

О магнитоупругой природе антиферромагнитных доменов в легкоплоскостных кристаллах дигалидов группы железа

В. М. Калита, А. Ф. Лозенко

Институт физики НАН Украины, пр. Науки, 46, г. Киев-28, 03028, Украина
E-mail: ryabch@labmag.ip.kiev.ua

Статья поступила в редакцию 14 июня 2000 г., после переработки 27 декабря 2000 г.

Предложена структура магнитоупругих антиферромагнитных доменов в слоистых легкоплоскостных антиферромагнетиках дигалидов группы железа, образованная из триад-областей с 120° -ным разворотом вектора антиферромагнетизма при переходах между соседними областями. Стабилизировать такую доменную структуру могут изотропные в легкой плоскости дефекты, сохраняющие в ней ориентационное вырождение направлений вектора антиферромагнетизма.

Запропоновано структуру магнітопружних антиферомагнітних доменів в шаруватих легкоплоскостних антиферомагнетиках дигалідів групи заліза, утворену з триад-областей із 120° -ним розворотом вектора антиферомагнетизму при переходах між суміжними областями. Стабілізувати таку доменну структуру можуть ізотропні в легкій площині дефекти, які зберігають в ній орієнтаційне виродження напрямків вектора антиферомагнетизму.

PACS: 76.60.-k

120° -ные антиферромагнитные домены ранее обнаружены в CoCl_2 , CoBr_2 и NiCl_2 [1,2]. Эти кристаллы имеют слоистую структуру. Внутрислойные обменные взаимодействия между ионами металла соответствуют ферромагнитному типу и намного превосходят межслойный антиферромагнитный обмен [3], а анизотропия типа «легкая плоскость» приводит к ориентации вектора антиферромагнетизма в плоскости, совпадающей в кристалле с ионным слоем. Все направления вектора антиферромагнетизма в этой плоскости почти эквивалентны, хотя симметрия допускает наличие анизотропии в этой плоскости, связанной с кристаллографическими осями 2-го порядка. Существование доменной структуры подтверждается экспериментами по рассеянию нейтронов [1], исследованиями магнитоупругости [4,5] и магнитных свойств [6]. В [4,5] показано, что для этих материалов характерна очень большая магнитострикция.

При дилатометрических исследованиях вынужденной магнитострикции в экспериментах [4,5] показано, что многодоменный кристалл в целом исходно не деформирован при «почти» ненапряженных доменах. Введение магнитного

поля, ориентированного в легкой плоскости, приводит к разрушению доменной структуры, после чего реализуется однородная стрикция, соответствующая однодоменному состоянию. Переход из многодоменного состояния в однодоменное происходит в полях намного меньших поля схлопывания [4]. Для CoCl_2 такой переход при $T = 4,2$ К завершается при $H \approx 8$ кЭ и сопровождается относительным удлинением кристалла на величину порядка $6 \cdot 10^{-4}$. При выведении поля кристаллы обратимо переходят в многодоменное состояние, почти полностью восстанавливая исходную форму.

В связи с существованием почти обратимой в цикле «введение–выведение магнитного поля» доменной структуры возникает вопрос о причине их равновесности либо квазиравновесности [2]. Магнитостатических полей, как в случае ферромагнетика, в антиферромагнетиках не существует.

К образованию антиферромагнитных доменов может привести рост энтропии из-за возникающего дополнительного вклада в нее за счет уменьшения степени упорядоченности кристалла [7]. Такой маленький выигрыш в энергии может оказаться вполне достаточным, если доменные стен-

ки параллельны легкой плоскости и потери энергии при развороте спинов на такой стенке будут связаны с малым межподрешеточным обменом [2]. Возникает равновесное многодоменное состояние, но при понижении температуры по мере удаления от температуры фазового перехода действие энтропийного механизма прекращается. В рассматриваемых кристаллах обратимая многодоменность наблюдается при $T = 4,2$ К, что заставляет усомниться в ответственности за нее энтропийного вклада, тогда как для кристалла NiCl_2 температура Нееля $T_N = 49,6$ К. Энтропийный механизм применительно к анализируемым кристаллам должен быть согласован с наблюдаемой в них большой магнитоупругостью, а 120° -ная доменная структура — сопровождаться появлением разгрузочных для механических напряжений областей, следовательно, кроме проигрыша в энергии при формировании стенок, нужно учитывать значительный проигрыш в упругой энергии. Поэтому вероятным является иной механизм равновесности многодоменного состояния.

Причиной появления антиферромагнитных доменов могут быть несовершенства решеток кристаллов [2]. Например, металлургические неоднородности, локально понижающие симметрию кристалла, могут соответствующим образом ориентировать вектор антиферромагнетизма \mathbf{L} . Такие несовершенства решетки, в среднем сохраняющие симметрию кристалла, потребуют большего, чем в экспериментах, значения поля монодоменизации и большого уширения в многодоменном состоянии линий АФМР [8,9].

К формированию антиферромагнитной доменной структуры могут привести винтовые дислокации [10,11]. При этом, как показано в [10], доменная структура стабилизируется внутриплоскостной кристаллической анизотропией.

В [12] рассмотрен механизм влияния поверхности на образование доменов в слоистых антиферромагнетиках, учитывающий магнитоупругие взаимодействия. Принципиальной особенностью такого механизма является существование ограничивающего размера образца, такого, что для кристаллов с большими размерами образование многодоменного состояния из-за этого механизма становится невыгодным.

В [4] высказано предположение, что магнитоупругость для антиферромагнитного многодоменного состояния в CoCl_2 , CoBr_2 , NiCl_2 является определяющей и домены образуются в слое с сохранением вырожденности направлений в нем.

В настоящей работе предложена геометрическая структура магнитоупругих антиферромагнит-

ных доменов, удовлетворяющая требованиям ориентационного вырождения в слое. Показано, что реализация такой доменной структуры предполагает наличие в кристалле дефектов, расширяющих или сжимающих решетку в слое вокруг дефекта. Для предложенной структуры доменов будут проанализированы деформации доменов и приведены возможные типы доменных стенок.

Однородные деформации реализуются вдали от дефектов в объеме свободного домена без учета его границ. Величины однородной в легкой плоскости деформации определяются из минимизации плотности энергии, включающей магнитоупругие и упругие слагаемые:

$$e = \gamma (L_x^2 - L_y^2)(U_{xx} - U_{yy}) + \delta L_x L_y U_{xy} + \frac{C_{11}}{2} (U_{xx}^2 + U_{yy}^2) + C_{12} U_{xx} U_{yy} + (C_{11} - C_{12}) U_{xy}^2, \quad (1)$$

где γ, δ — параметры магнитоупругих взаимодействий. При низких температурах величина вектора антиферромагнетизма постоянна, $|\mathbf{L}| = L$. В (1) не учитываются слагаемые, связанные с изотропным расширением в плоскости и не влияющие на доменную структуру. Энергия (1) изотропна в легкой плоскости.

Ориентация вектора \mathbf{L} в легкой плоскости обусловлена легкоплоскостным типом анизотропии в рассматриваемых кристаллах с положительным одноосным вдоль оси z вкладом в энергию анизотропии DL_z^2 с $D > 0$. Величина D составляет в NiCl_2 лишь несколько процентов от внутриподрешеточного обмена, а в CoCl_2 — порядка 50% [3]. Несмотря на такие различия, D в рассматриваемых кристаллах много больше внутриплоскостной анизотропии, представимой в виде

$$e_a = AL^6 \cos(6\theta), \quad (2)$$

где A — константа, а θ — угол направления вектора \mathbf{L} в легкой плоскости. Анизотропия (2) ориентирует вектор \mathbf{L} вдоль одной из осей 2-го порядка. Во всех кристаллах константа A намного меньше D .

Величины однородной деформации, когда \mathbf{L} параллельно оси x , имеют вид

$$U_{xx} = -U_{yy} = -\frac{\gamma L^2}{C_{11} - C_{12}}. \quad (3)$$

Деформация (3) равновесна: механические напряжения компенсируются действием магнитоупругих сил (полное напряжение равно нулю).

Рассмотрение структуры магнитоупругого антиферромагнетика с доменами при наличии нескольких «легчайших» осей в плоскости требует взаимной координации доменов, поскольку при учете сплошности кристалла спонтанная магнито-стрикция в одном из доменов может вызвать напряжения в соседних, что приведет к повышению полной энергии. Для двух соседних, расположенных в одном и том же слое доменов с различными направлениями \mathbf{L} доменную границу можно расположить так, что составляющие деформаций вдоль границы будут одинаковыми в соседних доменах. Рассматривая возможность схождения в некоторой области трех доменов, лежащих в слое с разной ориентацией \mathbf{L} , видим, что условие отсутствия взаимных напряжений невыполнимо. Такая область будет напряженной. Основная идея настоящей работы состоит в том, что можно достичь упругого согласования при схождении в плоскости трех доменов, располагая в ней дефекты с собственными деформациями, такими же, как и в области схождения доменов.

Структура 120° -ных доменов рассматриваемых кристаллов показана на рис. 1. Сплошными линиями изображены области кристалла, имеющие вид правильных гексагонов и введенные при отсутствии антиферромагнитного упорядочения. Наличие ненулевого \mathbf{L} в каждой области приведет к спонтанной деформации гексагонов, например, как на рис. 1, к растяжению вдоль диагонали гексагона параллельно \mathbf{L} и сжатию в перпендикулярном направлении. Деформированные гексагоны изображены пунктирными линиями, параллельными границам недеформированных гексагонов.

Во всех областях рассматриваемой структуры механические напряжения в основном скомпенсированы магнитоупругими силами за исключением локальных областей, в которых свободное существование доменов предполагает, как видно на рисунке, наличие нескомпенсированных (для данного рисунка растягивающих) механических напряжений. Это области, имеющие вид правильных треугольников, образующиеся при схождении трех доменов, относящихся к разным «триадам» (на рисунке одна из таких триад заштрихована). Гексагон в результате деформации становится двухосным с симметрией локального расширения в узлах C_3 .

Доменная структура в виде набора деформированных гексагонов с углами в вершинах равными

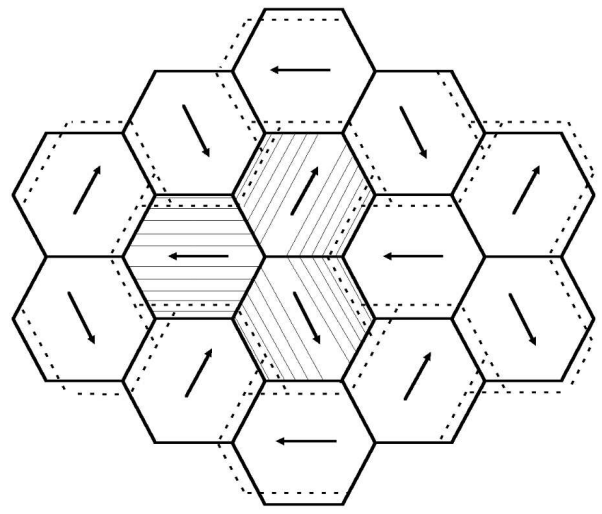


Рис. 1. Гексагоны недеформированного кристалла (сплошные линии) и их деформации (пунктирные линии). Три заштрихованных домена образуют триаду. Стрелки – направления вектора антиферромагнетизма в доменах.

120° , как на рис. 1, в идеальном кристалле оставляет домены напряженными. Однородные деформации (3) не изменяют объема и при такой деформации не сохраняются равными 120° углы в вершинах деформированного гексагона. Образование на рис. 1 областей в виде треугольников растяжения означает, что изображенные домены деформированы без сохранения площади, не удовлетворяя уравнению (3).

Определим величину энергетического проигрыша из-за фактической неоднородности деформаций гексагонов на рис. 1. Деформация U_{yy} гексагона в направлении перпендикулярном \mathbf{L} однородна и остается такой же, как (3), а деформация U_{xx} вдоль \mathbf{L} неоднородна. Размещая начало системы координат в центре гексагона, получаем выражения для U_{xx} и U_{yy} :

$$U_{xx} = -\frac{\gamma L^2}{C_{11} - C_{12}} \left(\frac{1}{2} + \frac{|y|}{\sqrt{3}a} \right); \quad U_{yy} = \frac{\gamma L^2}{C_{11} - C_{12}}, \quad (4)$$

где a – длина стороны недеформированного гексагона. При $y = a\sqrt{3}/2$ деформация $U_{xx} = -\gamma L^2/(C_{11} - C_{12})$, а при $y = 0$ она в два раза меньше.

Для деформации (4) полная энергия упругой и магнитоупругой составляющих неоднородно деформированного гексагона равна

$$E = -\frac{3\sqrt{3}}{2} \frac{\gamma^2 L^4}{C_{11} - C_{12}} a^2 \left(1 - \frac{7C_{11}}{3^2 2^4 (C_{11} - C_{12})} \right) \quad (5)$$

$$U_r = br^{-1}, \quad (8)$$

$$E = E_0 \left(1 - \frac{7C_{11}}{3^2 2^4 (C_{11} - C_{12})} \right) \approx \\ \approx E_0 \left(1 - 0,0486 \frac{C_{11}}{C_{11} - C_{12}} \right), \quad (6)$$

где E_0 — полная энергия однородно деформированного гексагона, $E_0 = -a^2(3\sqrt{3}/2) \times [\gamma^2 L^4 / (C_{11} - C_{12})]$.

Проигрыш в магнитоупругой энергии гексагона из-за его неоднородной деформации представим как

$$\Delta E_d = 0,0486 \frac{3\sqrt{3}}{2} \frac{\gamma^2 L^4 C_{11}}{(C_{11} - C_{12})^2} a^2. \quad (7)$$

Для реальных значений упругих констант рассматриваемых кристаллов проигрыш (7) составит несколько процентов от E_0 . Структуру на рис. 1 можно рассматривать в качестве достаточно хорошего приближения магнитоупругих доменов в обуждаемых кристаллах.

Расположим в точке схождения трех доменов точечные растягивающие дефекты. Модуль вектора деформации такого дефекта на больших расстояниях от него убывает обратно пропорционально квадрату расстояния [13]. Величины напряжений, созданных дефектом, будут обратно пропорциональны кубу расстояния. Согласование деформации дефекта и доменов ограничит область дефекта магнитоупругими деформациями, образованными при схождении трех доменов. Это приведет к уменьшению объема области кристалла, деформируемой дефектом, и, следовательно, к уменьшению потерь энергии кристалла на дефекте. Точечные дефекты, возникающие при росте, повышают упругую энергию кристалла, а помещение в точку дефекта описанного выше узла схождения трех доменов уменьшит эту добавку к энергии кристалла, т.е. сделает многодоменное состояние предпочтительным.

Аналогичное упругое согласование можно получить, если через область схождения трех доменов проходит дисклинация, перпендикулярная легкой плоскости [13]. Оценим энергетическую выгодность окружения дисклинации доменами. Деформация, созданная дисклинацией в парамагнитной фазе, симметрична в плоскости и зависит только от расстояния r от дефекта. Вектор деформации равен [14]

где b — константа. Упругая деформация (8) приводит к проигрышу в энергии кристалла.

При окружении дефекта доменами в антиферромагнитном состоянии упругость, созданная дефектом, ограничивается объемом, определяемым из условий равенства деформации дефекта и деформации, созданной окружающими его доменами. Величину такого расстояния r_0 можно определить по формуле

$$r_0 = \left(\frac{b(C_{11} - C_{12})}{\gamma L^2} \right)^{1/2}. \quad (9)$$

Ограничение размеров упругой деформации дефекта сопровождается уменьшением его упругой энергии, а значит, приводит к выигрышу энергии кристалла в целом. Энергетический выигрыш ΔE определим, интегрируя плотность упругой энергии с деформацией (8) в пределах от r_0 к ∞ . Получим

$$\Delta E = b\gamma L^2. \quad (10)$$

Температурная зависимость выигрыша (10) подобна температурной зависимости квадрата L .

Если дефект расположен в однородной области, то его деформации должны быть согласованными с деформациями растяжения вдоль \mathbf{L} и сжатия перпендикулярно \mathbf{L} . По отношению к случаю, когда дефект расположен в точке схождения трех доменов, дефект в однородной области способствует возрастанию объема деформации, созданной дефектом, и значительной угловой зависимости положения его границ. Даже, когда согласование упругости дефекта с однородными деформациями дает энергетический выигрыш, т.е. происходит уменьшение упругой энергии на дефекте, этот выигрыш будет меньше (10), если дефект ограничен тремя доменами, как на рис. 1.

Геометрическая структура доменов, показанная на рис. 1, предполагает наличие дефектов, изотропно растягивающих кристалл в плоскости. При этом дефект не задает направлений для векторов антиферромагнетизма в доменах, сохраняя ориентационное вырождение в легкой плоскости.

Для структуры, приведенной на рис. 1, предполагалось, что кристалл расширяется вдоль диагонали гексагона, а для ее стабилизации необходимы растягивающие дефекты. Если кристалл будет расширяться вдоль направления перпендикулярного диагонали гексагона, то при схождении трех доменов образуется область сжатия. Для

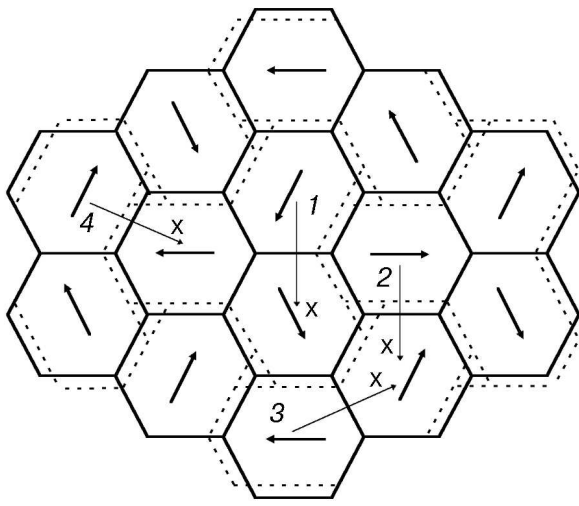


Рис. 2. Структура доменов с нескомпенсированным вектором антиферромагнетизма триады. Осями x обозначены направления переходов через стенки 1–4.

стабилизации такой структуры необходимы дефекты другого типа, например вакансии. Реальная картина доменов в кристалле будет определяться большинством растягивающих или сжимающих дефектов в кристалле.

На рис. 1 векторы антиферромагнетизма в доменах вокруг дефектов имеют различное вращение — по и против хода часовой стрелки. Для \mathbf{L} возможны два направления — вдоль оси гексагона и противоположно оси, т.е. в каждом из доменов в предложенной структуре вектор \mathbf{L} может быть независимо от соседних доменов развернут на 180° . Такая произвольность устраняется либо накладываемыми симметричными ограничениями, либо самим механизмом образования доменов, как в случае антиферромагнитных доменов, вызванных действием винтовых дислокаций [10]. Ориентация \mathbf{L} в триаде доменов на рис. 1, в каждом из которых легкоплоскостная симметрия спонтанно понижена, восстанавливает исходную симметрию кристалла. На рис. 2 изображена структура антиферромагнитных доменов, полученная при развороте на 180° вектора \mathbf{L} в одном из доменов триады. В этой структуре суммарный \mathbf{L} триады не равен нулю, а среднее значение \mathbf{L} для всего кристалла равно нулю. Но в этой структуре у части узлов нарушена симметрия. При обходе вокруг таких узлов векторы \mathbf{L} доменов не переходят друг в друга.

Доменные стенки в рассматриваемых структурах при переходе из одного домена в другой реализуются в виде симметричных и несимметричных стенок с разворотом вектора \mathbf{L} на 60° и

120° . Направления оси x , перпендикулярной плоскости стенки, для каждой из них показаны на рис. 2.

Для симметричной 60° -ной стенки (рис. 2, случай 1) граничные условия заданы ориентацией \mathbf{L} в однородном состоянии в виде $\theta = -\pi/6$, если $x = -\infty$, и $\theta = \pi/6$, если $x = +\infty$. Для несимметричной 60° -ной доменной стенки (случай 2) граничные условия на бесконечности от стенки задаются углами $\theta = \pi/2$, $\theta = \pi/2 + \pi/3$.

Симметричная 120° -ная стенка (случай 3) задается граничными условиями на бесконечности от стенки в виде $\theta = \pi - \pi/6$, $\theta = \pi/6$. Несимметричная 120° -ная стенка (случай 4) задана граничными углами $\theta = \pi/2$, $\theta = \pi + \pi/6$. Структуры на рис. 1 и 2 содержат одинаковое количество 60° -ных и 120° -ных стенок.

Плотность e_d энергии 60° -ной стенки оценим, считая, что она определяется конкуренцией обменного взаимодействия и внутрислокостной анизотропии [15]:

$$e_d = \frac{2^3}{3} L^4 \sqrt{\alpha|A|}, \quad (11)$$

где α — параметр неоднородности обменной энергии. Энергия 120° -ной стенки в два раза больше, чем (11). Температурная зависимость проигрыша энергии при образовании доменных стенок (11) определяется 4-й степенью температурной зависимости величины L .

Для равновесной реализации доменной структуры (см. рис. 1) необходимо, чтобы энергетический выигрыш (10) был больше суммы проигрышей (7) и (11). Температурная зависимость выигрыша подобна L^2 , тогда как температурная зависимость проигрыша подобна L^4 . При высоких температурах, когда величина L мала, обеспечение энергетической выгоды осуществимо почти всегда. При низких температурах может оказаться, что для обеспечения равновесной многодоменности энергии (10) недостаточно и поэтому при понижении температуры возможно исчезновение равновесной многодоменности. При малости выигрыша (10) такое поведение многодоменного состояния подобно многодоменности энтропийной природы, которая всегда исчезает при низких температурах.

В заключение отметим, что с учетом высказанных выше предположений и замечаний в рассматриваемых легкоплоскостных антиферромагнетиках одним из возможных механизмов образования магнитоупругой доменной структуры может быть механизм упругого взаимодействия спонтанно деформированных (с однородной ори-

ентацией вектора антиферромагнетизма) областей — триад с локальными в легкой плоскости дефектами, создающими в ней деформации сжатия или растяжения. Такие дефекты обеспечивая устойчивость доменной структуры, сохраняют вырожденность ориентации направлений спонтанной стрикции доменов в легкой плоскости. При этом домены будут практически ненапряженными и в целом для кристалла в многодоменном состоянии в нулевых полях будет происходить компенсация анизотропной спонтанной стрикции.

Авторы выражают благодарность С. М. Рябченко и В. М. Локтеву за плодотворные обсуждения в ходе выполнения этой работы и высказанные предложения и замечания.

1. M. K. Wilkinson, J. W. Cable, E. O. Wollan, and W. C. Koehler, *Phys. Rev.* **113**, 497 (1959).
2. М. М. Фарздинов, *УФН* **84**, 611 (1964).
3. M. E. Lines, *Phys. Rev.* **131**, 546 (1963).
4. В. М. Калита, А. Ф. Лозенко, С. М. Рябченко, П. А. Троценко, *УФЖ* **43**, 1469 (1998).
5. А. Ф. Лозенко, П. Е. Пархомчук, С. М. Рябченко, П. А. Троценко, *ФНТ* **14**, 941 (1988).
6. D. Billerey, C. Terrier, A. J. Pointon, and J. P. Redoules, *J. Magn. and Magn. Mater.* **21**, 187 (1980).
7. Y. Y. Li, *Phys. Rev.* **101**, 1450 (1956).

8. I. S. Jacobs, S. Roberts, and S. D. Silverstein, *J. Appl. Phys.* **39**, 816 (1968).
9. А. Ф. Лозенко, С. М. Рябченко, *ЖЭТФ* **65**, 1085 (1973).
10. А. С. Ковалев, А. М. Косевич, *ФНТ* **3**, 259 (1977).
11. И. Е. Дзялошинский, *Письма в ЖЭТФ* **25**, 110 (1977).
12. Е. В. Гомонай, В. М. Локтев, *ФНТ* **25**, 699 (1999).
13. А. М. Косевич, *Теория кристаллической решетки*, Вища школа, Харьков (1988).
14. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Теория упругости*, Наука, Москва (1987).
15. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Электродинамика сплошных сред*, Наука, Москва (1982).

On the magnetoelastic nature of antiferromagnetic domains in easy-plane crystals of iron-group dihaloids

V. M. Kalita and A. F. Lozenko

A structure of magnetoelastic antiferromagnetic domains in the layered easy-plane antiferromagnets of dihaloids of iron group is proposed which is made up of triad regions possessing the antiferromagnetic vectors with 120° relative orientation between neighboring regions. This domain structure can be stabilized by isotropic defects which retain the spatial degeneracy of the antiferromagnetic vector direction in the easy plane.