Вестник
МОСКОВСКОГО УНИВЕРСИТЕТА
№ 5 — 1973

УДК 538.245

А. С. ПАХОМОВ

ВАРИАЦИОННЫЙ ПРИНЦИП В ТЕОРИИ ОДНООСНОГО ФЕРРИМАГНЕТИКА

На основе вариационного принципа Н. Н. Боголюбова вычислена свободная энергия одноосного двухподрешеточного ферримагнетика, получены выражения для намагниченностей подрешеток при конечных температурах. Эти выражения эквивалентны по форме соотношениям, к которым приводит использование метода молекулярного поля, однако феноменологические константы молекулярного поля, входящие в них, явно выражены через атомные характеристики ферримагнетика, параметры обменного взаимодействия и константы анизотропии. Выведены также уравнения, позволяющие анализировать изменения магнитной структуры рассматриваемого ферримагнетика во внешнем магнитном поле.

При исследовании магнитных свойств ферримагнетиков большое значение имеет учет влияния на них магнитной кристаллографической, а также наведенной анизотропии. Основное состояние и зависимость намагниченности от температуры и поля в области низких (близких к T=0°K) температур исследовано для случая двухподрешеточного феррита в [1] с помощью метода, приближенного вторичного квантования в форме, предложенной Боголюбовым и Тябликовым [2]. Аналогичная задача была решена в [3, 4] для двухподрешеточного и в [5] для трехподрешеточного ферримагнетика с кубической анизотропией одноионного типа.

Однако для практических применений важно знать физические свойства и характеристики ферримагнетиков не только при низких и сверхнизких температурах, но и в области температур, промежуточных между 0°K и точкой Кюри. Именно в этой области температур наблюдается магнитная компенсация и связанные с ней особенности магнитных, упругих и магнитоупругих свойств. В этой области возможно также измерение предсказанных теоретически [6—8] критических полей переходов между термодинамически устойчивыми в различных интервалах внешнего поля конфигурациями намагниченностей подрешеток, поскольку с повышением температуры указанные критические поля уменьшаются [9] и достигают возможных для создания в лабораторных условиях значений.

В настоящей работе для описания поведения намагниченности одноосного двухподрешеточного ферримагнетика в зависимости от температуры и поля в области конечных температур применяется вариационный принцип для свободной энергии Боголюбова, использовавшийся ранее при рассмотрении намагниченности двухподрешеточного [10, 12] и трехподрешеточного [11] изотропных ферритов.

Гамильтониан системы и формулировка вариационной задачи

Рассмотрим монокристалл двухподрешеточного одноосного ферримагнетика с подрешетками, неэквивалентными как по числу узлов в них ($N_1 \neq N_2$), так и по величине спиновых ($S_1 \neq S_2$) и магнитных ($\mu_1 \neq \mu_2$) моментов. Будем считать, что магнитная анизотропия указанного ферримагнетика обусловлена анизотропией обменного взаимодействия между ионами внутри подрешеток и между ними. В качестве оси анизотропии выберем ось z прямоугольной системы координат, связанной с решеткой кристалла; будем полагать, что в плоскости (xy) кристалл изотропен и все направления в этой плоскости равноправны.

Гамильтониан рассматриваемой системы может быть записан в виде

$$\hat{H} = -\frac{1}{2}\sum_{\binom{f_1\neq f_2}{i}} I(f_1^{(i)}f_2^{(i)})(\hat{S}_{f_1^{(i)}}\hat{S}_{f_2^{(i)}}) - \frac{1}{2}\sum_{\binom{f_1,f_2}{i\neq j}} I(f_1^{(i)}, f_2^{(j)})(\hat{S}_{f_1^{(i)}}\hat{S}_{f_2^{(j)}}) -$$

$$-\frac{1}{2}\sum_{\binom{f_1\neq f_2}{i}} \Delta I(f_1^{(i)}, f_2^{(i)})(\hat{S}^z_{f_1^{(i)}}\hat{S}^z_{f_2^{(i)}}) - \frac{1}{2}\sum_{\binom{f_1,f_2}{i\neq j}} \Delta I(f_1^{(i)}, f_2^{(j)})(\hat{S}^z_{f_1^{(i)}}\hat{S}^z_{f_2^{(j)}}) -$$

$$-\sum_{(f,i)} \mu_i(\vec{H}\hat{S}_{f^{(i)}}). \qquad (1)$$

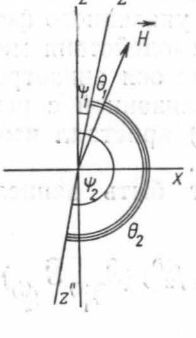
В этом выражении индексы $i, j = 1, 2$ означают номера магнитных подрешеток, $\hat{S}_{f^{(i)}}$ — спиновый оператор иона, расположенного в узле f i-той подрешетки, μ_i — магнитные моменты ионов в подрешетках, $\vec{H}$ — внешнее магнитное поле, $I(f_1^{(i)}, f_2^{(i)})$, $I(f_1^{(i)}, f_2^{(j)})$ — интегралы изотропного обменного взаимодействия ионов внутри подрешеток и между подрешетками, $\Delta I(f_1^{(i)}, f_2^{(i)})$, $\Delta I(f_1^{(i)}, f_2^{(j)})$ — анизотропные добавки к интегралам внутри- и межподрешеточного обменного взаимодействий в направлении оси z; при этом предполагается, что

$$I(f_1^{(i)}, f_2^{(j)}),\ \Delta I(f_1^{(i)}, f_2^{(j)}) < 0,$$

$$|I(f_1^{(i)}, f_2^{(j)})| > |I(f_1^{(i)}, f_2^{(i)})|,\ |\Delta I(f_1^{(i)}, f_2^{(j)})| > |\Delta I(f_1^{(i)}, f_2^{(i)})|. \qquad (2)$$

В отсутствие внешнего магнитного поля векторы средних значений спонтанных намагниченностей подрешеток при данной температуре ориентированы вдоль оси z кристалла и в силу соотношений (2) антипараллельны друг другу. Если наложить на кристалл внешнее магнитное поле $\vec{H}$ в произвольном направлении в одной из плоскостей, проходящих через ось z (в силу изотропности кристалла в плоскости (xy) в качестве такой плоскости можно выбрать (xz)), то векторы намагниченностей подрешеток $\vec{M}_i$ отклонятся от оси z, причем это отклонение произойдет в той же плоскости. Возникнут, таким образом, новые оси квантования спиновых моментов магнитных ионов в подрешетках, положение которых по отношению к оси z определяется углами ψ_1 и ψ_2.

Обозначим углы между направлением внешнего поля $\vec{H}$ и новыми осями квантования через θ_1 и θ_2 (см. рис.); очевидно, что эти углы связаны с ψ_1 и ψ_2, поскольку ψ_1 и ψ_2 полностью определяются величиной и направлением внешнего магнитного поля. Углы ψ_1 и ψ_2, определяющие равновесное положение векторов намагниченностей подрешеток ферримагнетика при данных фиксированных значениях температуры и поля, и будут первыми двумя вариационными параметрами рассматриваемой задачи.



Углы, определяющие ориентацию векторов намагниченностей подрешеток и внешнего магнитного поля в кристалле

Для того чтобы явно ввести эти углы в выражение гамильтониана системы, преобразуем с помощью преобразований поворота спиновые операторы подрешеток к новым системам координат (x', z') и (x'', z''), выбранным таким образом, что оси z' и z'' повернуты соответственно на углы ψ_1 и ψ_2 по отношению к оси z и совпадают с новыми осями квантования, а x' и x'' — перпендикулярны к ним.

Тогда гамильтониан (1) перепишется в виде:

$$\hat{H} = \hat{H}_{\text{обм}}(\psi_1, \psi_2) + \hat{H}_{\text{аниз}}(\psi_1, \psi_2) + \hat{H}_{\text{поля}}, \tag{3}$$

где

$$\hat{H}_{\text{поля}} = -\mu_1 \sum_{(f)} (H \sin\theta_1 \hat{S}_f^{x'} + H \cos\theta_1 \hat{S}_f^{z'}) - -\mu_2 \sum_{(g)} (H \sin\theta_2 \hat{S}_g^{x''} + H \cos\theta_2 \hat{S}_g^{z''}), \tag{4}$$

а $\hat{H}_{\text{обм}}(\psi_1, \psi_2)$ и $\hat{H}_{\text{аниз}}(\psi_1, \psi_2)$ имеют простой, но громоздкий вид, и поэтому в явном виде не выписываются; индексы f и g означают номера узлов в подрешетках 1 и 2.

Поскольку нас интересуют средние значения намагниченности рассматриваемого ферримагнетика при заданных значениях температуры и поля, нам необходимо вычислить свободную энергию системы, соответствующую состоянию, в котором намагниченности подрешеток ориентированы вдоль осей квантования z' и z''. Используя для этой цели вариационный принцип Боголюбова, введем еще два (по числу подрешеток) вариационных параметра α_1 и α_2 и разобьем полученный выше гамильтониан на две части:

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_1, \tag{5}$$

где

$$\hat{H}_0 = -\mu_1 \sum_{(f)} (H - \alpha_1) \hat{S}_f^{z'} \cos\theta_1 - \mu_2 \sum_{(g)} (H - \alpha_2) \hat{S}_g^{z''} \cos\theta_2, \tag{6}$$

$$\hat{H}_1 = \hat{H} - \hat{H}_0(\alpha_1, \alpha_2).$$

Тогда наилучшим приближением для истинной свободной энергии системы F будет выражение [12]:

$$F \simeq \min F_{\text{мод}} = F_0 + \frac{\operatorname{Sp} \widehat{H}_1 e^{-\widehat{H}_0/\vartheta}}{\operatorname{Sp} e^{-\widehat{H}_0/\vartheta}},$$

$$F_0 = -\vartheta \ln \operatorname{Sp} e^{-\widehat{H}_0/\vartheta}, \ \vartheta = k_B T, \tag{7}$$

минимизация которого проводится по всем введенным выше четырем вариационным параметрам α_1, α_2 и ψ_1, ψ_2 (или эквивалентным им θ_1 и θ_2).

Вычисление свободной энергии, вариационных параметров и намагниченности

Предположим, что внутри подрешеток спины параллельны друг другу и соответствующие спиновым операторам классические векторы не зависят от индекса узла. Тогда можно ввести суммы по решетке:

$$I_{11} = \sum_{(f_2)} I(f_1, f_2),\ I_{22} = \sum_{(g_2)} I(g_1, g_2),\ I_{12} = \sum_{(g)} I(f, g);$$

$$I_{21} = \sum_{(f)} I(f, g),\ \Delta I_{11} = \sum_{(f_2)} \Delta I(f_1, f_2),\ \Delta I_{22} = \sum_{(g_2)} \Delta I(g_1, g_2),$$

$$\Delta I_{12} = \sum_{(g)} \Delta I(f, g),\ \Delta I_{21} = \sum_{(f)} \Delta I(f, g), \tag{8}$$

$$N_1 I_{12} = N_2 I_{21} \text{ и } N_1 \Delta I_{12} = N_2 \Delta I_{21}.$$

Так как часть гамильтониана $\widehat{H}_0$ представляет собой сумму гамильтонианов для каждого отдельного узла, $\operatorname{Sp} e^{-\widehat{H}_0/\vartheta}$ вычисляется просто [12].

При вычислении $\operatorname{Sp} \widehat{H}_1 e^{-\widehat{H}_0/\vartheta}$ в силу сделанного выше выбора $\widehat{H}_0$ отличный от нуля вклад в указанную сумму дадут только те элементы, которые в качестве множителей перед $e^{-\widehat{H}_0/\vartheta}$ содержат члены $\widehat{H}_1$, линейные или квадратичные по $\widehat{S}_f^{z'}$ и $\widehat{S}_g^{z''}$. Несложные, но громоздкие вычисления приводят тогда к следующему выражению для модельной свободной энергии рассматриваемого нами ферримагнетика:

$$F_{\text{мод}} = -\vartheta N_1 \ln \left[\frac{\operatorname{sh}\left(\frac{2\sigma_1 + 1}{2} x\right)}{\operatorname{sh}\left(\frac{x}{2}\right)} \right] - \vartheta N_2 \ln \left[\frac{\operatorname{sh}\left(\frac{2\sigma_2 + 1}{2} y\right)}{\operatorname{sh}\left(\frac{y}{2}\right)} \right] -$$

$$- N_1 \mu_1 \alpha_1 \cos\theta_1 \overline{S}_1^{z'} - N_2 \mu_2 \alpha_2 \cos\theta_2 \overline{S}_2^{z''} - \frac{1}{2} N_1 I_{11} (\overline{S}_1^{z'})^2 -$$

$$- \frac{1}{2} N_2 I_{22} (\overline{S}_2^{z''})^2 - \frac{1}{2} (N_1 I_{12} + N_2 I_{21}) \cos(\psi_2 - \psi_1) \overline{S}_1^{z'} \overline{S}_2^{z''} -$$

$$- \frac{1}{2} N_1 \Delta I_{11} \cos^2\psi_1 (\overline{S}_1^{z'})^2 - \frac{1}{2} N_2 \Delta I_{22} \cos^2\psi_2 (\overline{S}_2^{z''})^2 -$$

$$- \frac{1}{2} (N_1 \Delta I_{12} + N_2 \Delta I_{21}) \cos\psi_1 \cos\psi_2 \overline{S}_1^{z'} \overline{S}_2^{z''}, \tag{9}$$

где

$$\overline{S}_1^{z'} = \frac{2\sigma_1 + 1}{2} \operatorname{cth}\left(\frac{2\sigma_1 + 1}{2} x\right) - \frac{1}{2} \operatorname{cth}\left(\frac{x}{2}\right), \tag{10}$$

$$\overline{S}_2^{z''} = \frac{2\sigma_2+1}{2}\,\mathrm{cth}\left(\frac{2\sigma_2+1}{2}\,y\right) - \frac{1}{2}\,\mathrm{cth}\left(\frac{y}{2}\right),$$

$$x = \frac{1}{\vartheta}\,\mu_1 (H - \alpha_1)\cos\theta_1,\quad y = \frac{1}{\vartheta}\,\mu_2 (H - \alpha_2)\cos\theta_2, \tag{11}$$

а σ_i — максимальные значения спиновых моментов ионов в подрешетках.

Определим вариационные параметры α_1 и α_2, минимизируя $F_{\text{мод}}$ по этим параметрам. Из условий

$$\frac{\partial F_{\text{мод}}}{\partial \alpha_i} = 0 \text{ и } i = 1, 2 \tag{12}$$

получаем

$$-\alpha_i\mu_i\cos\theta_i = I_{ii}(\overline{S}_i^{z_i}) + I_{ij}\cos(\psi_j - \psi_i)(\overline{S}_j^{z_j}) +$$
$$+ \Delta I_{ii}\cos^2\psi_i(\overline{S}_i^{z_i}) + \Delta I_{ij}\cos\psi_i\cos\psi_j(\overline{S}_j^{z_j}), \tag{13}$$

где $z_1 = z'$, $z_2 = z''$.

Учитывая эквивалентность ионов, занимающих узлы каждой из подрешеток, введем определение намагниченностей подрешеток при данной температуре M_i и при $T = 0°$K M_{i0}:

$$M_i = N_i\mu_i(\overline{S}_i^{z_i}),\quad M_{i0} = N_i\mu_i\sigma_i,\quad i = 1, 2\,, \tag{14}$$

Тогда, учитывая выражения (10) для $\overline{S}_i^{z_i}$ и (11) для x и y с подставленными в них выражениями α_1 и α_2 (13), запишем формулы для намагниченностей подрешеток, ориентированных при данном фиксированном поле H соответственно в направлениях z' и z'' под углами ψ_1 и ψ_2 относительно оси анизотропии кристалла:

$$M_i = M_{i0}B_i(w_i), \tag{15}$$

где

$$w_i = \frac{1}{\vartheta}\left[\mu_i H\cos\theta_i + \sum_{j=1}^{2}\frac{I_{ij}}{\mu_j N_j}M_j\cos(\psi_j - \psi_i) + \right.$$
$$\left. + \sum_{j=1}^{2}\frac{\Delta I_{ij}}{\mu_j N_j}M_j\cos\psi_i\cos\psi_j,\quad i, j = 1, 2, \ldots, \right. \tag{16}$$

а

$$B_i(w_i) = \frac{2\sigma_i+1}{2\sigma_i}\,\mathrm{cth}\left(\frac{2\sigma_i+1}{2}\,w_i\right) - \frac{1}{2\sigma_i}\,\mathrm{cth}\left(\frac{1}{2}\,w_i\right) \tag{17}$$

функция Бриллюэна.

Полученные для намагниченностей подрешеток уравнения (16) эквивалентны соответствующим уравнениям теории молекулярного поля. Однако в них в отличие от феноменологических выражений константы молекулярного поля явно выражены через атомные характеристики кристалла (μ_i, σ_i, N_i), параметры внутри- и межподрешеточного обменного взаимодействия (I_{ii}, I_{ij}) и константы анизотропии ΔI_{ij}. Параметры обменного взаимодействия являются постоянными, не зависящими от температуры и поля, константы же анизотропии неявно зависят от указанных переменных, и это обстоятельство необходимо учитывать при сравнении теории с экспериментальными данными.

Как следует из (15) и (16), величина намагниченностей подрешеток ферримагнетика определяется как температурой, так и внешним магнитным полем, наложенным на кристалл. Ориентация же намагниченностей подрешеток по отношению к кристаллографическим осям при заданных параметрах μ_i, N_i, I_{ij}, ΔI_{ij} зависит только от величины и направления внешнего поля. Равновесные значения углов ψ_1 и ψ_2 (или эквивалентных им θ_1 и θ_2) можно найти путем минимизации свободной энергии (10) по этим углам с учетом связи, существующей между ψ_i и θ_i. Не решая указанную задачу в общем виде, рассмотрим два частных случая.

1. Внешнее поле направлено вдоль оси анизотропии кристалла:

$$H \parallel Oz, \ \varphi_1 = \psi_1, \ \psi_2 = \theta_2. \tag{18}$$

Тогда, заменяя ψ_i в (10) их значениями (18), из условия

$$\frac{\partial F_{\text{мод}}}{\partial \theta_i} = 0, \ \ (i = 1, 2) \tag{19}$$

получаем следующую систему уравнений:

$$\begin{gathered} M_i H \sin \theta_i - \lambda M_i M_j \sin (\theta_j - \theta_i) + \varkappa_{ii} M_i^2 \sin \theta_i \cos \theta_i + \\ + \varkappa_{ij} M_i M_j \sin \theta_i \cos \theta_j = 0, \quad i, j = 1, 2, \end{gathered} \tag{20}$$

где

$$\lambda = \frac{I_{ij}}{N_j \mu_i \mu_j}, \ \ \varkappa_{ii} = \frac{\Delta I_{ii}}{N_i \mu_i^2}, \tag{21}$$

$$\varkappa_{ij} = \frac{\Delta I_{ij}}{N_j \mu_i \mu_j},$$

а M_i определяются выражениями (15).

Система уравнений (20) имеет три возможных решения:

$$\begin{array}{ll} \theta_1 = 0, & \theta_2 = \pi, \\ \theta_1 = \theta_1 (H), & \theta_2 = \theta_2 (H), \\ \theta_1 = 0, & \theta_2 = 0, \end{array} \tag{22}$$

соответствующих антипараллельному расположению $\vec{M}_1$ и $\vec{M}_2$ вдоль оси z в слабых полях, переходной, наведенной полем, неколлинеарной структуре и полному насыщению, достигаемому в сильных полях. Из уравнений (20) следует также, что неколлинеарная магнитная структура может в принципе существовать и в отсутствие магнитного поля, однако при этом должны выполняться вполне определенные соотношения между параметрами обменного взаимодействия и константами анизотропии.

2. Внешнее поле направлено перпендикулярно оси анизотропии

$$H \parallel Ox, \ \psi_1 = \frac{\pi}{2} - \theta_1, \ \psi_2 = \frac{\pi}{2} + \theta_2. \tag{23}$$

В этом случае из условий (19) получается такая система уравнений:

$$\begin{gathered} M_i H \sin \theta_i + \lambda M_i M_j \sin (\theta_i + \theta_j) - \varkappa_{ij} M_i^2 \sin \theta_i \times \\ \times \cos \theta_i + \varkappa_{ij} M_i M_j \sin \theta_j \cos_i = 0, \quad ij = 1, 2, \end{gathered} \tag{24}$$

которая также имеет три решения вида (22). Однако первое из этих решений описывает состояние, реализующееся не в слабых полях, а, как показано в [1], в поле, равном полю анизотропии, когда намагниченности подрешеток, практически сохраняя антипараллельность за счет сильного отрицательного межподрешеточного обменного взаимодействия, вытягиваются под действием поля вдоль его направления (ось Ox). Далее с возрастанием напряженности поля возникает наведенная полем неколлинеарная структура, определяемая вторым решением, и, наконец, в сильных полях наступает полное насыщение вдоль оси.

К сожалению, строгое аналитическое решение систем уравнений (20) и (24) невозможно, и это существенно затрудняет анализ характера магнитных фазовых переходов от коллинеарных структур к неколлинеарным. Однако возможны приближенные и численные решения, реальность которых может быть установлена путем сравнения с надежными экспериментальными данными.

Автор признателен Р. З. Левитину за полезное обсуждение вопросов, затронутых в настоящей работе.

ЛИТЕРАТУРА

1. Яковлев Е. Н. «Физика металлов и металловедение», **6**, 976, 1958.
2. Боголюбов Н. Н., Тябликов С. В. ЖЭТФ, **19**, 256, 1949.
3. Perthel R. Monatsber. Dtsch. Akad. Wiss., **5**, 611, 1963.
4. Perthel R. Monatsber. Dtsch. Akad. Wiss., **6**, 499, 1964.
5. Пахомов А. С., Гербутов В. А. «Физика твердого тела», **13**, 10, 1971.
6. Тябликов С. В. «Физика металлов и металловедение», **3**, 3, 1956.
7. Гусев А. А. «Кристаллография», **4**, 695, 1959.
8. Пахомов А. С., Гусев А. А. «Физика металлов и металловедение», **18**, 156, 1964.
9. Clark A. E., Callen E. R. J. Appl. Phys., **39**, 5972, 1968.
10. Гусев А. А. «Кристаллография», **5**, 420, 1960.
11. Гусев А. А., Пахомов А. С. «Кристаллография», **8**, 63, 1963.
12. Тябликов С. В. Методы квантовой теории магнетизма. М., 1965.

Поступила в редакцию
27.1 1971 г.

Кафедра
общей физики для биологов