05,11

Фазовые переходы в геликоидальных ферромагнетиках с концентрационными флуктуациями локальной намагниченности

© А.А. Повзнер, А.Г. Волков

Уральский федеральный университет им. Б.Н. Ельцина,
Екатеринбург, Россия

E-mail: a.a.povzner@urfu.ru, agvolkov@yandex.ru

Поступила в Редакцию 21 февраля 2019 г.
В окончательной редакции 21 февраля 2019 г.
Принята к публикации 26 февраля 2019 г.

Развивается феноменологический подход к теории индуцированных флуктуациями фазовых переходов в геликоидальных ферромагнетиках с концентрационными флуктуациями. Для этого в функционал Гинзбурга–Ландау вводятся случайные переменные, значение которых равно единице на узле ν, занятом магнитным атомом, и нулю — в противном случае. Показано, что выше температуры магнитного перехода (T_C), вследствие концентрационных эффектов сохраняется локальная намагниченность, и возникают флуктуации геликоидальной спиновой спирали, а в магнитном поле формируются скирмионные состояния. Исчезновение вихревых состояний обусловлено подавлением локальной намагниченности термодинамическими флуктуациями при температуре $T_S (> T_C)$. Теоретические результаты объясняют причины значительного расширения температурной области скирмионных состояний в нестехиометрическом моносилициде марганца с дефицитом марганца.

Ключевые слова: функционал, геликоидальные ферромагнетики, флуктуации, скирмионы.

DOI: 10.21883/FTT.2019.07.47834.387

1. Введение

Из флуктуационной теории фазовых переходов известно, что увеличение, при приближении к критической области, числа флуктуационных мод и возникновение больших по амплитуде спиновых флуктуаций индуцирует замену перехода второго рода на переход первого рода [1–3]. В результате изменения рода фазового перехода, корреляционная длина становится конечной в точке перехода (не расходится), а параметры порядка не меняются непрерывно. Именно такая ситуация, по-видимому, имеет место при фазовом переходе в MnSi, где антисимметричное релятивистское взаимодействие Дзялошинского–Морийя (ДМ-взаимодействие), приводит к возникновению в области дальнего порядка геликоидальной спиновой спирали [1]. В работе [4] было показано, что наблюдаемые при индуцированном флуктуациями фазовом переходе первого рода аномалии теплоемкости и восприимчивости MnSi возникают в интервале температур, соответствующем изотропным киральным флуктуациям. Согласно нейтронографическим данным длина спиновой когерентности в этой области имеет промежуточное значение между характерными для модели Янсена–Бака (анизотропные киральные флуктуации) и для ферромагнитных флуктуаций [4]. При этом согласие нейтронографических данных с результатами моделирования геликоидального ферромагнетизма с ДМ-взаимодействием в методе Монте-Карло [5,6] достигается после учета продольных флуктуаций магнитных моментов на узлах [6].

Отметим также, что в не стехиометрических образцах MnSi с заметным дефицитом марганца имеет место увеличение почти на порядок температурного интервала скирмионной фазы по сравнению со стехиометрическим составом [7]. Поэтому концентрационным флуктуациям модуля локальной намагниченности, возникающие при заметных отклонениях от стехиометрии, могут оказаться решающими для формирования вихревых структур в области фазового перехода первого рода, что требует отдельного рассмотрения.

2. Уравнения магнитного состояния

Рассмотрим функционал Гинзбурга–Ландау ($\Psi(\xi)$) для геликоидального ферромагнетика с ДМ-взаимодействием [4]. В $\mathbf{q}$-представлении этот функционал имеет вид

$$\Psi(\boldsymbol{\xi}_\mathbf{q}) = \tau \sum_\mathbf{q} |\xi_\mathbf{q}|^2 + A \sum_\mathbf{q} \mathbf{q}^2 |\xi_\mathbf{q}|^2 + \Gamma^0 \sum_{\mathbf{q}_1+\mathbf{q}_2+\mathbf{q}_3+\mathbf{q}_4=0} \boldsymbol{\xi}_{\mathbf{q}_1}\boldsymbol{\xi}_{\mathbf{q}_2}\boldsymbol{\xi}_{\mathbf{q}_3}\boldsymbol{\xi}_{\mathbf{q}_4} - id \sum_\mathbf{q} \mathbf{q}\left[\boldsymbol{\xi}_\mathbf{q}\boldsymbol{\xi}_{-\mathbf{q}}\right] \quad (1)$$

Здесь, $\boldsymbol{\xi}_\mathbf{q}$ — вектор параметра порядка, $\tau = a(1 - T_C^{(0)})$ [4,5], T — температура в энергетических единицах.

Для рассмотрения наряду с термодинамическими флуктуациями концентрационных флуктуаций, в функционале (1) осуществим замены

$$\xi_{\boldsymbol{\nu}} \to p_{\boldsymbol{\nu}} \xi_{\boldsymbol{\nu}}. \tag{2}$$

Здесь $p_{\boldsymbol{\nu}}$ — случайные переменные, равные единице на узле $\boldsymbol{\nu}$ занятом магнитным атомом, и нулю — в противном случае.

В записи слагаемого, ответственного за взаимодействие Дзялошинского–Мория, вследствие релятивистской малости этого взаимодействия, воспользуемся приближением среднего поля

$$\sum_{\boldsymbol{\nu\mu}} p_\nu p_\mu \mathbf{d}_{\boldsymbol{\nu\mu}} \left[\boldsymbol{\xi}_{\boldsymbol{\nu}} \times \boldsymbol{\xi}_{\boldsymbol{\mu}}\right] \approx idx^2 \sum_{\mathbf{q}} \mathbf{q}\left[\mathbf{M}_q \times \mathbf{M}_{-\mathbf{q}}\right]. \tag{3}$$

Уравнение магнитного состояния для параметра порядка $\mathbf{M}_{\mathbf{q}}$ (соответствующего среднему значению ξ) запишем с учетом термодинамических флуктуаций, описываемых в приближении Бразовского [3], и стохастических концентрационных флуктуаций локальной намагниченности ($\delta p_{\boldsymbol{\nu}} \xi_{\boldsymbol{\nu}}$),

$$\boldsymbol{\xi}_{\boldsymbol{\nu}} = x(\boldsymbol{\xi}_{\boldsymbol{\nu}} - \mathbf{M}_{\boldsymbol{\nu}}) + \delta p_{\boldsymbol{\nu}} \boldsymbol{\xi}_{\boldsymbol{\nu}}, \tag{4}$$

где $\mathbf{M}_{\boldsymbol{\nu}}$ — средний вектор параметра порядка на узле $\boldsymbol{\nu}$, $x = N_0^{-1} \Sigma_{\boldsymbol{\nu}} p_{\boldsymbol{\nu}}$ — концентрация магнитных атомов, $\delta p_{\boldsymbol{\nu}} = p_{\boldsymbol{\nu}} - x$, N_0 — число узлов кристаллической решетки, отвечающих положению магнитных атомов в стехиометрическом случае, $\langle(\ldots)\rangle = Z^{-1} \int (d)\boldsymbol{\xi}_{\mathbf{q}}(\ldots) \times \exp(-\Psi(\boldsymbol{\xi}_{\mathbf{q}}))$, $Z = \int (d\boldsymbol{\xi}_{\mathbf{q}}) \exp(-\Psi(\boldsymbol{\xi}_{\mathbf{q}}))$ — статистическая сумма.

Уравнения магнитного состояния запишем, используя термодинамическое определение внешнего поля $\mathbf{h}_{\mathbf{q}}\big(= (H_{\mathbf{q}}^{(x)}, h_{\mathbf{q}}^{(y)} h_{\mathbf{q}}^{(z)})\big)$, сопряженного с параметром порядка $\mathbf{M}_{\mathbf{q}}$. Тогда, приняв $h_{\mathbf{q}}^{(\gamma)} = \delta_{\mathbf{q},0}\delta_{\gamma,z} h$, имеем

$$\left\langle \partial\Psi(\mathbf{M}_{\mathbf{q}}, \boldsymbol{\xi}_{\mathbf{q}})/\partial \mathbf{M}_{\mathbf{q}_0}^{(\mp)} \right\rangle = M_{\mathbf{q}0}^{(\mp)} \left(r + A\mathbf{q}_0^2\right)$$

$$+ \Gamma M_{-\mathbf{q}_0}^{(\mp)} (\mathbf{M}_{\mathbf{q}_0})^2 \mp \overline{d}|\mathbf{q}_0| M_{-\mathbf{q}_0}^{(\pm)} = 0, \tag{5a}$$

$$\left\langle T\partial\Psi(\mathbf{M}_{\mathbf{q}}, \boldsymbol{\xi}_{\mathbf{q}})/\partial M_0^{(z)} \right\rangle = TM_0^{(z)} \left(r + \Gamma \big|M_{\mathbf{q}_0}^{(z)}\big|^2\right) = h, \tag{5b}$$

$$\left\langle \partial\Psi(\mathbf{M}_{\mathbf{q}}, \boldsymbol{\xi}_{\mathbf{q}})/\partial M_{\mathbf{q}_0}^{(z)} \right\rangle = M_{\mathbf{q}_0}^{(z)} (r + A\mathbf{q}_0^2)$$

$$+ \frac{1}{2}\Gamma M_{-\mathbf{q}_0}^{(z)} (\mathbf{M}_{\mathbf{q}_0})^2 + \Gamma M_0^{(z)2} M_{\mathbf{q}_0}^{(z)} = 0. \tag{5c}$$

Здесь, $\overline{d} = x^2 d$ (см. (3)), а вектор $\mathbf{q}_0$ отвечает максимуму модуля неоднородной намагниченности ($|\mathbf{q}_0| = \overline{d}/2A$),

$$r = \tau + (6)^{-1}\Gamma\left(x|\mathbf{M}_{\mathbf{q}_0}|^2 + 2x\mathbf{M}_0^2 + \langle \mathbf{M}^2 \rangle\right), \tag{6}$$

$$\Gamma = \Gamma^0 \frac{1 - (\Gamma^0 \langle \mathbf{M}^2 \rangle_T)^2}{1 + (\Gamma^0 \langle \mathbf{M}^2 \rangle_T)^2}, \tag{7}$$

$\langle \mathbf{M}^2 \rangle = N_0^{-1} \sum_{\boldsymbol{\nu}} \rangle$ — среднеквадратическая амплитуда флуктуаций магнитного момента на узле, включающая в себя как термодинамические флуктуации $\sum_{\mathbf{q}} \langle |\boldsymbol{\xi}_{\mathbf{q}} - \mathbf{M}_{\mathbf{q}}|^2 \rangle$, так и концентрационные — $N_0^{-1} \sum_{\boldsymbol{\nu}} \overline{(\delta p_{\boldsymbol{\nu}})} |\mathbf{M}_{\boldsymbol{\nu}}|^2$.

Ниже температуры T_C при $\Gamma^0 \langle \mathbf{M}^2 \rangle < 1$ уравнения (5) соответствуют уравнениям магнитного состояния аналогичным получаемым в модели Янсена–Бака ($\Gamma > 0$):

$$M_{\mathbf{q}_0}^{(z)} = 0 \quad M_{\boldsymbol{\nu}}^{(x)} = M_S \cos(\mathbf{q}_0 \boldsymbol{\nu}), \quad M_{\boldsymbol{\nu}}^{(y)} = M_S \sin(\mathbf{q}_0 \boldsymbol{\nu}),$$

где

$$M_S^2 = |\Gamma|^{-1} \left(r^2 + \overline{d}^2 |\mathbf{q}_0|^2\right)^{1/2}$$

В области температур $T > T_C$, отвечающих отрицательному значению параметра межмодового взаимодействия ($\Gamma < 0$, при ($\Gamma^0 \langle \mathbf{M}^2 \rangle > 1$), имеет место индуцированный спиновыми флуктуациями магнитный переход. При этом получаем, что параметр порядка в решении Янсена–Бака становится равным нулю. Решение для намагниченности узлов теперь содержит начальную фазу ϕ, величина которой фиксирована в пределах радиуса ферромагнитных корреляций

$$R_C = A^{1/2} \Big(\tau + (6)^{-1}\Gamma\big(x|\mathbf{M}_{\mathbf{q}_0}|^2 + 2x\mathbf{M}_0^2 + \langle \mathbf{M}^2 \rangle\big)\Big)^{-1}. \tag{8}$$

Тогда в плоскости перпендикулярной оси геликоида (направление волнового вектора сверхструктуры), имеем, что возникают флуктуации магнитной (спиновой) спирали, обусловленные стохастическими флуктуациями начальной фазы,

$$M_{\boldsymbol{\nu}} = M_S \cos(\mathbf{q}_0 \boldsymbol{\nu} + \phi), \quad M_{\boldsymbol{\nu}}^{(y)} = M_S \sin(\mathbf{q}_0 \boldsymbol{\nu} + \phi).$$

$$M_S^2 = |\Gamma| \left(r^2 \overline{d}^2 |\mathbf{q}_0|^2\right)^{1/2} \tag{9}$$

Кроме того получаем, что во внешнем магнитной поле возникает модулированная с вектором геликоида $\mathbf{q}_0$ намагниченность вдоль оси OZ

$$M_{\boldsymbol{\nu}}^{(z)} = M_{q_0}^{(z)} \cos(\mathbf{q}_0 \boldsymbol{\nu} + \phi),$$

$$\big|M_{\mathbf{q}_0}^{(z)}\big|^2 = \big(M_0^{(z)}(h)\big)^2 - \big[\overline{d}|\mathbf{q}_0| / (4|\Gamma|)\big]. \tag{10}$$

Полученные в лестничном приближении Бразовского [3] для термодинамических флуктуаций с учетом концентрационных флуктуаций, выражения (8, 9) соответствуют скирмионным решениям, которые согласуются с [6,8].

3. Анализ в приближение виртуального кристалла

Рассмотрим стохастические флуктуации модуля локальной намагниченности в модели виртуального кристалла со случайным размещением атомов по узлам кристаллической решетки

$$\overline{(\delta p_\nu \delta p_\mu)} = x(1 - x)\delta_{\nu,\mu}. \tag{11}$$

Тогда

$$\langle \mathbf{M}^2 \rangle = \langle \mathbf{M}^2 \rangle_T + x(1-x)\Big(|\mathbf{M}_{\mathbf{q}_0}|^2 + (M_0^{(z)})^2\Big),$$

$$\langle \mathbf{M}^2 \rangle_T = \big(r + 2\Gamma M_S^2 + X\big)^{-1}, \qquad (12)$$

где $X = (3/5)Aq_C^2$.

Переходя к анализу термодинамических условий существования решений (8, 9), следует отметить, что в используемом лестничном приближении Бразовского [3] величина $\langle \mathbf{M}^2 \rangle$ не может быть больше единицы. Поэтому значения $|\Gamma|$ ограничены снизу величиной $\overline{d}|\mathbf{q}_0|/(2A)$, и претерпевает скачкообразное изменение при $T = T_C$, что и ведет к скачку энтропии и соответствует переходу первого рода

$$\Delta S(T_C) = S(T_C - 0) - S(T_C + 0) \propto \Gamma(T_C - 0) M_S^4(T_C)$$

$$+ |\Gamma(T_C + 0)| \Big(M_S^2(T_C) + |M_{q_0}^{(z)}(T_C)|^2\Big)^2.$$

Зависимость T_C от однородной намагниченности (однородного магнитного поля), обусловленная перенормировкой концентрационными флуктуациями вершинной части четвертого порядка, определяется уравнением

$$T_C = T_C^{(0)}\Big(1 + xd|q_0| - 2\Gamma_x(1-x)M_0^{(z)2}\Big)\Big/$$

$$\Big[1 + xd|\mathbf{q}_0| - \Gamma x(1-x)M_0^{(z)2} - \Gamma^0\Big] \qquad (13)$$

и имеет минимум при

$$M_0^{(z)2} = \Gamma^0 M_S^2 \big[\Gamma^0 x(1-x) + 1 - \Gamma^0/2\big]^{-1}.$$

Этот минимум соответствует минимальному значению T_C на линии $T_C(h)$, ограничивающей скирмионную фазу на $(h - T)$-диаграмме, экспериментально установленной в работе [7]. При устремлении x к нулю или единице $T_C > T_C^{(0)}$, а $\big(M_{\mathbf{q})_0}^{(z)}(h)\big)^2$ обращается в ноль.

Согласно соотношениям (8, 9), границы A-фазы характеризуются наличием ненулевого модуля локальной намагниченности (которая согласно (8) стохастически флуктуирует в пространстве)

$$M_S = M_S(0)$$

$$\times \left(1 - \Big\langle \mathbf{M}^2 \Big\rangle_T \Big/ \Big(M_S^2(0) + x(1-x)\big(M_0^{(z)}(h)\big)^2\Big)\right)^{1/2}. \qquad (14)$$

Из (14) следует, что локальная намагниченность исчезает вследствие тепловых флуктуаций при температуре

$$T_S/T_C = 1 + x(1-x)d|\mathbf{q}_0| + 2\big(M_0^{(z)}(h)\big)^2 x(1-x), \quad (15)$$

величина которой претерпевает существенное изменение в зависимости от концентрационных флуктуаций. Так в случае нестехиометрического моносилициде марганца с дефицитом марганца 10% ($x = 0.9$) согласно (13) получаем увеличение максимальной ширины температурного интервала $(T_S(h) - T_C(h))$ по сравнению со стехиометрическим составом примерно на порядок: от значения 1.2 K в случае MnSi до значения 12.7 K [7].

4. Заключение

Таким образом, при индуцированном флуктуациями магнитном фазовом переходе в геликоидальном ферромагнетике с ДМ-взаимодействием наличие среднеквадратических отклонений заполнения узлов магнитными атомами оказывают значительное влияние на формирование скирмионных состояний. Это влияние связано с тем, что концентрационные эффекты сохраняют локальную намагниченность непосредственно выше температуры индуцированного флуктуациями фазового перехода первого рода. При этом термодинамические спиновые флуктуации, взаимодействие которых индуцирует переход в точке T_C, приводят к подавлению локальной намагниченности при температуре T_S. Возникающий в интервале температур от T_C до T_s магнитный порядок характеризуется флуктуациями спиновой спирали, и частичным упорядочением вдоль оси параллельной внешнему магнитному полю синусоидальной волны спиновой плотности.

В развитой нами модели концентрационные флуктуации аналогичны продольным флуктуациям магнитных моментов на узле в микроскопической модели. Согласно Монте-Карло моделированию [5,6] учет именно продольных флуктуаций является особо важным для объяснения особенностей магнитного рассеяния нейтронов в области A-фазы [7,8]. Здесь мы получаем, что концентрационные флуктуации, приводящие к заметной перенормировке модуля локальной намагниченности, могут заметно увеличивать температурный интервал A-фазы.

В дальнейшем требуется микроскопическое обоснование развитой модели в части определения параметров электронной структуры нестехиометрических составов MnSi на основе первопринципных расчетов (в частности $\Gamma^0\langle \mathbf{M}^2 \rangle$). Значительный эффект отклонений от стехиометрического состава MnSi на локальную намагниченность может быть связан с возникновением флуктуаций внутриатомного кулоновского взаимодействия на узле. Действительно, согласно LSDA+U+SO-расчетам [9] $U = 0.9$ эВ для узла занятого марганцем и $U = 0$ для узла занятого кремнием ($p_\nu = 0$).

Финансирование

Результаты были получены в рамках задания министерства образования и науки Российской Федерации, контракт 3.9521.2017/8.9

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

[1] P. Bak, M.H. Jensen. J. Phys. C **12**, L881 (1980).
[2] В.П. Минеев. УФН **187**, 129 (2017).
[3] С.В. Бразовский. ЖЭТФ **68**, 175 (1975).

[4] M. Janoschek, M. Garst, A. Bauer, P. Krautscheid, R. Georgii, P. Böni, C. Pfleiderer. Phys. Rev. B **87**, 134407 (2013).
[5] S. Buhrandt, L. Fritz. Phys. Rev. B **88**, 195137 (2013).
[6] A.M. Belemuk, S.M. Stishov. Phys. Rev. B **97**, 144419 (2018).
[7] N. Potapova, V. Dyadkin, E. Moskvin, H. Eckerlebe, D. Menzel, S. Grigoriev. Phys. Rev. B **86**, 060406(R) (2012).
[8] Y. Dovzhenko, F. Casola, S. Schlotter, T.X. Zhou, F. Büttner, R.L. Walsworth, G.S.D. Beach, A. Yacoby. Nature Communications **9**, 2712 (2018).
[9] A.A. Povzner, A.G. Volkov, T.A. Nogovitsyna. Physica B **536**, 408 (2018).

Редактор Ю.Э. Китаев