Письма в ЖЭТФ, том 95, вып. 4, с. 205 – 210 © 2012 г. 25 февраля

Несоизмеримые структуры в двухподсистемном частично фрустрированном ферримагнетике

С. Н. Мартынов[1)]

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

Поступила в редакцию 1 ноября 2011 г.

Для двухподсистемного магнетика с фрустрированным межподсистемным обменом и конкуренцией между обменами в одной из подсистем предложена новая несоизмеримая магнитная структура с локально треугольной ориентацией спинов. Структура возникает при понижении температуры из антиферромагнитного (АФ) состояния путем фазового перехода первого рода. При выполнении пороговых условий на обменные взаимодействия она переходит в треугольную структуру Яфета–Киттеля (ЯК). Увеличение протяженности фрустрированных обменных связей приводит к появлению между соизмеримыми АФ- и ЯК-фазами несоизмеримой фазы с локальной АФ-ориентацией подрешеток в каждой подсистеме.

В течение последних десятилетий геометрически фрустрированные антиферромагнетики интенсивно исследуются благодаря большому разнообразию необычных магнитных состояний [1]. Наибольшее внимание уделяется магнетикам с высокой степенью вырождения основного состояния. Такое вырождение препятствует формированию дальнего магнитного порядка вплоть до нулевой температуры [2]. Большинство реальных фрустрированных магнетиков претерпевает фазовый переход с установлением дальнего порядка благодаря снятию вырождения различными механизмами. Среди таких механизмов отметим дополнительные магнитные взаимодействия, нарушающие полную фрустрацию по изотропному обмену: обмен с дальними соседями [3, 4], диполь-дипольное взаимодействие [5] и взаимодействие Дзялошинского–Мория [6]. Во многих случаях снятие вырождения сопровождается установлением дальнего порядка с периодом магнитной структуры, несоизмеримым с кристаллографическим, – несоизмеримой магнитной структуры (НМС). Отметим, что взаимодействие между двумя полностью вырожденными антиферромагнитными (АФ) подрешетками (подсистемами), составляющими магнетик, также может приводить к НМС, как это было показано в приближении среднего поля Реймером с соавторами [3] для пирохлорной решетки $A_2B_2O_7$, где A и B – ионы различных магнитных подсистем. В системах с доминирующим обменом между ионами в неэквивалентных позициях (межподсистемным обменом) основным состоянием становится ферримагнитная коллинеарная структура с волновым вектором $\mathbf{q} = 0$ [3, 7]. Увеличение внутриподсистемного АФ-обмена в одной из подсистем приводит к геликоидальной структуре с локально ферримагнитной ориентацией моментов разных подсистем, как это было показано Капланом с соавторами для кубической шпинели, AB_2O_4 [8, 9]. Существование главного нефрустрированного обмена между ионами в одной магнитной подсистеме принципиально меняет ситуацию. Рассмотрение такой задачи в рамках классической однородной модели было проведено для ферритов смешанного состава Яфетом и Киттелем [7]. Были определены возможные неколлинеарные фазы. Указано на возможность фазовых переходов по температуре между ними. Другим примером двухподсистемного магнетика с таким соотношением обменов может являться метаборат меди, CuB_2O_4. Обменные взаимодействия в этом соединении реализуются через бор-кислородные тетраэдры, что приводит к разветвленным и протяженным связям. Пути трех типов обменов между ионами слабой подсистемы B и ионами антиферромагнитных подрешеток подсистемы A переходят друг в друга при повороте вокруг осей второго порядка, проходящих через B-ионы. Это определяет геометрическую фрустрацию данных обменов. Внутри подсистемы B также существуют три типа обмена, причем два из них формируют зигзагообразные ладдерные цепочки вдоль тетрагональной оси [10]. Такое сочетание обменных связей приводит к разнообразию фазовых переходов по температуре и полю [11]. Вид низкотемпературной несоизмеримой фазы в этом соединении до настоящего времени остается неопределенным. В системах с доминирующим нефрустрированным АФ-взаимодействием в одной из подсистем (J_a) с понижением температуры сначала происходит АФ-упорядочение моментов этой подсистемы (A). Если межподсистемный обмен J_{ab} геометрически фрустрирован, спины второй (слабой) подсистемы (B) оста-

[1)]e-mail: unonav@iph.krasn.ru

ются неупорядоченными. В зависимости от знаков обменов J_b, J_{ab} и соотношения между ними, а также от геометрии межподсистемных связей дальнейшее понижение температуры и появление спонтанной намагниченности в В-подсистеме могут приводить к топологически различным неколлинеарным магнитным структурам. При этом АФ-обмен $(J_b > 0)$ приводит к НМС с локально ортогональными векторами антиферромагнетизма подсистем [12,13]. Ферромагнитный обмен $(J_b < 0)$ стабилизирует треугольное ферримагнитное состояние Яфета–Киттеля (ЯК) [7]. Присутствие в В-подсистеме наряду с ферромагнитным обменом с ближайшими соседями (J_{b1}) дополнительного конкурирующего с ним АФ-обмена (J_{b2}) со вторыми соседями приводит к понижению энергии В-спинов для магнитных структур с $q > 0$. Разная величина эффективных полей, действующих на спины разных подсистем, ведет к разной температурной зависимости намагниченностей подсистем и, как следствие, к изменению с температурой относительных вкладов подсистем в общее состояние. Это может приводить к фазовым переходам по температуре между высокотемпературным коллинеарным дальним порядком и НМС или треугольным ЯК-состоянием при низкой температуре, когда роль магнитно-слабой подсистемы возрастает. Целью настоящей работы является изучение в рамках приближения среднего поля несоизмеримых состояний двухподсистемного планарного магнетика с геометрически фрустрированным межподсистемным обменом и конкуренцией обменов между ближайшими и вторыми соседями внутри второй подсистемы:

$$J_a > |J_{b1}| \geq J_{b2} \geq J_{ab}. \tag{1}$$

Важную роль в формировании НМС играет протяженность межподсистемных обменных связей. Ранее был предложен критерий выбора ориентации вектора НМС вдоль направления наибольшей протяженности фрустрированных связей [13]. Для оценки влияния этого фактора рассмотрим две модели с одинаковыми относительными обменами, но с разной длиной этих связей:

$$\Delta c = (2l-1)c/2, \quad l = 1, 3, \tag{2}$$

где c – смещение между ионами каждой подсистемы вдоль вектора НМС. Гамильтониан модели имеет вид

$$H = J_a \sum_{ii'} \mathbf{S}_i \mathbf{S}_{i'} + J_{b1} \sum_{jj'} \mathbf{S}_j \mathbf{S}_{j'} + \\ + J_{b2} \sum_{jj''} \mathbf{S}_j \mathbf{S}_{j''} + J^l_{ab} \sum_{ij} \mathbf{S}_i \mathbf{S}_j, \quad i \in \mathrm{A}, \quad j \in \mathrm{B}. \tag{3}$$

Рассматриваются только главные изотропные обмены между спинами $S = 1/2$ в обеих подсистемах. Схема пространственного распределения спинов и геометрия обменных взаимодействий вдоль направления вектора несоизмеримости $\mathbf{q}$, а также локальная относительная ориентация спинов показаны на рис. 1a и b соответственно. Пространственное изме-

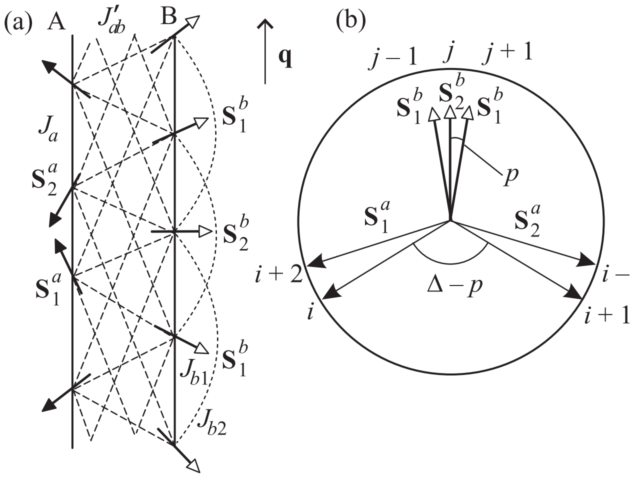

Рис. 1. (a) – Распределение спинов и обменных взаимодействий. (b) – Относительная локальная ориентация спинов в треугольной НМС

нение углов ориентации спинов АФ-подрешеток А-подсистемы $(\varphi^a_{1,2})$ и спинов В-подсистемы (φ^b) показано на рис. 2. Для дискретной решетки величина

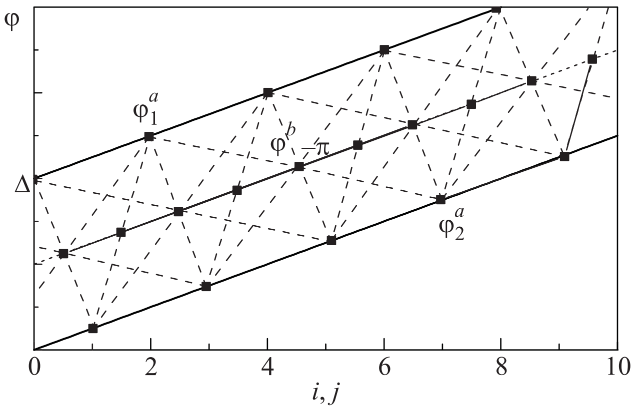

Рис. 2. Изменение углов ориентации спинов в направлении вектора геликоида для дискретного магнетика. Пунктирные линии представляют межподсистемный обмен для моделей с $l = 1$ и 3

угла скоса между соседними спинами А-подсистемы чередуется:

$$\varphi^a_1(i) - \varphi^a_2(i \pm 1) = \Delta \pm p, \tag{4}$$

где Δ – скос АФ-подрешеток подсистемы А в континуальном приближении:

$$\Delta = \varphi_1^a(x) - \varphi_2^a(x),$$

а p – шаг геликоида. Чередование приводит к различным средним полям межподсистемного взаимодействия на спинах B-подсистемы и, следовательно, к разным средним значениям S_1^b и S_2^b. Подсистема B разделяется на две ферримагнитные подрешетки. В отличие от амплитуд на B-спинах амплитуды продольных средних полей на A-спинах одинаковы:

$$\begin{aligned} h_l^a = h_{l1}^a = h_{l2}^a = \frac{z_a}{2} J_a S^a \cos\Delta\cos p - \\ - \frac{z_{ab}}{4} J_{ab}^l \Big[(S_1^b + S_2^b) \cos\frac{\Delta}{2} \cos\frac{(2l-1)p}{2} - \\ - (S_1^b - S_2^b) \sin\frac{\Delta}{2} \sin\frac{(2l-1)p}{2} \Big], \\ h_{l1}^b = \frac{z_{b1}}{2} J_{b1} S_2^b \cos p + \frac{z_{b2}}{2} J_{b2} S_1^b \cos 2p - \\ - \frac{z_{ba}}{2} J_{ab}^l S^a \cos\Big[\frac{\Delta}{2} + \frac{(2l-1)p}{2}\Big], \\ h_{l2}^b = \frac{z_{b1}}{2} J_{b1} S_1^b \cos p + \frac{z_{b2}}{2} J_{b2} S_2^b \cos 2p - \\ - \frac{z_{ba}}{2} J_{ab}^l S^a \cos\Big[\frac{\Delta}{2} - \frac{(2l-1)p}{2}\Big], \end{aligned} \tag{5}$$

где $z_a, z_{b1}, z_{b2}, z_{ab}, z_{ba}$ – числа соседей для каждого из спин-спиновых взаимодействий. Будем считать, что $z_{ab} = z_{ba}$, хотя в общем случае их соотношение может быть другим. При равновесной ориентации спинов средние поперечные поля на каждом спине равны нулю. Для A-спинов это дает уравнение

$$\begin{aligned} h_t^a = \frac{z_a}{2} J_a S^a \sin\Delta\cos p - \\ - \frac{z_{ab}}{4} J_{ab} \Big[(S_1^b + S_2^b) \sin\frac{\Delta}{2} \cos\frac{(2l-1)p}{2} + \\ + (S_1^b - S_2^b) \cos\frac{\Delta}{2} \sin\frac{(2l-1)p}{2} \Big] = 0. \end{aligned} \tag{6}$$

При симметричном окружении соседних взаимодействующих спинов поперечные поля на B-спинах всегда равны нулю (рис. 1b).

В приближении среднего поля свободная энергия аддитивна. Для нахождения конфигурации с ее минимальным значением (основного состояния) достаточно минимизировать энергию минимального набора спинов с неэквивалентными локальными окружениями, имеющих различные продольные средние поля. Численная минимизация свободной энергии четырех спинов такого элементарного блока проводится с учетом ограничения (6) и условия самосогласования, накладываемого на средние значения спинов:

$$F_4 = -T(2\ln Z^a + \ln Z_1^b + \ln Z_2^b), \tag{7}$$

$$Z_{1,2}^{a,b} = \mathrm{Sp}(\exp H_{\mathrm{MFA}}^{a,b}) = \exp\Big(\frac{h_{1,2}^{a,b}}{2T}\Big) + \exp\Big(-\frac{h_{1,2}^{a,b}}{2T}\Big),$$

$$S_{1,2}^{a,b} = -\frac{1}{2}\tanh\Big(\frac{h_{l,1,2}^{a,b}}{2T}\Big). \tag{8}$$

Зависимости нормированной свободной энергии $f_4 = F_4/z_a J_a$, средних значений $S_{1,2}^b$ и шага геликоида p от приведенной температуры $t = T/z_a J_a$ для фиксированных значений $j_{b1} = z_{b1}J_{b1}/z_aJ_a = -0.4$, $j_{ab} = z_{ab}J_{ab}^l/z_aJ_a = 0.25$ и различных соотношений между обменами в B-подсистеме ($R = j_{b2}/|j_{b1}|$, $j_{b2} = z_{b2}J_{b2}/z_aJ_a$) показаны на рис. 3. Для приведенных соотношений между обменами разных подсистем среднее значение спинов в A-подсистеме S^a близко к насыщению и почти не меняется в рассматриваемом интервале температур. Появление в B-подсистеме спонтанной намагниченности при T_1 приводит к формированию треугольного несоизмеримого состояния при выполнении порогового условия на соотношение между конкурирующими обменами $R > R_1$. Для рассматриваемого случая $R_1 \approx 0.65$. При этом как намагниченность в подсистеме B, так и шаг геликоида возникают скачком (происходит фазовый переход первого рода). Дальнейшее понижение температуры уменьшает шаг p (волновой вектор несоизмеримой структуры $\mathbf{q}$). При T_2 магнетик переходит в соизмеримое состояние Яфета–Киттеля, если отношение R меньше, чем второе пороговое значение ($R_2 \approx 0.9$) (кривые *2* и *3* на рис. 3). При $R < R_1$ намагниченность подсистемы B возникает как фазовый переход второго рода, сразу формируя соизмеримую ЯК-фазу (кривые *4* на рис. 3). При $R > R_2$ ЯК-фаза отсутствует и треугольная НМС остается основным состоянием вплоть до нулевой температуры (кривые *1* на рис. 3). В несоизмеримой фазе разница между средними значениями спинов S_1^b и S_2^b определяется главным образом межподсистемным обменом и температурой. При $j_{ab} \ll 1$ она мала (рис. 3b).

Пороговые условия на возникновение НМС при T_1 и ее исчезновение при T_2 можно получить аналитически, если учесть, что в этих точках $S_1^b = S_2^b = S^b$. Из (6)–(8) получаем скос АФ-подрешеток подсистемы А и упрощенное уравнение минимизации свободной энергии:

$$\cos\Delta/2 = \frac{j_{ab}S^b\cos{(2l-1)p/2}}{2S^a\cos p}, \tag{9}$$

$$\frac{dF_4}{dp} = -2S^a\frac{dh_l^a}{dp} - 2S^a\frac{dh_l^b}{dp} = 0. \tag{10}$$

После алгебраических преобразований получаем уравнение на экстремальные значения p:

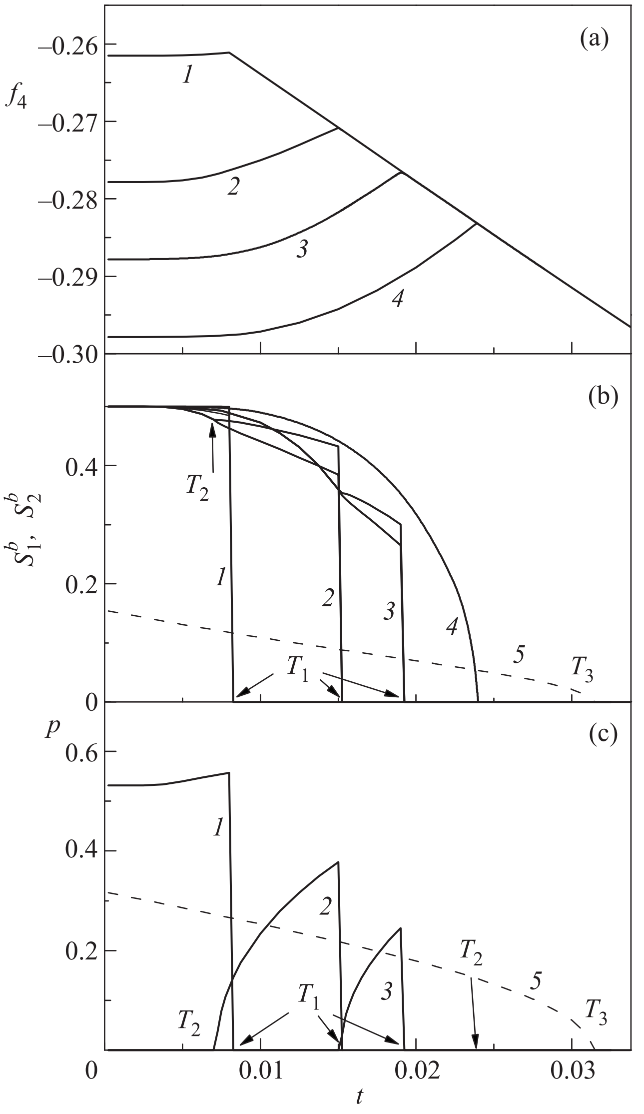

Рис. 3. Температурные зависимости свободной энергии (a), средних значений спинов в B-подсистеме (b) и шага геликоида (c). Линии *1*, *2*, *3*, *4* соответствуют соотношениям между конкурирующими обменами в B-подсистеме $R = 1$, 0.8, 0.7, 0.6 при $l = 1$, а линии *5* – средним значениям B-спинов и шагу АФ-геликоида при $l = 3$ и $R = 0.6$

$$\sin p\left\{\frac{K(S^a)}{K(S^b)} - \left[j_{b1} + 4j_{b2}\cos p + j_{ab}^2 f_l(\cos p)\right]\right\} = 0, \quad (11)$$

$$K(S^{a,b}) = (S^{a,b})^2\Big[1 - \\ - \frac{1-4(S^{a,b})^2}{2S^{a,b}}\operatorname{arctang}(2S^{a,b})\Big]^{-1}, \quad (12)$$

$$f_1(\cos p) = \frac{1}{4\cos^2 p},$$

$$f_3(\cos p) = \frac{1}{4\cos^2 p} - 16\cos^3 p + 10\cos p.$$

Первое решение (11), $p = 0$, соответствует однородному треугольному состоянию Яфета–Киттеля. Второе дает уравнение на шаг геликоида несоизмеримого состояния. Решения с $\cos p < 1$ появляются, если выполняется пороговое условие на взаимодействия. Для $l = 1$ пороговое условие имеет вид

$$\frac{K(S^a)}{K(S^b)} < j_{b1} + 4j_{b2} + \frac{j_{ab}^2}{4}.$$

Главным нетривиальным результатом работы является температурная зависимость шага геликоида (волнового вектора несоизмеримой структуры). Несоизмеримая структура имеет максимальный шаг геликоида при температуре появления намагниченности в B-подсистеме T_1 с дальнейшим его уменьшением. Несмотря на увеличение вклада слабой подсистемы в общее состояние магнетика, волновой вектор уменьшается и система стремится к формированию соизмеримой треугольной структуры Яфета–Киттеля. Коэффициенты $K(S^{a,b})$ (рис. 4) определяются температурной зависимостью намаг-

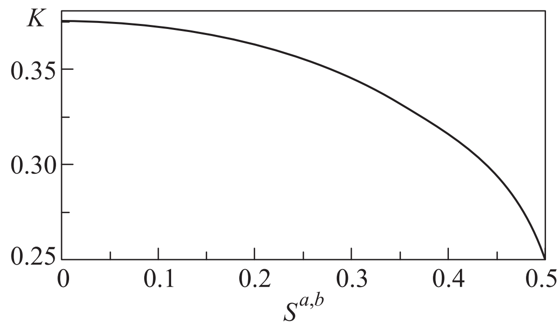

Рис. 4. Зависимость коэффициентов $K(S^{a,b})$ от средних значений спинов подсистем (12)

ниченностей S^a и S^b (см. (8)). Для почти полностью упорядоченной A-подсистемы $K(S^a) \approx 1/4$ и шаг геликоида p зависит только от $K(S^b)$. Предельные значения этого коэффициента, $K(S^b \to 0) = 3/8$ и $K(S^b \to 0.5) = 1/4$, определяют интервал значений обменов, при которых существуют и температура появления (T_1) и температура исчезновения (T_2) НМС (рис. 3, кривые *2* и *3*):

$$\frac{2}{3} < j_{b1} + 4j_{b2} + \frac{j_{ab}^2}{4} < 1. \quad (13)$$

При выполнении двойного неравенства (13) можно сказать, что возникает несоизмеримость через беспорядок, поскольку при полном упорядочении подсистемы B ($T = 0$) состояния с $q > 0$ не являются основными. Вне этого интервала взаимодействий отсутствует или T_1, или T_2 (рис. 3, кривые *4* и *1*).

Для случая с более протяженным межподсистемным обменом вдоль вектора НМС ($l = 3$) при выполнении порогового условия

$$R < R_3 \approx 0.77$$

между соизмеримыми ЯК- и АФ-фазами появляется длиннопериодическая НМС с локально антиферромагнитными подрешетками в каждой подсистеме – АФ-геликоид. Она возникает одновременно с появлением намагниченности в B-подсистеме при температуре T_3. После появления треугольных ЯК-решений при T_2 система переходит в фазу ЯК путем фазового перехода первого рода. Шаг АФ-геликоида (волновой вектор) скачком обращается в нуль (рис. 3b, c). Особенности этой структуры, возникающей в CuB_2O_4, рассмотрены ранее [12, 13]. Отметим, что в интервале отношений конкурирующих взаимодействий в B-подсистеме

$$R_2 < R < R_3 < R_1$$

в ферримагнетике при различных температурах формируются 4 фазы с последовательностью фазовых переходов

$$\text{YK-фаза} \leftrightarrow triangular \quad helix \leftrightarrow AF \quad helix \leftrightarrow AF.$$

В завершение кратко обсудим некоторые особенности треугольной несоизмеримой структуры и ограничивающих ее переходов. Рассмотренная структура отличается от ферримагнитного геликоида Каплана взаимной ориентацией спинов. В нашем случае мы имеем локально треугольную ориентацию Яфета–Киттеля четырех различных подрешеток (рис. 1b) в отличие от двухподрешеточной локально коллинеарной ферримагнитной ориентации при доминирующем межподсистемном обмене. Модуляции скоса АФ-подрешеток в A-подсистеме и средних значений спинов в B-подсистеме являются результатом дискретности магнетика. Присутствие дополнительной нефрустрированной подсистемы приводит к усилению классического порогового соотношения на возникновение НМС: $J_{b2}/|J_{b1}| > 1/4$ [9], хотя фрустрированный межподсистемный обмен J_{ab} способствует формированию НМС. При выполнении порогового условия НМС появляется с конечным шагом $p > 0$, определяемым уравнением (11). Следовательно, энергия A-подсистемы повышается на конечную величину. Поскольку в точке фазового перехода полная энергия системы непрерывна (рис. 3a), энергия B-подсистемы должна уменьшиться на ту же конечную величину. Это может произойти, только если намагниченность B-подсистемы появляется сразу с конечным ненулевым значением. Следовательно, первый переход в несоизмеримое состояние при T_1 является фазовым переходом первого рода. Ситуация со вторым переходом при T_2 (как и с переходом в АФ-геликоид при T_3) не так проста. Формально мы имеем дело с непрерывным переходом между двумя топологически эквивалентными состояниями, а намагниченность в T_2 имеет излом, характерный для фазового перехода второго рода. Вместе с тем в окрестности T_2 ($\Delta t \sim 10^{-3}$) существует макроскопический интервал решений $\Delta p \sim 10^{-1}$ с практически одинаковыми значениями энергии ($\Delta f_4 \sim 10^{-6}$). Это означает, что при понижении температуры магнетик переходит из несоизмеримой фазы в фазу Яфета–Киттеля через стохастическую фазу без дальнего порядка, т.е. имеет место общее разупорядочение в результате увеличения порядка (намагниченности) в B-подсистеме. Значительное уширение стохастического слоя между периодическими решениями в фазовом пространстве (в окрестности сепаратрисы) по сравнению с двухподрешеточным антиферромагнетиком при нулевой температуре объясняется увеличением числа динамических переменных в двухподсистемном (четырехподрешеточном) магнетике [14]. Кроме того, при конечной температуре число степеней свободы возрастает благодаря варьированию средних значений спинов.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (грант # 10-02-00765).

1. A. P. Ramirez, Annu. Rev. Mater. Sci. **24**, 453 (1994); J. E. Greedan, J. Mater. Chem. **11**, 37 (2001); J. S. Gardner,M. J. P. Gingras, and J. E. Greedan, Rev. Mod. Phys. **82**, 53 (2010).
2. P. W. Anderson, Phys. Rev. **102**, 1008 (1956); J. Villain, Z. Phys. B **33**, 31 (1978).
3. J. N. Reimers, A. Berlinsky, and A.-C. Shi, Phys. Rev. B **43**, 865 (1991).
4. C. Pinettes, B. Canals, and C. Lacroix, Phys. Rev. B **66**, 024422 (2002).
5. N. P. Raju, M. Dion, M. J. P. Gingras et al., Phys. Rev. B **59**, 14489 (1999); S. E. Palmer and J. T. Chalker, Phys. Rev. B **62**, 448 (2000).
6. M. Elhajal, B. Canals, R. Sanyer et al., Phys. Rev. B **71**, 094420 (2005).
7. Y. Yafet and C. Kittel, Phys. Rev. **87**, 290 (1952).
8. T. A. Kaplan, Phys. Rev. **119**, 1460 (1960); D. H. Lyons, T. A. Kaplan, K. Dwight et al., Phys. Rev. **126**, 540 (1962).
9. Дж. Смарт, *Эффективное поле в теории магнетизма*, М.: Мир, 1968.
10. S. Martynov, G. Petrakovskii, and B. Roessli, J. Magn. Magn. Mater. **269**, 106 (2004).

11. M. Boehm, B. Roessli, J. Shefer et al., Physica B **318**, 277 (2002); M. Boehm, B. Roessli, J. Shefer et al., Phys. Rev. B **68**, 024405 (2003); Y. Kousaka et al., J. Phys. Chem. Sol. **68**, 2170 (2007); А. И. Панкрац, Г. А. Петраковский, М. А. Попов и др., Письма в ЖЭТФ **78**, 1058 (2003).
12. С. Н. Мартынов, А. Д. Балаев, Письма в ЖЭТФ **85**, 649 (2007).
13. С. Н. Мартынов, ЖЭТФ **135**, 82 (2009).
14. Г. М. Заславский, Р. З. Сагдеев, *Введение в нелинейную физику*, М.: Наука, 1988; С. Н. Мартынов, В. И. Тугаринов, Письма в ЖЭТФ **92**, 119 (2010).