Письма в ЖЭТФ, том 40, вып. 7, стр. 290 –293 *10 октября 1984 г.*

СЕГНЕТОМАГНИТНОЕ И ТОРОИДНОЕ УПОРЯДОЧЕНИЯ

Ю.А.Артамонов А.А.Горбацевич, Ю.В.Копаев

Обсуждается возможность реализации тороидного упорядочения несобственного типа в сегнетомагнетиках. Характерным его проявлением должно быть усиление диамагнитных эффектов. Сформулированы уравнения магнитостатики, в частности, описывающие диамагнетизм тороидного состояния.

1. Недавно был предсказан и теоретически изучен новый тип упорядочения в твердом теле – тороидное то́ковое состояние ТТС [1–3]. Параметром порядка в этом состоянии является плотность тороидного момента $\mathbf{T}(\mathbf{r})$, а сопряженным полем – электрический ток $\mathbf{j}(\mathbf{r})$. При фазовом переходе второго рода в точке перехода расходится отклик на $\mathbf{j}(\mathbf{r})$. Симметрия полярного вектора $\mathbf{T}(\mathbf{r})$, меняющего знак при инверсии времени (существование такого вектора допускается в 31 классе магнитной симметрии (см., например, [3])), приводит к наличию магнитоэлектрического эффекта в ТТС. Анализ микроскопической модели (ссылки см. в [4]) показывает, что, помимо перехода собственно в ТТС, весьма вероятным является реализация ТТС в доменных стенках магнетиков орбитального типа и полупроводниковых сегнетоэлектриков, когда сегнетоэлектричество возникает за счет кулоновского или электрон-фононного взаимодействия (вибронная модель, как частный слу -

чай). В настоящей работе показано, что при сосуществовании сегнетоэлектричества и магнетизма, имеющем место в сегнетомагнетиках, появление тороидного момента является неизбежным, причем во всем объеме, а не только в доменных стенках. Указанием на появление ТТС на фоне сегнетомагнитного упорядочения может быть усиление диамагнитных эффектов. Ниже сформулированы уравнения магнитостатики и граничные условия к ним, позволяющие, в частности, дать описание и диамагнетизма ТТС.

2. Классы магнитной симметрии, в которых разрешен вектор тороидного момента в принципе допускают существование и других типов магнитных параметров порядка – магнитного момента или антиферромагнитного вектора. Поэтому знания симметрии вещества недостаточно для однозначного решения вопроса о реализации ТТС или же какого-либо другого типа магнитного упорядочения. Есть все основания полагать, что, по крайней мере, в одном классе веществ упорядочения по тороидному и по магнитному моменту сосуществуют. Речь идет о сегнетомагнетиках (см., например, [5]). В сегнетомагнетиках в меру наличия поляризации **P** и орбитальной компоненты магнитного момента **M** в системе наводится тороидный момент

$$\mathbf{T} \sim [\mathbf{P}\,\mathbf{M}]. \qquad (1)$$

Переход в ТТС при этом реализуется как несобственный. Отличительное свойство ТТС – его диамагнитная реакция на внешнее магнитное поле. Этот факт был установлен в [6] для случая плавных пространственных изменений **T(r)**. Ниже показано, что ТТС является диамагнетиком при любых сколь угодно резких (скачкообразных) пространственных изменений **T(r)**. Однако диамагнитная компонента магнитного отклика, возникающая одновременно с появлением **T(r)** (1), может быть замаскирована преобладающей парамагнитной компонентой отклика, связанной с магнитным упорядочением **M**. Тем не менее при достаточно низких температурах в фиксированном внешнем поле, либо в достаточно сильных полях при заданной температуре, когда индуцированный парамагнитный момент выходит на насыщение, тороидная диамагнитная компонента может стать преобладающей и суммарный момент образца начнет уменьшаться с понижением температуры. Характерное для ТТС поведение в сильном магнитном поле наблюдалось в эксперименте на никель-йодистом бораците ($Ni_3B_7O_{13}I$) [7]. В работе [7] было обнаружено, что при определенной ориентации внешнего магнитного поля по отношению к кристаллическим осям, начиная с некоторого критического значения поля, индуцированный магнитный поток через образец становится отрицательным. Существование критического значения величины магнитного поля можно объяснить следующим образом. Для обеспечения достаточно высокого значения диамагнитной восприимчивости необходима высокая концентрация областей неоднородности тороидного момента. Роль таких областей могут играть границы сегнетоэлектрических доменов в сегнетомагнетике, плотность которых может возрастать при увеличении магнитного поля из-за наличия в функционале свободной энергии члена $|(H^0 \vec{\nabla}_n)P|^2$ ($\vec{\nabla}_n$ – градиент в некотором, заданном симметрией кристалла направлении **n**) [8]. В никель-йодистом бораците наблюдалось также уменьшение наведенного магнитного момента с понижением температуры [9]. Отметим, что аналогичное поведение магнитной восприимчивости будет иметь место и в случае образования ТТС не во всем объеме образца, а только в области доменной стенки сегнетоэлектрика [2].

Необходимо отметить, что возможна обратная (1) ситуация, когда несобственным является упорядочение по магнитному моменту, возникающее в результате собственного перехода в ТТС:

$$\mathbf{M} \sim [\mathbf{T}\mathbf{P}]. \qquad (2)$$

Вектор **P** при этом не обязательно должен быть вектором поляризации. Роль вектора **P** может играть и вектор смещения при структурном переходе с потерей центра инверсии. Если переход с образованием **P** происходит раньше, чем переход в ТТС, то магнитная восприимчивость из-за наличия кубического по **P**, **T** и **H** инварианта будет изменяться по закону

Кюри – Вейсса только ниже температуры перехода в состояние с $\mathbf{P} \neq 0$, претерпевая излом в точке перехода. Такое поведение магнитной восприимчивости обнаружено в $GaMo_6S_8$ [10], где появлению ферромагнитного упорядочения предшествует структурный переход. Поскольку в $GaMo_6S_8$ отсутствуют магнитные ионы, объяснение ферромагнетизма этого соединения естественно искать в рамках модели коллективизированных электронов. Спиновый ферромагнетизм на коллективизированных электронах (см., например, [11]) возникает лишь в меру наличия избыточных носителей заряда, т. е. ферромагнитная фаза обладает проводимостью металлического типа. Несобственный орбитальный ферромагнетизм в ТТС, напротив, не требует легирования полупроводника, что является существенным для экспериментальной идентификации ТТС. Вопрос о типе проводимости $GaMo_6S_8$ в настоящее время, насколько нам известно, остается открытым.

3. ТТС в магнитном поле представляет собой ситуацию, для описания которой принципиальным является учет пространственной дисперсии.

Запишем выражение для изменения плотности свободной энергии во внешнем поле:

$$\delta\widetilde{\mathcal{F}} = \delta\widetilde{\mathcal{F}} - \mathbf{T}\,\delta\mathbf{j}^0 - \frac{1}{4\pi}\,\mathbf{H}^0\delta\mathbf{H}^0 \tag{3}$$

здесь $\mathbf{j}^0$ – внешний ток, создающий поле $\mathbf{H}^0$. Первый член в (3) – вариация плотности свободной энергии $\mathcal{F}$ без учета взаимодействия с полем:

$$\mathcal{F} = \alpha|\mathbf{T}|^2 + \beta|\mathbf{T}|^4 + \gamma|\operatorname{rot}\mathbf{T}|^2 \tag{4}$$

α, β, γ – феноменологические параметры, конкретные значения которых определяются из микротеории [2], $\alpha = a(\theta - \theta_c)$, θ – температура, $a, \beta, \gamma > 0$. Нас интересуют температуры ниже температуры перехода в ТТС ($\theta < \theta_c$). Без ограничения общности можно считать $\operatorname{div}\mathbf{T} = 0$.

Варьируя (3) по внешнему полю, получим выражение для магнитной индукции в образце:

$$\mathbf{B}(\mathbf{r}) = \mathbf{H}^0 + 4\pi\operatorname{rot}\mathbf{T} + \mathbf{M}_s - 4\pi\frac{\partial\widetilde{\mathcal{F}}}{\partial\mathbf{H}^0} \tag{5}$$

здесь $\mathbf{M}_s = 4\pi[\mathbf{T}\vec{\nu}]\,\delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_s)$ – поверхностный момент ($\vec{\nu}$ – вектор нормали к поверхности, $\mathbf{r}_s$ – радиус-вектор, лежащий на поверхности образца. Момент $\mathbf{M}_s$ формируется токами, сосредоточенными в поверхностном слое с толщиной приблизительно равной корреляционной длине параметра порядка ξ_0. Структура поверхностного вклада такова, что он в точности компенсирует парамагнитный второй член в (5), проинтегрированный по объему. Таким образом намагничение ТТС определяется последним членов в (5) и всегда диамагнитно. Разложение плотности свободной энергии по степеням градиентов $\mathbf{T}(\mathbf{r})$ (4) применимо только на масштабах много больших ξ_0. Все изменения, происходящие на масштабах порядка ξ_0, являются микроскопическими, в макроскопической схеме считаются скачкообразными и описываются введением поверхностной плотности магнитного момента $\mathbf{M}_s$, а также с помощью граничного условия для магнитной индукции. Граничное условие для индукции $\mathbf{B}$

$$\mathbf{B}(\mathbf{r} = \mathbf{r}_s) - \mathbf{M}_s = \mathbf{H}^0 \tag{6}$$

требует равенства нулю на поверхности плавной компоненты магнитного момента, формируемой макроскопическими токами.

Равновесное значение параметра порядка определяется из условия минимума функционала свободной энергии $\widetilde{F} = \frac{1}{V}\int\widetilde{\mathcal{F}}(\mathbf{r})\,d\mathbf{r}$

$$\delta\widetilde{F}/\delta\mathbf{T} = 0. \tag{7}$$

Уравнения (5), (7) с граничным условием (6) составляют замкнутую систему, описывающую поведение ТТС в статическом магнитном поле вблизи перехода в ТТС. В качестве примера рассмотрим образец в виде плоскопараллельной пластины толщины $2L$, которая моделирует характерный размер домена в неоднородном ТТС. Направим нормаль к плоскости пластины по оси $0y$, вектор $\mathbf{T}$ по оси $0x$, а внешнее поле $\mathbf{H}^0$ – вдоль $0z$. Решая (5) – (7), получим для потока магнитной индукции:

$$\phi = \phi_0 \left[1 - \frac{\pi \xi_\theta}{L\gamma} \operatorname{th}\left(\frac{2L}{\xi_\theta}\right)\left(1 + \operatorname{th}^2\left(\frac{2L}{\xi_\theta}\right)\right)^{-2} \right], \qquad \xi_\theta = \frac{2\gamma}{|\alpha|} \tag{8}$$

здесь $\phi_0 = 2LH^0$ – поток в отсутствие ТТС (при $\theta > \theta_c$). Образование ТТС приводит к частичному выталкиванию потока за счет резкого уменьшения величины магнитной индукции в приповерхностной области. Диамагнитная восприимчивость ТТС пропорциональна L^{-1}, т. е. концентрации доменов.

Авторы выражают благодарность Н.Е.Алексеевскому, И.С.Желудеву и Т.М.Перекалиной за полезные обсуждения.

Литература

1. *Волков Б.А., Копаев Ю.В.* Письма в ЖЭТФ, 1978, **27**, 10.
2. *Волков Б.А., Горбацевич А.А., Копаев Ю.В., Тугушев В.В.* ЖЭТФ, 1981, **81**, 729.
3. *Grinzburg V.L., Gorbatsevich A.A., Kopaev Ju. V., Volkov B.A.* Solid State Comm., 1984, **50**, 339.
4. *Волков Б.А., Горбацевич А.А., Копаев Ю.В.* УФН, 1984, **143**, 331.
5. *Смоленский Г.А., Чупис И.Е.* УФН, 1982, **137**, 415,
6. *Волков Б.А., Горбацевич А.А., Копаев Ю.В.* ЖЭТФ, 1984, **86**, 1870.
7. *Желудев И.С., Перекалина Т.М., Смирновская Е.М., Фонтон С.С., Ярмухамедов Ю.Н.* Письма в ЖЭТФ, 1974, **20**, 289.
8. *Горбацевич А.А., Копаев Ю.В., Тугушев В.В.* ФТТ, 1982, **24**, 406.
9. *Башуров Л.Н., Зорин Р.В., Альшин Б.И., Ярмухамедов Ю.Н.* ФТТ, 1980, **22**, 279.
10. *Алексеевский Н.Е., Добровольский Н.М., Цебро В.Н., Шамрай В.Ф.* Письма в ЖЭТФ, 1976, **24**, 417.
11. *Волков Б.А.* Труды ФИАН, 1978, **104**, 3.

Физический институт им. П.Н.Лебедева
Академии наук СССР

Поступила в редакцию
6 августа 1984 г.