Письма в ЖЭТФ, том 106, вып. 1, с. 34 – 38

Фазовая диаграмма основного состояния классического анизотропного фрустрированного гейзенберговского ферромагнетика

С. Н. Мартынов[1], В. И. Тугаринов

Институт физики им. Л.В. Киренского, ФИЦ КНЦ СО РАН, 660036 Красноярск, Россия

Поступила в редакцию 23 мая 2017 г.

Для одномерной легкоосной модели классических спинов, связанных ферромагнитным и антиферромагнитным обменами между ближайшими и вторыми соседями соответственно, получена фазовая диаграмма основного состояния. Параметры несоизмеримой магнитной структуры с переменным шагом (солитонной решетки) рассчитаны в приближении среднего поля из условия коллинеарности спинов эффективным обменным полям в континуальном приближении. Численной минимизацией средней энергии по начальной угловой скорости спинов определено основное состояние солитонной решетки и фазовые границы между солитонной и коллинеарными (ферромагнитной и “up-up-down-down”) фазами.

DOI: 10.7868/S0370274X17130070

В течение последних десятилетий фрустрированные магнетики вызывают постоянно растущий интерес благодаря большому разнообразию необычных состояний и их магнитных свойств [1]. Значительное число работ посвящено одномерной фрустрированной модели Гейзенберга, где сочетание фрустрации обменных взаимодействий и сильных квантовых флуктуаций приводит к различным состояниям без дальнего магнитного порядка даже при нулевой температуре и к квантовым фазовым переходам между ними [2–9]. В реальных квазинизкомерных магнитных кристаллах дальний магнитный порядок устанавливается благодаря более слабым трехмерным взаимодействиям [10]. Применение квантовых подходов при расчете трехмерных моделей сопровождается значительным возрастанием сложности вычислений. При этом в качестве стартовой точки расчетов часто используют результаты рассмотрения соответствующих классических моделей, что позволяет существенно сузить область поиска решений. Решения простых моделей с классическими спинами качественно верно описывают магнитоупорядоченные фазы в приближении среднего поля и легко обобщаются на случаи любой размерности.

Основное состояние одномерной фрустрированной анизотропной модели Гейзенберга

$$H = J_1 \sum_i (\mathbf{S}_i \mathbf{S}_{i+1} + \delta_1 S_i^z S_{i+1}^z) + + J_2 \sum_i (\mathbf{S}_i \mathbf{S}_{i+2} + \delta_2 S_i^z S_{i+2}^z), \qquad (1)$$

$$J_1 < 0, \quad J_2 > 0, \quad \delta_{1,2} > 0,$$

где $J_2 > 0$ – антиферромагнитный обмен со вторыми магнитными соседями, определяется знаком обмена с ближайшими соседями J_1, отношением обменов $R = J_2/J_1$ и их анизотропией δ_1 и δ_2.

Для случая ферромагнитного обмена $J_1 < 0$ фрустрация приводит к появлению различных состояний как с дальним магнитным порядком, так и без него [7–9, 11–13]. Интерес к таким магнетикам обусловлен как возросшим числом синтезированных цепочечных соединений меди [14, 15], так и активно изучаемыми мультиферроидными свойствами последних [16, 17]. При рассмотрении модели (1) с классическими векторными спинами обменная анизотропия типа “легкая плоскость” ($\delta_1, \delta_2 < 0$) при $|R| > 1/4$ приводит к спирали с плоскостью поляризации, совпадающей с легкой плоскостью, и постоянным шагом (углом между ближайшими спинами φ). Последнее максимально упрощает расчет его величины, поскольку все спины находятся в эквивалентном относительном окружении. Минимизация энергии по шагу спирали приводит к стандартному результату $\cos\varphi = -1/4R$. В случае легкоосной анизотропии классическое решение модели (1) принципиально усложняется. Минимальную энергию имеет геликоид с плоскостью поляризации, содержащей легкую ось [18]. При этом обменные поля, действующие на спины, зависят от угла между его направлением и осью анизотропии z. В результате шаг геликоида становится переменным – формируется солитонная решетка. Для ее описания необходимо использовать континуальное приближение, при кото-

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

ром изменение угла ориентации спинов представляют в виде аналитической функции координаты $\theta(r_i)$. При таком подходе определение равновесной ориентации спинов (вида функции $\theta(r_i)$) сводится к минимизации интеграла от плотности магнитной энергии [18] или разложения термодинамического потенциала Гинзбурга–Ландау при конечной температуре [19]. Это приводит к нелинейному дифференциальному уравнению Эйлера–Лагранжа как минимум четвертого порядка, единственным способом решения которого остается подстановка пробных гармонических функций (гармоник решения для однородной спирали). Существенным ограничением процедуры минимизации является также сопровождающая ее замена тригонометрических функций от производных угла ориентации спинов на аргументы.

Альтернативный метод расчета параметров солитонной решетки в модели (1) был предложен нами в работе [20]. В его основе лежит принцип коллинеарности средних значений спинов суммарным эффективным полям на каждом узле решетки. Принцип использовался ранее для расчета плоских и конических несоизмеримых магнитных структур в двухподсистемном магнетике на дискретной решетке [21–23] и был обоснован Капланом и Менюком в рамках лагранжева формализма в обзоре [24]. Он позволяет избежать нефизических состояний и определить как основное, так и возбужденные состояния системы спинов. В общем случае при континуальном подходе исходное уравнение на равенство нулю компоненты полей, поперечной направлению спина на узле, является уравнением на ряды четных и нечетных производных от угла ориентации спина. Ряды четных производных ($\theta^{(2n)}$), определяющие нелинейность решений, пропорциональны анизотропии. При малой нелинейности ($\theta'' \ll 1$) это уравнение становится автономным дифференциальным уравнением первого порядка относительно квадрата угловой скорости θ' и допускает решение в квадратурах. Явный вид зависимости θ' от угла θ и начального условия θ'_0 позволяет численно минимизировать среднюю энергию на один спин в солитонной решетке по начальному условию, определяя таким образом основное состояние. Целью настоящей работы является определение в рамках этого подхода фазовой диаграммы основного состояния классического фрустрированного ферромагнетика (1) при $\delta_1 = \delta_2 = \delta > 0$.

При $T = 0$ в приближении среднего поля все спины имеют одинаковую длину $S = 1$ и их ориентация в плоскости, содержащей легкую ось анизотропии, определяется суммарным обменным полем от соседних спинов. Компоненты поля вдоль оси анизотропии z и ортогональной оси x, нормированные на ферромагнитный обмен J_1, имеют вид

$$\begin{aligned} h_z &= (1+\delta)h_z^0, \\ h_z^0 &= \frac{1}{2}\Big(\cos\theta_{i+1} + \cos\theta_{i-1} + \\ &\quad + R(\cos\theta_{i+2} + \cos\theta_{i-2})\Big), \\ h_x &= \frac{1}{2}\Big(\sin\theta_{i+1} + \sin\theta_{i-1} + \\ &\quad + R(\sin\theta_{i+2} + \sin\theta_{i-2})\Big), \end{aligned} \tag{2}$$

где h_z^0 – z-компонента обменного поля без анизотропии, $\theta_{i\pm1,2}$ – углы ориентации соседних спинов относительно оси анизотропии.

Переход к континуальному описанию проводится разложением углов соседних спинов в ряд Тейлора в окрестности значения угла i-го спина:

$$\begin{aligned} \theta_i &= \theta, \\ \theta_{i\pm1} &= \theta \pm \Sigma_{11} + \Sigma_{12}, \\ \theta_{i\pm2} &= \theta \pm \Sigma_{21} + \Sigma_{22}, \end{aligned} \tag{3}$$

где $\Sigma_{\alpha\beta}$ – суммы по нечетным и четным производным переменной θ,

$$\Sigma_{11} = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\theta^{(2n-1)}}{(2n-1)!}, \quad \Sigma_{22} = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2^{2n}\theta^{(2n)}}{(2n)!},$$
$$\Sigma_{12} = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\theta^{(2n)}}{(2n)!}, \quad \Sigma_{21} = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2^{2n-1}\theta^{(2n-1)}}{(2n-1)!}.$$

Здесь и далее постоянная решетки принята равной единице. После подстановки разложения (3) компоненты поля (2) принимают вид

$$\begin{aligned} h_z^0 &= \cos(\theta+\Sigma_{12})\cos\Sigma_{11} + R\cos(\theta+\Sigma_{22})\cos\Sigma_{21}, \\ h_x &= \sin(\theta+\Sigma_{12})\cos\Sigma_{11} + R\sin(\theta+\Sigma_{22})\cos\Sigma_{21}. \end{aligned}$$

Продольное поле на каждом спине дает плотность энергии на единичном интервале координатного пространства, равном постоянной решетки

$$\begin{aligned} h_{||} = \epsilon = h_z\cos\theta + h_x\sin\theta &= \delta h_z^0\cos\theta + \epsilon_0, \\ \epsilon_0 = \cos\Sigma_{11}\cos\Sigma_{12} &+ R\cos\Sigma_{21}\cos\Sigma_{22}, \end{aligned} \tag{4}$$

где δh_z^0 – поле анизотропии, а ϵ_0 – энергия фрустрированного обменного поля в изотропном случае $\delta = 0$.

Ориентация каждого спина однозначно определяется условием его коллинеарности суммарному локальному полю от соседних спинов. Математически оно выражается в требовании обращения в ноль компонент поля, ортогональных направлению спина – в нашем случае поперечной компоненты в плоскости поляризации геликоида

$$h_\perp = h_z \sin\theta - h_x\cos\theta = \delta h_z^0 \sin\theta - \Delta_0 \equiv 0, \tag{5}$$
$$\Delta_0 = \cos\Sigma_{11}\sin\Sigma_{12} + R\cos\Sigma_{21}\sin\Sigma_{22}.$$

С учетом этого ограничения плотность магнитной энергии (4) принимает мультипликативную форму – анизотропная и фрустрационная компоненты входят в виде произведения

$$\epsilon = \frac{1+\delta}{1+\delta\sin^2\theta}\epsilon_0. \tag{6}$$

Условие (5) принимает вид нелинейного уравнения на ряды производных

$$\frac{\cos\Sigma_{11}\sin\Sigma_{12} + R\cos\Sigma_{21}\sin\Sigma_{22}}{\cos\Sigma_{11}\cos\Sigma_{12} + R\cos\Sigma_{21}\cos\Sigma_{22}} = \frac{\delta\sin\theta\cos\theta}{1+\delta\sin^2\theta},$$

решение которого может быть получено в приближении малой ангармоничности ($\theta'' \ll 1$), когда производными выше второго порядка можно пренебречь,

$$\theta''\frac{\cos\theta' + 4R\cos 2\theta'}{\cos\theta' + R\cos 2\theta'} = \frac{2\delta\sin\theta\cos\theta}{1+\delta\sin^2\theta}.$$

Замена переменной $z = (\theta')^2/2$ позволяет проинтегрировать это автономное дифференциальное уравнение в квадратурах

$$I(z,z_0) = \int_{z_0}^{z}\frac{C(z)}{\epsilon_0}dz = \ln(1+\delta\sin^2\theta), \tag{7}$$

где $C(z) = \cos\sqrt{2z} + 4R\cos 2\sqrt{2z}$, $\epsilon_0(z) = \cos\sqrt{2z} + R\cos 2\sqrt{2z}$. Переменная z изменяется от начального значения z_0 при $\theta = 0$ до $z_{\max}$ при $\theta = \pi/2$.

Разложим интеграл (7) в ряд Тейлора по степеням отклонения переменной z от z_0

$$I(z,z_0) = \sum_{n=1}^{\infty} a_n \frac{(z-z_0)^n}{n!},$$
$$a_n = \left(\frac{C(z)}{\epsilon_0}\right)^{(n-1)}_{z_0},$$

до второй степени включительно ($a_{n>2} = 0$ [20]), и получим явный вид зависимости переменной z от угла ориентации спина

$$z = z_0 + \frac{\epsilon_0(z_0)}{3RK(z_0)(1+2\cos^2\sqrt{2z_0})}\times$$
$$\times\Big(C(z_0) - \big(C^2(z_0) - 6RK(z_0)\times \tag{8}$$
$$\times(1+2\cos^2\sqrt{2z_0})\ln(1+\delta\sin^2\theta)\big)^{1/2}\Big),$$
$$K(z_0) = \frac{\sin(\sqrt{2z_0})}{\sqrt{2z_0}}.$$

Число спинов на единичном интервале угла θ (плотность спинов – d) определяется угловой скоростью и зависит от начального условия и угла θ:

$$d = (\theta')^{-1} = (2z(z_0,\theta))^{-1/2}. \tag{9}$$

Подставляя выражение для угловой скорости в плотность энергии (6) и интегрируя на интервале периодичности функции $\sin^2\theta$, получаем среднюю энергию на один спин

$$E_{\mathrm{S}}(z_0) = \frac{(1+\delta)\displaystyle\int_0^{\pi/2}\frac{\epsilon_0(z)}{1+\delta\sin^2\theta}\frac{d\theta}{\sqrt{2z(\theta,z_0)}}}{\displaystyle\int_0^{\pi/2}\frac{d\theta}{\sqrt{2z(\theta,z_0)}}}. \tag{10}$$

Основное состояние полученных решений определяется экстремумом энергии (10) (в нашем случае максимумом, поскольку поля и плотность энергии нормированы на ферромагнитный обмен $J_1 < 0$). Значение $z_0 = z_{\min}$, соответствующее этому экстремуму, определяет основное состояние солитонной решетки для каждого набора параметров δ и R. После подстановки этого значения в (9) получаем зависимость угловой скорости от угла в основном состоянии. Отметим, что для расчета энергии солитонной решетки явная зависимость угла от пространственной координаты не требуется вследствие исходной трансляционной инвариантности задачи.

Зависимость средней энергии основного состояния солитонной решетки (10) от параметра анизотропии δ является нелинейной (рис. 1). Фазовый переход первого рода по этому параметру в ферромагнитное состояние (F) (при $|R| < 1/2$) или состояние с чередованием пар спинов, направленных вдоль и противоположно оси z (“up-up-down-down” фаза UUDD) (при $|R| > 1/2$) [11–13], происходит при совпадении энергии солитонной решетки с энергией коллинеарной фазы:

$$E_{\mathrm{F}} = (1+\delta)(1+R), \quad |R| < 1/2,$$
$$E_{\mathrm{UUDD}} = -(1+\delta)R, \quad |R| > 1/2.$$

Разница между минимальным ($z_{\min}$) и максимальным ($z_{\max}$) значениями переменной z монотонно растет с ростом δ и достигает максимума в тройной точке ($R = -1/2$, $\delta \approx 1.34$). На рис. 2 показаны изменения плотности энергии ϵ, спиновой плотности d и параметра z как функций угла ориентации спинов в тройной точке.

На фазовой диаграмме основного состояния модели (1) (рис. 3) показаны пределы изменения переменной z в остальных точках фазовых границ (сплошные линии), а также для сравнения ее значение для

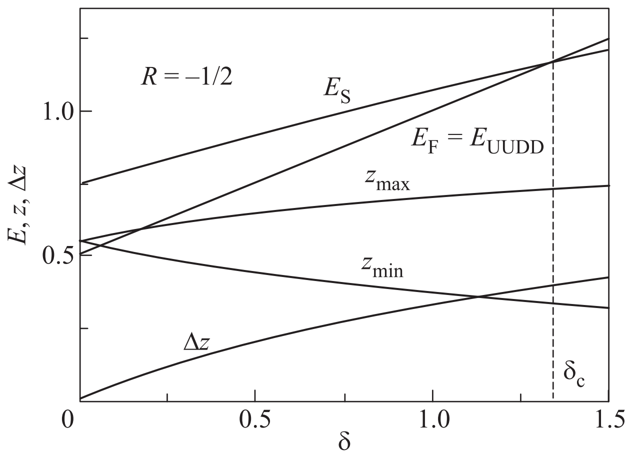

Рис. 1. Средняя энергия солитонной решетки E_S, предельные значения переменной z (квадрата угловой скорости) и интервала ее изменения от анизотропии при $R = -1/2$. Также показано изменение энергии коллинеарных фаз при этом значении параметра фрустрации

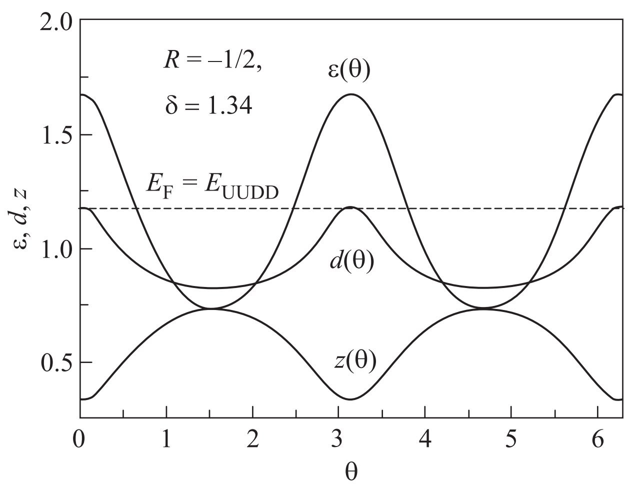

Рис. 2. Зависимость плотности нормированной энергии геликоида с переменным шагом $\epsilon(\theta)$ (6), числа спинов на единичный интервал угла (спиновой плотности) $d(\theta)$ (9) и переменной z (8) от угла θ в тройной точке фазовой диаграммы

геликоида с постоянным шагом ($\delta = 0$) при тех же значениях R (пунктирная линия). Такой геликоид с плоскостью поляризации ортогональной оси анизотропии также удовлетворяет условию коллинеарности. Однако его нормированная энергия, равная энергии в отсутствии анизотропии

$$E_S(\delta = 0) = -R - \frac{1}{8R}, \tag{11}$$

всегда меньше монотонно растущей энергии солитонной решетки (см. рис. 1). Таким образом, при любом значении легкоосной анизотропии солитонная

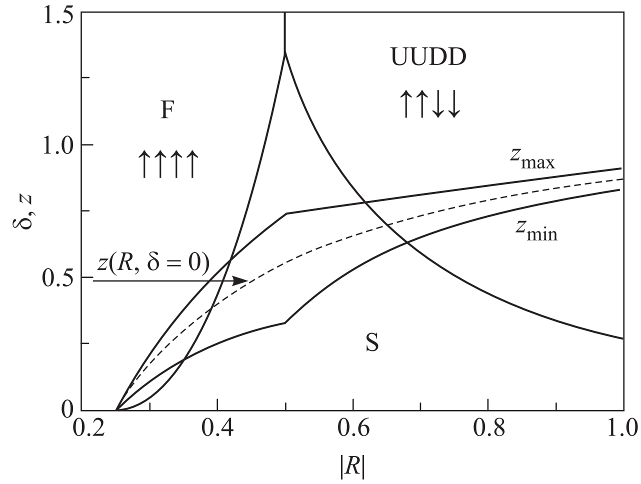

Рис. 3. Фазовая диаграмма классического легкоосного фрустрированного ферромагнетика. Показаны пределы изменения переменной $z(\theta)$ на фазовых границах солитонной (S), ферромагнитной (F) и UUDD фаз, а также для сравнения зависимость $z(|R|)$ для плоского однородного геликоида. При $|R| \to \infty$ фазовая граница между UUDD и солитонной фазами стремится к оси $|R|$

решетка с плоскостью поляризации, содержащей ось анизотропии, энергетически выгоднее плоской однородной спирали. Условие коллинеарности спинов локальным полям вносит ограничение и на формирование конического однородного геликоида – для его существования необходимо дополнительно либо внешнее магнитное поле, либо обменное поле со стороны спинов второй магнитной подсистемы.

Фазовая диаграмма основного состояния квантовой модели (1) с анизотропией типа “легкая ось” $\delta_1 = \delta_2 = \delta > 0$ содержит три фазы: ферромагнитную (F), антиферромагнитную с парами спинов, ориентированных вдоль и противоположно оси z (UUDD фаза), и промежуточную фазу с намагниченностью, непрерывно изменяющейся в зависимости от параметров модели [11–13]. Модель (1) с классическими спинами рассмотрена в работе [18], для случая $\delta_1 > \delta_2 = 0$ в окрестности точки Лифшица $|R| = 1/4, \delta_1 = 0$ выполнена минимизация интеграла от плотности магнитной энергии. В нашем подходе при отсутствии анизотропии обмена со вторыми соседями уравнение коллинеарности перестает быть автономным, и его решение может быть найдено в виде поправки по аргументу функции $z(\delta_1 \sin\theta)$ к решению автономного уравнения.

На рис. 4 для сравнения приведены фазовые границы между солитонной и ферромагнитной фазами как для случая $\delta_1 = \delta_2 = \delta$ (1), так и для $\delta_1 > \delta_2 = 0$ (2) в соответствующей области фазового простран-

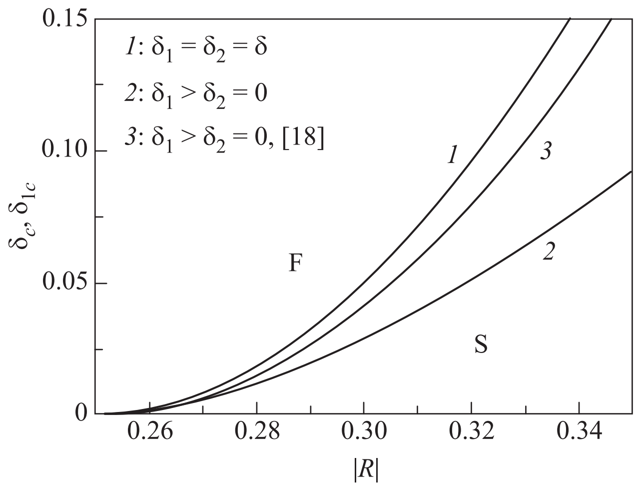

Рис. 4. Фазовая граница между ферромагнитной и солитонной фазами классического легкоосного фрустрированного ферромагнетика в окрестности точки $|R| = 1/4$ для двух случаев анизотропии модели (1). Зависимость *3* взята из работы [18]

ства. Квадратичная зависимость фазовой границы $\delta_{1c} \propto R^2$, совпадающая с результатом [18] (кривая *3*), сохраняется только в ближайшей окрестности точки Лифшица. С ростом $|R|$ эта зависимость переходит в линейную, что имеет простое объяснение. При увеличении фрустрации угол между ближайшими спинами стремится к $\pi/2$ – формируется несоизмеримая структура с локальной спиновой ориентацией типа "крест". При этом энергия такой структуры (11) имеет асимптотику $\epsilon(|R| \to \infty) = -R$, что в сравнении с энергией ферромагнитной фазы дает асимптотическую границу $\delta_{1c} = -2R - 1$. В то же время для случая с анизотропией в обеих обменах такой асимптотикой является $\delta_c = (1 + R)^{-1}$. При анизотропии $\delta_1 > \delta_2 = 0$ и $|R| \approx 0.35$ максимальная скорость (угол между соседними спинами при $\theta \approx \pi/2$) превышает $\pi/4$, а со вторыми соседями – $\pi/2$. При больших значениях параметра фрустрации замена тригонометрических функций от скорости в плотности энергии и вариационном уравнении Эйлера будет давать значительную систематическую ошибку. В уравнении на коллинеарность спинов и полей проводили замену на аргумент тригонометрических функций от второй производной угла θ, которая даже при максимальном значении в тройной точке фазовой диаграммы (см. рис. 3) не превышает 0.45.

Приведенное сравнение двух разных случаев обменной анизотропии модели (1) показывает, что сделанное нами в работе [11] (и в ряде работ других авторов) утверждение о несущественном влиянии анизотропии обмена со вторыми соседями неверно. Отсутствие такой анизотропии качественно изменяет фазовую диаграмму, поскольку энергия UUDD фазы становится всегда выше энергии солитонной решетки. Отсутствие UUDD фазы на фазовой диаграмме классической модели (1) при $\delta_2 = 0$ говорит о возможных изменениях и на квантовой фазовой диаграмме, где эта фаза присутствует при $\delta_2 > 0$ [11–13].

1. L. Balents, Nature (London) **464**, 199 (2010); *Introduction to Frustrated Magnetism*, ed. by C. Lacroix, P. Mendels, and F. Mila, Springer, N.Y. (2011).
2. F. D. M. Haldane, Phys. Rev. B **25**, 4925 (1982).
3. T. Tonegawa and I. Harada, J. Phys. Soc. Jpn. **56**, 2153 (1987).
4. A. V. Chubukov, Phys. Rev. B **44**, 4693 (1991).
5. K. Nomura and K. Okamoto, J. Phys. A: Math. Gen. **27**, 5773 (1994).
6. T. Hikihara, M. Kaburagi, and H. Kawamura, Phys. Rev. B **63**, 174430 (2001).
7. R. D. Somma and A. A. Aligia, Phys. Rev. B **64**, 024410 (2001).
8. S. Furukawa, M. Sato, and A. Furusaki, Phys. Rev. B **81**, 094430 (2010).
9. J. Sirker, V. Y. Krivnov, D. V. Dmitriev, A. Herzog, O. Janson, S. Nishimoto, S.-L. Drechsler, and J. Richter, Phys. Rev. B **84**, 144403 (2011).
10. A. A. Zvyagin and S.-L. Drechsler, Phys. Rev. B **78**, 014429 (2008).
11. J. Igarashi, J. Phys. Soc. Jpn. **58**, 4600 (1989).
12. T. Tonegawa, I. Harada, and J. Igarashi, Progr. Theor. Phys. Suppl. **101**, 513 (1990).
13. S. Furukawa, M. Sato, S. Onoda, and A. Furusaki, Phys. Rev. B **86**, 094417 (2012).
14. M. Hase, H. Kuroe, K. Ozawa, O. Suzuki, H. Kitazawa, G. Kido, and T. Sekine, Phys. Rev. B **70**, 104426 (2004).
15. В. Я. Кривнов, Д. В. Дмитриев, Журнал физической химии **88**, 1792 (2014) [V. Ya. Krivnov, D. V. Dmitriev, Russian Journal of Physical Chemistry **88**, 1914 (2014)].
16. S.-W. Cheong and M. Mostovoy, Nature Mater. **6**, 13 (2007).
17. S. Furukawa, M. Sato, and S. Onoda, Phys. Rev. Lett. **105**, 257205 (2010).
18. D. V. Dmitriev and V. Ya. Krivnov, Phys. Rev. B **81**, 054408 (2010).
19. Ю. А. Изюмов, *Дифракция нейтронов на длиннопериодических структурах*, Энергоатомиздат, М. (1987).
20. S. N. Martynov, V. I. Tugarinov, and A. S. Martynov, JMMM, doi:10.1016/j.jmmm.2016.12.086 (2016).
21. С. Н. Мартынов, ФТТ **47**, 654 (2005) [S. N. Martynov, Phys. Solid State **47**, 678 (2005)]
22. С. Н. Мартынов, Письма в ЖЭТФ **102**, 111 (2015).
23. S. N. Martynov, JMMM **398**, 121 (2016).
24. T. A. Kaplan and N. Menyuk, Philosophical Maqazine **87**, 3711 (2007).