендикулярно одной из легких осей для вектора антиферромагнетизма ($\mathbf{n} \parallel O_x$ или O_y).

Равновесная доля ξ домена определяется из условий минимума суммарного термодинамического потенциала $\Phi = \Phi_{\infty} + \Phi_{dd}$ и равна

$$\xi = \frac{1}{2} + \frac{\chi(H_x^2 - H_y^2)}{\Lambda'^2 \mathbf{L}^4} \left[\frac{(n_x^2 - n_y^2)^2}{4c_{11}} + \frac{n_x^2 n_y^2}{c_{66}} \right]^{-1}. \quad (39)$$

Из (39) следует, что при любой ориентации \mathbf{n} изменение относительной доли того или иного домена может привести к снижению термодинамического потенциала системы, и, таким образом, многодоменное состояние является термодинамически выгодным. Из выражения (39) приходим также к выводу о существовании некоторого характерного поля монодоменизации

$$H_{MD} = \frac{\Lambda'}{\sqrt{\chi}} \mathbf{L}^2 \sqrt{\frac{(n_x^2 - n_y^2)^2}{4c_{11}} + \frac{n_x^2 n_y^2}{c_{66}}}, \quad (40)$$

при котором «невыгодный» домен полностью «выходит» из образца. Примечательно, что величина поля монодоменизации зависит от того, каким образом вырезан образец, и может меняться в пределах от нуля до величины, сравнимой с полем магнитоstriction.

Связь между формой образца и его доменной структурой на эмпирическом уровне использована при проведении экспериментов в работах [5–7]. В частности, для исследования эффекта памяти формы в антиферромагнетике La–Sr–Cu–O, связанном со смещением доменных границ, образец в виде тонкой пластины вырезали таким образом, чтобы его грани были перпендикулярны легким осям, т.е. $\mathbf{n} \parallel O_x$ или O_y . При этом после нескольких циклов включения-выключения поля образец становился практически монодоменным, когда доменная структура уже не восстанавливалась. В то же время при любой другой ориентации пластины, как отмечают авторы [5,6], эффект памяти не наблюдался (надо полагать, что приложенные поля оказались недостаточными для монодоменизации образца). В экспериментах, где требовалось сохранять равные доли доменов даже при наличии поля, пластину вырезали таким образом, чтобы ее грани были параллельны трудным направлениям, т.е. $n_x = n_y$, что, по мнению авторов [7], препятствовало движению доменных границ (но, как мы видим, это просто снижало «восприимчивость» магнитоупругой доменной структуры к внешнему магнитному полю).

Выражение (40) позволяет сделать оценку экспериментально наблюдаемой величины — поля монодоменизации. Рассмотрим, к примеру, слабодопированный высокотемпературный сверхпроводник La–Sr–Cu–O в антиферромагнитном состоянии, домены в котором имеют немагнитную природу,

* Аналогичная ситуация имеет место и в случае с размагничиванием кристалла ферромагнетика: например, если образец имеет форму тонкой пластины, вырезанной параллельно плоскости легкого намагничивания.

однако жестко связаны с магнитными свойствами образца и могут перестраиваться под действием внешнего поля. Подставляя в (40) значение $\sigma_0 \equiv \Lambda' L^2 \approx 30$ МПа (определенное как напряжение насыщения, при котором, согласно [21], образец становится монокристаллическим), модуль упругости $c_{11} = 213$ ГПа [22] и $\chi = 5 \cdot 10^{-7}$ ед. СГСМ/см³ [21], получаем величину поля монокристаллизации $H_{MD} = 15$ Тл для пластины, вырезанной в направлении легкой оси ($\mathbf{n} \parallel Ox$), что практически совпадает с экспериментально наблюдаемым значением 14 Тл [5,6]. Важно, что при другой ориентации пластинки (под углом 45° к легкой оси) величина поля монокристаллизации, вычисленная по формуле (40) с $c_{66} = 54$ ГПа, возрастает до 60 Тл. В этом случае вплоть до значений внешнего поля 10–15 Тл, согласно формуле (39), доля невыгодного домена может измениться не более чем на 10 %, т.е. доменная структура практически не чувствительна к внешнему полю. Соответствующие зависимости доли домена от величины внешнего поля для двух упомянутых ориентаций вектора \mathbf{n} показаны на рис. 2. На рис. 3 приведена угловая диаграмма зависимости поля монокристаллизации от направления \mathbf{n} в базисной плоскости кристалла. Заметим, что связь между величиной поля монокристаллизации и формой образца наблюдается и в ферромагнетиках, однако в антиферромагнетиках эквивалентные ориентации образца отличаются не на 180°, а на 90°.

В качестве второго примера рассмотрим образование доменов в кристалле, в котором высокотемпе-

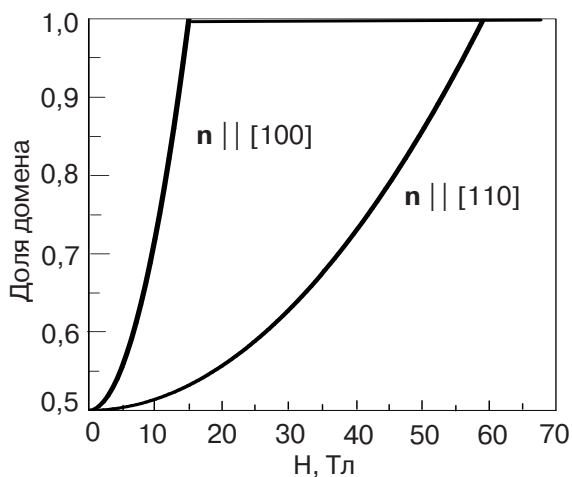


Рис. 2. Зависимость относительной доли «выгодного» домена от величины внешнего магнитного поля, рассчитанная по формуле (39) для кристалла La–Sr–Cu–O при разных направлениях нормали к плоскости образца.

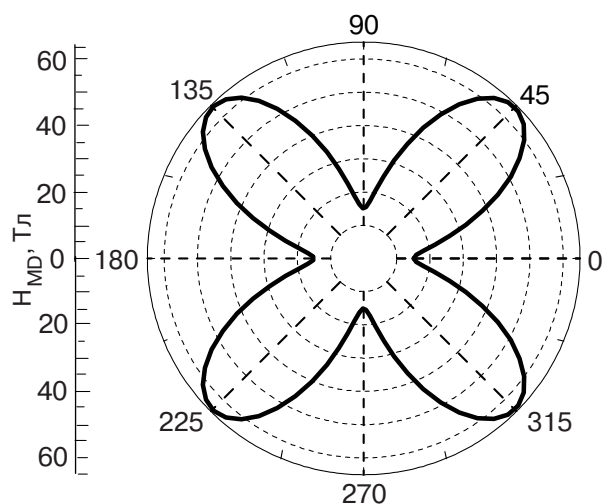


Рис. 3. Угловая диаграмма зависимости поля монокристаллизации от направления \mathbf{n} в базисной плоскости кристалла La–Sr–Cu–O, рассчитанная по формуле (40).

ратурная (высокосимметричная) фаза имеет кубическую, а низкотемпературная (упорядоченная) — тетрагональную симметрию. Такая ситуация возникает, например, при антиферромагнитном упорядочении в кристаллах KNiF₃, KCoF₃, а также при термоупругих переходах мартенситного типа. В последнем случае причина возникновения внутренних напряжений — упорядочение не спиновой, а зарядовой подсистем, однако поведение упругой подсистемы совершенно аналогично.

Упругие характеристики кристалла с кубической симметрией изотропны и в первом приближении могут аппроксимироваться выражениями (5) и (23). Низкосимметричная (антиферромагнитная или мартенситная) фаза может реализоваться в виде трех эквивалентных доменов тетрагональной симметрии с главными осями вдоль Ox , Oy и Oz соответственно. Пусть в пластинке присутствуют только два типа доменов, X и Y, с объемными долями ξ и $1 - \xi$ соответственно. Тензор внутренних напряжений в каждом из доменов равен

$$\hat{\sigma}_X = \begin{pmatrix} -2\sigma_0 & 0 & 0 \\ 0 & \sigma_0 & 0 \\ 0 & 0 & \sigma_0 \end{pmatrix}, \quad \hat{\sigma}_Y = \begin{pmatrix} \sigma_0 & 0 & 0 \\ 0 & -2\sigma_0 & 0 \\ 0 & 0 & \sigma_0 \end{pmatrix}. \quad (41)$$

Тогда с учетом (41) энергия раздеформирования (33) приобретает вид*

* Предполагается, что поверхность образца свободна, и не учитываются эффекты, связанные с наличием в образце когерентных межфазных границ.

$$\Phi_{dd} = \frac{9}{2} V \sigma_0^2 \left\{ \frac{1}{c_{11}} \left[\xi (n_y^2 - n_x^2) + \frac{1}{3} - n_y^2 \right]^2 + \frac{1}{c_{44}} (2\xi - 1)^2 n_x^2 n_y^2 + \frac{1}{c_{44}} n_z^2 [\xi (n_x^2 - n_y^2) + n_y^2]^2 \right\}. \quad (42)$$

Анализ выражения (42) прямо показывает, что если нормаль к плоскости пластины совпадает с легким направлением одного из доменов ($\mathbf{n} \parallel Ox$ или Oy), то основной вклад в энергию раздеформирования вносит первое слагаемое. При этом в отсутствие внешних полей энергетически выгодным оказывается состояние, в котором доли доменов относятся как 2:1 ($\xi = 1/3$ или $2/3$). В другом предельном случае, когда плоскость образца совпадает с границей раздела между X- и Y-доменами ($\mathbf{n} \perp (110)$), нетривиальным оказывается второе слагаемое, благоприятствующее структуре с одинаковой ($\xi = 1/2$) долей доменов обоих типов. Наконец, если плоскость пластины совпадает с габитусной плоскостью ($\mathbf{n} \perp (011)$), то доля одного из доменов определяется отношением c_{44}/c_{11} и может быть много меньше единицы. Подчеркнем, что такая пропорция равновесной доли доменов может наблюдаться только при условии, что поверхность образца является свободной.

В противоположном случае перехода с когерентной межфазной границей для энергии раздеформирования следует пользоваться выражением (29), анализ которого приводит к результату, хорошо известному в физике мартенситных фазовых превращений — равновесные доли доменов двух типов относятся как 2:1, если только межфазная граница параллельна габитусной плоскости (ср. выше). Отметим, что в отличие от кристаллографического подхода, принятого в теории мартенситных превращений и опирающегося на требование когерентного сопряжения решеток двух фаз, мартенситной и аустенитной, модель «упругих диполей» позволяет предсказать возможность формирования доменной структуры и вычислить доли доменов разного типа при различных граничных условиях, в том числе, например, при наличии внешних механических напряжений или в случае, когда межфазная граница при переходе вообще отсутствует (например, при переходах 2-го рода).

6. Заключение

Предложенная выше модель упругих диполей основана на некоторых физических допущениях, которые могут быть сформулированы следующим образом.

1. При термоупругом фазовом переходе в каждой точке среды спонтанно возникают сосредоточенные силы — упругие диполи, происхождение которых обусловлено изменением характера межатомных связей. Возникнув, эти диполи не исчезают, а под действием внешних сил различной природы могут менять свою ориентацию.

2. Ориентация упругих диполей определяется, главным образом, величиной и ориентацией первичного (здесь — магнитного) параметра порядка.

3. На больших расстояниях упругие диполи создают поля деформаций, которые могут быть описаны в рамках стандартной теории упругости.

Развитая модель последовательно объясняет причины возникновения и условия формирования доменной структуры в веществах, в которых первичный параметр порядка ((антиферро)магнитный момент либо электронная плотность) не создает дальнедействующих полей, необходимых для возникновения макроскопически неоднородной структуры. К таким веществам относятся, например, рассматриваемые в работе коллинеарные (компенсированные) антиферромагнетики, кристаллы, испытывающие термоупругое мартенситное превращение. Кроме того, развитый формализм может применяться и для описания доменной структуры в ферромагнитных кристаллах с сильными магнитоупругими взаимодействиями и вырожденной ориентацией вектора намагниченности. Особый случай в свете упомянутого выше могут составлять слабые ферромагнетики и ферромагнитные мартенситы, где не исключена конкуренция между чисто магнитными (ферромагнитными) и магнитоупругими факторами, обуславливающими появление доменной структуры.

Полученные выражения (19) для энергии магнитоупругого диполь-дипольного взаимодействия формально аналогичны выражениям для диполь-дипольной энергии упорядоченного ферромагнетика. Эта аналогия основывается на одинаковом характере пространственной зависимости функции Грина упругой среды, определяющей тензор раздеформирования, и функции Грина оператора Лапласа, входящего в выражение для компонент тензора размагничивания. Такая аналогия, даже без вычислений, позволяет распространить основные результаты, касающиеся условий формирования доменной структуры в ферромагнетиках, на антиферромагнитные и мартенситные кристаллы. Так, и в том, и в другом случае диполь-дипольная энергия содержит два вклада: один, зависящий от усредненных по образцу параметров порядка (напряжений, магнитных моментов), пропорциональный объему кристалла, и второй, связанный с неоднородным распределением параметра порядка на размерах порядка периода доменной

структуры. Первый вклад, обсуждавшийся в данной работе, обеспечивает понижение полной энергии кристалла за счет разбиения на домены и уменьшения средних величин. Второй вклад влияет на размер домена и в случае, когда размер образца намного превышает размер домена, является пренебрежимо малым по сравнению с первым. Как в ферро-, так и в антиферромагнетиках должен существовать некий предельный размер образца (толщина пластины), ниже которого образование доменной структуры становится энергетически невыгодным ни при каком соотношении между долями доменов*.

Различия между дипольными взаимодействиями в ферромагнетиках и антиферромагнетиках обусловлены в первую очередь тензорным (в отличие от векторного) характером внутренних напряжений, являющихся параметром порядка при термоупругих переходах. В результате в случае термоупругих кристаллов расчет доменной структуры становится гораздо более сложной задачей, однако возникает и большее разнообразие возможных доменных структур. Так, например, структура тензора раздеформирования, в отличие от тензора размагничивания, в общем случае зависит от соотношений между различными модулями упругости, что в конечном итоге приводит к существенному разбросу полей монодоменизации в зависимости от ориентации и формы образца.

Полученные в работе выражения для связи доли доменов с величиной и ориентацией внешнего магнитного поля позволяют рассчитать полевые зависимости макроскопических параметров антиферромагнитных кристаллов, например таких, как удлинение или магнитосопротивление. Зависимость поля монодоменизации образца от его формы (в простейшем случае — ориентации плоскости пластины по отношению к кристаллографическим осям), в свою очередь, открывает возможность для экспериментальной проверки гипотезы о микроскопических упругих диполях.

Упомянем, наконец, еще одно обстоятельство, связанное с величиной тензора внутренних напряжений $\hat{\sigma}^{\text{mag}}$. Как показывают эксперименты, величина механического напряжения, при котором происходит монодоменизация образца в упругих и магнитоупругих материалах (см., например, [5, 18, 23]), составляет ≈ 30 МПа, в то время как величина микронапряжений, оцененная по величине спонтанной деформации и модуля сдвига, составляет ≈ 300 МПа. Отличие на порядок также может быть объяснено с позиций предложенной выше модели, если рассмат-

ривать величину S_{jklm} , входящую в выражение (18), как константу анизотропии, связанную с возможностью «повернуть» упругий диполь, но не создать (упорядочить) его.

Работа выполнена при частичной поддержке Министерства образования и науки Украины (грант НФ7/514-2001) и частично в рамках тематического плана исследований НТУУ «КПИ» (№ госрегистрации 0103U000303). Авторы благодарят акад. В.Г. Барьяхтара за интерес и активное обсуждение результатов работы, а также проф. В.И. Марченко и С.М. Рябченко за плодотворные дискуссии и критические замечания, послужившие стимулом для постановки соответствующей задачи. Е.Г. благодарит А.А. Малышенко за финансовую и техническую поддержку при выполнении данной работы.

1. L. Néel, *Science Council of Japan*, Tokyo, 1954, 701 (1953).
2. M. Safa and B.K. Tanner, *Philos. Mag.* **B37**, 739 (1978).
3. Е.В. Амитин, А.Г. Байкалов, А.Г. Блинов Л.А. Боярский, В.Я. Диковский, К.Р. Жданов, М.Ю. Каменева, Л.П. Козеева, А.П. Шелковников, *Письма в ЖЭТФ* **70**, 350 (1999).
4. В.М. Калита, А.Ф. Лозенко, С.М. Рябченко, *ФНТ* **26**, 67 (2000).
5. A.N. Lavrov, S. Komiya, and Y. Ando, *Preprint cond-mat/0208013* (2002).
6. A.N. Lavrov, S. Komiya, and Y. Ando, *Nature* **418**, 385 (2002).
7. Y. Ando, A.N. Lavrov, and S. Komiya, *Phys. Rev. Lett.* **90**, 247003 (2003).
8. E.V. Gomonyay and V.M. Loktev, *Fiz. Nizk. Temp.* **25**, 699 (1999).
9. E.V. Gomonyay and V.M. Loktev, *Phys. Rev.* **64**, 064406 (2001).
10. E. Gomonyay and V.M. Loktev, *J. Phys.: Cond. Matter* **14**, 3959 (2002).
11. В.И. Марченко, А.Я. Паршин, *ЖЭТФ* **79**, 257 (1980).
12. M. Kléman and M. Schlenker, *J. Appl. Phys.* **43**, 3184 (1972).
13. M. Kléman, *J. Appl. Phys.* **45**, 1377 (1974).
14. К. Теодосиу, *Упругие модели дефектов в кристаллах*, Мир, Москва (1985).
15. Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц, *Теория упругости*, т. 7, Физматгиз, Москва (1987).
16. Ю.А. Изюмов, В.Н. Сыромятников, *Фазовые переходы и симметрия кристаллов*, Наука, Москва (1984).
17. N.B. Weber, H. Ohldag, H. Gomonyaj et al., *Phys. Rev. Lett.* **91**, 237205 (2003).
18. K. Ullakko, J.K. Huang, C. Kantner et al., *Appl. Phys. Lett.* **69**, 1966 (1996).

* Подробный анализ оптимального периода доменной структуры, возникающей при магнитоупругом фазовом переходе, и критического размера образца проведен в работе [10].

19. А.И. Ахнезер, В.Г. Барьяхтар, С.В. Пелетминский, *Спиновые волны*, Наука, Москва (1967).
20. А.Г. Хачатурян, *Теория фазовых превращений и структура твердых растворов*, Наука, Москва (1974).
21. A.N. Lavrov, Y. Ando, S. Komiyu, and Tsukada, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 017007 (2001).
22. M. Nohara, T. Suzuki, Y. Maeno, and T. Fujita, *Phys. Rev.* **B52**, 570 (1995).
23. А.Н. Васильев, Д. Бучельников, В.Т. Такаги, В.В. Ховайло, Э.И. Ястрин, *УФН* **173**, 577 (2003).

On the theory of the formation of equilibrium domain structure in antiferromagnets

E.V. Gomony and V.M. Loktev

The origin of equilibrium domain structure in the bulk antiferromagnets with strong magnetoelastic coupling is analyzed. The developed model is based on the assumption that the description of macroscopic elastic stresses and strains that ac-

company the thermoelastic phase transition can be adequate only with the due account of microscopic tensor order parameter, namely, the microstress tensor. We assume that the microstress tensors arise locally at each crystallographic site along with the magnetic order parameter due to magnetoelastic coupling. Formally, these tensors are equivalent to the elastic dipoles and, like the magnetic dipoles in ferromagnets, produce long-range elastic fields whose contribution to the thermodynamic potential may be reduced by the formation of an equilibrium domain structure. In analogy with ferromagnets, the energy contribution which arises from the interaction between the elastic dipoles favors reduction of macroscopic deformation of the sample and may be called «destressing» energy. The due account of the «destressing» energy makes it possible to describe properly the formation of the domain structure in antiferromagnets and its dependence on the external field and the shape of the sample.