

О.Г. Медведовська<sup>1</sup>, С.В. Соколов<sup>2</sup>, Т.О. Федоренко<sup>2</sup>, Г.К. Чепурних<sup>3</sup>

## До питання про фазові переходи першого роду в ортоферитах

<sup>1</sup>Сумський державний педагогічний університет ім. А.С.Макаренка, вул. Роменська, 87, 40002, Суми, Україна,

<sup>2</sup>Сумський державний університет, вул. Римського-Корсакова, 2, 40007, Суми, Україна,

<sup>3</sup>Інститут прикладної фізики НАН України, вул. Петропавлівська, 58, 40000, Суми, Україна.

e-mail: [t.o.fedorenko@gmail.com](mailto:t.o.fedorenko@gmail.com)

На прикладі фазових переходів першого роду в ортоферитах під впливом зовнішнього магнітного поля показано результативність застосування теорії фазових переходів Ландау, що зазвичай використовуються при фазових переходах другого роду. Особливо це важливо, коли використовуваний гамільтоніан є функцією багатьох змінних.

Ключові слова: ортоферит, сприйнятливність, фазовий перехід, гістерезис, критичні лінії.

Стаття поступила до редакції ; прийнята до друку 15.03.2016.

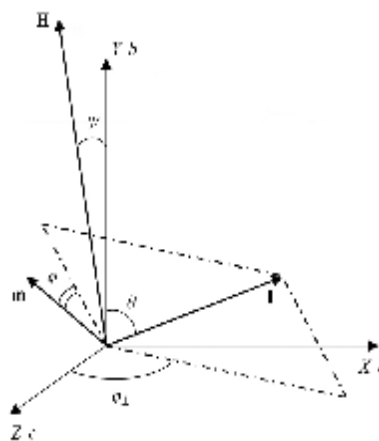
### Вступ

Вивчення станів ортоферитів (див., наприклад, [1-5]) як і інших магнітовпорядкованих кристалів пов'язане з можливістю використання виявлених особливостей фізичних властивостей в інформаційних і комунікаційних технологіях, а також в нанотехнологіях.

Згідно з експериментальними дослідженнями, виконаними ще в роботі [6], ортоферит в області температур нижче температури Моріна  $T_M$  знаходиться в чисто антиферомагнітному стані. В роботі [6] для з'ясування особливостей магнітних фазових переходів у ромбічних кристалах вивчалися температурні залежності полів фазових переходів в ортофериті  $YFe_{0.7}Mn_{0.3}O_3$ , що має температуру Моріна  $T_M = 280^\circ K$ . Дослідження проводилися за допомогою вимірів магнітної сприйнятливості в широкому температурній інтервалі від 4 до  $450^\circ K$  в сильних магнітних полях до 300 кЕ.

За месбауерівськими спектрами поглинання, знятими на монокристалічному зразку, були визначені стани магнітної системи нижче і вище точки Моріна. Виявлено, що при зниженні температури від  $290$  до  $280^\circ K$  намагніченості підрешіток переорієнтуються від осі  $a$  (див. рис. 1) в площину перпендикулярну цій осі. Але так як в цьому температурному інтервалі зникає спонтанна намагніченість, то, отже, підрешітки переорієнтуються в процесі переходу Моріна від осі  $a$  до осі  $b$ . Таким чином, експеримент [6] підтверджує висновок, зроблений раніше [7] на основі

нейтронграфічних досліджень. В роботі [6] при низьких температурах в магнітному полі,<sup>1</sup>



**Fig. 1.** Orientation of antiferromagnetic vector  $I$  and magnetization vector  $m$  ( $T < T_M$ ) of ortho-ferrite for arbitrary orientation of the external magnetic field in the plane  $YX/ba$ , where  $\theta$  and  $\varphi$  – polar and azimuthal angles of the vector  $I$ ;  $\varphi$  – the angle that characterizes the direction of vector  $m$  in the plane perpendicular  $I$  (this angle is measured from the intersection this plane with the plane passing through the axis  $Y$  and vector  $I$ ).

<sup>1</sup> З ростом магнітного поля  $H \parallel b$  відбувається перехід магнітної підсистеми зі стану  $I \parallel A \parallel b$  в стан  $I \perp A$  ( $I$  – вектор антиферомагнетизму,  $A$  – вісь найлегшого намагнічування)

паралельному осі  $b$  (вісь  $b\parallel A$ ), спостерігався дуже вузький пік диференціальної магнітної сприйнятливості. Амплітуда піку падає, а ширина його зростає при наближенні до температури Моріна. В інтервалі від 220 до 280°K температурна залежність поля, що відповідає цьому піку сприйнятливості, добре описується параболою  $(H_t^b)^2 = -(370 \pm 25) \cdot (T - T_M)$  кЕ<sup>2</sup>/К. Нижче  $T_M$  в полі, паралельному осі  $c$ , спостерігався пік (і стрибок) магнітної сприйнятливості. При зниженні температури поле, в якому має місце особливість магнітної сприйнятливості, лінійно зростає, а сама особливість зменшується і нижче 200°K стає практично непомітною. Згідно [6] температурна залежність поля переходу в дослідженому інтервалі температур описується прямою з нахилом  $-2,6 \pm 0,2$  кЕ/К. Вище  $T_M$  аж до точки Нееля в магнітному полі, паралельному осі  $a$ , спостерігався пік сприйнятливості, також пов'язаний з магнітним фазовим переходом. При  $T < T_M$  в полях до 300 кЕ, паралельних осі  $a$ , ніяких аномалій диференціальної магнітної сприйнятливості не спостерігалось. В роботі [6] зроблено висновок, що при  $T < T_M$  в полі, паралельному осі  $b$ , гострий пік сприйнятливості відповідає перекиданню магнітних підрешіток від осі  $b$  в площину, перпендикулярну цій осі (спін-флорперехід). В полі, паралельному осі  $a$ , відбувається

поворот підрешіток навколо поля, аналогічний виявленому в  $\text{CoF}_2$  і в  $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$  ( $T < T_M$ ) [8].

Відмінність випадку в роботі [6] від  $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$  полягає в тому, що в ортофериті  $\text{YFe}_{0,7}\text{Mn}_{0,3}\text{O}_3$  в площині  $ac$  є сильна анізотропія – така, що в полях до 150 кЕ, паралельних осі  $a$ , аж до температур, близьких до  $T_N$ , не спостерігається фазового переходу, який відповідає за завершення повороту підрешіток від осі  $b$  до осі  $c$ .

Отже, можна зробити висновок, що вісь  $c$  є важкою віссю для вектора антиферомагнетизму. Тому, згідно з [6], перекидання підрешіток  $\text{YFe}_{0,7}\text{Mn}_{0,3}\text{O}_3$ , відбувається в площині  $ab$ . В роботі [6] аналізуються вирази для критичних полів при  $\mathbf{H}\parallel b$  і  $\mathbf{H}\parallel c$ , робиться висновок про знак біквдратної анізотропії і про характер фазового переходу в точці Моріна.

## I. Використання гамільтоніану для складання рівнянь

Для вивчення станів ортоферитів в зовнішньому магнітному полі  $\mathbf{H}$  скористаємося гамільтоніаном в формі [6]:

$$H = 2M_0 \left[ \frac{E}{2} \mathbf{m}^2 + \frac{b_1}{2} l_x^2 + \frac{b_3}{2} l_z^2 + d(m_x l_z - m_z l_x) + \frac{e_1}{4} l_x^4 + \frac{e_2}{2} l_x^2 l_z^2 + \frac{e_3}{4} l_z^4 - \mathbf{mH} \right], \quad (1)$$

де  $\mathbf{m} = (\mathbf{M}_1 + \mathbf{M}_2)/2M_0$ ,  $\mathbf{l} = (\mathbf{M}_1 - \mathbf{M}_2)/2M_0$  – феро- і антиферомагнітні вектори,  $\mathbf{M}_1$  і  $\mathbf{M}_2$  намагніченості підрешіток,  $2M_0$  – намагніченість насичення,  $E$  – константа обмінної взаємодії  $d$  – константа взаємодії Дзялошинського,  $b_1$ ,  $b_3$  – константи анізотропії другого порядку,  $e_1$ ,  $e_2$ ,  $e_3$  – константи анізотропії четвертого порядку.

Цікавлячись тільки областю досить низьких температур, будемо використовувати умови:

$$\mathbf{m}^2 + \mathbf{l}^2 = 1, \quad \mathbf{m} \cdot \mathbf{l} = 0. \quad (2)$$

Крім того будемо розглядати поля, при яких  $\mathbf{m} \ll 1$ .

Якщо знехтувати біквдратними константами анізотропії, то за відсутності магнітного поля антиферомагнітний стан ( $\mathbf{H}\parallel b$ ,  $\mathbf{m} = 0$ ) реалізується [6] при  $b_1 E - d^2 > 0$ ,  $b_3 E - d^2 > 0$ . У цьому випадку стан магнітної підсистеми в зовнішньому магнітному полі  $\mathbf{H}$  реалізується так, як представлено на рис. 1 і тому

значення для  $m_x$ ,  $m_y$ ,  $m_z$ ,  $l_x$ ,  $l_y$ ,  $l_z$  визначаються формулами:

$$\begin{cases} m_x = -m(\sin \phi_{\perp} \cos \phi \cos \theta + \cos \phi_{\perp} \sin \phi); \\ m_y = m \cos \phi \sin \theta; \\ m_z = m(-\cos \phi_{\perp} \cos \phi \cos \theta + \sin \phi_{\perp} \sin \phi); \\ l_x = l \sin \theta \sin \phi_{\perp}; \\ l_y = l \cos \theta; \\ l_z = l \sin \theta \cos \phi_{\perp}. \end{cases} \quad (3)$$

Використовуючи (3) гамільтоніан (1) запишемо у вигляді:

$$F = 2M_0 \left[ \frac{E}{2} m^2 + \frac{1}{2} l^2 \sin^2 \theta (b_1 \sin^2 \phi_{\perp} + b_3 \cos^2 \phi_{\perp}) - dml \sin \theta \sin \phi + \frac{1}{4} l^4 \sin^4 \theta * \right. \\ \left. * \left( e_1 \sin^4 \phi_{\perp} + \frac{e_2}{2} \sin^2 2\phi_{\perp} + e_3 \cos^4 \phi_{\perp} \right) + Hm \left( \sin \psi \cos \theta \cos \phi \sin \phi_{\perp} + \sin \psi \sin \phi \cos \phi_{\perp} - \right. \right. \\ \left. \left. - \cos \psi \sin \theta \cos \phi \right) \right] \quad (4)$$

Таким чином, гамільтоніан (4) є функцією чотирьох змінних:  $m$ ,  $\varphi$ ,  $\varphi_{\perp}$  і  $\theta$ . Мінімізуючи гамільтоніан (4) як функцію чотирьох змінних, отримуємо наступну систему рівнянь:

$$Em - dl \sin \theta \sin \phi + H \left( \sin \psi \cos \theta \cos \phi \sin \phi_{\perp} + \sin \psi \sin \phi \cos \phi_{\perp} - \cos \psi \sin \theta \cos \phi \right) = 0; \quad (5)$$

$$-dml \sin \theta \cos \phi + Hm \left( -\sin \psi \cos \theta \sin \phi \sin \phi_{\perp} + \sin \psi \cos \phi \cos \phi_{\perp} + \cos \psi \sin \theta \sin \phi \right) = 0; \quad (6)$$

$$\frac{1}{2} l^2 \sin^2 \theta \sin 2\phi_{\perp} \left[ b_1 - b_3 + l^2 \sin^2 \theta \left( e_1 \sin^2 \phi_{\perp} + \frac{e_2}{2} - e_3 \cos^2 \phi_{\perp} \right) \right] + Hm \sin \psi * \\ * \left( \cos \theta \cos \phi \cos \phi_{\perp} - \sin \phi \sin \phi_{\perp} \right) = 0; \quad (7)$$

$$\frac{1}{2} l^2 \sin 2\theta \left[ b_1 \sin^2 \phi_{\perp} + b_3 \cos^2 \phi_{\perp} + l^2 \sin^2 \theta \left( e_1 \sin^4 \phi_{\perp} + \frac{e_2}{2} \sin^2 2\phi_{\perp} + e_3 \cos^4 \phi_{\perp} \right) \right] - \\ - dm \cos \theta \sin \phi - Hm \cos \phi \left( \sin \psi \sin \theta \sin \phi_{\perp} + \cos \psi \cos \theta \right) = 0. \quad (8)$$

З рівняння (5) знаходимо такий вираз для  $m$

$$m = \frac{H \left[ \cos \psi \sin \theta \cos \phi - \sin \psi \left( \cos \theta \cos \phi \sin \phi_{\perp} + \sin \phi \cos \phi_{\perp} \right) \right] + dl \sin \theta \sin \phi}{E}. \quad (9)$$

З рівняння (6) також вдається знайти наступний аналітичний вираз для  $\text{tg} \varphi$ :

$$\text{tg} \varphi = \frac{dl \sin \theta - H \sin \psi \cos \phi_{\perp}}{H \left( \cos \psi \sin \theta - \sin \psi \cos \theta \sin \phi_{\perp} \right)} \quad (10)$$

Використовуючи формули (9) і (10) можна виключити з рівнянь (7) і (8) змінні  $m$  і  $\varphi$  і таким чином отримати два рівняння щодо кутів  $\varphi_{\perp}$  і  $\theta$ . У даній роботі розглядається випадок  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{b}$  і якщо  $b_3(T) > b_1(T)$ , то перехід вектора антиферромагнетизму  $\mathbf{l}$  під впливом магнітного поля в площину перпендикулярну  $\mathbf{b}$  відбувається в площині  $ab$ . І якщо  $e_1 < 0$ , то цей фазовий перехід [6] є переходом першого роду. У цьому випадку кут  $\varphi_{\perp} = \pi/2$  і рівняння відносно кута  $\theta$  має вигляд:

$$\sin \theta \cos \theta \left( b_1 E + e_1 E \sin^2 \theta - H^2 - d^2 \right) = 0. \quad (11)$$

З рівняння (11) впливають стани  $\theta=0$  ( $\mathbf{l} \parallel \mathbf{a} \parallel \mathbf{b}$ ) і  $\theta=\pi/2$  ( $\mathbf{l} \perp \mathbf{b}$ ). Критичні поля при фазовому переході першого роду, використовуючи достатні умови існування мінімуму функції (4), визначені в [6]. Але ці поля можна визначити іншим способом. З рівняння (11) випливає

$$\sin \theta \cos \theta = 0, \quad (11,а)$$

$$b_1 E + e_1 E \sin^2 \theta - H^2 - d^2 = 0. \quad (11,б)$$

Вважаючи в рівнянні (11б)  $\theta=0$  і  $\theta=\pi/2$  отримуємо відповідно вираз  $H_2$  для верхнього

критичного поля і вираз  $H_1$  для нижнього критичного поля:

$$H_2 = \sqrt{b_1 E - d^2}, \quad H_1 = \sqrt{(b_1 + e_1) E - d^2} \quad (11,в)$$

З рівняння (11,б) можна визначити значення кута  $\theta$  в межах  $0 \leq \theta \leq \pi/2$ , яке відповідає максимуму енергії, що розділяє два мінімуми в області метастабільних станів:  $H_1 \leq H \leq H_2$ . Однак найбільший інтерес представляє визначення того, як змінюється кут  $\theta$  поблизу критичних полів. Для вирішення цього питання будемо вважати, що кут  $\theta \ll 1$  і, розкладаючи тригонометричну функцію в рівнянні (11б) в ряд, знаходимо

$$\theta^2 = \frac{H_2^2 - H^2}{|e_1| E} \quad (11,г)$$

Далі, приймаючи в рівнянні (11б) кут  $\theta = \pi/2 - \alpha$  і вважаючи, що  $\alpha \ll 1$ , знаходимо з (11,б):

$$\alpha = \sqrt{\frac{H^2 - H_1^2}{|e_1| E}} \quad (11,д)$$

Оскільки похідна  $\partial \theta / \partial H \rightarrow \infty$  при  $H \rightarrow H_2$ , а похідна  $\partial \alpha / \partial H \rightarrow \infty$  при  $H \rightarrow H_1$ , то з цього випливає, що найбільш значна зміна енергетичного бар'єру, що розділяє два мінімуми, відбувається поблизу критичних полів  $H_2$  і  $H_1$ . Цей результат може

проявитися при експериментальному вивченні гістерезисних явищ.

## II. Розкладання гамільтоніану

Теорія фазових переходів Ландау [9] зазвичай використовується при описі фізичних явищ при фазових переходах другого роду. Визначення критичних ліній, що обмежують область метастабільних станів, при фазових переходах першого роду шляхом використання необхідних і достатніх умов, може представляти складну задачу,

якщо гамільтоніан є функцією багатьох змінних. Тому для вирішення цього завдання використовувати теорію Ландау при фазових переходах першого роду. Виключаючи з гамільтоніану (4)  $m$  і  $\varphi$  шляхом використання формул (9) і (10), отримуємо при  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{b}$  ( $\varphi_{\perp} = \pi/2$ ) такий вираз для гамільтоніану:

$$H = \frac{M_0}{E} \left[ b_1 E \sin^2 \theta - (H^2 + d^2) \sin^2 \theta + \frac{1}{2} e_1 E \sin^4 \theta \right] \quad (12)$$

Вважаючи в виразі (12) кут  $\theta \ll 1$  і розкладаючи тригонометричну функцію в ряд, знаходимо:

$$H = \frac{M_0}{E} \left[ (b_1 E - H^2 - d^2) \theta^2 + \left( \frac{1}{3} (-b_1 E + H^2 + d^2) + \frac{1}{2} e_1 E \right) \theta^4 \right] \quad (12,a)$$

У виразі (12a) кут  $\theta$  виконує роль параметра порядку теорії фазових переходів Ландау і вважаючи коефіцієнт при  $\theta^2$  рівним нулю, отримуємо формулу  $H_2 = \sqrt{b_1 E - d^2}$ , яка визначає верхнє критичне поле (див. формулу (11,в)). Необхідно

відзначити, що визначити кут  $\theta$ , використовуючи співвідношення (12,a), некоректно. Приймаючи в співвідношенні (12) кут  $\theta = \pi/2 - \alpha$  і розкладаючи тригонометричну функцію в ряд з урахуванням малості  $\alpha$  ( $\alpha \ll 1$ ), отримуємо:

$$H = \frac{M_0}{E} \left[ (-b_1 E + H^2 + d^2 - e_1 E) \alpha^2 + \frac{1}{3} \left( b_1 E - H^2 - d^2 + \frac{5}{2} e_1 E \right) \alpha^4 \right] \quad (12,b)$$

У виразі (12,b) роль параметра порядку відіграє кут  $\alpha$  і, вважаючи коефіцієнт при  $\alpha^2$  рівним нулю, знаходимо вираз  $H_1 = \sqrt{(b_1 + e_1) E - d^2}$ , що визначає нижнє критичне поле (див. формулу (11,в)).

## Висновки

1. Виявлення значного енергетичного бар'єру, що розділяє два мінімуми, поблизу критичних ліній сприяє експериментальному виявленню тих особливостей фізичних властивостей, які характерні для біякритичних областей.

2. Показана доцільність використання теорії Ландау для визначення критичних ліній при фазових переходах першого роду для випадків, коли гамільтоніан, який визначає стан магнітної підсистеми, є функцією багатьох змінних.

3. Хоча в пропонуваній роботі розглянута магнітна підсистема конкретного

магнітовпорядкованих кристала (ортофериту), проте можна бути впевненим, що теорія Ландау може бути з успіхом застосована при фазових переходах першого роду не тільки у випадку інших магнітовпорядкованих кристалів, але і у випадку інших конденсованих систем.

4. Звернуто увагу, що використання теорії Ландау при фазових переходах першого роду для визначення поведінки магнітної підсистеми неможливо.

**Медведовська О.Г.** - кандидат фізико-математичних наук, доцент, доцент кафедри інформатики;  
**Соколов С.В.** - кандидат фізико-математичних наук, доцент, доцент кафедри комп'ютерних наук;  
**Федоренко Т.О.** - аспірант кафедри загальної і теоретичної фізики;  
**Чепурних Г.К.** - доктор фізико-математичних наук, професор, провідний науковий співробітник.

- [1] E.G. Galkina, I.Ju. Mihajlov, B.A. Ivanov, Pis'ma v ZhJeTF 93(12), 792 (2011).  
 [2] Y. Zhao, X. Zhao, H.D. Zhou, F. B. Zhang, Q.J. Li, C. Fan, X.F. Sun, and X.G. Li, Phys. Rev. B 89(22), 224405 (2014).  
 [3] T. Nakajima, Y. Tokunaga, Y. Taguchi, Y. Tokura, and T.-H. Arima, Phys. Rev. Lett. 115(9), 197205 (2015).  
 [4] K. Yamaguchi, T. Kurihara, H. Watanabe, M. Nakajima, and T. Suemoto, Phys. Rev. B 92(6), 064404 (2015).  
 [5] H.J. Zhao, J. Íñiguez, X.M. Chen, and L. Bellaiche, Phys. Rev. B 93(1), 014417 (2016).

- [6] K.G. Gurtovoj, A.S. Lagutin, V.M. Cherepanov, ZhJeTF 68(2), 743 (1975).
- [7] M.V. Bystrov, V.A. Bokov, G.V. Popov, A.G. Kocharov, FTT 14(12), 3624 (1972).
- [8] G.K. Chepurnyh, Oblasti jekstremal'nyh harakteristik magnitoporjadochennyh kristallov (Naukova dumka, Kiev, 2010).
- [9] L.D. Landau, E.M. Livshic, Statisticheskaja fizika (Nauka, Moskva, 1964).

O.G. Medvedovs'ka<sup>1</sup>, S.V. Sokolov<sup>2</sup>, T.O. Fedorenko<sup>2</sup>, G.K. Chepurnykh<sup>3</sup>

## To a Question about First-Order Phase Transitions in Orthoferrites

<sup>1</sup>Sumy State A.S. Makarenko Pedagogical University, 87 Romens'ka Str., 40002 Sumy, Ukraine,

<sup>2</sup>Sumy State University 2, Rimsky-Korsakov Str., 40007 Sumy, Ukraine

<sup>3</sup>Institute of Applied Physics, National Academy of Science of Ukraine 58, Petropavlivs'ka Str., 40000, Sumy, Ukraine,  
e-mail: [t.o.fedorenko@gmail.com](mailto:t.o.fedorenko@gmail.com)

On the example of first-order phase transitions in orthoferrites under the influence of an external magnetic field is shown the effectiveness of the application of the Landau theory of phase transitions, commonly used in second-order phase transitions. This is especially important when used Hamiltonian is a function of many variables.

**Keywords:** orthoferrite, sensitivity, phase transition, hysteresis, critical line.