

УДК 537.622

PACS number(s): 75.50.Ee, 75.60.-d

## НЕЗВИЧАЙНА ПОВЕДІНКА НАМАГНІЧЕНОСТІ $\text{Sr}_2\text{Cu}_3\text{O}_4\text{Cl}_2$ : КОНКУРЕНЦІЯ ФЕРО- ТА АНТИФЕРОМАГНІТНИХ ДОМЕНІВ

Є. Корнієнко, О. Гомонай

*Національний технічний університет України „КПІ”  
кафедра загальної та теоретичної фізики  
пр. Перемоги, 37, Київ 03056, Україна  
e-mail: kornienko@i.ua*

У феромагнітних кристалах та компенсованих антиферомагнетиках намагніченість зразка завжди паралельна до зовнішнього магнітного поля. На відміну від такої звичайної поведінки, у слабкому феромагнетик  $\text{Sr}_2\text{Cu}_3\text{O}_4\text{Cl}_2$  спостерігали макроскопічний магнітний момент, перпендикулярний до зовнішнього поля. У цій статті запропоновано феноменологічну модель для опису такої незвичайної поведінки намагніченості. Показано, що виникнення доменів з перпендикулярною до поля намагніченістю зумовлене наявністю внутрішніх напруг, індукованих антиферомагнітним упорядкуванням. Утворення структури, що складається з доменів з різною орієнтацією векторів феро- та антиферомагнетизму є вигідним з енергетичного погляду, оскільки зменшує енергію роздеформування кристала. Розраховані польові залежності паралельної та перпендикулярної до поля компонент намагніченості добре узгоджуються з наявними експериментальними даними.

*Ключові слова:* слабкий феромагнетик, енергія роздеформування, доменна структура.

Відомо, що форма зразка впливає на макроскопічні властивості феромагнетиків (ФМ) та компенсованих антиферомагнетиків (АФМ). Зокрема, вона призводить до виникнення рівноважної доменної структури (ДС) та перебудови її у зовнішньому магнітному полі. У випадку ФМ формування ДС зумовлене необхідністю зменшити енергію розмагнічування [1], що має виключно магнітне походження, а у випадку АФМ – енергію роздеформування, з магнітопружністю [2]. Проте проблема опису доменної структури у речовинах, в яких окрім магнітного порядку наявні наведені АФМ упорядкуванням спонтанні деформації, досі залишається відкритою.

У статті ми вивчаємо конкуренцію процесів роздеформування та розмагнічування на прикладі кристала слабого феромагнетика  $\text{Sr}_2\text{Cu}_3\text{O}_4\text{Cl}_2$ , який у температурному діапазоні від 40 до 380 К має як ФМ (вектор намагніченості  $\mathbf{M}_F$ ), так і АФМ (вектор АФМ  $\mathbf{L}$ ) упорядкування на різних підгратках іонів  $\text{Cu}^{2+}$  (див. рис.1). Завдяки сильному обмінному зв'язку між ФМ і АФМ підгратками,

вектори  $\mathbf{M}_F$  і  $\mathbf{L}$  взаємноперпендикулярні і залишаються такими навіть у зовнішньому полі [3].

Магнітну структуру нескінченного (без урахування форми) кристала визначають з умови мінімуму термодинамічного потенціалу [4] відносно компонент усіх магнітних векторів. В полях, значно менших від поля спін-фліпа ефективний потенціал може набути вигляду

$$\Phi_{\text{homo}} = \int \left\{ -\frac{J_1^2}{J_A} [\mathbf{L} \times \mathbf{M}_F]^2 - \frac{1}{4} K_A (L_x^4 + L_y^4) - \mathbf{H} \mathbf{M}_F - \frac{1}{2J_A} [\mathbf{L} \times \mathbf{H}]^2 \right\} dV. \quad (1)$$

Тут  $J_A$ ,  $J_1$  – обмінна енергія АФМ підгратки та енергія обміну між ФМ і АФМ підгратками, відповідно,  $K_A$  – стала магнітної анізотропії, яка враховує тетрагональну симетрію кристалічної ґратки. Ми вважаємо, що завдяки сильній анізотропії “легка площина”, всі магнітні вектори розташовані у площині XY. Перший доданок в (1) визначає взаємну орієнтацію векторів  $\mathbf{M}_F$  і  $\mathbf{L}$ , 3-й і 4-й – Зеєманівську енергію ФМ та АФМ підґраток, відповідно.

Аналіз виразу (1) за умови  $J_A \gg J_1 \gg K_A$  свідчить, що за відсутності поля є 4 типи еквівалентних доменів з перпендикулярною орієнтацією АФМ вектора  $\mathbf{L}$  вздовж осей  $\mathbf{X}$  та  $\mathbf{Y}$  та антипаралельною орієнтацією ФМ вектора  $\mathbf{M}_F$  (уздовж  $\mathbf{Y}$ ,  $-\mathbf{Y}$  та  $\mathbf{X}$ ,  $-\mathbf{X}$ , відповідно, див. рис.1). Ці ж чотири типи доменів можуть існувати і в зовнішньому полі, прикладеному паралельно до одної з легких осей  $\mathbf{X}$  або  $\mathbf{Y}$ , але домени з  $\mathbf{M}_F \uparrow \uparrow \mathbf{H}$  відповідають меншому значенню потенціалу  $\Phi_{\text{homo}}$ . Межі стійкості метастабільних станів з  $\mathbf{M}_F \uparrow \downarrow \mathbf{H}$  та  $\mathbf{L} \parallel \mathbf{H}$  визначаються, відповідно, умовами

$$H \geq -H_{\text{FM}} = -\frac{J_1^2}{J_A} L^2 M_F, H \geq -H_{\text{AFM}} = -\sqrt{K_A J_A} L. \quad (2)$$

Для визначення рівноважної доменної структури за наявності зовнішнього магнітного поля  $\mathbf{H}$  у термодинамічному потенціалі зразка

$$\Phi = \Phi_{\text{homo}} + \Phi_{\text{stray}} + \Phi_{\text{dest}}$$

варто урахувати енергію розмагнічування

$$\Phi_{\text{stray}} = \frac{V}{2} [N_1 \langle M_{Fx} \rangle^2 + N_2 \langle M_{Fy} \rangle^2] \quad (3)$$

та енергію роздеформування [2]

$$\Phi_{\text{dest}} = V [K_{11} \langle L_x \rangle^2 + K_{22} \langle L_y \rangle^2 + 2K_{12} \langle L_x \rangle \langle L_y \rangle], \quad (4)$$

де  $N_i$ , та  $K_{ij}$  ( $i, j=1, 2$ ) – залежні від форми коефіцієнти розмагнічування та роздеформування, відповідно, а кутові дужки означають усереднення за об'ємом кристала. В виразах (3)–(4) ми припустили, що зразок вирізано у формі прямокутної пластинки, перпендикулярної до осі  $\mathbf{Z}$ , бокові грані пластини паралельні осям  $\mathbf{X}$  та  $\mathbf{Y}$ .

Очевидно, що далекосяжні доданки (3) та (4) невід'ємні і пропорційні до об'єму кристала і самі собою досягають мінімуму за рівноймовірного розподілу всіх типів доменів, коли всі середні величини в (3), (4) дорівнюють нулю. Магнітне поле  $\mathbf{H}$  прикладене паралельно до однієї з “легких” осей ( $\mathbf{X}$ ), сприяє переважному формуванню домену, в якому  $\mathbf{M}_F \uparrow \uparrow \mathbf{H} \perp \mathbf{L}$ . Фактична частка доменів різних типів визначається співвідношенням між коефіцієнтами  $N_i$  та  $K_{ij}$  та між ФМ та АФМ складовими Зеєманівської енергії (див. (1)). Теоретично можливі чотири граничні випадки:

1.  $N_i \gg K_{ij}$  (магнітопружна взаємодія нехтовно мала) і  $M_F \gg L^2 H / J_A$  (Зеєманівська енергія АФМ нехтовно мала). Це, фактично, випадок “чистого” феромагнетика, в якому доменна структура визначається лише процесами розмагнічування, а макроскопічна намагніченість – конкуренцією доменів з  $\mathbf{M}_F \uparrow \uparrow \mathbf{H}$  та  $\mathbf{M}_F \uparrow \downarrow \mathbf{H}$ .
2. Повністю протилежний до п.1 випадок “чистого” АФМ з  $M_F^2 N_i \ll K_{ij}$  і  $M_F \ll L^2 H / J_A$ . Доменну структуру визначають конкуренцією доменів з  $\mathbf{L} \perp \mathbf{H}$  і  $\mathbf{L} \parallel \mathbf{H}$ , а макроскопічна намагніченість нехтовно мала.
3. У майже “чистому” АФМ ( $M_F \ll L^2 H / J_A$ ) з нехтовно малою магнітопружністю ( $N_i \gg K_{ij}$ ) доменна структура не виникає, оскільки вектор  $\mathbf{L}$  не створює макроскопічних полів магнітної природи.
4. Якщо взаємодія з магнітним полем відбувається через ФМ підсистему ( $M_F \gg L^2 H / J_A$ ), і магнітопружні ефекти суттєві ( $N_i M_F^2 \ll K_{ij}$ ), то доменну структуру визначають конкуренцією доменів з  $\mathbf{M}_F \parallel \mathbf{H}$  та  $\mathbf{M}_F \perp \mathbf{H}$ , а макроскопічна намагніченість може мати складові як вздовж, так і перпендикулярно до зовнішнього магнітного поля.

Ми припускаємо, що у кристалі  $\text{Sr}_2\text{Cu}_3\text{O}_4\text{Cl}_2$  в полях  $HL \ll J_A$  реалізується саме четвертий випадок, оскільки а)  $M_F \propto L$  [3, 4] і отже  $M_F \gg L^2 H / J_A$ ; б) експеримент [3] свідчить про самодовільне виникнення доменів з  $\mathbf{M}_F \perp \mathbf{H}$ . Розглянемо цю ситуацію детально.

Проаналізувавши вирази (1), (4) робимо висновок, що у полі, величина якого  $H \geq H_{MD} = 2|K_{22} - K_{12}| / M_F \propto H_{AFM}$ , енергетично вигідним є монодомений стан з  $\mathbf{M}_F \uparrow \uparrow \mathbf{H} \perp \mathbf{L}$ . При  $H \leq H_{MD}$  завдяки ефектам роздеформування виникають області з  $\mathbf{L} \parallel \mathbf{H}$  і доменна структура охоплює домени двох, трьох або чотирьох типів. В ідеальному випадку строгої колінеарності  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{X}$  утворення доменів з  $\mathbf{L} \parallel \mathbf{H}$  і протилежними напрямками намагніченості  $\mathbf{M}_F \perp \mathbf{H}$  рівноймовірне. При цьому середня намагніченість зразка має лише одну компоненту, паралельну до  $\mathbf{H}$ . Однак, за незначного скосу, поля виродження доменів з  $\mathbf{M}_F \perp \mathbf{H}$  знімаються і намагніченість зразка має дві ненульові компоненти, паралельну та перпендикулярну до поля:

$$\frac{M_{\parallel}}{M_F} = \frac{4(K_{11} - K_{12}) + 2M_F H + H^2 / J_A}{4(K_{11} + K_{22} - 2K_{12})}, \quad \frac{M_{\perp}}{M_F} = \frac{4(K_{22} - K_{12}) - 2M_F H - H^2 / J_A}{4(K_{11} + K_{22} - 2K_{12})}. \quad (5)$$

Під час зміни напрямку  $\mathbf{H}$  на протилежний ( $H < 0$ ) можуть конкурувати домени трьох типів: з  $\mathbf{M}_F \uparrow \uparrow \mathbf{H}$ ,  $\mathbf{M}_F \uparrow \downarrow \mathbf{H}$ , і з  $\mathbf{M}_F \perp \mathbf{H}$ . Реальна доменна структура залежить від способу зміни поля і якості зразка. Якщо поле зменшується неперервно з боку великих значень  $H \geq H_{MD}$ , як це видно з рис.2, у зразку наявні домени лише двох типів і частка домена з  $\mathbf{M}_F \perp \mathbf{H}$  збільшується, оскільки він має меншу Зеєманівську енергію. Однак, за умови досягнення критичного значення  $H = -\min\{H_{AFM}, H_{MD}\}$  метастабільний стан з  $\mathbf{M}_F \perp \mathbf{H}$  втрачає стійкість і система стрибком зазнає нового стану з паралельними  $\mathbf{M}_F$  і  $\mathbf{H}$ .

Залежність паралельної та перпендикулярної до поля компонент намагніченості, розрахована на основі описаної моделі (в припущенні  $K_{11} = K_{22}$ ,  $K_{11} + K_{22} - 2K_{12} = K$ ), зображена на рис. 2. Ці залежності якісно відтворюють незвичайну поведінку намагніченості кристала  $\text{Sr}_2\text{Cu}_3\text{O}_4\text{Cl}_2$ , яка простежена [3] під час циклювання зразка в полях порядку 1 Тл.

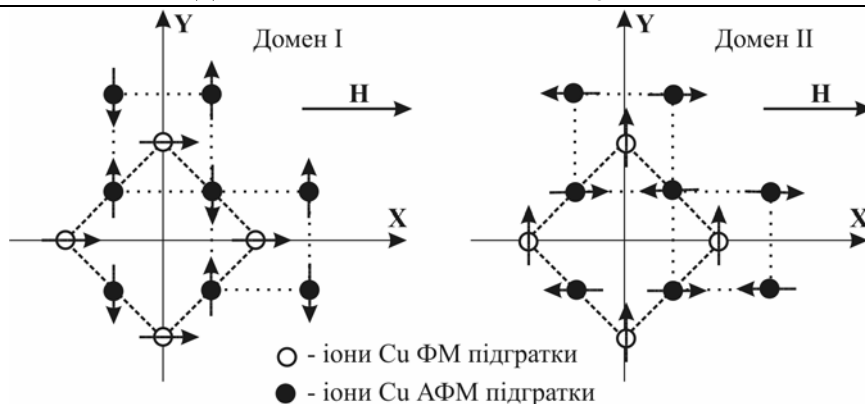


Рис. 1. Шар  $\text{Cu}_3\text{O}_4$  з двома магнітними підґратками (ФМ та АФМ). Показано дві доменні конфігурації з  $L||Y$  (домен I) та  $L||X$  (домен II)

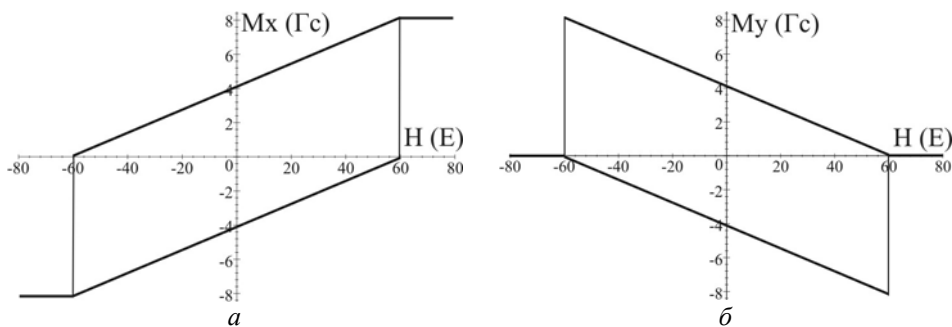


Рис. 2. Польові залежності намагніченості ( $a$  – по полю,  $b$  – перпендикулярно до поля), розраховані за формулами (5) за  $1/J_d = 0,65 \cdot 10^{-10} \text{ см}^3/\text{ерг}$ ,  $M_F = 8 \text{ Гс}$ ,  $K = 5 \cdot 10^2 \text{ ерг}/\text{см}^3$

На підставі розвинутої моделі можна зробити такі висновки:

1. У кристалі з суттєвим магнітопружним зв'язком і значним внеском у Зеєманівську енергію феромагнітної підсистеми можлива конкуренція доменів з  $\mathbf{M}_F \perp \mathbf{H}$  і  $\mathbf{M}_F \uparrow \mathbf{H}$ , що призводить до спонтанного виникнення перпендикулярної до зовнішнього поля компоненти намагніченості під час перемагнічування зразка з боку великих (більших поля монодомінації) значень поля.
2. Незвичайна поведінка намагніченості у кристалі  $\text{Sr}_2\text{Cu}_3\text{O}_4\text{Cl}_2$  в зовнішньому магнітному полі свідчить про існування сильного магнітопружного зв'язку у цьому кристалі.

1. *Kittel Ch.* Physical theory of ferromagnetic domains // *Rev. Mod. Phys.* 1949. Vol. 21. N 4. P. 541–583.
2. *Gomonay H., Loktev V.* Mechanism of formation of the equilibrium domain structure in crystals undergoing thermoelastic phase transitions // *Phys. Status Solidi.* 2005. Vol. 47. N 9. P. 1755–1760.
3. *Parks B., Kastner M., Kim Y., Harris A., Chou F.* et al. Magnetization measurements of antiferromagnetic domains in  $\text{Sr}_2\text{Cu}_3\text{O}_4\text{Cl}_2$  // *Phys. Rev. B.* 2001. Vol. 63. N 13. P. 134433(10).
4. *Kastner M., Aharony A., Birgeneau R., Chou F.* et al. Field-dependent antiferromagnetism and ferromagnetism of two copper sublattices in  $\text{Sr}_2\text{Cu}_3\text{O}_4\text{Cl}_2$  // *Phys. Rev. B.* 1999. Vol. 59. N 22. P. 14702–14711.

### UNUSUAL MAGNETIZATION BEHAVOUIR IN $\text{Sr}_2\text{Cu}_3\text{O}_4\text{Cl}_2$ : COMPETITION BETWEEN FERRO-&ANTIFERROMAGNETIC DOMAINS

Ie. Korniyenko, O. Gomonay

*National Technical University of Ukraine “KPI”,  
Common and Theoretical Physics Department,  
37, Peremogy Ave., UA-03056 Kyiv, Ukraine,  
e-mail: [kornienko@i.ua](mailto:kornienko@i.ua)*

In the ferromagnetic crystals and the compensated antiferromagnets the magnetization of a sample is always oriented along the external magnetic field. In contrast to this *usual* behavior the magnetic moment in the weak ferromagnet  $\text{Sr}_2\text{Cu}_3\text{O}_4\text{Cl}_2$  is oriented perpendicularly to external field. In the present paper we propose the phenomenological model that describes this *unusual* behavior. It is shown that the origin of the domains with magnetization perpendicular to the field direction is due to the presences of the internal stresses induced by antiferromagnetic ordering. Origin of the structure that includes domains with differently oriented ferromagnetic and antiferromagnetic vectors is favorable from energetic point of view, because it decreases the destressing energy. The calculated field dependencies of the magnetization components parallel and perpendicular to field are in good agreement with the available experimental data.

*Key words:* weak ferromagnet, destressing energy, domain structure.

Стаття надійшла до редколегії 18.06.2007  
Прийнята до друку 08.07.2008