ЖЭТФ, 2024, том 166, вып. 5 (11), стр. 665–678 

# УРАВНЕНИЕ ЭВОЛЮЦИИ ЭЛЕКТРИЧЕСКОЙ ПОЛЯРИЗАЦИИ МУЛЬТИФЕРРОИКОВ, ПРОПОРЦИОНАЛЬНОЙ ВЕКТОРНОМУ ПРОИЗВЕДЕНИЮ СПИНОВ ИОНОВ ЯЧЕЙКИ, ПОД ВЛИЯНИЕМ ГАМИЛЬТОНИАНА ГЕЙЗЕНБЕРГА

***П. А. Андреев*** [a]**,** ***М. И. Труханова*** [a,b*]

[a] *Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова, физический факультет 119991, Москва, Россия*

[b] *Лаборатория теоретической физики, Институт проблем безопасного развития атомной энергетики Российской академии наук 115191, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 17 декабря 2023 г.,
после переработки 28 июня 2024 г.
Принята к публикации 3 июля 2024 г.

Получено уравнение эволюции поляризации (плотности электрического дипольного момента) для мультиферроиков II типа, в которых поляризация пропорциональна векторному произведению спинов ионов ячейки. Рассмотрен режим, в котором основным механизмом эволюции является обменное кулоновское взаимодействие, моделируемое гамильтонианом Гейзенберга. Полученное уравнение эволюции поляризации содержит плотность спина и плотность нематического тензора, возникающего как антикоммутатор спинов для частиц с $S = 1$ и более (для частиц со спином $S = 1/2$ он вырождается в концентрацию частиц). Также для построения замкнутой модели эволюции спина и поляризации в мультиферроиках получены уравнения для упомянутых выше физических величин. Приведено обоснование спин-токовой модели с помощью уравнения баланса импульса и уравнения эволюции спина, выведенных из микроскопического многочастичного уравнения Паули с учетом спин-орбитального взаимодействия. Для анализа механизма формирования электрического дипольного момента, пропорционального векторному произведению спинов магнитных ионов, использована спин-токовая модель, в рамках которой получена связь коэффициента пропорциональности с обменным интегралом. В работе использовано приближение среднего поля, когда многочастичная волновая функция системы ионов аппроксимируется произведением одночастичных функций.

**DOI:** 10.31857/S0044451024110099

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Многообразие явлений в магнитоупорядоченных и диэлектрически упорядоченных средах приковывает внимание исследователей на протяжении последних десятилетий. Одним из примеров теоретического исследования является знаменитое уравнение Ландау – Лифшица – Гильберта для эволюции магнитного момента в магнитоупорядоченных средах, концепция которого была предложена Ландау и Лифшицем в 1935 году. Особый интерес вызывает одновременное проявление магнитного и диэлектрического упорядочения, возникающее в средах, называемых мультиферроиками. Более того, эти явления могут сосуществовать сравнительно независимо (мультиферроики I типа) или проявлять взаимосвязь (II типа) [1]. В настоящей работе мы рассматриваем мультиферроики II типа, в которых поляризация ячейки кристалла формируется пропорционально векторному произведению спинов входящих в нее магнитных ионов.

Обычно выделяют три механизма возникновения поляризации в мультиферроиках II типа [2], для каждого из которых была предложена связь электрического дипольного момента ячейки кристалла и спинов входящих в нее магнитных ионов [2]. Особенности структуры кристаллической решетки для формирования мультиферроиков также можно найти в работе [2]. Для рассматриваемого нами слу-

* E-mail: trukhanova@physics.msu.ru

чая связь дипольного момента и спинов магнитных ионов была выведена в работе [3] на основе спин-токовой модели. Она использована нами ниже для вывода макроскопического выражения для поляризации, которое совпадает с результатом работы [4], в которой поляризация была получена из соображений симметрии в применении к термодинамическим потенциалам. Мы также рассматриваем обоснование спин-токовой модели с точки зрения метода квантовой гидродинамики [5–9], который является основным методом исследования в настоящей работе. Использование эффективного спинового тока в уравнении эволюции спинового поля, обусловленного обменным взаимодействием, позволяет не только воспроизвести результат работы [4], но и дать связь между коэффициентом, определяющим дипольный момент ячейки, и обменным интегралом. Более того, дано обобщение результата работы [4] при учете вклада квантового спинового тока, связанного с потенциалом Бома. Такое обобщение также позволяет уточнить область применимости результата, полученного в работе [4]. Предложенный нами подход к обоснованию вида поляризации и, можно сказать, к обоснованию спин-токовой модели, позволяет установить коэффициент пропорциональности между спиновым током и поляризацией.

Описанные выше результаты служат предварительными перед выводом уравнения эволюции поляризации, для которого можно включить набор возможных взаимодействий в исходный гамильтониан в микроскопическом нестационарном уравнении Шредингера – Паули. Однако в этой работе мы ограничиваемся рассмотрением кулоновского обменного взаимодействия в форме гамильтониана Гейзенберга $\hat{H}_H = -J\hat{\mathbf{S}}_1 \cdot \hat{\mathbf{S}}_2$, где $\hat{\mathbf{S}}_1$ и $\hat{\mathbf{S}}_2$ — спины двух взаимодействующих частиц (в нашем случае ионов), а $J$ — обменный интеграл, связанный с перекрытием волновых функций электронов.

В большинстве случаев при анализе магнитных явлений ограничиваются использованием намагниченности среды, которая пропорциональна плотности спина (для системы магнитных частиц одного сорта). Однако такое упрощенное представление справедливо только для частиц со спином 1/2 [10]. При рассмотрении атомов/ионов с большим спином, что справедливо для большинства магнетиков, образующих магнитоупорядоченные состояния (ферромагнитные фазы, антиферромагнитные фазы и т.д.), квантовые средние значения произведений проекций операторов спина одной частицы дают новые физические величины. Простейшим примером является нематический тензор, пропорциональный квантовому среднему антикоммутатора операторов спина [11, 12]. При рассмотрении отдельных доменов ферромагнетика мы видим систему параллельных спинов. В этом случае нематический тензор можно, по крайней мере приближенно, выразить через единственную отличную от нуля проекцию спина. Однако при распространении возмущения картина усложняется, и степень неточности приближенного перехода от нематического тензора к комбинации проекций спина возрастает и требует систематической оценки. Аналогичная ситуация возникает в области доменной стенки. В настоящей работе мы останавливаемся на обсуждении нематического тензора в связи с тем, что он входит в уравнение эволюции электрической поляризации. Поэтому ниже мы выводим уравнение эволюции нематического тензора наряду с уравнением эволюции плотности спина и уравнением эволюции поляризации. Отметим, что обменное взаимодействие для системы ионов со спином больше 1/2 не ограничивается слагаемым $\hat{H}_H = -J\hat{\mathbf{S}}_1 \cdot \hat{\mathbf{S}}_2$, а по меньшей мере для частиц со спином $S = 1$ дает биквадратный обмен $\hat{H}_{H2} = -\tilde{J}(\hat{\mathbf{S}}_1 \cdot \hat{\mathbf{S}}_2)^2$. Его вклад в уравнение Ландау – Лифщица и необходимость использования нематического тензора рассмотрены в работе [13]. Однако в настоящей работе мы сфокусированы на вкладе обменного взаимодействия, описываемого гамильтонианом Гейзенберга $\hat{H}_H = -J\hat{\mathbf{S}}_1 \cdot \hat{\mathbf{S}}_2$.

Статья организована следующим образом. В разд. 2 рассмотрены основы метода квантовой гидродинамики и использовано уравнение баланса импульса для приближенного обоснования спин-токовой модели поляризации. В разд. 3 исследуется связь микроскопического электрического дипольного момента и макроскопической плотности электрического дипольного момента. В разд. 4 получено уравнение эволюции поляризации под влиянием обменного взаимодействия, описываемого гамильтонианом Гейзенберга. Вывод уравнения эволюции выполнен, исходя из микроскопической теории. В разд. 5 представлено краткое обсуждение полученных результатов.

## 2. МЕТОД КВАНТОВОЙ ГИДРОДИНАМИКИ — УРАВНЕНИЕ БАЛАНСА ИМПУЛЬСА, РАВНОВЕСНОЕ СОСТОЯНИЕ, ОБОСНОВАНИЕ СТРУКТУРЫ ПОЛЯРИЗАЦИИ

Простейшим определением в квантовой теории материальных полей является концентрация числа частиц (мы учитываем только магнитные ионы, но более общая модель позволяет учесть концентрацию частиц другого сорта — немагнитных ионов)

$$n(\mathbf{r},t) = \int \Psi_S^\dagger(R,t) \sum_i \delta(\mathbf{r}-\mathbf{r}_i)\Psi_S(R,t)\,dR. \quad (1)$$

Эволюция концентрации приводит к уравнению непрерывности, в котором возникает плотность потока частиц $\mathbf{j}$, совпадающая с плотностью импульса для нерелятивистских систем. В этой работе мы частично рассматриваем спин-орбитальное взаимодействие для анализа спин-токовой модели, т. е. мы учитываем релятивистские эффекты. Здесь важно различать плотность потока частиц и плотность импульса частиц. Структура плотности потока частиц использована в работе [14] для обоснования спин-токовой модели. Мы же, в настоящей работе, рассматриваем уравнение эволюции плотности импульса и баланс сил в нем для переосмысления результата работы [14] в рамках метода квантовой гидродинамики.

Следуя логике определения концентрации (1), мы задаем плотность импульса

$$\mathbf{p}(\mathbf{r},t) = \int\Big(\Psi_S^\dagger(R,t)\sum_i \delta(\mathbf{r}-\mathbf{r}_i)\,\hat{\mathbf{p}}_i\Psi_S(R,t) + \\ + \text{H. c.}\Big)\,dR, \quad (2)$$

и плотность спина

$$\mathbf{S}(\mathbf{r},t) = \int \Psi_S^\dagger(R,t)\sum_i \delta(\mathbf{r}-\mathbf{r}_i)(\hat{\mathbf{s}}_i\Psi(R,t))_S\,dR, \quad (3)$$

где H. c. использовано для обозначения эрмитово-сопряженного слагаемого.

### 2.1. Уравнения баланса импульса и спина

Основная цель этой работы — рассмотреть влияние обменного взаимодействия на эволюцию электрической поляризации в мультиферроиках II типа. Однако мы начнем с предварительного анализа определения поляризации. Для этого рассмотрим эволюцию импульса и спиновой плотности среды. При этом мы учтем ряд других взаимодействий, а именно, спин-орбитальное взаимодействие, взаимодействие Дзялошинского – Мория и энергию электрического дипольного момента во внешнем электрическом поле. В итоге мы используем микроскопическое многочастичное уравнение Шредингера – Паули

$$\imath\hbar\partial_t\Psi(R,t) = \hat{H}\Psi(R,t) \quad (4)$$

с гамильтонианом взаимодействий вида

$$\hat{H} = \sum_{i=1}^{N}\Big[-\hat{\mathbf{d}}_i\cdot\mathbf{E}_i - \frac{1}{2mc}(\hat{\boldsymbol{\mu}}_i\cdot[\mathbf{E}_i\times\hat{\mathbf{p}}_i]) - \\ - \hat{\boldsymbol{\mu}}_i\cdot\mathbf{B}_i - \frac{1}{2}\sum_{\substack{j=1,\\ j\neq i}}^{N}\Big(U_{ij}\hat{\mathbf{s}}_i\cdot\hat{\mathbf{s}}_j + \mathbf{D}_{ij}\cdot[\hat{\mathbf{s}}_i\times\hat{\mathbf{s}}_j]\Big)\Big]. \quad (5)$$

Здесь $N$ — полное число частиц/ионов, $\Psi(R,t)$ — волновая функция системы частиц, $R = \{\mathbf{r}_1, ..., \mathbf{r}_N\}$, $\hat{\mathbf{d}}_i$ — оператор электрического дипольного момента, который определен через смещение ионов, его дальнейшая связь со спинами ионов [2] будет определена в процессе анализа получаемых уравнений эволюции макроскопических функций, $\hat{\mathbf{p}}_i = -i\hbar\hat{\nabla}$ — оператор импульса $i$-й частицы, $\hbar$ — приведенная постоянная Планка, $m_i$ — масса частицы, $c$ — скорость света в вакууме, $\mathbf{E}_i$ и $\mathbf{B}_i$ — напряженность электрического и индукция магнитного полей, действующих на $i$-ю частицу/ион, $\hat{\mathbf{s}}_i$ — размерный оператор спина, $\hat{\boldsymbol{\mu}}_i$ — оператор магнитного момента, пропорциональный оператору спина $\hat{\boldsymbol{\mu}}_i = \gamma_i\hat{\mathbf{s}}_i$ через гиромагнитное отношение $\gamma_i$, $U_{ij} = U(\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j)$ — скалярный коэффициент обменного кулоновского взаимодействия гамильтониана Гейзенберга (обменный интеграл), $\mathbf{D}_{ij} = \mathbf{D}(\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j) = -\mathbf{D}_{ji}$ — векторный коэффициент обменного спин-орбитального взаимодействия Дзялошинского – Мория. Далее в работе использовано приближение среднего поля, когда многочастичная волновая функция системы ионов аппроксимируется произведением функций.

Гамильтониан (5) содержит пять слагаемых, соответствующих различным взаимодействиям, а именно (в порядке расположения слагаемых в гамильтониане): потенциальная энергия дипольных моментов во внешнем электрическом поле, спин-орбитальное взаимодействие, отвечающее действию электрического поля на магнитные моменты ионов [15] (см. разд. 33 и 83), потенциальная энергия магнитного момента во внешнем магнитном поле, обменное кулоновское взаимодействие в форме гамильтониана Гейзенберга, обменное спин-орбитальное взаимодействие Дзялошинского – Мория. Более детальное описание позволяет учесть электрическое поле, создаваемое диполями системы и действующее на дипольные моменты наряду с внешним электрическим полем. Также можно отметить, что электрическое поле в спин-орбитальном взаимодействии может быть вызвано электрическими дипольными моментами среды. Учет обменного взаимодействия в гамильтониане для уравнения Шредингера не является примером фундаментального микроскопического подхода. В данной работе мы рассматриваем материалы с сильно выраженными магнитными и диэлектрическими свойствами. Эти свойства формируются в группах ионов, расположенных в узлах кристаллической решетки. Таким образом, часть взаимодействий, приводящая к формированию иона или кристаллической решетки, явно не учитывается. Обменная часть электромагнитного взаимодействия валентных электронов опосредованно учитывается соответствующими слагаемыми в гамильтониане, что отражает переход на масштаб расстояний и энергий, на которых ионы и их композиции являются «элементарными» объектами нашей теории.

Следуя методу квантовой гидродинамики, мы получаем соответствующее уравнение баланса импульса

$$\partial_t \mathbf{p} = g_{0u} S^\beta \nabla S^\beta + \mu S^\beta \nabla B^\beta + P^\beta \nabla E^\beta + \\ + \frac{\gamma}{2mc}\varepsilon^{\beta\gamma\delta} J^{\delta\gamma}(\nabla E^\beta) + \mathbf{F}_{DM}, \quad (6)$$

где

$$g_{0u} = \int U(r)\, d\mathbf{r}$$

— константа обменного взаимодействия, возникающая как интегральная характеристика взаимодействия пар соседних частиц, она может быть выражена через обменный интеграл, для определенной модельной формы обменного интеграла [16], $J^{\delta\gamma}$ — тензор спинового тока, $P^\beta$ — плотность электрического дипольного момента (формула представлена ниже), $\mathbf{F}_{DM}$ — плотность силы взаимодействия Дзялошинского – Мория, и уравнение эволюции спина

$$\partial_t \mathbf{S} = \frac{2\gamma}{\hbar}[\mathbf{S}, \mathbf{B}] + \frac{1}{6} g_u [\mathbf{S}, \Delta \mathbf{S}] + \mathbf{T}_{DM} + \mathbf{T}_{SO}, \quad (7)$$

где $\Delta$ — оператор Лапласа, $g_u = \int r^2 U(r)\, d\mathbf{r}$ — вторая константа обменного взаимодействия, являющаяся вторым «моментом» обменного интеграла, тогда как константу $g_{0u}$ можно назвать нулевым «моментом» обменного интеграла, $\mathbf{T}_{DM}$ — плотность момента силы взаимодействия Дзялошинского – Мория,

$$T^\alpha_{SO} = -\frac{\gamma}{\hbar c}\varepsilon^{\alpha\beta\gamma}\varepsilon^{\beta\mu\nu} E^\mu J^{\gamma\nu} - \partial_\beta J^{\alpha\beta}_{SO}$$

— плотность момента силы спин-орбитального взаимодействия. Она содержит полный спиновый ток $J^{\gamma\nu}$ и релятивистскую часть спинового тока, обусловленную спин-орбитальным взаимодействием, которая для частицы со спином $S = 1/2$ имеет вид

$$J^{\alpha\beta}_{SO} = \frac{\mu\hbar}{4mc}\varepsilon^{\alpha\beta\gamma} n E^\gamma.$$

Для частиц с большим спином спиновый ток выражается через нематический тензор $\pi^{\alpha\beta}$ (определенный ниже формулой (29)):

$$J^{\alpha\beta}_{SO} = (\gamma/mc)\, \varepsilon^{\beta\mu\nu}\pi^{\alpha\nu} E^\mu.$$

Частным случаем уравнения эволюции спина является уравнение Ландау – Лифшица – Гильберта. Уравнения (6) и (7) выведены из уравнения Шредингера – Паули с гамильтонианом (5). Следовательно, уравнения (6) и (7) содержат те же взаимодействия, что и гамильтониан (5). Отметим, что вклад гамильтониана Гейзенберга — это, очевидно, второе слагаемое в правой части уравнения (7), которое можно представить в виде дивергенции тензора спинового тока [17]:

$$(1/6) g_u \varepsilon^{\alpha\beta\gamma} S^\beta \Delta S^\gamma = \\ = \partial_\delta((1/6) g_u \varepsilon^{\alpha\beta\gamma} S^\beta \partial_\delta S^\gamma) = -\partial_\delta J^{\alpha\delta}_{HH},$$

где индекс $HH$ подчеркивает, что спиновый ток связан с гамильтонианом Гейзенберга.

В работе [18] приводится пример коэффициента $\mathbf{D}_{ij}$ для перовскитов. В перовскитах возникает следующая картина взаимодействия между ближайшими магнитными ионами. Обменное взаимодействие осуществляется за счет суперобмена через лиганд, в качестве которого выступает немагнитный ион (например, ион кислорода), который расположен между магнитными ионами, но в стороне от прямой, соединяющей данные ионы. Такой механизм приводит к следующей структуре коэффициента Дзялошинского:

$$\mathbf{D}_{ij} \sim \mathbf{r}_{ij} \times \boldsymbol{\delta},$$

где $\boldsymbol{\delta}$ — вектор смещения лиганда от центра отрезка, соединяющего магнитные ионы. Кроме того, нам необходимо ввести коэффициент пропорциональности, учитывающий убывание взаимодействия при увеличении расстояния между магнитными ионами $r_{ij}$. В итоге получаем

$$\mathbf{D}_{ij} = \beta(r_{ij}) \mathbf{r}_{ij} \times \boldsymbol{\delta},$$

где коэффициент пропорциональности $\beta(r_{ij})$ зависит только от модуля расстояния между ионами.

Для представленной модели коэффициента Дзялошинского в перовскитах мы приходим к следующим выражениям для плотности силы взаимодействия Дзялошинского – Мория:

$$F^\sigma_{DM} = \frac{1}{2}\hat{g}^{\alpha\lambda\mu\sigma}_{4D}\delta^\nu \varepsilon^{\beta\mu\nu}\varepsilon^{\beta\gamma\delta}\partial^\alpha(S^\gamma \partial^\lambda S^\delta), \quad (8)$$

где

$$\hat{g}^{\alpha\lambda\mu\sigma}_{4D} = \int \xi^\alpha \xi^\lambda \left(\beta(\xi)\, \delta^{\mu\sigma} + \xi^\mu \xi^\sigma \frac{1}{\xi}\frac{\partial\beta(\xi)}{\partial\xi}\right)$$

— неприведенная форма константы взаимодействия, и для плотности момента силы

$$T^\mu_{DM} = \frac{1}{3} g_{2(\beta)} \delta^\nu \left(-\varepsilon^{\mu\delta\nu} S^\beta \partial^\delta S^\beta + \varepsilon^{\alpha\delta\nu} S^\alpha \partial^\delta S^\mu\right), \quad (9)$$

где

$$g_{2(\beta)} = \int \xi^2 \beta(\xi)\, d^3\xi.$$

Первое слагаемое в моменте силы (9) может быть преобразовано в виде дивергенции спинового тока.

В итоге получим

$$T^{\mu}_{DM} = -\partial_\beta J^{\mu\beta}_{DM} + \frac{1}{3} g_{2(\beta)} \delta^\nu \varepsilon^{\alpha\delta\nu} S^\alpha \partial^\delta S^\mu,$$

где

$$J^{\mu\beta}_{DM} = \frac{1}{3} g_{2(\beta)} \delta^\nu \frac{1}{2} \varepsilon^{\mu\beta\nu} \mathbf{S}^2. \qquad (10)$$

Еще раз остановимся на структуре плотности силы взаимодействия Дзялошинского – Мория (8), окончательное выражение для которой запишем в векторном виде:

$$\mathbf{F}_{DM} = \frac{1}{3} g_{(\beta)} \Big( (\boldsymbol{\delta}\cdot\mathbf{S})\nabla(\nabla\cdot\mathbf{S}) - (\mathbf{S}\cdot\nabla)\nabla(\boldsymbol{\delta}\cdot\mathbf{S}) \Big), \quad (11)$$

где

$$g_{(\beta)} = \int \xi^2 \beta(\xi)\, d\xi.$$

Вектор Дзялошинского – Мория, как и обменный интеграл, представляет собой функцию расстояния, которую можно заменить определенным значением при рассмотрении фиксированного расстояния между атомами в кристалле. Обменное (прежде всего кулоновское) взаимодействие является механизмом взаимодействия нейтральных атомов, как взаимодействие валентных электронов (электронов с внешних оболочек). Оно также дает вклад во взаимодействие ионов. В газах расстояние между атомами меняется в значительных пределах. Однако взаимодействие проявляется на малых расстояниях (по сравнению со средним расстоянием между атомами). Это приводит к тому, что в макроскопических уравнениях короткодействие описывается набором констант взаимодействия (в основном одной константой — интегралом эффективного потенциала взаимодействия, при обменном взаимодействии, связанном с перекрытием волновых функций валентных электронов близких атомов и поэтому существенно зависящем от расстояния). С этой точки зрения обменный интеграл Гейзенберга и вектор Дзялошинского – Мория являются интегрируемыми функциями расстояния между взаимодействующими атомами. В кристаллах, при пренебрежении тепловыми колебаниями атомов/ионов около положения равновесия, имеет место фиксированное расстояние между атомами/ионами. При рассмотрении таких систем мы можем выбрать определенный вид пространственной зависимости рассматриваемых функций в виде узкой «ступеньки»:

$$U(r) = U_0\, \theta(r-a)\, \theta(a+\delta a - r),$$

где $\theta$ — функция Хевисайда, $U_0$ — значение обменного интеграла в рассматриваемом кристалле, $a$ — среднее расстояние между атомами, $\delta a$ — амплитуда тепловых колебаний.

Отметим, что, если мы получим интеграл только от вектора Дзялошинского – Мория (как функции $r_{ij}$), то он обратится в нуль. Однако при разложении волновых функций и дельта-функции возникают дополнительные множители, содержащие $r_{ij}$, так что часть выражений оказывается отличной от нуля.

### 2.2. Равновесное состояние и спин-токовая модель

Мультиферроик представляет собой систему с магнитным и диэлектрическим упорядочением. Как следствие этого, внутри системы существуют макроскопические равновесные электрические и магнитные поля. Поэтому необходимо рассмотреть равновесное состояние системы с отличными от нуля значениями полей. Из уравнения (6) видно, что для рассматриваемых взаимодействий ненулевые значения полей возможны при наличии неоднородности полей, так как все слагаемые в правой части содержат пространственные производные полей. Третье и четвертое слагаемые в правой части пропорциональны $\nabla E^\beta$. Это дает возможность для формирования баланса этих сил в равновесном состоянии при различных видах неоднородности электрического поля. Это приводит к формированию равновесной поляризации, обусловленной спин-орбитальным взаимодействием:

$$P^\mu = \frac{\gamma}{2mc} \varepsilon^{\mu\alpha\beta} J^{\alpha\beta}.$$

Отметим, что здесь использована самосогласованная часть спин-орбитального взаимодействия, соответствующая части многочастичной волновой функции, состоящей из произведения одночастичных волновых функций отдельных магнитных ионов.

Комбинация первого и второго слагаемых в правой части уравнения баланса импульса (6) дает равновесное магнитное поле, пропорциональное плотности спина $B^\beta = -g_{0u} S^\beta/\gamma$ и вызванное обменным кулоновским взаимодействием.

Плотность силы взаимодействия Дзялошинского – Мория для нечетного коэффициента Дзялошинского имеет структуру, отличную от других слагаемых в уравнении баланса импульса. Кроме того, она содержит две пространственные производные, что говорит о сравнительно малом вкладе по сравнению с другими слагаемыми.

Анализ равновесного состояния, исходя из уравнения баланса импульса (6), позволил получить связь между поляризацией и спиновым током. Очевидно, что полученная связь является частным случаем баланса сил и в общем случае другие взаимодействия могут дать вклад в это соотношение. Следующий вопрос, который возникает в развитии спин-токовой модели, это выражение для спинового тока, обусловленного различными эффектами. Выражения для спиновых токов мы берем из уравнения эволюции спина. Как показывает представленный выше анализ, вклад обменного кулоновского взаимодействия, взятый в виде гамильтониана Гейзенберга в уравнении эволюции спина, может быть представлен в виде дивергенции спинового тока. Это дает нам один из парциальных спиновых токов. Вклад взаимодействия Дзялошинского – Мория также можно представить в виде дивергенции спинового тока, но при условиях, которые также сформулированы выше.

### 2.3. Макроскопическая поляризация в рамках спин-токовой модели

Рассмотрим применение спин-токовой модели к двум видам парциальных спиновых токов. Для спинового тока, обусловленного гамильтонианом Гейзенберга, получаем следующее выражение для макроскопической поляризации:

$$P^{\mu}_{HH} = \frac{\gamma}{2mc}\,\varepsilon^{\mu\alpha\beta}J^{\alpha\beta}_{HH} = \\ = \frac{\gamma}{12mc}g_u(S^{\beta}\partial_{\beta}S^{\mu} - S^{\mu}\partial_{\beta}S^{\beta}). \quad (12)$$

Это соответствует результату, полученному М. Мостовым [4] (см. также работу [19], с. 533). Для спинового тока, обусловленного взаимодействием Дзялошинского – Мория, мы также находим выражение для макроскопической поляризации:

$$P^{\mu}_{DM} = \frac{\gamma}{2mc}\,\varepsilon^{\mu\alpha\beta}J^{\alpha\beta}_{DM} = -\frac{\gamma}{12mc}g_{2(\beta)}\delta^{\mu}\mathbf{S}^2. \quad (13)$$

Эти выражения мы используем ниже при анализе микроскопической структуры электрического дипольного момента, рассматриваемого в литературе [2].

Уравнения (9) и (10) приводят к выражению (13). Основной вклад в поляризацию не зависит от пространственных производных. В данном случае наличие $\delta$ дает ненулевой спиновый ток $J^{\alpha\beta}_{DM}$, который дает ненулевое значение силы спин-орбитального взаимодействия (четвертое слагаемое в правой части уравнения (6)). А баланс этой силы с третьим слагаемым, пропорциональным поляризации $\mathbf{P}$ (где $\mathbf{P}$ пропорционально $\boldsymbol{\delta}$), дает согласованное условие равновесия. Из формулы (13) следует, что при таком равновесии существует связь поляризации среды $\mathbf{P}$ и плотности спина в представленном виде. Выражение (13) соответствует оператору электрического дипольного момента для коллинеарных спинов, представленному в работе [2] (см. рис. 2*a*–2*c*).

В зависимости от структуры и симметрии кристаллов реализуются разные механизмы формирования поляризации. Показано, что смещение зарядовой плотности может возникнуть из-за спин-орбитального взаимодействия. Последнее проявляется при наличии спинового тока в системе ионов, формирующих неоднородное электрическое поле. Если преобладает спиновый ток, обусловленный кулоновским обменным взаимодействием, то мы приходим к формуле (12). Выражение (12) совпадает с выражением для поляризации (23), которое было использовано в литературе для магнитоупорядоченных структур с неколлинеарными спинами, которые реализуются в перовскитах типа $RMnO_3$, где $R = Tb, Dy$ [20]. Формула (13) возникает для M–X–M-структуры, где M — магнитные ионы, X представляет собой ион-лиганд. Эта структура реализуется в редкоземельных манганитах перовскитного типа (или орторомбических манганитах) $RMnO_3$ при $R = Ho, Er, Tm, Yb$ [21, 22]. Еще одним мультиферроиком является семейство оксидов марганца со смешанной валентностью $RMn_2O_5$, где R = Y, Tb, Ho, Er или Tm [23]. Магнитная структура в подобных веществах является антиферромагнитной в плоскости ab, образуя коллинеарный спиновый порядок магнитных ионов $Mn_4^+$ и $Mn_3^+$.

### 2.4. Спиновый ток и потенциал Бома

Учет малых колебаний ионов в окрестности положения равновесия потребовал бы учета кинетической энергии ионов в исходном гамильтониане (5). Это также привело бы к слагаемым, описывающим потоки частиц, отсутствующие в данном случае, при рассмотрении кристаллов, а систематическое исключение потоков из уравнений усложнило бы приведенные уравнения. Однако учет кинетической энергии проявляется также в появлении квантовых эффектов, в частности, в появлении квантового потенциала Бома, который дает вклад и в спиновый ток в уравнении эволюции спина [24] (см. уравнение (9)):

$$J^{\alpha\beta}_{Bohm} = -\frac{\hbar\gamma}{2m}\,\varepsilon^{\alpha\mu\nu}S^{\mu}\partial^{\beta}\left(\frac{S^{\nu}}{n}\right). \quad (14)$$

Если мы рассматриваем квазиклассическую динамику поляризации, то парциальные токи, полученные и использованные выше, должны превышать спиновый ток, обусловленный потенциалом Бома.

Кроме того, потенциал Бома связан с квантовым движением частиц, что может приводить к деформациям и формированию электрического дипольного момента. Вычислим его в рамках спин-токовой модели:

$$P^{\mu}_{Bohm} = \frac{\gamma}{2mc}\varepsilon^{\mu\alpha\beta}J^{\alpha\beta}_{Bohm} = \\ = \frac{\hbar\gamma^2}{4m^2c}\left[S^{\mu}\partial^{\beta}\left(\frac{S^{\beta}}{n}\right) - S^{\beta}\partial^{\beta}\left(\frac{S^{\mu}}{n}\right)\right]. \quad (15)$$

Сравним поляризации (12) и (15). Они имеют схожую структуру, но в выражении (15) присутствуют производные концентрации. Рассмотрим режим постоянной концентрации и получим оценку для константы $g_u$ (без учета знака): $g_u \gg \hbar\gamma/2m$.

### 2.5. Обсуждение спин-токовой модели на основании структуры потока вероятности

Для рассматриваемого гамильтониана уравнение непрерывности $\partial_t n + \nabla\cdot\mathbf{j} = 0$ приводит к плотности потока частиц $\mathbf{j}$ следующего вида:

$$\mathbf{j} = \int\left(\Psi^{\dagger}_S(R,t)\sum_i \delta(\mathbf{r}-\mathbf{r}_i)\hat{\mathbf{j}}_i\Psi_S(R,t) + \right. \\ \left. + \text{H. c.}\right)dR, \quad (16)$$

где

$$\hat{\mathbf{j}}_i = \frac{1}{2m_i}\left(\hat{\mathbf{p}}_i + \frac{\mu}{2m_i c}[\mathbf{E}_i \times \hat{\mathbf{s}}_i]\right). \quad (17)$$

Для придания более привычного вида оператору потока частиц мы включили в него оператор импульса $\hat{\mathbf{p}}_i$, который может возникнуть из оператора кинетической энергии в исходном гамильтониане, но он не рассмотрен в нашем случае. Более того, в работе [14], вклад импульса тоже отбрасывается, так как рассматриваются ионы, движение которых пренебрежимо мало. Кроме того, поток числа частиц/вероятности определен неоднозначно, и мы можем добавить ротор произвольного вектора в определение (16), что приведет к изменению структуры оператора (17) (см. [14, 25]). Обычно в определение потока вероятности добавляют ротор плотности спина/намагниченности

$$\tilde{\mathbf{j}} = \mathbf{j} + (\hbar/2ms)\mathrm{rot}\mathbf{S},$$

где $s$ — спин рассматриваемых ионов. Баланс ротора спина и слагаемого, вызванного спин-орбитальным взаимодействием, дает связь напряженности электрического поля и плотности спина, и дальнейшую связь поляризации с плотностью спина:

$$\mathbf{P} \sim (\mathbf{S}\times(\nabla\times\mathbf{S}))/\mathbf{S}^2,$$

см. [14]. Также запишем упрощенный вид этой формулы без векторных произведений

$$\mathbf{P} \sim [(\nabla\mathbf{S}^2/2 - (\mathbf{S}\cdot\nabla)\mathbf{S}]/\mathbf{S}^2$$

для дальнейшего сравнения с результатами анализа микроскопической структуры электрического дипольного момента [2].

## 3. О МИКРОСКОПИЧЕСКОМ ОПРЕДЕЛЕНИИ ПОЛЯРИЗАЦИИ МУЛЬТИФЕРРОИКА

В предыдущем разделе представлен анализ структуры поляризации, связанной со спин-орбитальным взаимодействием. Это дает частичное обоснование спин-токовой модели и возможность для ее дальнейшего обобщения. Кроме того, такой анализ дает макроскопические выражения для поляризации, сформированной разными видами обменного взаимодействия (в рамках спин-токовой модели). Это позволяет восстановить микроскопическую структуру поляризации, приводящую к полученным макроскопическим выражениям. Однако эти микроскопические структуры уже известны в литературе [2], и мы можем выбрать нужную нам для перехода к макроскопическому выражению и его сравнения с полученным выше.

Рассмотрим спины двух магнитных ионов $\mathbf{s}_i$ и $\mathbf{s}_j$ и, следуя работам [2, 3, 18], запишем выражение для электрического дипольного момента элементарной ячейки кристалла

$$\mathbf{d}_{ij} = \alpha_{ij}[\mathbf{r}_{ij}\times[\mathbf{s}_i\times\mathbf{s}_j]], \quad (18)$$

где мы используем относительное расстояние между частицами $r_{ij} =\mid \mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j \mid$, в данном случае это магнитные ионы. Далее, перейдем к операторной форме этого равенства

$$\hat{\mathbf{d}}_{ij} = \alpha_{ij}[\mathbf{r}_{ij}\times[\hat{\mathbf{s}}_i\times\hat{\mathbf{s}}_j]] \quad (19)$$

для развития квантовой модели поляризации мультиферроиков II типа. Отметим для определенности коммутационные свойства операторов спина

$$[\hat{s}^{\alpha}_i, \hat{s}^{\beta}_j] = \imath\hbar\delta_{ij}\varepsilon^{\alpha\beta\gamma}\hat{s}^{\gamma}_i, \quad (20)$$

где $\alpha$, $\beta$, $\gamma$ — тензорные индексы, принимающие значения декартовых координат $x$, $y$, $z$. В этой работе мы подразумеваем суммирование по повторяющимся индексам (греческим буквам). Символ $\imath$ использован для мнимой единицы $\imath^2 = -1$, $\delta_{ij}$ — трехмерный символ Кронекера, $\varepsilon^{\alpha\beta\gamma}$ — трехмерный символ Леви-Чивиты.

Из формулы (18) видно, что мы рассматриваем ионы с непараллельными спинами, находящимися в системах со спиральными структурами намагниченности [18]. Однако существуют нетривиальные примеры систем с параллельными спинами [26], которые не описываются данной моделью.

Основным элементом рассмотрения является электрический дипольный момент ячейки кристалла. Поэтому мы переходим в определении (19) от пары ионов к ячейке с номером $i$. Чтобы учесть, что дипольный момент создан ионом $i$ в совокупности с соседним ионом, мы вводим коэффициент $\alpha_{ij}(r_{ij})$, который быстро убывает с увеличением расстояния, и приходим к следующей модификации определения (19):

$$\hat{\mathbf{d}}_i = \sum_{j\neq i} \alpha_{ij}(r_{ij})[\mathbf{r}_{ij} \times [\hat{\mathbf{s}}_i \times \hat{\mathbf{s}}_j]], \qquad (21)$$

где, к примеру, $\alpha_{ij}(r_{ij}) = \alpha_{ij}$ при $r < a_{eff}$, $\alpha_{ij}(r_{ij}) = 0$ при $r > a_{eff}$, коэффициент $\alpha_{ij}(r_{ij})$ можно изобразить ступенчатой функцией в трехмерном пространстве.

Выше, при выводе уравнения баланса импульса (6), мы использовали определение поляризации через оператор электрического дипольного момента $\hat{\mathbf{d}}_i$:

$$\mathbf{P}(\mathbf{r},t) = \int \Psi_S^\dagger(R,t) \sum_i \delta(\mathbf{r}-\mathbf{r}_i)(\hat{\mathbf{d}}_i \Psi(R,t))_S\, dR. \qquad (22)$$

Исходный «затравочный» электрический дипольный момент $\hat{\mathbf{d}}_i$ ассоциирован со смещением ионов $\hat{\mathbf{d}}_i = q_i \mathbf{r}_i$, где $q_i$ — заряд иона. Далее, мы рассмотрим эволюцию поляризации (22) с оператором (21). Прежде чем переходить к уравнению эволюции поляризации, рассмотрим связь макроскопической поляризации $\mathbf{P}$ с плотностью спина, связанной с оператором (21). Учтем быстрое убывание функции $\alpha_{ij}(r_{ij})$ с увеличением расстояния $r_{ij}$ (следуя методу, описанному в [27]). Чтобы учесть это свойство, введем переменные центра масс пары частиц $\mathbf{R}_{ij} = (\mathbf{r}_i + \mathbf{r}_j)/2$ и их относительное расстояние $\mathbf{r}_{ij} = \mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j$. Выразим координаты рассматриваемых частиц через новые координаты $\mathbf{r}_i = \mathbf{R}_{ij} + (1/2)\mathbf{r}_{ij}$ и $\mathbf{r}_j = \mathbf{R}_{ij} - (1/2)\mathbf{r}_{ij}$. Сделаем соответствующую подстановку в дельта-функцию $\delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i)$ и в волновую функцию $\Psi(R,t) = \Psi(..., \mathbf{r}_i, ..., \mathbf{r}_j, ..., t)$, которые входят в определение поляризации (22). Далее, выполним разложение по координатам относительного движения $r_{ij}$. В наинизшем отличном от нуля порядке разложения из (22), с подстановкой (21), находим

$$\mathbf{P}(\mathbf{r},t) = \frac{1}{3} g_{(\alpha)} [(\mathbf{S}\cdot\nabla)\mathbf{S} - \mathbf{S}(\nabla\cdot\mathbf{S})], \qquad (23)$$

где

$$g_{(\alpha)} = \int \xi^2 \alpha(\xi)\, d\xi.$$

*С точностью до коэффициента пропорциональности полученное выражение совпадает с результатом М. Мостового [4] (см. также [19], с. 533), который выведен им с применением соображений симметрии к поляризации, намагниченности и термодинамическим потенциалам.* Сравнивая коэффициенты в формуле (23) и формуле (2) работы [4], мы получаем

$$g_{(\alpha)} = 3\gamma\chi_e\mu^2,$$

где $\chi_e$ — диэлектрическая восприимчивость в отсутствие магнетизма, $\gamma$ — неопределенный коэффициент пропорциональности, использованный в работе [4] для построения термодинамического потенциала (см. формулу (1) работы [4]).

Продолжим сравнение формулы (23) с результатами, обсуждавшимися выше. Мы видим, что результат работы [14], приведенный нами в разд. 2.4, не соответствует работе [4] и полученному нами результату на основе формулы (21). Однако применение спин-токовой модели с парциальным спиновым током, обусловленным обменным взаимодействием Гейзенберга, дает нам выражение для $\mathbf{P}_{HH}$ (см. разд. 2.3), которое совпадает с формулой (23) с точностью до коэффициента пропорциональности. Более того, коэффициент в $\mathbf{P}_{HH}$ связан с обменным интегралом, входящим в гамильтониан Гейзенберга, и пропорционален $g_u$. Это позволяет нам дать интерпретацию функции $\alpha_{ij}(r_{ij})$ в (18) и операторе (21). В итоге мы получаем следующее соотношение при $\frac{1}{12}(3\gamma/mc)g_u = g_{(\alpha)}$:

$$\alpha_{ij}(r_{ij}) = \frac{1}{12}\frac{3\gamma}{mc} U(r_{ij}). \qquad (24)$$

В работах [3, 18] говорится, что обменное кулоновское взаимодействие приводит к формированию поляризации с параллельными спинами, тогда как структура типа (18) соответствует взаимодействию Дзялошинского – Мория. *Наш анализ показывает, что рассмотрение обменного кулоновского взаимодействия между ионами в виде гамильтониана Гейзенберга приводит к структуре электрического дипольного момента, определенного выражением (18). Более того, наш анализ позволяет аналитически вычислить коэффициент пропорциональности, определяющий дипольный момент в формуле (18).*

### 3.1. О физических механизмах, приводящих к формированию спиновой структуры поляризации

Рассмотрим для сравнения структуру поляризации, возникающую в системе параллельных спинов, следуя обзору [2] (см. рис. 2, случай 1): $\hat{\mathbf{d}}_i \sim \sim \boldsymbol{\pi}(\hat{\mathbf{s}}_i \cdot \hat{\mathbf{s}}_{i+1})$. Это приводит к следующей макроскопической поляризации: $P^\alpha = g^\alpha_{0\Pi}\mathbf{S}^2$, где $g^\alpha_{0\Pi} = \int \Pi^\alpha(r)\, d\mathbf{r}$. Анализируя случай (13), в режиме смещения иона лиганда перпендикулярно направлению спиновой поляризации, получаем $P^\alpha = g^\alpha_{0\Pi}\mathbf{S}^2$ с дополнительным условием $g^\alpha_{0\Pi} = -(1/6)g_{2(\beta)}\delta^\alpha$. С точки зрения микроскопического описания мы можем заключить, что $\Pi^\alpha_{ij}(r_{ij}) = r^2_{ij}\beta(r_{ij})\delta^\alpha$.

Представленный анализ позволяет нам дать переосмысление рис. 2 в обзоре [2] (два первых случая). В работе [2] утверждается, что электрический дипольный момент $\hat{\mathbf{d}}_i \sim \boldsymbol{\pi}(\hat{\mathbf{s}}_i \cdot \hat{\mathbf{s}}_{i+1})$ обусловлен симметричным обменным взаимодействием, или, другими словами, кулоновским обменным взаимодействием, представленным гамильтонианом Гейзенберга. Также в работе [2] утверждается, что электрический дипольный момент

$$\hat{\mathbf{d}}_i \sim \alpha_{ij}[\mathbf{r}_{ij} \times [\mathbf{s}_i \times \mathbf{s}_j]]$$

обусловлен антисимметричным обменным взаимодействием, т. е. взаимодействием Дзялошинского–Мория. Наш анализ, опирающийся, в частности, на уравнения (12) и (13), приводит к обратной интерпретации природы данных операторов дипольных моментов. Отметим, что спин-токовая модель обычно привязана к объяснению структуры

$$\hat{\mathbf{d}}_i \sim \alpha_{ij}[\mathbf{r}_{ij} \times [\mathbf{s}_i \times \mathbf{s}_j]].$$

Это видно даже из рис. 2*f* в работе [2]. Связь структуры поляризации и взаимодействия, приводящего к ее формированию, не совсем ясна в работе [2]. Можно предположить, что имеет место качественная интерпретация, основанная на сравнении спиновых структур в гамильтониане Гейзенберга (или Дзялошинского–Мория) и в электрическом дипольном моменте. Если обе структуры содержат скалярное произведение спинов, то они имеют общий механизм, т. е. симметричный обмен Гейзенберга. Иначе, если обе структуры содержат векторное произведение спинов, то общим механизмом является взаимодействие Дзялошинского–Мория. Но описанная здесь аналогия не верна. Манипуляция с операторами спина часто приводит к возникновению коммутатора, который переводит скалярное произведение операторов спина в векторное и наоборот. То, за чем нужно следить, как за инвариантом, при качественном анализе, это математическая или тензорная структура коэффициента взаимодействия в исходном гамильтониане. В гамильтониане Гейзенберга это скалярная величина — обменный интеграл. Поэтому можно ожидать, что соответствующая поляризация будет связана с операторами спина через скалярный коэффициент (см. $\alpha$ в формуле (18)). В гамильтониане Дзялошинского–Мория присутствует векторная постоянная Дзялошинского. Следовательно, можно ожидать, что поляризация будет связана со спиновыми операторами через векторный коэффициент $\hat{\mathbf{d}}_i \sim \boldsymbol{\pi}(\hat{\mathbf{s}}_i \cdot \hat{\mathbf{s}}_{i+1})$. Здесь, как мы показали, коэффициентом выступает не сама постоянная Дзялошинского, а вектор смещения лиганда, входящий в постоянную Дзялошинского [18] $\mathbf{D}_{ij} \sim \mathbf{r}_{ij} \times \boldsymbol{\delta}$. Описанное несоответствие механизма и интерпретации может быть причиной критики спин-токовой модели [28]. Однако причины отмеченной несогласованности могут быть более глубокими.

## 4. УРАВНЕНИЕ ЭВОЛЮЦИИ ПОЛЯРИЗАЦИИ

Представленный выше анализ показывает, что различные типы электрического дипольного момента ячейки мультиферроика можно получить, исходя из метода квантовой гидродинамики. Несмотря на акцент на эволюции макроскопических функций, метод квантовой гидродинамики содержит связь с микроскопическим описанием. Опираясь на полученное определение электрического дипольного момента для режима, когда он пропорционален векторному произведению спинов (18) (ранее известному из работ [2,3]), и его преобразование к виду (21), мы переходим к выводу уравнения эволюции поляризации мультиферроика. Уточним вид гамильтониана, используемого для предлагаемого вывода:

$$\hat{H} = -\frac{1}{2}\sum_{i=1}^{N}\sum_{\substack{j=1,\\ j\neq i}}^{N} U(r_{ij})(\hat{\mathbf{s}}_i \cdot \hat{\mathbf{s}}_j), \tag{25}$$

где $r_{ij} = |\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|$.

Далее, согласно методу квантовой гидродинамики, мы дифференцируем по времени определение поляризации (22) с оператором (21) и используем нестационарное уравнение Шредингера для преобразования полученного выражения к виду

$$\partial_t \mathbf{P}(\mathbf{r},t) = = \frac{\imath}{\hbar}\int \Psi^\dagger(R,t)\sum_i \delta(\mathbf{r}-\mathbf{r}_i)[\hat{H},\hat{\mathbf{d}}_i]\Psi(R,t)\, dR. \tag{26}$$

Представим коммутатор, возникающий в формуле (26), как

$$[\hat{H}, \hat{d}_i^\alpha] = -\imath\hbar\Big\{\frac{1}{2}\sum_{j\neq i} U_{ij}\alpha_{ij}\varepsilon^{\alpha\beta\gamma}r_{ij}^\beta\big(2\hat{\mathbf{s}}_i^2\hat{s}_j^\gamma - 2\hat{\mathbf{s}}_j^2\hat{s}_i^\gamma + \{\hat{s}_j^\gamma, \hat{s}_j^\sigma\}\hat{s}_i^\sigma - \{\hat{s}_i^\gamma, \hat{s}_i^\sigma\}\hat{s}_j^\sigma\big) + \sum_{n\neq i,j}\sum_{j\neq i}\alpha_{ij}\varepsilon^{\alpha\beta\gamma}r_{ij}^\beta \times \times\big((\hat{s}_n^\gamma\hat{s}_j^\sigma\hat{s}_i^\sigma - \hat{s}_n^\sigma\hat{s}_j^\sigma\hat{s}_i^\gamma)U_{ni} + (\hat{s}_n^\sigma\hat{s}_j^\gamma\hat{s}_i^\sigma - \hat{s}_n^\gamma\hat{s}_j^\sigma\hat{s}_i^\sigma)U_{nj}\big)\Big\}, \tag{27}$$

где

$$\{\hat{s}_i^\alpha, \hat{s}_i^\beta\} = 2\hat{\pi}_i^{\alpha\beta} = \hat{s}_i^\alpha\hat{s}_i^\beta + \hat{s}_i^\beta\hat{s}_i^\alpha$$

— антикоммутатор операторов спина, пропорциональный оператору нематического тензора $\pi_i^{\alpha\beta}$.

Используем свойство быстрого уменьшения функций $U_{ij}$ и $\alpha_{ij}$ с увеличением расстояния между частицами. Для этого введем координаты центра масс и относительного расстояния. У нас присутствуют две группы слагаемых. В одной мы рассматриваем пары частиц, а в другой — группы из трех частиц. Для пар частиц мы уже вводили требуемые координаты при анализе структуры поляризации (23). Представим требуемые переменные для системы трех частиц. Запишем координату центра масс

$$\mathbf{R}_{ijn} = (\mathbf{r}_i + \mathbf{r}_j + \mathbf{r}_n)/3,$$

а также две координаты относительного движения

$$\mathbf{r}_{in} \equiv \mathbf{r}_1 = \mathbf{r}_i - \mathbf{r}_n, \qquad \mathbf{r}_{jn} \equiv \mathbf{r}_2 = \mathbf{r}_j - \mathbf{r}_n.$$

При необходимости мы можем использовать координаты относительного движения третьей пары частиц

$$\mathbf{r}_{ij} \equiv \mathbf{r}_3 = \mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2.$$

Также представим обратное преобразование координат отдельных частиц через введенные переменные:

$$\mathbf{r}_i = \mathbf{R}_{ijn} + (2/3)\mathbf{r}_{in} - (1/3)\mathbf{r}_{jn},$$
$$\mathbf{r}_j = \mathbf{R}_{ijn} - (1/3)\mathbf{r}_{in} + (2/3)\mathbf{r}_{jn},$$
$$\mathbf{r}_n = \mathbf{R}_{ijn} - (1/3)\mathbf{r}_{in} - (1/3)\mathbf{r}_{jn}.$$

Далее воспользуемся свойством быстрого убывания функций $U_{ij}$ и $\alpha_{ij}$ с увеличением расстояния и выполним разложение всех функций в подынтегральном выражении (дельта-функции и двух волновых функций) по относительному расстоянию между частицами. Отметим необходимые элементы структуры аргументов волновой функции

$$\Psi(R,t) = \Psi(..., \mathbf{r}_i, ..., \mathbf{r}_j, ..., \mathbf{r}_n, ..., t).$$

Более подробно метод вывода рассмотрен в Приложении. Отметим, что аналогичный метод использован при выводе других уравнений в представленной работе.

Выражение, полученное в первом порядке по относительному расстоянию между частицами, приводит к следующему выражению для эволюции поляризации (в нулевом порядке производная поляризации равна нулю):

$$\partial_t P^\alpha = \frac{1}{3}\varepsilon^{\alpha\beta\gamma}g_{u(\alpha)}[S^\gamma\partial_\beta\pi^{\sigma\sigma} - \pi^{\sigma\sigma}\partial_\beta S^\gamma + \pi^{\gamma\sigma}\partial_\beta S^\sigma - S^\sigma\partial_\beta\pi^{\gamma\sigma}], \tag{28}$$

которое справедливо для атомов/ионов с произвольным спином. Уравнение (28) содержит следующую константу взаимодействия:

$$g_{u(\alpha)} = \int \xi^2 U(\xi)\alpha(\xi)\,d\xi.$$

Метод вычислений можно найти в работе [27], где он рассмотрен для другого типа физических систем, но содержит аналогию в основных этапах. Кроме того, уравнение (28) содержит нематический тензор $\pi^{\alpha\beta}$. Для ионов со спином, отличным от 1/2, антикоммутатор операторов спина отличен от символа Кронекера. Квантовое среднее этого оператора дает независимую физическую величину, называемую нематическим тензором $\pi^{\alpha\beta}(\mathbf{r},t)$, которая существует наряду с плотностью спина:

$$\pi^{\alpha\beta} = \frac{1}{2}\int \Psi_S^\dagger \sum_i \delta(\mathbf{r}-\mathbf{r}_i)[(\hat{s}_i^\alpha\hat{s}_i^\beta + \hat{s}_i^\beta\hat{s}_i^\alpha)\Psi]_S\,dR. \tag{29}$$

Для спина 1/2 нематический тензор становится пропорциональным концентрации

$$\pi^{\alpha\beta} = (\hbar^2/4)\delta^{\alpha\beta}n,$$

и уравнение (28) упрощается к виду

$$\partial_t P^\alpha = \frac{\hbar^2}{6}\varepsilon^{\alpha\beta\gamma}g_{u(\alpha)}[S^\gamma\partial_\beta n - n\partial_\beta S^\gamma]. \tag{30}$$

Отметим, что при рассмотрении гамильтониана (25) концентрация $n$ не меняется во времени в соответствии с уравнением непрерывности, но может быть неоднородна в пространстве.

### 4.1. Уравнение эволюции плотности спина

При обосновании спин-токовой модели нами рассмотрен гамильтониан, содержащий несколько видов взаимодействий (5), тогда как основной результат этой работы (28) и (30) получен для эволюции под действием гамильтониана Гейзенберга. Приведем здесь соответствующее уравнение эволюции спина

$$\partial_t\mathbf{S} = \frac{1}{6}g_u[\mathbf{S}, \triangle\mathbf{S}], \tag{31}$$

где

$$g_u = \int \xi^2 U(\xi)\,d\xi.$$

Отметим, что строгий вывод уравнения движения намагниченности/плотности спина (31) в континуальном приближении выполнен методом квантовой гидродинамики в работе [16].

### 4.2. Уравнение эволюции нематического тензора

Чтобы получить замкнутую систему уравнений квантовой гидродинамики, нам нужно вывести уравнение эволюции нематического тензора (29) под действием обменного взаимодействия (25):

$$\partial_t \pi^{\alpha\beta} = g_{0u}[\pi^{\alpha\gamma}\varepsilon^{\beta\gamma\sigma} + \pi^{\beta\gamma}\varepsilon^{\alpha\gamma\sigma}]S^{\sigma}, \tag{32}$$

где коэффициент

$$g_{0u} = \int U(\xi)\, d\xi.$$

Для спина 1/2 имеем $\pi^{\alpha\beta} = (\hbar^2/4)\,\delta^{\alpha\beta} n$, левая часть сводится к $\partial_t n$, а правая часть уравнения (32) обращается в нуль в соответствии с уравнением непрерывности для рассматриваемого гамильтониана.

## 5. ВЫВОДЫ

Предложено уравнение эволюции электрической поляризации в мультиферроике II типа, в котором поляризация ячейки кристалла формируется пропорционально векторному произведению спинов входящих в нее магнитных ионов. Уравнение выведено методом квантовой гидродинамики как часть замкнутой системы уравнений, включающих в себя уравнения эволюции плотности спина, нематического тензора и концентрации.

Дано обоснование спин-токовой модели поляризации мультиферроиков на основе метода квантовой гидродинамики. Плотность силы, действующей со стороны электрического поля на электрический дипольный момент, и плотность силы спин-орбитального взаимодействия имеют одинаковую структуру, приводящую к возможности баланса между этими силами. Это позволяет ввести эффективную плотность электрического дипольного момента, обусловленную спин-орбитальным взаимодействием и пропорциональную спиновому току. Использование спинового тока из уравнения эволюции спина дает окончательное макроскопическое выражение. На его основе можно восстановить оператор, соответствующий такому виду поляризации. В итоге мы получаем микроскопическое выражение, использованное для вывода уравнения эволюции поляризации.

Кроме того, получена интерпретация скалярного коэффициента, определяющего микроскопический электрический дипольный момент через обменный интеграл, входящий в гамильтониан Гейзенберга. Такой вывод основан на использовании спин-токовой модели со спиновым током, обусловленным обменным взаимодействием в приближении гамильтониана Гейзенберга.

## 6. НАЛИЧИЕ ДАННЫХ

Вопрос о доступности данных не применим к этой статье, поскольку в этом исследовании, которое носит чисто теоретический характер, не создавались и не анализировались новые данные.

**Финансирование.** Исследование М. И. Трухановой выполнено при поддержке Российского научного фонда (грант № 22-72-00036), https:// rscf.ru/ project/22-72-00036/.

## ПРИЛОЖЕНИЕ. О МЕТОДЕ ВЫВОДА УРАВНЕНИЯ ЭВОЛЮЦИИ ПОЛЯРИЗАЦИИ

При усреднении коммутатора (27) по волновым функциям (26) мы проводим замену пространственных переменных в $i$-м, $j$-м и $n$-м аргументах при рассмотрении функции трех координат под интегралом ($i$-м и $j$-м при рассмотрении функции двух координат). Также проводится замена переменных в дельта-функции. Далее, мы используем то, что подынтегральные функции быстро убывают при увеличении относительного расстояния между ионами, что соответствует приближению взаимодействия ближайших соседей. Это свойство функций $U(r)$ и $\alpha(r)$ дает нам возможность разложить волновую функцию и $\delta$-функцию по относительному расстоянию между частицами. Запишем соответствующее разложение волновой функции, ограничиваясь описанием случая, когда подынтегральные функции $U(r)$ и $\alpha(r)$ зависят от координат двух частиц. Это соответствует первой группе слагаемых в коммутаторе (27). Далее получаем

$$\begin{gathered}\Psi(R,t) = \Psi(..., \mathbf{r}_i, ..., \mathbf{r}_j, ..., t) = \\ = \Psi(R,t) = \Psi\left(..., \mathbf{R}_{ij} + \frac{1}{2}\mathbf{r}_{ij}, ..., \mathbf{R}_{ij} - \frac{1}{2}\mathbf{r}_{ij}, ..., t\right) \approx \\ \approx \Psi(R,t) = \Psi(..., \mathbf{R}_{ij}, ..., \mathbf{R}_{ij}, ..., t) + \\ + \frac{1}{2}\mathbf{r}_{ij}\left(\frac{\partial}{\partial \mathbf{R}_{ij,1}} - \frac{\partial}{\partial \mathbf{R}_{ij,2}}\right)\Psi(..., \mathbf{R}_{ij,1}, ..., \mathbf{R}_{ij,2}, ..., t) + \\ + \frac{1}{2^3} r_{ij}^{\alpha} r_{ij}^{\beta}\left(\frac{\partial}{\partial R_{ij,1}^{\alpha}} - \frac{\partial}{\partial R_{ij,2}^{\alpha}}\right) \times \\ \times \left(\frac{\partial}{\partial R_{ij,1}^{\beta}} - \frac{\partial}{\partial R_{ij,2}^{\beta}}\right)\Psi(..., \mathbf{R}_{ij,1}, ..., \mathbf{R}_{ij,2}, ..., t), \end{gathered} \tag{33}$$

где

$$\mathbf{R}_{ij,1} = \mathbf{R}_{ij,2} = \mathbf{R}_{ij}$$

заданы для ионов, расположенных в $i$-й и $j$-й ячейках соответственно. Дополнительные индексы 1 и 2 использованы для уточнения, по какому аргументу многочастичной волновой функции происходит дифференцирование, так как в результате разложения в ряд Тейлора мы получили, что эти аргументы содержат одну и ту же переменную.

Отметим присутствие спиновых индексов в рассматриваемой многочастичной волновой функции (волновом спиноре)

$$\Psi(R,t)=\Psi_S(R,t)= \\ =\Psi_{...,s_i,...,s_j,...,s_n,...}(...,\mathbf{r}_i,...,\mathbf{r}_j,...,\mathbf{r}_n,...,t)$$

и действие спиновых операторов на этот волновой спинор

$$\hat{s}_i^\alpha\Psi(R,t)=(\hat{s}_i^\alpha\Psi)_S(R,t)= \\ =\hat{s}^\alpha_{s_is'_i}\Psi_{...,s'_i,...,s_j,...,s_n,...}(...,\mathbf{r}_i,...,\mathbf{r}_j,...,\mathbf{r}_n,...,t),$$

а также формулу для вычисления средних значений с учетом спинорной структуры

$$F=\int\Psi_S^\dagger\sum_{i,j\neq i}\delta(\mathbf{r}-\mathbf{r}_i)(\hat{F}_{ij}\Psi)_S\,dR. \qquad (34)$$

Изменение вида аргументов в координатной части волновой функции не дает изменения в форме действия спиновых операторов.

Отдельно отметим результат разложения $\delta$-функции:

$$\delta(\mathbf{r}-\mathbf{r}_i)=\delta(\mathbf{r}-\mathbf{R}_{ij}-(1/2)\mathbf{r}_{ij})\approx \\ \approx\delta(\mathbf{r}-\mathbf{R}_{ij})-\frac{1}{2}\mathbf{r}_{ij}\frac{\partial}{\partial\mathbf{r}}\delta(\mathbf{r}-\mathbf{R}_{ij})+ \\ +\frac{1}{2^3}r^\alpha_{ij}r^\beta_{ij}\frac{\partial}{\partial r^\alpha}\frac{\partial}{\partial r^\beta}\delta(\mathbf{r}-\mathbf{R}_{ij})+... \qquad (35)$$

Также представим, как это разложение проявляется в структуре макроскопической функции:

$$F(\mathbf{r},t)=\int\Psi_S^\dagger\sum_{i,j\neq i}\delta(\mathbf{r}-\mathbf{r}_i)(\hat{F}_{ij}\Psi)_S\,dR\approx \\ \approx\int\Psi_S^\dagger\sum_{i,j\neq i}\delta(\mathbf{r}-\mathbf{R}_{ij})(\hat{F}_{ij}\Psi)_S\,dR- \\ -\frac{1}{2}\frac{\partial}{\partial r^\alpha}\int\Psi_S^\dagger\sum_{i,j\neq i}\delta(\mathbf{r}-\mathbf{R}_{ij})r^\alpha_{ij}(\hat{F}_{ij}\Psi)_S\,dR+ \\ +\frac{1}{2^3}\frac{\partial}{\partial r^\alpha}\frac{\partial}{\partial r^\beta}\int\Psi_S^\dagger\sum_{i,j\neq i}\delta(\mathbf{r}-\mathbf{R}_{ij})r^\alpha_{ij}r^\beta_{ij}(\hat{F}_{ij}\Psi)_S\,dR, \qquad (36)$$

где производные по координате $\mathbf{r}$ можно вынести из-под интеграла. Отметим, что формула (36) представляет собой парциальный результат, и окончательное выражение для разложения функции $F(\mathbf{r},t)$ возникает при учете разложения волновых функций.

После учета короткодействующего характера взаимодействия возникает необходимость приближенного рассмотрения многочастичной волновой функции для получения замкнутого математического аппарата.

В общем случае, для многочастичной системы при сложной спиновой конфигурации, точная волновая функция не представляется в виде произведения функции, зависящей от пространственных координат, и функции, зависящей только от спиновых переменных. Общий вид функции определяется суперпозицией таких произведений, отдельные группы которых соответствуют разным значениям полного спина пары или тройки рассматриваемых частиц. Это особенно существенно для систем со спин-орбитальным взаимодействием, которое рассматривается в гамильтониане (5). Тем не менее мы ограничиваемся представлением волновой функции в виде произведения одночастичных волновых функций, полагая, что более детальное рассмотрение структуры волновой функции даст поправки к предлагаемому приближению типа «главного поля». Такое приближение оказалось достаточным при выводе вклада обменного взаимодействия Гейзенберга в уравнение Ландау – Лифшица [16]. Поэтому это приближение использовано, несмотря на учет спин-орбитального взаимодействия, которое является малым релятивистским эффектом. Отметим, что, как показано выше, поляризация обусловлена спин-орбитальным взаимодействием. Однако эволюция поляризации и других макроскопических функций происходит под влиянием набора взаимодействий, и спин-орбитальное взаимодействие можно считать малым по сравнению с ними.

## ЛИТЕРАТУРА

1. А. П. Пятаков, А. К. Звездин, *Магнитоэлектрические материалы и мультиферроики*, УФН **182**, 593 (2012), DOI: 10.3367/UFNr.0182.201206b.0593 [A. P. Pyatakov and A. K. Zvezdin, *Magnetoelectric and Multiferroic Media*, Phys. Usp. **55**, 557 (2012), DOI: 10.3367/UFNe.0182.201206b.0593].

2. Y. Tokura, S. Seki, and N. Nagaosa, *Multiferroics of Spin Origin*, Rep. Prog. Phys. **77**, 076501 (2014), DOI: 10.1088/0034-4885/77/7/076501.

3. H. Katsura, N. Nagaosa, and A. V. Balatsky, *Spin Current and Magnetoelectric Effect in Noncolli-*

*near Magnets*, Phys. Rev. Lett. **95**, 057205 (2005), DOI: 10.1103/PhysRevLett.95.057205.

**4**. M. Mostovoy, *Ferroelectricity in Spiral Magnets*, Phys. Rev. Lett. **96**, 067601 (2006), DOI: 10.1103/PhysRevLett.96.067601.

**5**. L. S. Kuz'menkov and S. G. Maksimov, *Quantum Hydrodynamics of Particle Systems with Coulomb Interaction and Quantum Bohm Potential*, Theor. Mat. Phys. **118**, 227 (1999).

**6**. L. S. Kuz'menkov, S. G. Maksimov, and V. V. Fedoseev, *Microscopic Quantum Hydrodynamics of Systems of Fermions: Part I*, Theor. Mat. Phys. **126**, 110 (2001).

**7**. P. A. Andreev, I. N. Mosaki, and M. I. Trukhanova, *Quantum Hydrodynamics of the Spinor Bose – Einstein Condensate at Non-Zero Temperatures*, Phys. Fluids **33**, 067108 (2021), DOI: 10.1063/5.0053035.

**8**. P. Andreev, *Measuring the Coupling Constant of Polarized Fermions via Sound Wave Spectra*, Theor. Mat. Phys. **213**, 1762 (2022), DOI: 10.1134/S0040577922120091.

**9**. T. Koide, *Spin-Electromagnetic Hydrodynamics and Magnetization Induced by Spin-Magnetic Interaction*, Phys. Rev. C **87**, 034902 (2013).

**10**. А. Ахиезер, В. Барьяхтар, С. Пелетминский, *Спиновые волны*, Наука, Москва (1967).

**11**. Y. Kawaguchi and M. Ueda, *Theory of Spin-2 Bose – Einstein Condensates: Spin Correlations, Magnetic Response, and Excitation Spectra*, Phys. Rep. **520**, 253 (2012).

**12**. D. M. Stamper-Kurn and M. Ueda, *Spinor Bose – Einstein Condensates*, Rev. Mod. Phys. **85**, 1191 (2013).

**13**. M. I. Trukhanova and P. Andreev, *A New Microscopic Representation of the Spin Dynamics in Quantum Systems with the Coulomb Exchange Interactions*, Moscow University Physics Bulletin, **79**, 232 (2024), DOI: 10.3103/S0027134924700255, arXiv:2305.03826.

**14**. J. Hu, *Microscopic Origin of Magnetoelectric Coupling in Noncollinear Multiferroics*, Phys. Rev. Lett. **100**, 077202 (2008), DOI: 10.1103/PhysRevLett.100.077202.

**15**. V. B. Berestetskii, E. M. Lifshitz, and L. P. Pitaevskii, Vol. 4, *Quantum Electrodynamics*, Butterworth – Heinemann (1982).

**16**. П. А. Андреев, М. И. Труханова, *Квантовогидродинамическое представление обменного взаимодействия в теории описания магнитоупорядоченных сред*, Вестник Моск. унив., сер. 3, физика, астрономия **78**(4), 2340103 (2023), DOI: 10.55959/MSU0579-9392.78.2340103.

**17**. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Теоретическая физика*, т. 9, *Статистическая физика*, ч. 2, *Теория конденсированного состояния*, Физматлит, Москва (2001).

**18**. Д. И. Хомский, *Мультиферроики и не только: электрические свойства различных магнитных текстур*, ЖЭТФ **159**, 581 (2021), DOI: 10.31857/S0044451021040015 [D. I. Khomskii, *Multiferroics and Beyond: Electric Properties of Different Magnetic Textures*, JETP **132**, 482 (2021)].

**19**. S. Dong, J.-M. Liu, S.-W. Cheong, and Z. Ren, *Multiferroic Materials and Magnetoelectric Physics: Symmetry, Entanglement, Excitation, and Topology*, Adv. Phys. **64**, 519 (2015), DOI: 10.1080/00018732.2015.1114338.

**20**. T. Goto, T. Kimura, G. Lawes, A. Ramirez, and Y. Tokura, *Ferroelectricity and Giant Magnetocapacitance in Perovskite Rare-Earth Manganites*, Phys. Rev. Lett. **92**, 257201 (2004).

**21**. A. Munoz, J. Alonso, M. T. Casais, M. J. Martnez-Lope, J. L. Martinez, and M. T. Fernandez-Diaz, *The Magnetic Structure of* $YMnO_3$ *Perovskite Revisited*, J. Phys.: Condens. Matter **14**, 3285 (2002).

**22**. V. Yu. Pomjakushin, M. Kenzelmann, A. Donni, A. B. Harris, T. Nakajima, S. Mitsuda, M. Tachibana, L. Keller, J. Mesot, and H. Kitazawa, *Evidence for Large Electric Polarization from Collinear Magnetism in* $TmMnO_3$, New J. Phys. **11**, 043019 (2009), DOI: 10.1088/1367-2630/11/4/043019.

**23**. H. Kimura, Y. Sakamoto, M. Fukunaga, H. Hiraka, and Y. Noda, *Control of Magnetic Interaction and Ferroelectricity by Nonmagnetic* Ga *Substitution in Multiferroic* $YMn_2O_5$, Phys. Rev. B **87**, 104414 (2013), https://doi.org/10.1103/ PhysRevB.87.104414.

**24**. P. A. Andreev and L. S. Kuz'menkov, *On the Equation of State for the "Thermal" Part of the Spin Current: The Pauli Principle Contribution in the Spin Wave Spectrum in a Cold Fermion System*, Prog. Theor. Exp. Phys. **2019**, 053J01 (2019), DOI: 10.1093/ptep/ptz029.

**25**. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Теоретическая физика*, т. 3, *Квантовая механика. Нерелятивистская теория*, Наука, Москва (1974).

**26**. I. A. Sergienko, C. Sen, and E. Dagotto, *Ferroelectricity in the Magnetic E-Phase of Orthorhombic Perovskites*, Phys. Rev. Lett. **97**, 227204 (2006), DOI: 10.1103/PhysRevLett.97.227204.

**27**. P. A. Andreev, *Extended Hydrodynamics of Degenerate Partially Spin Polarized Fermions with Short-Range Interaction up to the Third Order by Interaction Radius Approximation*, Laser Phys. **31**, 045501 (2021), https:// doi.org/10.1088/1555-6611/ abe717.

**28**. A. S. Moskvin and S.-L. Drechsler, *Microscopic Mechanisms of Spin-Dependent Electric Polarization in 3d Oxides*, Eur. Phys. J. B **71**, 331 (2009), DOI: 10.1140/epjb/e2009-00264-6.