

# Сильный ближний магнитный порядок во фрустрированной ГЦК решетке и его возможная роль в структурном превращении железа

А. Н. Игнатенко<sup>+1)</sup>, А. А. Катанин<sup>+\*</sup>, В. Ю. Ирхин<sup>+</sup>

<sup>+</sup> Институт физики металлов Уральского отд. РАН, 620041 Екатеринбург, Россия

<sup>\*</sup> Max-Planck-Institut für Festkörperforschung, 70569 Stuttgart, Germany

Поступила в редакцию 9 апреля 2008 г.

Изучены магнитные свойства фрустрированного гейзенберговского антиферромагнетика с ГЦК решеткой с обменными взаимодействиями первых и вторых соседей,  $J_1$  и  $J_2$ . В коллинеарной фазе с волновым вектором  $\mathbf{Q} = (\pi, \pi, \pi)$  получены и численно решены уравнения самосогласованной спин-волновой теории для намагниченности подрешетки и усредненного параметра ближнего порядка. Найдена зависимость температуры Нееля  $T_N$  от отношения  $J_2/J_1$ . Показано, что при достаточно сильной фрустрации имеется широкая область температур выше  $T_N$  с сильным ближним магнитным порядком. Рассмотрено возможное применение этого результата к механизму структурного фазового перехода  $\alpha$ -фазы Fe в  $\gamma$ -фазу.

PACS: 75.10.Jm, 75.30.Kz, 75.50.Bb

Ближний магнитный порядок (БЛМП) может быть существенным для термодинамических свойств в окрестности магнитных фазовых переходов. Это относится также к структурным фазовым переходам, поскольку наличие в одной из фаз более развитого ближнего порядка (даже в отсутствие дальнего) будет влиять на зарождение новой фазы при изменении температуры, давления или концентрации примесей. В этой связи особенно интересен случай магнитных квантовых фазовых переходов (МКФП), происходящих при температуре  $T = 0$  и определенном соотношении физических параметров (обменных интегралов, давления, концентрации примесей и др.). Поскольку вблизи МКФП параметр дальнего порядка и температура превращения малы, может существовать широкая температурная область сильного ближнего порядка, оказывающая влияние на структурные превращения.

Описанная ситуация ожидается, в частности, в железе. Известно, что оно существует в двух кристаллических модификациях: ОЦК ( $\alpha$ -Fe) и ГЦК ( $\gamma$ -Fe). При низких температурах наблюдается ОЦК-фаза, упорядоченная ферромагнитно при  $T < T_C = 1045$  К. При  $T = T_S = 1185$  К происходит структурный переход в  $\gamma$ -фазу, которая устойчива в интервале температур порядка 200 К выше  $T_S$ . При дальнейшем повышении температуры железо переходит в высокотемпературную ОЦК-фазу. Существует предположение о том, что структурный фазо-

вый переход из  $\alpha$ -фазы в  $\gamma$ -фазу может быть связан с наличием сильного ближнего антиферромагнитного порядка в  $\gamma$ -фазе. В отличие от макроскопических трехмерных образцов, где  $\gamma$ -фаза наблюдается только при высоких температурах в магнитно разупорядоченном состоянии, в гранулярной форме  $\gamma$ -фаза стабильна при низких температурах и переходит в антиферромагнитное состояние при температуре Нееля  $T_N \sim 100$  К [1]. Несмотря на столь низкое значение температуры Нееля (по сравнению с температурой ферромагнитного фазового перехода в ОЦК-фазе), при  $T \gg T_N$  может существовать сильный ближний антиферромагнитный порядок. Экспериментально БЛМП проявляет себя в наличии узких линий неупругого рассеяния нейтронов и хорошо определенного спектра спиновых волн в магнитно разупорядоченной фазе.

Предыдущие теоретические исследования БЛМП в двумерных [2] и квазидвумерных [3] системах показали, что он может существовать вплоть до температур  $T_N \ll T \lesssim J$  ( $J$  – величина обменного взаимодействия в слое). Особенно широкая область существования БЛМП ожидается вблизи точки фрустрации (то есть наиболее сильной конкуренции различных магнитных фаз). Исследования ближнего порядка фрустрированных систем были проведены лишь на примере квадратной и кубической решеток с обменом между первыми и вторыми соседями [4]. На квадратной решетке при  $T = 0$  в режиме сильной фрустрации имеется состояние без дальнего магнитного порядка (спиновая жидкость) [5]. Аналогичное состояние

<sup>1)</sup>e-mail: ignatenko@imp.uran.ru

возможно и в ГЦК решетке. В связи с этим представляет интерес исследование магнитных свойств трехмерной системы с ГЦК решеткой вблизи точки фрустрации, где ожидается сильный БЛМП при температурах много больше  $T_N$ .

Удобным средством исследования БЛМП является самосогласованная спин-волновая теория (ССВТ) [2–4], поскольку в ней параметры ближнего порядка  $\gamma_\delta = \sqrt{|\langle \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_{i+\delta} \rangle|} / S$  ( $\mathbf{S}_i$  – оператор спина  $S$  на узле  $i$ ,  $\delta$  – радиус-вектор соседних узлов) возникают естественным образом при расщеплении четверных форм бозевских операторов, отвечающих магнотонному взаимодействию. Указанная теория основана на спин-волновой картине спектра, которая, как показывают экспериментальные данные по системам с низкими  $T_N$ , справедлива в широком интервале температур выше температуры Нееля. Таким образом, в отличие от обычной спин-волновой теории (СВТ), ССВТ работает также в разупорядоченной фазе и учитывает как температурные, так и квантовые перенормировки БЛМП.

В качестве модели для спиновой подсистемы использовался квантовый гамильтониан Гейзенберга на ГЦК решетке

$$H = \frac{1}{2} \sum_{ij} J_{ij} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j \quad (1)$$

с взаимодействием первых и вторых соседей  $J_1$  и  $J_2$ , соответственно. В пределе  $S \rightarrow \infty$  гамильтониан сводится к классическому. Соответствующая энергия возможных спиновых конфигураций в зависимости от  $r = J_2/J_1$  ( $J_1 > 0$ ) показана на рис.1. При  $r > 1/2$

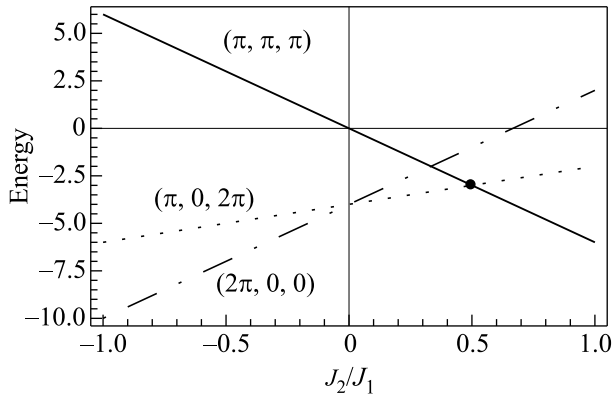


Рис.1. Энергия различных классических спиновых конфигураций в зависимости от отношения  $r = J_2/J_1$

устойчива коллинеарная структура с волновым вектором  $\mathbf{Q} = (\pi, \pi, \pi)$ :

$$\langle \mathbf{S}_i \rangle = (-1)^{\mathbf{Q} \cdot \mathbf{R}_i} \mathbf{M} \quad (2)$$

(параметр решетки  $a = 1$ ), где  $\mathbf{M}$  – вектор намагниченности подрешетки,  $\mathbf{R}_i$  – радиус-вектор  $i$ -го узла решетки. В области  $0 < r < 1/2$  основное состояние становится неколлинеарным с волновым вектором  $(\pi, 0, 2\pi)$

$$\langle \mathbf{S}_i \rangle = \mathbf{M}_1 \cos \mathbf{Q} \cdot \mathbf{R}_i + \mathbf{M}_2 \sin \mathbf{Q} \cdot \mathbf{R}_i, \quad (3)$$

где  $\mathbf{M}_1, \mathbf{M}_2$  – ортогональные между собой векторы одинаковой длины. При  $r < 0$  основное состояние снова становится коллинеарным с волновым вектором  $(2\pi, 0, 0)$ . В пределе  $S \rightarrow \infty$  все фазовые переходы между этими фазами являются переходами первого рода. При учете квантовых флуктуаций точка  $r = 1/2$  (отмечено на графике) оказывается точкой фрустрации [6]. В отличие от точки  $r = 1/2$ , в окрестности фазового перехода в точке  $r = 0, T = 0$  квантовые поправки качественно не меняют фазовую диаграмму и спин-жидкостная фаза не возникает.

Для исследования роли квантовых и температурных флуктуаций вблизи точки фрустрации в коллинеарной фазе  $\mathbf{Q} = (\pi, \pi, \pi)$  для спиновых операторов используем представление Барьяхтара-Криворучко-Яблонского через бозевские и фермиевские операторы  $b_i$  и  $c_i$  [7]:

$$\begin{aligned} S_i^z &= (-1)^{\mathbf{Q} \cdot \mathbf{R}_i} : (S - B_i^\dagger B_i - (2S + 1)c_i^\dagger c_i) :, \\ S_i^+ &= \sqrt{2S} B_i, \\ S_i^- &= \sqrt{2S} : \left( B_i^\dagger - \frac{1}{2S} B_i^\dagger B_i^\dagger B_i \right) : - \frac{2(2S + 1)}{\sqrt{2S}} B_i^\dagger c_i^\dagger c_i, \end{aligned} \quad (4)$$

где  $B_i = b_i$  на одной подрешетке, и  $B_i = b_i^\dagger$  на другой. Символ  $::$  обозначает нормальное упорядочение.

Стандартный вариант ССВТ [2, 3] получается подстановкой (4) в гамильтониан и расщеплением по Хартри-Фоку получившегося четверного взаимодействия. Для рассматриваемой фазы  $\mathbf{Q} = (\pi, \pi, \pi)$  этот вариант испытывает определенные трудности, связанные с явлением “порядка из беспорядка” [8]. Дело в том, что в пределе  $S \rightarrow \infty$  основное состояние гамильтониана (1) при  $r > 1/2$  является сильно вырожденным. Оно представляет собой систему из четырех вложенных друг в друга простых кубических подрешеток с шахматным антиферромагнитным порядком на каждой подрешетке, причем направления неелевских намагниченностей в них никак не связаны между собой. В обычной СВТ это обстоятельство приводит к тому, что при  $T < T_N$  в дополнение к стандартным голдстоуновским модам в зоне Бриллюэна появляются новые бесщелевые моды, соответствующие вращению неелевских векторов подрешеток по отношению друг к другу. Однако если

учесть поправки к СВТ по параметру  $1/S$ , в точках, где расположены лишние бесщелевые моды, открываются “квантовые” щели, растущие с увеличением температуры. Такое поведение щелей противоречит эксперименту на гранате  $\text{Ca}_3\text{Fe}_2\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ , где имеет место аналогичная ситуация [9]. Ошибочный рост “квантовых” щелей, предсказываемый стандартной ССВТ, чрезвычайно существен для термодинамического поведения системы, поскольку он приводит к отсутствию фрустрации и сильному завышению  $T_N$  по сравнению со СВТ.

Для решения этой проблемы был использован вариант ССВТ с усредненным параметром ближнего порядка, в которой “квантовые” щели отсутствуют при любых температурах. Усредненный параметр БЛМП определяется следующим образом [3]:

$$\bar{\gamma} = (\gamma_{1AF} - \gamma_{1F} + r\gamma_2)/r, \quad (5)$$

где  $\gamma_{1AF}$  и  $\gamma_{1F}$  – соответственно параметры БЛМП для первых антиферро- и ферромагнитных соседей, а  $\gamma_2$  – параметр БЛМП для вторых антиферромагнитных соседей. После подстановки (4) в гамильтониан и расщепления по Хартри-Фоку получившегося четверного взаимодействия имеем уравнения для намагниченности подрешетки  $\mathbf{M}$  и параметра  $\bar{\gamma}$  (здесь и далее положено  $J_1 = 1$ ):

$$M^z = (S + 1/2) \coth \left[ \frac{e_0(S + 1/2)}{T} \right] - \frac{1}{2} \int \frac{d^3k}{(2\pi)^3} \frac{P_k \coth(E_k/2T)}{E_k}, \quad (6)$$

$$S\bar{\gamma} = (S + 1/2) \coth \left[ \frac{e_0(S + 1/2)}{T} \right] + \frac{1}{2} \int \frac{d^3k}{(2\pi)^3} \left( g_k \cos \frac{k_x + k_y}{2} + r g_k \cos k_y - P_k \cos \frac{k_y + k_z}{2} \right) \frac{\coth(E_k/2T)}{E_k}, \quad (7)$$

где  $E_k = \sqrt{P_k^2 - g_k^2}$  – спектр элементарных возбуждений,

$$e_0 = 6Sr\bar{\gamma} - \mu, \\ P_k = e_0 + 2S\bar{\gamma} \left( \cos \frac{k_y - k_x}{2} + \cos \frac{k_y + k_z}{2} + \cos \frac{k_x + k_z}{2} \right), \quad (8)$$

$$g_k = 2S\bar{\gamma} \left( \cos \frac{k_z - k_x}{2} + \cos \frac{k_z - k_y}{2} + \cos \frac{k_x + k_y}{2} \right) + 2S\bar{\gamma}r (\cos k_x + \cos k_y + \cos k_z).$$

Здесь введен химический потенциал бозонов  $\mu$ , так что в упорядоченной фазе  $\mu = 0$ , а в разупорядоченной  $\mu < 0$  определяется из уравнения  $\langle S_i^z \rangle = 0$  [2]. В точке фрустрации  $r = 1/2$ , в предположении магнитно упорядоченного состояния ( $\mu = 0$ ), спектр спиновых волн имеет вид

$$E_k = 2S\bar{\gamma} \left| \cos \frac{k_x}{2} + \cos \frac{k_y}{2} + \cos \frac{k_z}{2} \right| \times \left| \sin \frac{k_x}{2} + \sin \frac{k_y}{2} + \sin \frac{k_z}{2} \right|. \quad (9)$$

Этот спектр обращается в нуль на определенных поверхностях в зоне Бриллюэна (см. рис.2), в результа-

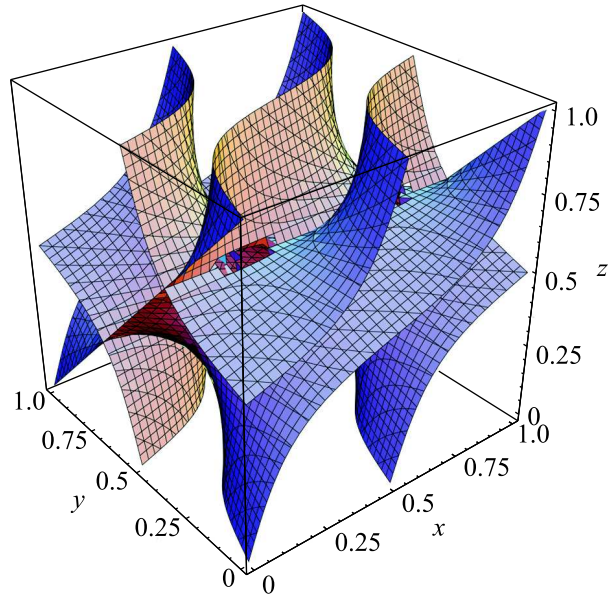


Рис.2. Поверхности нулей спектра спиновых волн в зоне Бриллюэна при  $r = J_2/J_1 = 1/2$  в координатах  $x = (k_x + k_y)/4\pi$ ,  $y = (k_x + k_z)/4\pi$ ,  $z = (k_z + k_y)/4\pi$ , изменяющихся от 0 до 1

те чего намагниченность (6) при нулевой и конечных температурах формально стремится к  $-\infty$ . Это противоречит предположению о магнитно упорядоченном основном состоянии и может означать, что в результате конкуренции двух магнитных фаз  $(\pi, \pi, \pi)$  и  $(\pi, 0, 2\pi)$  вблизи точки фрустрации  $r = 1/2$  возникает новая фаза, в которой отсутствует дальний магнитный порядок (спиновая жидкость). Заметим, что, в отличие от ГЦК решетки, для простой кубической (ПК) решетки в точке фрустрации формальная расходимость намагниченности подрешетки отсутствует при  $T = 0$  (однако имеется при  $T > 0$ ), поскольку спектр спиновых волн обращается в нуль только на определенных линиях. Соответственно, решение уравнений ССВТ с усредненным параметром поряд-

ка показывает, что спин-жидкостное состояние в ПК решетке возможно лишь при  $S = 1/2$ , в то время как в ГЦК решетке оно возникает при любых  $S$ .

Для определения температурной области существования ближнего порядка уравнения (6), (7) были решены численно для спина  $S = 1/2$  (рис.3–5). На

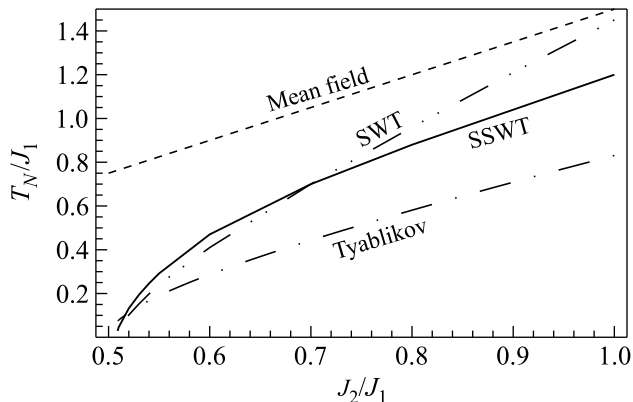


Рис.3. Зависимость температуры Нееля от  $r = J_2/J_1$  в приближениях ССВТ, среднего поля, Тябликова и СВТ

рис.3 показана зависимость температуры Нееля от  $r$  в приближениях ССВТ, среднего поля, Тябликова и СВТ. Теория среднего поля полностью пренебрегает спиновыми корреляциями и поэтому не описывает фрустрации. Температура Нееля в методе Тябликова  $T_N^{Tyab}$  ниже, чем в ССВТ и СВТ, за исключением узкой окрестности точки фрустрации. Хотя для нефрустрированных магнетиков результат  $T_N^{Tyab} < T_N^{SSWT}$  является физически оправданным и соответствует лучшему учету температурных флуктуаций по сравнению с ССВТ, вблизи точки фрустрации результаты ССВТ являются более надежными, так как в отличие от теории Тябликова эта теория адекватно учитывает квантовые флуктуации [3].

На рис.4 показана зависимость подрешеточной намагниченности ( $T < T_N$ ) и химического потенциала  $\mu$  ( $T > T_N$ ) от температуры для различных  $r$ . Из-за квантовых флуктуаций, особенно сильных вблизи точки фрустрации  $r = 1/2$ , возникает сильное подавление подрешеточной намагниченности. Температурная зависимость химического потенциала, определяющего обратную корреляционную длину, оказывается в этом методе линейной. На рис.5 показано поведение усредненного параметра ближнего порядка для различных значений  $r$ . Видно, что при достаточно сильной фрустрации имеется широкая область температур выше  $T_N$  с сильным БЛМП. Например, при  $r = 0.53$  вплоть до  $T = 10T_N$  величина  $\bar{\gamma} > 1$ . Таким образом, в рамках ССВТ показано, что существу-

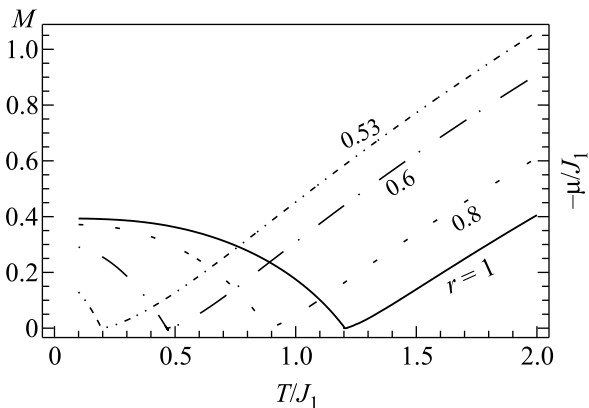


Рис.4. Зависимость подрешеточной намагниченности ( $T < T_N$ ) и химического потенциала  $\mu$  ( $T > T_N$ ) от температуры для различных  $r$

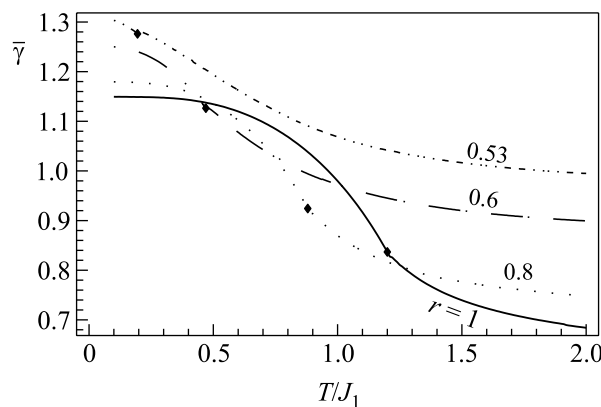


Рис.5. Зависимость усредненного параметра БЛМП от температуры для различных  $r$ . Точками обозначена температура Нееля,  $T_N/J_1$

ет область параметров модели (1), где имеется сильный ближний порядок при  $T \gg T_N$ .

Чтобы применить полученные результаты к  $\gamma$ -Fe, необходимо определить параметры модели  $J_1$  и  $J_2$ . Методы определения обменных интегралов, основанные на зонной теории, испытывают ряд трудностей, которые связаны, в частности, с существованием негейзенберговского обмена [10]. Например, сами обменные параметры определяются неоднозначно. Тем не менее, к положительным результатам зонных расчетов можно отнести наличие сильной магнитной фрустрации [11]. Заметим также, что степень фрустрированности может регулироваться изменением объема элементарной ячейки (скажем, за счет внедрения примесей, см. [12]). Хотя экспериментальное определение указанных параметров также встречается с рядом трудностей [13], оно позволит подтвердить или опровергнуть гипотезу близости  $\gamma$ -Fe к точке фрустрации.

В дальнейшем рассматриваемый подход может дать описание  $\gamma$ - $\alpha$  перехода в Fe, вызванного магнитными флуктуациям. Благодаря сильному БЛМП, переход из ГЦК в ОЦК структуру может произойти при температурах, много больших  $T_N$ , что находится в согласии с экспериментальным значением  $T_S$  и обеспечит чисто магнитный механизм структурного превращения. Подход в рамках модели Гейзенберга с учетом деформации позволит сформулировать качественную картину и построить количественное описание обсуждаемого структурного фазового перехода.

Авторы выражают благодарность Ю.Н. Горностыреву за многократные ценные обсуждения и комментарии по проблеме и содержанию статьи. Работа поддержана грантами Российского фонда фундаментальных исследований # 07-02-01264а, # 4640.2006.2 (поддержка научных школ Российского фонда фундаментальных исследований) и грантом # 49-07-01 (Грантовый фонд ОАО "ММК", ИТЦ "Аусферр", ФГиО "Интелс").

1. S. C. Abrahams, L. Guttman, and J. S. Kasper, *Phys. Rev.* **127**, 2052 (1962); G. J. Johanson, M. B. McGirr, and D. A. Wheeler, *Phys. Rev. B* **1**, 3208 (1970); Y. Tsunoda, N. Kunitomi, and R. M. Nicklow, *J. Phys. F: Met. Phys.* **17**, 2447 (1987).
2. M. Takahashi, *Phys. Rev. B* **40**, 2494 (1989); D. J. Yoshioka, *Phys. Soc. Jpn.* **58**, 3733 (1989).
3. V. Yu. Irkhin, A. A. Katanin, and M. I. Katsnelson, *Phys. Rev. B* **60**, 1082 (1999); А. А. Катанин, В. Ю. Ирхин, *УФН* **177**, 639 (2007).
4. V. Yu. Irkhin, A. A. Katanin, and M. I. Katsnelson, *J. Phys.: Cond. Matter* **4**, 5227 (1992).
5. O. P. Sushkov, J. Oitmaa, and Zheng Weihong, *Phys. Rev. B* **63**, 104420 (2001); J. Sirker, Zheng Weihong, O. P. Sushkov, and J. Oitmaa, *Phys. Rev. B* **73**, 184420 (2006).
6. T. Yildirim, A. B. Harris, and E. F. Shender, *Phys. Rev. B* **58**, 3144 (1998).
7. В. Г. Барьяхтар, В. Н. Криворучко, Д. А. Яблонский, *Функции Грина в теории магнетизма*, Наукова Думка, Киев, 1984.
8. A. M. Tselik, *Quantum Field Theory in Condensed Matter Physics*, Cambridge University Press, Cambridge, 1998.
9. Th. Bruckel, B. Dorner, A. Gukasov, and V. Plakhty, *Phys. Lett. A* **162**, 357 (1992).
10. V. A. Gubanov, A. I. Liechtenstein, and A. V. Postnikov, *Magnetic and the Electronic Structure of Crystals*, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, 1992.
11. O. N. Mryasov et al., *J. Phys.: Cond. Matter* **3**, 7683 (1991); D. W. Boukhvalov, Yu. N. Gornostyrev, M. I. Katsnelson et al., *Phys. Rev. Lett.* **99**, 247205 (2007).
12. A. V. Ruban, M. I. Katsnelson, W. Olovsson et al., *Phys. Rev. B* **71**, 054402 (2005).
13. P. Böni, G. Shirane, and J. P. Wicksted, *Phys. Rev. B* **31**, 4597 (1985).