

Симметричные конические несоизмеримые структуры фрустрированного изотропного гейзенберговского ферримагнетика

С. Н. Мартынов¹⁾

Институт физики им. Киренского СО РАН, 660036 Красноярск, Россия

Поступила в редакцию 22 мая 2015 г.

После переработки 11 июня 2015 г.

Для ферримагнетика с геометрически фрустрированным обменом между спинами в разных магнитных позициях (подсистемах) и конкуренцией между обменами в одной из подсистем аналитически исследованы условия возникновения конических несоизмеримых структур и определены температуры фазовых переходов в конические состояния. Численной минимизацией свободной энергии определены типы фазовых переходов и получены фазовые диаграммы температура – обменные параметры.

DOI: 10.7868/S0370274X15140076

Интерес к изучению несоизмеримых магнитных структур в последнее десятилетие в значительной степени обусловлен магнитоэлектрическими эффектами, сопровождающими этот тип магнитного упорядочения [1–3]. Большой практический интерес представляет возможность управления направлением электрической поляризации малым внешним магнитным полем при комнатных температурах. Мультиферроиками с соответствующими магнитоэлектрическими характеристиками являются ферримагнетики с коническим типом несоизмеримого упорядочения [2–6]. Необходимое условие управления направлением ферримагнитного момента малыми магнитными полями – малая величина магнитной анизотропии. Формирование конического упорядочения в таких изотропных (или почти изотропных) магнетиках является частным случаем неколлинеарности, вызванной фрустрацией (конкуренцией) изотропных обменов. Конкретный вид неколлинеарного магнитного порядка определяется прежде всего пространственным распределением обменных связей в кристалле и симметрией расположения магнитных ионов в рассматриваемой магнитной структуре. К настоящему времени единственным детально изученным теоретически примером конического несоизмеримого упорядочения остается случай кубической шпинели AB_2O_4 [7, 8]. Трехконусная несоизмеримая структура в ней определяется тремя положениями магнитных ионов A , B_1 и B_2 , неэквивалентными относительно направления вектора модуляции магнитной структуры $\mathbf{k}[1, 1, 0]$ [3, 8, 9]. В настоящей работе теоретически рассматриваются ко-

нические несоизмеримые структуры, возникающие в изотропной модели Гейзенберга, когда магнитные ионы находятся в двух неэквивалентных позициях как кристаллографически, так и относительно возникающих магнитных структур. Число независимых переменных задачи определяется спиновой размерностью и числом неэквивалентных позиций (магнитных подсистем) и в рассматриваемом двухподсистемном случае допускает сравнительно простое аналитическое решение на параметры магнитной структуры. Кроме того, в рамках такой модели существует ряд решений с копланарной ориентацией спинов [10–12]. Это позволяет, сравнивая свободные энергии различных состояний, определить условия существования конических решений – значения обменных взаимодействий и температуры, при которых возможно их появление, а также определить типы фазовых переходов между состояниями.

В модели учитываются два типа фрустрированных обменов: геометрически фрустрированный обмен между спинами в разных подсистемах и конкурирующие обмены между ближайшими и вторыми магнитными соседями в одной подсистеме. Направления фрустрированных обменных связей, определяющие направление вектора модуляции магнитной структуры, в рассматриваемой модели одинаковы. Это обеспечивает сохранение данного направления при изменении типа несоизмеримой структуры (рис. 1). Такая схема обменных взаимодействий реализуется в тетрагональном ферримагнетике CuB_2O_4 [10, 11]. Как будет показано ниже, она дает как плоские, так и конические решения. Гамильтониан модели имеет вид

¹⁾e-mail: unonav@iph.krasn.ru

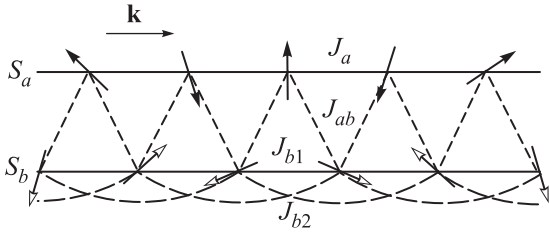


Рис. 1. Схема обменных взаимодействий и ориентации спинов в антиферромагнитном плоском геликоиде при $J_{b1} > 0$

$$H = J_a \sum_{ii'} \mathbf{S}_i \mathbf{S}_{i'} + J_{b1} \sum_{jj'} \mathbf{S}_j \mathbf{S}_{j'} + \quad (1)$$

$$+ J_{b2} \sum_{jj''} \mathbf{S}_j \mathbf{S}_{j''} + J_{ab} \sum_{ij} \mathbf{S}_i \mathbf{S}_j, \quad i \in A, \quad j \in B,$$

$$z_a J_a > z_{b1} |J_{b1}|, \quad z_{b2} J_{b2}, \quad z_{ab} J_{ab}, \quad z_{ba} J_{ab} > 0,$$

где i и j – индексы спинов А- и В-подсистем соответственно, z_{ab} (z_{ba}) – числа магнитных соседей в позиции В (А) для спина в позиции А (В), J_a , J_{b1} , J_{b2} – обмены внутри подсистем. Для межподсистемного обмена J_{ab} числа магнитных соседей z_{ab} , z_{ba} связаны с числами магнитных ионов в подсистемах N_a и N_b соотношением

$$\frac{z_{ab}}{z_{ba}} = \frac{N_b}{N_a} = n.$$

Антиферромагнитный обмен в нефрустрированной А-подсистеме считается доминирующим. Это позволяет при рассмотрении состояний, возникающих при температурах ниже температуры антиферромагнитного упорядочения T_N в А-подсистеме (в АФ-фазе), использовать приближение среднего поля (Mean Field Approximation, MFA). Рассматриваются случаи как антиферромагнитного ($J_{b1} > 0$), так и ферромагнитного ($J_{b1} < 0$) обменов между ближайшими магнитными соседями в В-подсистеме, дающие различные конические решения. В МФА гамильтониан аддитивен по спинам:

$$H_{\text{MFA}} = \sum_i \mathbf{h}_i \mathbf{S}_i + \sum_j \mathbf{h}_j \mathbf{S}_j, \quad (2)$$

$$\mathbf{h}_i = \frac{1}{2} J_a \sum_{i'} \mathbf{S}_{a,i'} + \frac{1}{2} J_{ab} \sum_j \mathbf{S}_{b,j},$$

$$\mathbf{h}_j = \frac{1}{2} J_{b1} \sum_{j'} \mathbf{S}_{b,j'} + \frac{1}{2} J_{b2} \sum_{j''} \mathbf{S}_{b,j''} + \frac{1}{2} J_{ab} \sum_i \mathbf{S}_{a,i},$$

где $\mathbf{S}_{a,i}$, $\mathbf{S}_{b,j}$ – вектора средних спинов в А- и В-подсистемах соответственно. Необходимым условием существования стационарных состояний в приближении среднего поля является коллинеарность средних

спинов соответствующим суммарным полям [13]. Это требование эквивалентно ограничению, накладываемому на эффективные поля, действующие на спины: поперечные компоненты полей должны быть равны нулю. В нашем случае двух неэквивалентных магнитных позиций поля на спинах $\mathbf{h}_{i,j}$ являются функциями четырех углов ориентации спинов, $\theta_{a,b}$ и $\varphi_{a,b}$ (полярного и азимутального углов в локальных сферических координатах соответствующих спинов), и двух средних значений S_a и S_b . Четыре условия коллинеарности и два уравнения самосогласования на средние значения спинов в приближении среднего поля [14] формируют полную систему нелинейных уравнений на переменные задачи:

$$h_{a,b}^{\theta,\varphi}(\theta_{a,b}, \varphi_{a,b}, S_{a,b}) = 0, \quad (3)$$

$$S_{a,b} = -S_{a,b}^0 B_{S_{a,b}^0} \left(\frac{h_{a,b} S_{a,b}^0}{T} \right), \quad (4)$$

где $h_{a,b}^{\theta,\varphi}$ – поперечные поля, направленные вдоль ортов $\mathbf{e}_{i,j}^{\theta}$ и $\mathbf{e}_{i,j}^{\varphi}$ локальных систем координат, $h^{a,b}$ – продольные поля, $B_{S_{a,b}^0}(x)$ – функция Бриллюэна для спинов $S_{a,b}^0$. В локальных системах координат все $S_{a,b} > 0$, а $h_{a,b} < 0$. Определим безразмерные обменные параметры модели и продольные эффективные поля, нормированные на полное обменное взаимодействие между А-спинами, а также параметр фрустрации обменов между В-спинами R и нормированную на температуру Нееля А-подсистемы температур t :

$$j_b = \frac{z_{b1} J_{b1}}{z_a J_a}, \quad j_{ab} = \frac{z_{ab} J_{ab}}{z_a J_a}, \quad j_{ba} = \frac{z_{ba} J_{ab}}{z_a J_a}, \quad (5)$$

$$h_{a,b} = \frac{h^{a,b}}{z_a J_a}, \quad R = \frac{z_{b2} J_{b2}}{z_{b1} |J_{b1}|}, \quad t = \frac{T}{T_N} = \frac{6T}{S_a^0 (S_a^0 + 1) z_a J_a},$$

$$j_{ab}, \quad j_{ba}, \quad R, \quad t \in \{0, 1\}, \quad -1 < j_b < 1.$$

В этих обозначениях уравнения самосогласования (4) принимают вид

$$S_{a,b} = -S_{a,b}^0 B_{S_{a,b}^0} \left[\frac{6h_{a,b} S_{a,b}^0}{S_a^0 (S_a^0 + 1) t} \right]. \quad (6)$$

Система уравнений (3) и (4) определяет все решения с двумя неэквивалентными магнитными позициями. Для нахождения решения с минимальной свободной энергией:

$$F = -T \ln Z, \quad (7)$$

$$Z_{\text{MFA}} = \text{Sp} \exp \left(\frac{H_{\text{MFA}}}{T} \right) = Z_a^{N_a} Z_b^{N_b},$$

где $Z_{a,b}$ – одночастичные статсуммы, последняя варьируется по переменным задачи:

$$\delta F = N_a S_a \delta h_a + N_b S_b \delta h_b = 0. \quad (8)$$

Коническими структурами, имеющими трехмерную ориентацию магнитных моментов и сохраняющими число неэквивалентных магнитных позиций равным двум, являются структуры с двумя конусами в подсистеме с главным нефрустрированным обменом, расположенными симметрично относительно плоскости спинов второй подсистемы (рис. 2). При сохранении симметричного распределения про-

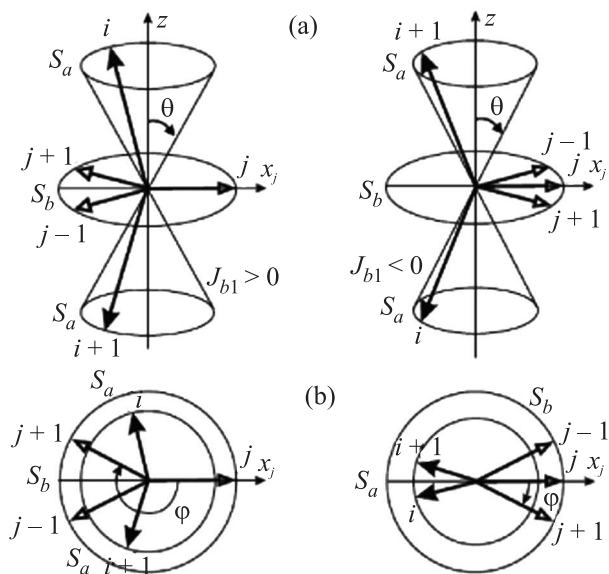


Рис. 2. Ориентации спинов в симметричных конических геликоидах при $J_{b1} > 0$ и $J_{b1} < 0$ (a) и проекции спинов на плоскость геликоида (b)

екций спинов подсистемы А на плоскость В-спинов (рис. 2b) условия равенства нулю двух поперечных компонент на спицах $S_{b,j}$ и компоненты h_a^φ на спицах $S_{a,i}$ выполняются автоматически. Требование обращения в нуль компоненты h_a^θ накладывает дополнительное ограничение на углы и средние спины:

$$h_a^\theta = \cos \frac{\varphi}{2} \cos \theta \left(S_a \sin \theta \cos \frac{\varphi}{2} \pm S_b \frac{j_{ab}}{2} \right) = 0, \quad (9)$$

дающее три решения:

1) $\cos(\varphi/2) = 0$. Решение возникает для антиферромагнитного обмена ($J_{b1} > 0$) и соответствует антиферромагнитному упорядочению в обеих подсистемах типа “крест” [15] с основным состоянием, вырожденным относительно взаимной ориентации векторов антиферромагнетизма подсистем. Это состояние является глобально нестабильным и при сколь угодно малых значениях межподсистемного обмена переходит в плоскую несоизмеримую структуру [11];

2) $\cos \theta = 0$ – антиферромагнитный плоский геликоид (Antiferromagnetic Flat Helix, AFH) при $J_{b1} > 0$ и плоская треугольная структура Яфета–Киттеля [15] (YK) при $J_{b1} < 0$;

3) симметричные конические геликоиды (Symmetrical Conical Helix, SCH) с углами конуса

$$\sin \theta = \mp \frac{j_{ab} S_b}{2 S_a \cos(\varphi/2)}. \quad (10)$$

Верхние и нижние знаки в (9) и (10) и далее относятся к случаям антиферромагнитного и ферромагнитного обменов J_{b1} соответственно. Для SCH-решений продольные поля на спицах имеют вид

$$\begin{aligned} h_a^{SCH} &= -\frac{S_a}{2} \cos^2 \theta + \frac{S_a}{2} \sin^2 \theta \cos \varphi \pm \frac{S_b}{2} j_{ab} \sin \theta \cos \frac{\varphi}{2}, \\ h_b^{SCH} &= \frac{S_b}{2} j_b (\cos \varphi \pm R \cos 2\varphi) \pm \frac{S_a}{2} j_{ba} \sin \theta \cos \frac{\varphi}{2}. \end{aligned} \quad (11)$$

Подстановка в них (10) позволяет исключить угол θ из числа независимых переменных задачи:

$$\begin{aligned} h_a^{SCH} &= -\frac{S_a}{2}, \\ h_b^{SCH} &= \frac{S_b}{2} \left(j_b (\cos \varphi \pm R \cos 2\varphi) - \frac{j_{ab} j_{ba}}{2} \right). \end{aligned} \quad (12)$$

В конической фазе уменьшение обменного поля на А-спицах из-за их неколлинеарности точно компенсируется полем со стороны В-спинов. В результате его величина остается равной полю при антипараллельной ориентации антиферромагнитных подрешеток А-спинов и не зависит ни от средних значений S_b , ни от шага геликоида φ . Для В-подсистемы взаимодействие с А-спинами сводится к дополнительному эффективному обмену между В-спинами. Таким образом, минимизация свободной энергии (8) сводится к варьированию продольного поля h_b^{SCH} (12) по шагу геликоида, что дает стандартные выражения для $R > 1/4$:

$$\cos \varphi = \mp (4R)^{-1}. \quad (13)$$

При $R < 1/4$, $\varphi = \pi$ решения (10) при конечном S_b не существуют. Подставляя (13) в (10) и (12), получаем

$$\sin \theta = \frac{j_{ab} S_b}{S_a} \left(2 \mp \frac{1}{2R} \right)^{-1/2}, \quad (14)$$

$$h_b^{SCH} = \mp \frac{S_b}{2} \left[j_b \left(R + \frac{1}{8R} \right) \pm \frac{j_{ab} j_{ba}}{2} \right]. \quad (15)$$

Таким образом, при выполнении порогового условия конические фазы возникают из AF-фазы с появлением намагниченности на В-узлах. При дальнейшем понижении температуры угол конуса непрерывно возрастает: А-спины стремятся к В-плоскости.

Температуру фазового перехода второго рода $AF \Rightarrow SCH$ находим, линеаризуя уравнение самосогласования для S_b (6) с учетом (15):

$$t_{SCH} = \frac{S_b^0(S_b^0 + 1)}{S_a^0(S_a^0 + 1)} \left[\pm j_b \left(R + \frac{1}{8R} \right) + \frac{j_{ab}j_{ba}}{2} \right]. \quad (16)$$

Обменная энергия фрустрированных взаимодействий, приводящих к рассматриваемым несоизмеримым структурам, имеет разные зависимости от средних значений S_a и S_b :

$$E_{AFH} \propto -AS_aS_b, \\ E_{SCH} \propto -BS_b^2.$$

Разные температурные зависимости намагниченности подсистем приводят к различным температурным зависимостям свободной энергии в AFH- и SCH-состояниях. При $t \ll 1$ спины S_a близки к насыщению, и в случае, когда первой возникает AFH, при дальнейшем понижении температуры более быстрое понижение свободной энергии SCH-состояния может привести к смене типа несоизмеримого упорядочения. Для определения типа такого фазового перехода проведем численную минимизацию свободной энергии (4) для частного случая $S_a^0 = S_b^0 = 1/2$ и $n = 1$ с фиксированными параметрами $j_{ab} = j_{ba}$, j_b , R . На рис. 3 показаны температурные зависимости

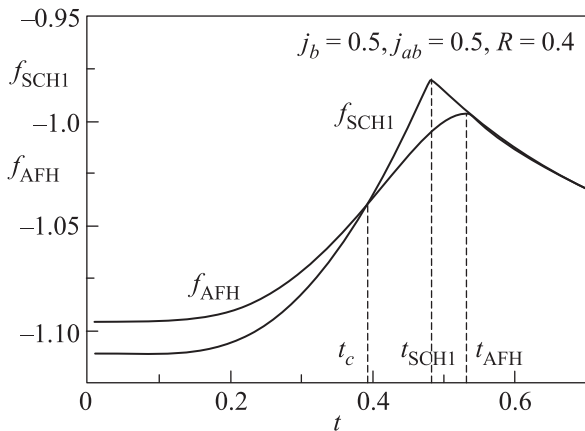


Рис. 3. Температурные зависимости нормированной свободной энергии несоизмеримых AFH- и SCH1-состояний

свободной энергии AFH- и SCH1-состояний, нормированные на число спинов N_a и полный обмен между соседними А-спинами $z_a J_a$. При t_c происходит смена типа несоизмеримого упорядочения, при которой угол θ изменяется скачком до значения θ_c . Также скачком меняются шаг геликоида и намагниченности подсистем. Дальнейшее понижение температуры

приводит к возрастанию угла θ , в то время как шаг геликоида остается постоянным (см. (13)). Таким образом, переход между плоской и конической несоизмеримыми фазами является фазовым переходом первого рода.

Фазовые диаграммы температура – обменные параметры показаны на рис. 4 и 5. При больших зна-

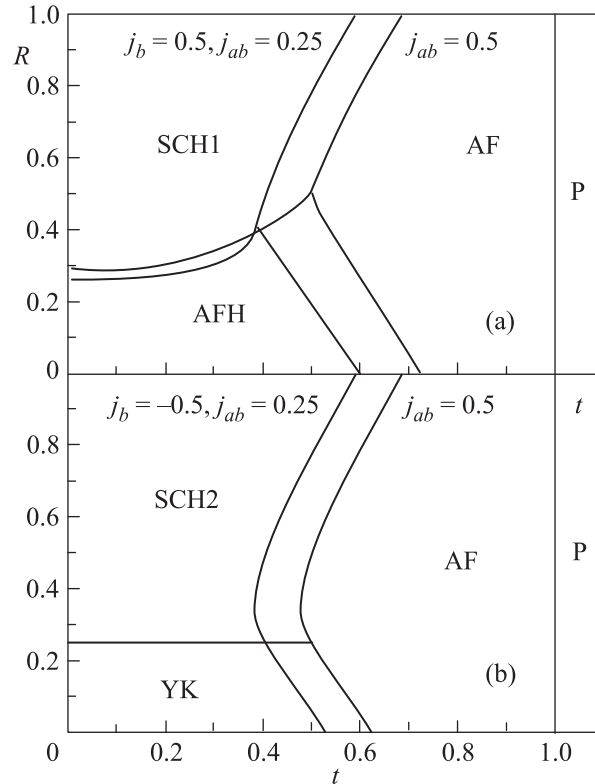


Рис. 4. Фазовые диаграммы температура – отношение конкурирующих обменов в В-подсистеме при фиксированном антиферромагнитном (а) и ферромагнитном (б) обмене j_b и двух значениях межподсистемного обмена: $j_{ab} = 0.25$ и 0.5 . P – парамагнитная фаза, в которой неупорядочены спины обеих подсистем

чениях параметра фрустрации R конкурирующих обменов в подсистеме В конические фазы SCH1 и SCH2 возникают при понижении температуры из антиферромагнитной фазы (AF), в которой упорядочены только спины А-подсистемы, с появлением намагниченности В-подсистемы путем фазового перехода второго рода. При малых значениях R из AF-фазы также путем фазового перехода второго рода возникает либо плоская несоизмеримая фаза (AFH при $j_b > 0$ на рис. 4а), либо треугольная структура Яфета–Киттеля (YK при $j_b < 0$ на рис. 4б). В первом случае дальнейшее понижение температуры может приводить к фазовому переходу первого рода из плоской фазы в коническую. Посколь-

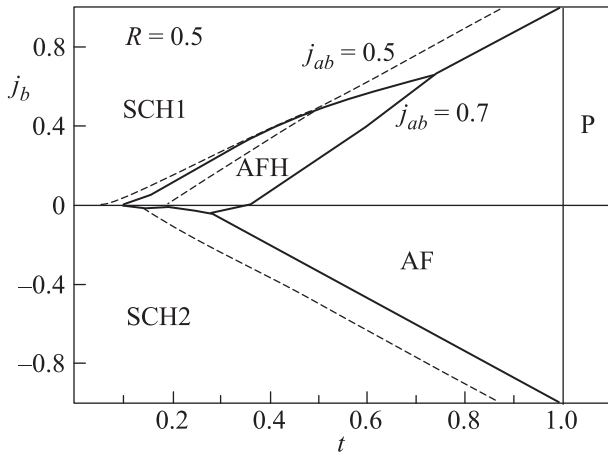


Рис. 5. Фазовая диаграмма температура – обменное взаимодействие в В-подсистеме j_b при фиксированном отношении конкурирующих обменов R и двух значениях межподсистемного обмена: $j_{ab} = 0.5$ (штриховые линии) и 0.7 (сплошные линии)

ку механизмом формирования плоской несоизмеримой структуры является геометрическая фрустрация межподсистемного обмена и частичное снятие вырождения в такой структуре происходит по этому обмену, граница между плоской и конической SCH1-фазами зависит от величины обмена. При ферромагнитном обмене ($j_b < 0$) граница между треугольной фазой Яфета–Киттеля и конической фазой SCH2 при изменении температуры остается постоянной ($R = 0.25$) для разных значений межподсистемного обмена (рис. 4b). Коническая фаза возникает с нулевого шага геликоида, вращение начинается вокруг оси лежащей в плоскости треугольной структуры и нормальной направлению спинов S_b (рис. 2a). Состояния SCH1 и SCH2 разделены плоской несоизмеримой фазой, ширина которой определяется межподсистемным обменом j_{ab} (рис. 5). При одинаковых значениях R , задающих шаг геликоида, конические углы этих структур различны (см. (14)), так как они определяются углом между проекциями спинов подсистем на геликоидальную плоскость $\phi/2$. В длинноволновом пределе ($R \rightarrow 0.25$) для конических структур SCH1 и SCH2 в выражении, определяющем конический угол θ , $\phi/2 \rightarrow \pi/2$ и 0 соответственно.

В рассмотренной модели при возрастании фрустрации обменов внутри одной подсистемы формирование трехмерной конической несоизмеримой структуры происходит в результате конкуренции оптимальных неколлинеарностей, различных для каждой парциальной подсистемы. Большой параметр R делает энергетически выгодной большую неколлинеарность В-спинов. Такой скос антиферромагнит-

ных подрешеток нефрустрированной А-подсистемы в плоском геликоиде становится невыгодным относительно энергии доминирующего обмена J_a , и спины S_a выходят из геликоидальной плоскости. Последнее уменьшает скос между подрешетками и восстанавливает исходное обменное поле на спинах подсистемы. Это приводит к значительному понижению энергии по сравнению со случаем плоского геликоида с локально треугольной ориентацией спинов (геликоида Яфета–Киттеля), рассмотренным ранее [12]. В данном случае шаг геликоида является промежуточным между оптимальным, определяемым стандартным соотношением (13), и нулевым, выгодным по доминирующему обмену. В результате для такой несоизмеримой структуры энергия обменных взаимодействий в обеих подсистемах повышается по сравнению с коническим геликоидом. Более энергетически выгодной плоскую несоизмеримую структуру может сделать дополнительная магнитная анизотропия типа “легкая плоскость”. При равных значениях фрустрированных взаимодействий трехмерная ориентация изотропных гейзенберговских спинов является дополнительной возможностью понизить энергию по сравнению с анизотропными изинговскими и XY-спиновыми системами. Помимо анизотропии, в модели не учитывается влияние магнитоstriction, играющей существенную роль прежде всего при возникновении в несоизмеримых магнетиках электрической поляризации, например через обратный эффект Дзялошинского–Мория [3, 16]. Появление этого дополнительного механизма несоизмеримости магнитной структуры, так же как и стрикционное изменение изотропных обменов, не приведет к качественному изменению фазовых диаграмм и условий появления конических фаз при рассматриваемых больших значениях фрустрированных обменов модели.

1. S.-W. Cheong and M. Mostovoy, Nat. Mat. **6**, 13 (2007).
2. T. Kimura, Annu. Rev. Mater. Res. **37**, 387 (2007).
3. Y. Tokura and S. Seki, Adv. Mater. **22**, 1554 (2010).
4. S. Ishiwata, Y. Taguchi, H. Murakawa, Y. Onose, and Y. Tokura, Science **319**, 1643 (2008).
5. Y. Kitagawa, Y. Hiraoka, T. Honda, T. Ishikura, H. Nakamura, and T. Kimura, Nat. Mat. **9**, 797 (2010).
6. M. Soda, T. Ishikura, H. Nakamura, Y. Wakabayashi, and T. Kimura, Phys. Rev. Lett. **106**, 087201 (2011).
7. T. A. Kaplan, Phys. Rev. **119**, 1460 (1960).
8. D. H. Lyons, T. A. Kaplan, K. Dwight, and N. Menyuk, Phys. Rev. **126**, 540 (1962).
9. K. Tomiyasu, J. Fukunaga, and H. Suzuki, Phys. Rev. B **70**, 214434 (2004).

10. С. Н. Мартынов, А. Д. Балаев, Письма в ЖЭТФ **85**, 649 (2007).
11. С. Н. Мартынов, ЖЭТФ **135**, 82 (2009).
12. С. Н. Мартынов, Письма в ЖЭТФ **95**, 205 (2012).
13. Т. А. Kaplan and N. Menyuk, Philosophical Magazine **87**, 3711 (2007).
14. Дж. Смарт, *Эффективное поле в теории магнетизма*, Мир, М. (1968) [J. S. Smart, *Effective Field Theories of Magnetism*, W. B. Saunders, Philadelphia-London (1966)].
15. Y. Yafet and C. Kittel, Phys. Rev. **87**, 290 (1952).
16. I. A. Sergienko and E. Dagotto, Phys. Rev. B **73**, 094434 (2006).