01,05

Концентрационные флуктуации в киральных ферромагнетиках $Fe_xMn_{1-x}Si$ во внешнем магнитном поле

© А.А. Повзнер, А.Г. Волков, Т.М. Нуретдинов

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

E-mail: a.a.povzner@urfu.ru

Поступила в Редакцию 12 декабря 2019 г.
В окончательной редакции 13 января 2020 г.
Принята к публикации 15 января 2020 г.

В рамках теории спиновых флуктуаций исследуются магнитные $h-T$-диаграммы киральных геликоидальных ферромагнетиков $Fe_xMn_{1-x}Si$ с взаимодействием Дзялошинского–Мория. Конкретный анализ уравнений магнитного состояния проводится на основе модели электронной структуры, вытекающей из LDA+U+SO-расчетов DOS в приближении виртуального кристалла. Показано, что в области концентраций $x < 0.12$ уровень Ферми остается в пределах локального минимума DOS. При этом реализуется геликоидальный дальний порядок, который претерпевает индуцированный спиновыми флуктуациями переход первого рода, сопровождаемый формированием наведенных внешним магнитным полем промежуточных скирмионных фаз. С увеличением x возникающие вследствие хаотического распределения по узлам магнитных моментов марганца и железа, эффекты концентрационных флуктуаций подавляют нулевые квантовые спиновые флуктуации. При этом условие возникновения скирмионных фаз нарушается при $x > 0.12$, а область геликоидального ферромагнитного порядка сохраняется вплоть до концентраций $x_c = 0.20$. В интервале $0.10 < x < 0.20$ индуцированный флуктуациями переход в парамагнитное состояние сопровождается исчезновением локальной намагниченности и формированием парамагнитного состояния с динамическими спиновыми корреляциями.

Ключевые слова: геликоидальный ферромагнетизм, киральность, спиновые флуктуации, фазовые диаграммы, скермионы.

DOI: 10.21883/FTT.2020.05.49246.648

1. Введение

В основном состоянии спирального ферромагнетика MnSi имеют место квантовые флуктуации [1], скачкообразное подавление которых тепловыми флуктуациями с увеличением температуры приводит к переходу первого рода с возникновением промежуточной области геликоидального ближнего порядка, характеризуемая „спиральным“ закручиванием спинов в пределах корреляционных радиусов (флуктуации спиновой спирали) [2]. Во внешнем магнитном поле возникает эффект обменного усиления, приводящий к скачкообразному повороту волнового вектора геликоидальной сверхструктуры относительного поля, и к возникновению скоррелированных по фазе проекции неоднородной намагниченности на все три направления осей координат, соответствующие скирмионным решениям [1]. Было показано, что при рассматриваемом переходе происходит скачкообразное уменьшение локальной намагниченности, которое сопровождается возникновением провала на температурных и полевых зависимостях магнитной восприимчивости, связанного со сменой знака параметра мода-мода. Причиной изменения межмодового взаимодействия является подавление нулевых спиновых флуктуаций тепловыми.

В геликоидальных ферромагнетиках на основе твердых растворов $Fe_xMn_{1-x}Si$ [3] наблюдается сложная картина концентрационных магнитных переходов. С увеличением концентрации атомов железа по сравнению с концентрацией атомов марганца происходит уменьшение температуры Кюри и области температур существования скирмионной фазы [4]. После исчезновения скирмионной фазы конический геликоидальный дальний порядок сохраняется в некотором интервале концентраций. В то же время для слабых полей, при которых скирмионные фазы не наблюдаются, после исчезновение дальнего порядка в некотором интервале концентраций сохраняется геликоидальный ближний порядок (флуктуации спирали) [5].

Анализ электронной структуры в рамках LSDA + U + SO-расчетов с использованием приближения виртуального кристалла показывает, что при изменении концентрации x уровень Ферми остается в пределах локального минимума DOS [6]. Однако такой анализ возможен только в случае, когда флуктуациями локальной намагниченности на узлах, связанными с различием магнитных моментов атомов железа и марганца, можно пренебречь. Концентрационные флуктуации локальной намагниченности, которые должны усиливаться внешними магнитными полями, можно оценивать с использованием уравнения магнитного состояния. При этом требуются затравочные LDA + U + SO-расчеты DOS в приближении виртуального кристалла.

В настоящей работе на основе результатов LDA + U + SO-расчетов DOS и уравнений магнитного состояния исследуются эффекты концентрационных магнитных флуктуаций на $h-T$-диаграммах фаз дальнего и ближнего магнитного порядка в $\mathrm{Fe}_x\mathrm{Mn}_{1-x}\mathrm{Si}$. При этом получено, что при концентрационном переходе сначала происходит исчезновение скирмионов, а после этого геликоидального дальнего порядка.

2. Модель

Согласно *ab initio* расчетам электронной структуры сплавов $\mathrm{Fe}_x\mathrm{Mn}_{1-x}\mathrm{Si}$, уровень Ферми находится в нижней энергетической зоне, сформированной преимущественно t_{2g}-состояниями, в которой орбитальным вырождением и гундовском взаимодействием пренебречь нельзя. При этом в гамильтониане модели Хаббарда будем различать параметры межэлектронных взаимодействий на узлах заполненных атомами железа и марганца, а для учета возникающих флуктуаций спиновой и зарядовой плотности железа и марганца на узлах введем операторы проектирования $p_{\boldsymbol{\nu}}$, которые принимают значения 0, на узле занятом железом, и 1, на узле занятом марганцем:

$$H = H_0 + \delta H_U, \tag{1}$$

Здесь

$$H_0 = \sum_{\mathbf{k},\sigma,m} \varepsilon_{\mathbf{k}}^{(\mathrm{LDA})} a^{+}_{\mathbf{k},\sigma,m} a_{\mathbf{k},\sigma,m}$$

— гамильтониан зонного движения сильно коррелированных d-электронов в t_{2g}-орбитальном состоянии, $\mathbf{k}$ — вектор квазиимпульса, $\sigma(=\pm 1)$ — спиновый индекс, $\varepsilon_{\mathbf{k}}^{(\mathrm{LDA})}$ — электронный спектр d-электронов в t_{2g}-орбитальном состоянии, рассчитанный в LDA + U + SO-приближении и приближении виртуального кристалла, и отсчитываемый от значения энергии химического потенциала электронной системы.

$$\begin{aligned}
\delta H_U = {} & 4^{-1} \sum_{\nu} \Big[(U - J/2)|\delta n_\nu|^2 - (U + J) \sum_m |\delta n_{\nu,m}|^2 \Big] \\
& + 2^{-1} \sum_{\nu} (x \delta p_\nu) \Big[(\Delta U - \Delta J/2) n^{(0)} \delta n_\nu \\
& - \sum_m (\Delta U + \Delta J) n_m^{(0)} \delta n_{\nu,m} \Big] \\
& - \sum_{\nu} \Big[(U_1 - J_1)|p_\nu S_\nu^{(z)}|^2 + J_1 \sum_m |p_\nu S_{\nu,m}^{(z)}|^2 \Big] \\
& + \sum_{\nu} \Big[(U_2 - J_2)|(1 - p_\nu) S_\nu^{(z)}|^2 + J_2 \sum_m |(1 - p_\nu) S_{\nu,m}^{(z)}|^2 \Big],
\end{aligned} \tag{2}$$

$a^{+}_{\mathbf{k},m,\sigma}(a_{\mathbf{k},m,\sigma})$ — операторы рождения (уничтожения) в состоянии с квазиимпульсом $\mathbf{k}$ и магнитным и спиновым квантовыми числами m и σ, U_1, U_2 и J_1, J_2 — параметры хаббардовского и гундовского взаимодействий на узлах занятых Fe или Mn соответственно, $\delta n_\nu = \sum_m \delta n_{\nu,m}$, $\delta n_{\nu,m} = \sum_\sigma n_{\nu,m,\sigma} - \delta_{q,0} N^{(0)}_{0,m}$, $n_{\nu,m,\sigma} = a^{+}_{\mathbf{k},m,\sigma} a_{\mathbf{k},m,\sigma}$, $\mathbf{S}_\nu = \sum_m \mathbf{S}_{\nu,m}$, $\mathbf{S}_{\nu,m} = \sum_{\sigma,\sigma'} \boldsymbol{\sigma}_{\sigma,\sigma'} a_{\nu,\sigma',m}$, а $n_m^{(0)}$ — среднее значение оператора зарядовой плотности электронов с проекцией орбитального момента, равной m на узле в LDA + U + SO-приближении, $x(= N_0^{-1} \sum_{\boldsymbol{\nu}} p_{\boldsymbol{\nu}})$ — доля атомов Fe, $\delta p_{\boldsymbol{\nu}}(= p_{\boldsymbol{\nu}} - x)$ — концентрационные флуктуации заполнения узлов атомами разного сорта, N_0 — число узлов кристаллической решетки, занятых атомами переходных металлов (Fe или Mn), $U = xU_1 + (1-x)U_2$, $J = xJ_1 + (1-x)J_2$, $\Delta U = U_1 - U_2$, $\Delta J = J_1 - J_2$.

Гамильтониан взаимодействия Дзялошинского–Мория (DM) вследствие релятивистской малости межузельного DM-взаимодействия запишем в приближении среднего поля и виртуального кристалла, пренебрегая концентрационными флуктуациями

$$H_{\mathrm{DM}} \approx 2 \sum_{\mathbf{q},m} (\mathbf{h}^{(D)}_{-\mathbf{q},m} \mathbf{S}_{\mathbf{q},m} - \mathbf{d}_{\mathbf{q}} [\mathbf{M}_{\mathbf{q},m} \times \mathbf{M}_{-\mathbf{q},m}]),$$

где $\mathbf{h}^{(D)}_{\mathbf{q},m} = [\mathbf{d}_{\mathbf{q}} \times \mathbf{M}_{-\mathbf{q},m}]$, $\mathbf{d}_{\mathbf{q}} = d\mathbf{q}$, $d = xd_1 + (1-x)d_2$, d_1 и d_2 — параметры DM-взаимодействия между электронами атомов Fe и Mn, лежащих в одной плоскости (см. [7]).

3. Статистическая сумма

Расчет статистической суммы киральной электронной системы с гамильтонианом (2) выполним методом аналогичным описанному в [1]. Для этого введем единичный по модулю вектор $\mathbf{e}_{\nu,m}$, направленный вдоль оси квантования оператора спина электрона на узле $\boldsymbol{\nu}$ в состоянии с проекцией орбитального момента равной m, $-\mathbf{S}_{\nu,m} = S^{(z)}_{\nu,m} \mathbf{e}_{\nu,m}$. Выполняя усреднение выражения для статистической суммы по всем возможным направлениям векторов $\mathbf{e}_{\nu,m}$ и пренебрегая флуктуациями электронных чисел заполнения каждого орбитального состояния на узле — $\delta n_{\nu,m}$, поскольку эти флуктуации ведут к большим и маловероятным флуктуациям энергий электронов, имеем

$$\begin{aligned}
Z/Z_0 = \int_0^{4\pi} (d\Omega) \Big\langle T_\tau \exp T^{-1} \sum_\nu \Big\{ & \sum_m \big|(U_1 - U_2)^{1/2} p_\nu \mathbf{e}_{\nu,m} \mathbf{S}_{\nu,m}\big|^2 \\
& - \Big| \sum_m J_1^{1/2} p_\nu \mathbf{e}_{\nu,m} \mathbf{S}_{\nu,m} \Big|^2 \\
& + \sum_m \big|(U_2 - U_1)^{1/2} (1 - p_\nu) \mathbf{e}_{\nu,m} \mathbf{S}_{\nu,m}\big|^2 \\
& - \Big| \sum_m J_2^{1/2} (1 - p_\nu) \mathbf{e}_{\nu,m} \mathbf{S}_{\nu,m} \Big|^2 \Big\} \Big\rangle_0,
\end{aligned} \tag{3}$$

где $\nu = (\boldsymbol{\nu}, \tau)$, $(d\Omega) = \Pi_{\nu,m} d\Omega_{\nu,m}$, $d\Omega_{\nu,m}$ — элемент телесного угла направлений единичного вектора $\mathbf{e}_{\nu,m}$.

Далее, сведем многочастичные взаимодействия в (3) (которые соответствуют квадратичным слагаемым по оператору спиновой плотности), к взаимодействию электронов с флуктуирующими обменными полями (ξ) [8]

$$Z = \int\limits_{-\infty}^{\infty} (d\xi) \exp(-\Phi(\xi)/T)$$

$$\times \exp\Big\{-a\Big|\sum_{q,m} \xi_{q,m}\Big|^2 - \sum_{q,m} |\xi_{q,m} - \mathbf{h}_{q,m}^{(D)}/c|^2\Big\}, \quad (4)$$

где $a = JU(U-J)^{-1}(U+5J)^{-1}$,

$$\Phi(\xi) = -T \ln \mathrm{Sp} T_\tau \exp(-H_{\mathrm{eff}}(\xi)/T) \quad (5)$$

— функционал свободной энергии электронов, движущихся в случайных обменно-концентрационных (ξ) полях,

$$H_{\mathrm{eff}} = \sum_{\mathbf{k},m,\sigma} \varepsilon_{\mathbf{k},m}^{(\mathrm{LDA})} a_{k,m,\sigma}^{+} a_{k,m,\sigma} + c \sum_{\nu,m} \xi_{\nu,m} \mathbf{S}_{\nu,m}$$

$$- \sum_{m} \mathbf{d}_{\mathbf{q}_0} [\mathbf{M}_{\mathbf{q}_0,m} \times \mathbf{M}_{-\mathbf{q}_0,m}] \quad (6)$$

— эффективный гамильтониан, описывающий это движение,

$$(d\xi) = \Big[(U-J)I^{-1} \prod_{m} d\xi_{\mathbf{0},m}\Big]\Big[\prod_{q\neq\mathbf{q},m,j} \prod_{m} d\xi_{q,m}^{(j)}\Big],$$

j — индекс, нумерующий реальную и мнимую части переменных $\xi_{q,m}$: $\xi_{q,m,\gamma} = |\xi_{q,m,\gamma}| e^{i\varphi_\gamma}$. Отметим, что флуктуирующие в пространстве и времени обменно-концентрационные ξ-поля включают в себя стохастические переменные интегрирования (ξ) и флуктуации заполнения узлов атомами разного сорта (Mn или Fe). При этом, из-за малости различия параметров хаббардовского и гундовского взаимодействия в сравнении с их значениями для железа и марганца ($\Delta U = U_1 - U_2 \ll U$, $\Delta J - J_1 - J_2 \ll J$), получаем

$$\xi_{\boldsymbol{\nu},m} = I^{-1/2}[I + 2(\Delta U - 4\Delta J)\delta p_{\boldsymbol{\nu}}]^{1/2} \xi_{\boldsymbol{\nu},m}$$

$$\approx I^{-1}[I + (\Delta U - 4\Delta J)\delta p_{\boldsymbol{\nu}}]^{1/2} \xi_{\boldsymbol{\nu},m},$$

$$C = (IT)^{1/2},$$

где $q = (\mathbf{q}, \omega_{2n})$, ω_{2n} — мацубаровская бозе-частота, $I = U + 4J$.

Вычисление выражения для функционала свободной энергии $\Phi(\xi)$, рассматриваемой задачи о фазовых переходах в киральных магнетиках с аномально большими периодами магнитной спиновой структуры, выполним на основе приближения однородных локальных полей [9]. Разлагая (5) по степеням H_{eff} и проводя квантово-статистическое усреднение, получаем ряд по степеням внутренних обменных полей действующих на электроны — $\xi_{-\mathbf{q},m}$. Вершинные части ряда выражаются через функции Грина с одноэлектронным спектром, рассчитанном в приближениях LDA + U + SO и виртуального кристалла —

$$\phi_m^{(l)}(q_1 \dots q_l) = T \sum_{k} G_{k+q_1,m}^{(0)} G_{k+q_1+q_2 m}^{(0)} \cdot \cdot G_{k+\Sigma_1^l q_i,m}^{(0)} \delta_{\Sigma_1^l q_i;0}.$$

В приближении однородных локальных полей они аппроксимируются выражением

$$\phi_m^{(l)}(q_1 \dots q_l) = \delta_{\Sigma_1^l q_i;0} \phi_m^{(l)}(0, \dots, 0) \prod_{i}^{l} \theta(q_i - q_C).$$

Однако слагаемые, соответствующие вершинным частям второго порядка, определяют $(\mathbf{q}, \omega)$-зависимость обратного значения фактора обменного усиления D, которая аномальна в окрестности фазового перехода. Поэтому во втором порядке пренебрегать пространственно-временной неоднородностью нельзя.

Вычисления функциональных интегралов выполним в приближении метода перевала по переменным: $\boldsymbol{\xi}_{\mathbf{0},m}$, $\boldsymbol{\xi}_{\pm\mathbf{q},m}$, $r_{q,m}^{(\gamma)} (= |\boldsymbol{\xi}_{q,m}^{(\gamma)}|)$ и $\phi_{q,m}^{(\gamma)} (= \arg \boldsymbol{\xi}_{q,m}^{(\gamma)})$, перевальные значения которых определяются условиями максимума подынтегрального выражения в (4).

Анализ выражения для статистической суммы (4) показывает, что имеется связь статическими ($q = \mathbf{q}$, $\omega_{2m} = 0$) перевальных значений ξ-полей с намагниченностями

$$I\mathbf{M}_{0,m} = [(U_2 + 4J_2)(1-x) + (U_1 + 4J_1)x]\langle \mathbf{S}_{0,m}\rangle$$

$$= (c\boldsymbol{\xi}_{0,m} - h),$$

$$I\mathbf{M}_{\mathbf{q},m} = [(U_2 + 4J_2)(1-x) + (U_1 + 4J_1)x]\langle \mathbf{S}_{\mathbf{q},m}\rangle$$

$$= (c\boldsymbol{\xi}_{\mathbf{q},m} - \mathbf{h}_{\mathbf{q},m}) \quad (7)$$

на векторах $\mathbf{q} = 0$ и $\mathbf{q} \neq 0$ соответственно, а также со спиновой мацубаровской функцией Грин — $\langle T, \mathbf{S}_{q,m} \mathbf{S}_{-q,m}\rangle = \sum_\gamma (c/I)^2 (2r_{q,m}^{(\gamma)2} - 1)$.

4. Уравнение магнитного состояния

Согласно LDA + U + SO-расчетам плотности состояний (DOS), в рассматриваемом случае $Fe_xMn_{1-x}Si$ имеет место вырождение по магнитному квантовому числу m электронных состояний частично заполненной t_{2g}-зоны. В соответствие с этим результатом, все последующие расчеты выполнены для одной орбитали (а индекс m опущен).

Уравнения магнитного состояния для каждой частично заполненной орбитали, получаемые из условий метода перевала, имеют вид

$$M_{\mathbf{q}}^{(\gamma)}(D^{-1} - a + X(\mathbf{q}, 0)) + \kappa M_{-\mathbf{q}}^{(\gamma)} (M_{\mathbf{q}})^2$$

$$= (1 - D^{-1} + a - X(\mathbf{q}, 0)) h_{\mathbf{q},\gamma}^{(D)}/I, \quad (8)$$

$$\mathbf{M}_0(D^{-1} - a) = (1 - D^{-1} + a)\mathbf{h}/I, \quad (9)$$

$$\langle T_\tau \mathbf{S}_{q,m} \mathbf{S}_{-q,m}\rangle = \sum_{\gamma} \big[(D^{-1} - a + X_q)^{-1}\big]. \quad (10)$$

Здесь $\mathbf{M}_{\mathbf{q}} (= \mathbf{M}_{-\mathbf{q}}^{*})$ и $\mathbf{M}_{\mathbf{0}}$ — вектора неоднородной и однородной намагниченности одной из частично заполненных орбиталей, $D^{-1} = 1 - U\chi_\perp + \kappa(\langle m^2\rangle)/3$ — фактор обменного усиления однородной магнитной восприимчивости, $\kappa = (I/M^2)[\chi_\perp - \chi_\|]$ — коэффициент межмодовой связи, $\chi_\perp = (2IM)^{-1}\delta n$ и $\chi_\| = 2\big(\sum_{\alpha=\pm1} g_\alpha(\mu)\big)^{-1}\Pi_{\alpha=\pm1}g_\alpha(\mu)$, поперечная и продольная восприимчивости, соответственно, $\Delta n = \sum_{\alpha=\pm1}\alpha \times \int_{-\infty}^{\infty} g_\alpha(\varepsilon) f(\varepsilon-\mu)d\varepsilon$, m — среднеквадратический магнитный момент на узле, $\langle m^2\rangle^{1/2}$ — амплитуда флуктуаций спиновой плотности на узле.

В условиях вырождения электронных состояний частично заполненной t_{2g}-зоны квадрат среднеквадратический магнитный момент на узле и на каждой частично заполненной орбитали определяется выражением $M = \big(\sum_{\mathbf{q}} |\mathbf{M_q}|^2 + \langle m^2\rangle\big)^{1/2}$, в котором

$$\langle m^2\rangle = \langle m^2\rangle_0 + \langle m^2\rangle_T + \langle m^2\rangle_{\text{con}}, \tag{11}$$

где

$$\langle m^2\rangle_0 = (2\pi)^{-1}\sum_{\mathbf{q}}\int_0^\infty \mathrm{Im}\langle T_\tau \mathbf{S}_m(\mathbf{q},\omega)\mathbf{S}_m^*(\mathbf{q},\omega)\rangle_{+i0}d\omega \tag{12a}$$

— квадрат амплитуды нулевых флуктуаций спиновой плотности,

$$\langle m^2\rangle_T = \pi^{-1}\sum_{\mathbf{q}}\int_0^\infty f_B(\omega/T)\mathrm{Im}\langle T_\tau \mathbf{S}_m(\mathbf{q},\omega)\mathbf{S}_m^*(\mathbf{q},\omega)\rangle_{+i0}d\omega \tag{12b}$$

— квадрат амплитуды тепловых флуктуаций спиновой плотности,

$$\langle m^2\rangle_{\text{con}} = I^{-2}(\Delta U + 4\Delta J)^2 N_0^{-1}\sum_{\boldsymbol{\nu}} \delta p_{\boldsymbol{\nu}}^2 \mathbf{M}_{\boldsymbol{\nu}}^2$$
$$= I^{-2}(\Delta U + 4\Delta J)^2 x(1-x)\big(\mathbf{M}_0^2 + \sum_{\mathbf{q}\neq 0}|\mathbf{M_q}|^2\big) \tag{12c}$$

— квадрат амплитуды концентрационных флуктуаций спиновой плотности на узле в приближении хаотического сплава, $f_B(\omega/T)$ — функция Бозе.

Выполняя дифференцирование статистической суммы по μ, получим уравнение условия электронейтральности, определяющее заполнение t_{2g}-зоны:

$$n = 2N_L \int_{-\infty}^{\mu_{\mathrm{Fe}_x\mathrm{Mn}_{1-x}\mathrm{Si}}} f(\varepsilon-\mu)g(\varepsilon)d\varepsilon. \tag{13}$$

Здесь

$$g(\varepsilon) = 2^{-1}\sum_{\alpha=\pm1} g_\alpha(\varepsilon),$$

$$g_\alpha(\varepsilon) = 2^{-1}\sum_\sigma (1+\alpha\sigma M_0/M)g^{(\mathrm{LDA})}(\varepsilon+\alpha UM),$$

$f(\varepsilon-\mu)$ — функция Ферми–Дирака, $g^{(\mathrm{LDA})}(\varepsilon)$ — плотность состояний одной из частично заполненных орбиталей, рассчитанная в LDA + U + SO-методе и в приближении виртуального кристалла.

Далее будем использовать известную аппроксимацию (см., например, [10]) функции Линдхарда $(\chi^{(0)}(\mathbf{q},\omega))$:

$$\chi^{(0)}(\mathbf{q},\omega) = \chi^{(0)}(0,0) + \chi^{(0)}(0,0)\big(A(\mathbf{q}/k_F)^2 - iBI^{-1}\omega|\mathbf{q}/k_F|^{-1}\theta(T_0|\mathbf{q}/k_F| - \omega)\big)\theta(2k_F - |\mathbf{q}|),$$

где $T_0 = V_F k_F$, V_F — скорость на поверхности Ферми, k_F — модуль вектора Ферми, $\theta(x)$ — θ-функция, коэффициенты A и B пропорциональны плотности электронных состояний на уровне Ферми [2]. Тогда решение уравнения (8) при $\kappa > 0$, имеет вид

$$M_{\mathbf{q_0}}^{(x)} = M_s,\ M_{\mathbf{q_0}}^{(p)} = -iM_S,\ M_{\mathbf{q_0}}^{(z)} = 0,\ M_{\mathbf{q_0}}^{(z)} = \chi h,$$

где

$$M_S(T,h) = (2\kappa)^{-1/2}\big((D^{-1} - a + X(\mathbf{q}_0,0))^2 - (dq_0/I)^2\big)^{1/2},$$

$X(\mathbf{q},\omega) = I(\chi^{(0)}(0,0) - \chi^{(0)}(\mathbf{q},\omega))$, χ — однородная продольная восприимчивость, а волновой вектор гелимагнитного упорядочения $\mathbf{q}_0$ направлен вдоль оси Oz, и его модуль определяется условием максимума для модуля вектора амплитуды неоднородной намагниченности

$$|\mathbf{q}_0| \approx d/2IA. \tag{14}$$

При $T_C < T < T_S$, когда $\kappa \le 0$ и $0 > D^{-1} - a \ge -3dq_0/2$, дальний гелимагнитный порядок и нулевые спиновые флуктуации отсутствуют, но существует ближний магнитный порядок с $M_S^2 \neq 0$. В этих условиях для значений внешнего однородного магнитного поля, определяемых неравенством

$$h(1+M_S) > dq_0 M_S/(4|\kappa|), \tag{15}$$

решения системы уравнений (8) и (9) приобретают вид

$$\langle S_{\boldsymbol{\nu}}^{(x)}\rangle = M_S\cos(\mathbf{q}_0'\boldsymbol{\nu}+\phi),\ \ \langle S_{\boldsymbol{\nu}}^{(y)}\rangle = M_S\sin(\mathbf{q}_0'\boldsymbol{\nu}+\phi),$$

$$\langle S_{\boldsymbol{\nu}}^{(z)}\rangle = |M_{\mathbf{q}_0'}^{(z)}|\cos(\mathbf{q}_0'\boldsymbol{\nu}+\phi) + \chi h, \tag{16a}$$

$$|M_{\mathbf{q}_0'}^{(z)}|^2 = (B/U)^2 - [dq_0M_S/(4U|\kappa|)]^2, \tag{16b}$$

где $B = IM_0^{(z)} + h$ — индукция однородного поля в веществе, выраженная в единицах $2\mu_\mathrm{B}$. В этом случае из условия минимума свободной энергии следует, что волновой вектор геликоидальной спирали вращается вокруг оси Oz: ${q'}_0^{(x)}/{q'}_0^{(z)} = -|M_{\mathbf{q}_0'}^{(z)}|\sin\phi/M_S$, ${q'}_0^{(y)}/{q'}_0^{(z)} = |M_{\mathbf{q}_0'}^{(z)}|\cos\phi/M_S$, $|\mathbf{q}_0'| = q_0$. Фаза ϕ, фигурирующая в (16a), не определена и принимает любые значения. Однако, при наличии ферромагнитных корреляций, значения фазы ϕ оказываются фиксированными в пределах радиуса корреляций: $R_C \sim \chi^{1/2}$.

Полученные решения описывают скирмионные состояния, которым соответствуют изменяющиеся на замкнутой траектории фазы Берри и амплитуды намагниченности. Изменение модуля намагниченности связано с нарушением условия квазигомеополярности, возникающего при повороте волнового вектора спиновой сверхструктуры.

Из условий ненулевого решения для z-составляющей неоднородной намагниченности ($|M^{(z)}_{\mathbf{q}_0}| > 0$) и термодинамической неустойчивости дальнего гелимагнитного порядка ($\kappa < 0$) можно определить температурно-полевую область существования скирмионов для разных значениях концентраций.

В противном случае при $h(1 + M_s) < dq_0 M_s/(4|\kappa|)$ и $\kappa < 0$, вместо скирмионов может возникнуть фаза ближнего порядка с флуктуациями спиновой спирали с волновым вектором $\mathbf{q}_0$, сонаправленным с вектором однородного внешнего поля, а z-составляющая неоднородной намагниченности отсутствует: $M^{(z)}_{\mathbf{q}_0} = 0$.

5. Численный анализ фазовых диаграмм

В настоящей работе проведен численный анализ концентрационных магнитных переходов и фазовых $h{-}T$-диаграмм на основе затравочных LDA + U + SO-расчетов электронной структуры в приближении виртуального кристалла. На рис. 1 представлена полученная DOS на которой согласно условию электронейтральности (13) уровень Ферми находится в области ее локального минимума. При $x = 0.12$ уровень Ферми в соответствии с (13) оказывается за пределами локального минимума.

При этом согласно (12a,b) и аппроксимации функции Линдхарда (см. выше), величины амплитуд нулевых и тепловых спиновых флуктуаций аппроксимируются

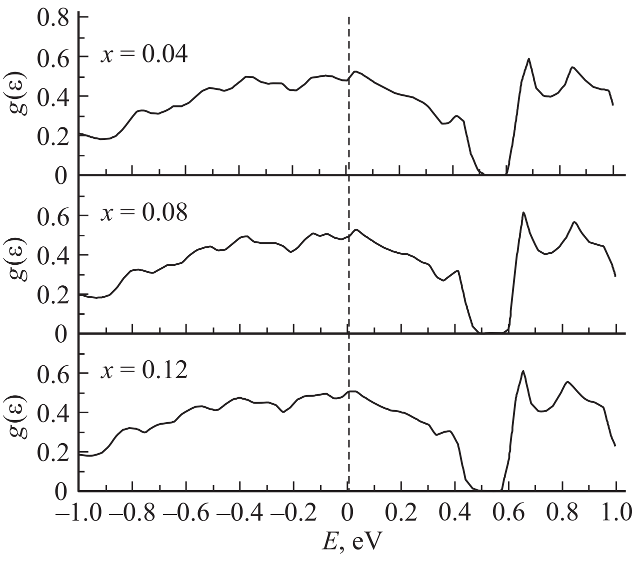

Рис. 1. Плотность электронных состояний $Fe_xMn_{1-x}Si$ при $U_1 = 3.673$ eV, $U_2 = 3.822$ eV [11]. Согласно расчету в пакете ELK [12] $J_1 = J_2 = 0.495$ eV.

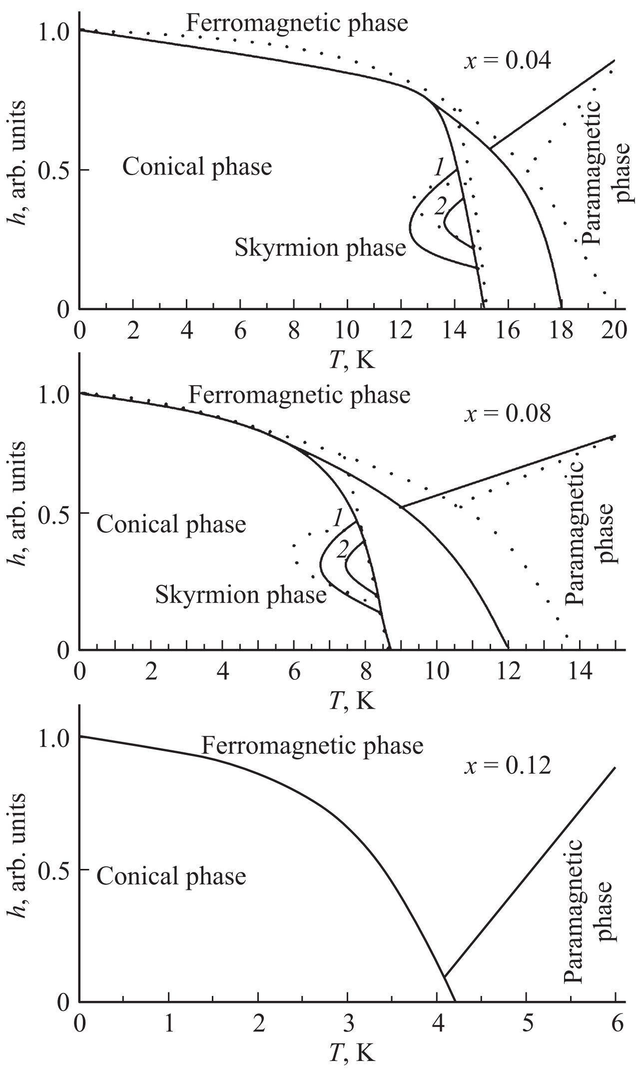

Рис. 2. Фазовые диаграммы $Fe_xMn_{1-x}Si$. Линия *1* соответствует скирмионной фазе, а линия *2* — той же фазе без учета концентрационных флуктуаций. Точки — экспериментальные данные [4].

выражениями

$$\langle m^2\rangle_0 \cong 3(4\pi^2 A^2 B)^{-1}[(D^{-1} - a)^2 - A^2], \tag{17a}$$

$$\langle m^2\rangle_T = (3/4)B(T/I)^2\{(D^{-1} - a)^2 + A/2\}^{-1}, \tag{17b}$$

а концентрационные флуктуации описываются формулой (12c).

В картине флуктуирующих обменных полей, вытекающей из преобразований Стратоновича–Хаббарда [13], имеет место перенормировка радиуса спиновых корреляций $R_C = \pi q_0^{-1}(d2\chi)^{1/2}$, в котором магнитная восприимчивость

$$\chi = 2I^{-1}\left[(D^{-1} + \kappa M_0^2 - a + \kappa\langle m^2\rangle_{\mathrm{con}}/3)^{-1} - 1\right]. \tag{18}$$

В соответствии с (8) и (9), однородная магнитная восприимчивость не расходится в точке фазового перехода в силу наличия кирального DM-взаимодействия и концентрационных флуктуаций.

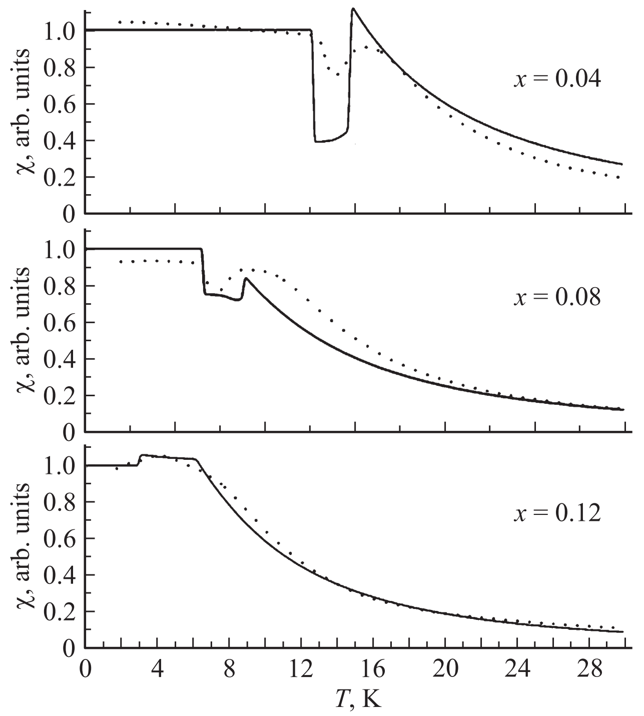

Рис. 3. Магнитная восприимчивость (18) для различных составов $Fe_xMn_{1-x}Si$. Точки — экспериментальные данные [4].

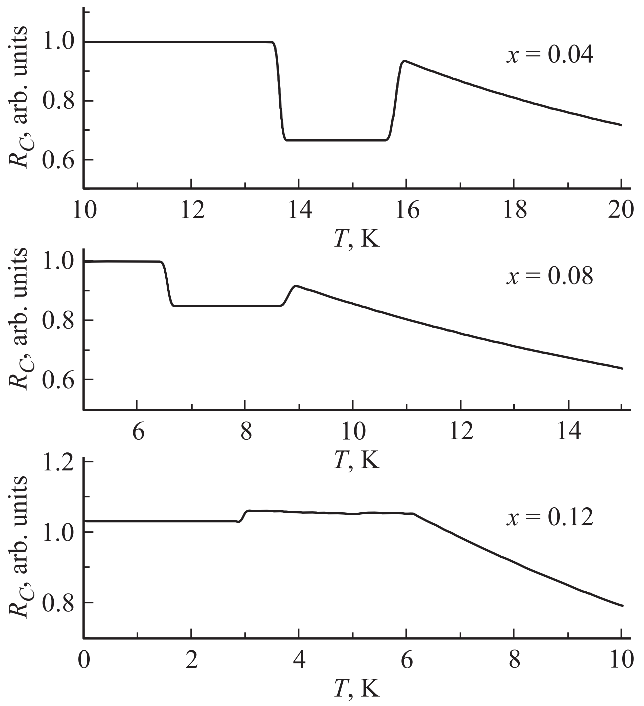

Рис. 4. Радиус корреляции для различных составов $Fe_xMn_{1-x}Si$.

Параметры электронной структуры и функции Линдхарда составляли $B = 3$, $A = 1/12$ и оценивались из анализа экспериментальных данных [4] о магнитной восприимчивости в модели DOS приведенной на рис. 1. На основе численного решения уравнений магнитного состояния (8), (9) выполнены расчеты $h{-}T$-диаграмм и проведено их сопоставление с экспериментальными диаграммами для различных составов $Fe_xMn_{1-x}Si$ [4] (рис. 2). На этих же рисунках приводятся скирмионные области, которые получились бы в отсутствии концентрационных флуктуаций ($\langle m^2\rangle_{\text{con}} = 0$). Показано уширение скирмионной области на $h{-}T$-диаграмме связанное с концентрационными флуктуациями, которые подавляют нулевые и усиливают тепловые спиновые флуктуации. Это приводит к возникновению неустойчивости ферромагнетизма (отрицательный знак параметра мода-мода) в более широком диапазоне температур и полей.

Численный анализ также указывает на резкое уменьшение однородной магнитной восприимчивости и радиусов ферромагнитных спиновых корреляций, в скирмионной фазе (рис. 3, 4). Согласно расчетам, возникающие изменения главным образом связаны со скачкообразными изменениями локальной намагниченности (возникновение составляющих намагниченности вдоль внешнего поля) возникающими в области скирмионных решений. Согласно (8), (9) для однородной намагниченности в этой области имеем выражение

$$\mathbf{M}_0 \approx 2I^{-1}\mathbf{h}/\left[X(\mathbf{q}_0, 0) + I|\kappa|(2M_S^2(T, h) + |M_{\mathbf{q}_0}^{(z)}|^2)/d|\mathbf{q}_0|\right].$$

При $x = 0.12$ скирмионные решения исчезают, $M_{\mathbf{q}_0}^{(z)} = 0$ и реализуется максимум однородной восприимчивости.

На $h{-}T$-диаграмме магнитных состояний за пределами скирмионной фазы имеются области, в которых вследствие изменения знака параметра мода-мода имеет место подавление нулевых флуктуаций, реализуется ферромагнитная неустойчивость. С увеличением концентрации получаем, что нулевые флуктуации становятся не существенным по сравнению с концентрационными, неустойчивость ферромагнитных решений и скирмионная фаза исчезают, а область геликоидального ферромагнетизма сохраняется ($x = 0.10$). В парамагнитной фазе имеются динамические спиновые флуктуации (17b), вследствие которых радиус ферромагнитных корреляций резко убывает с ростом температуры (рис. 4).

При $x = 0.20$ исчезает как конический геликоидальный ферромагнетизм, так и ферромагнитные спиновые корреляции.

6. Заключение

Проведенное исследование условий существования скирмионных фаз на $h{-}T$-диаграммах киральных ферромагнетиков $Fe_xMn_{1-x}Si$ с использованием LDA + U + SO-модели электронной структуры указывает на важную роль концентрационных флуктуации, усиление которых с изменением состава подавляет нулевые квантовые флуктуации и приводит к термодинамической устойчивости геликоидального ферромагнетизма вблизи основного состояния. В результате, увеличение концентрации Fe (x) в непрерывных твердых растворах моносилицидов марганца и железа ведет к исчезновению скирмионной фазы. Проведенные расчеты $h-T$-диаграмм спиновых состояний согласуются с имеющимися экспериментальными данными о заметном уширении области скирмионных состояний в твердых растворах $Fe_xMn_{1-x}Si$ по сравнению моносилицидом марганца [1].

Особенностью термодинамического фазового перехода, сопровождаемого возникновением скирмионных состояний, также является возникновение провала на температурной зависимости радиуса ферромагнитных спиновых корреляций. Такой эффект указывает на то, что при фазовом переходе в скирмионную область, возникает резкое уменьшение характерных размеров скирмионов по сравнению периодом спирали. Он связан с возрастанием неоднородной локальной намагниченности внутри скирмионной фазы. При переходе в парамагнитную фазу неоднородная намагниченность подавляется динамическими спиновыми флуктуациями, а радиус спиновых корреляций вновь резко возрастает. При дальнейшем увеличение температуры имеет место уменьшение радиуса спиновых корреляций, подавление ближнего порядка и эффектов спиновой киральности.

Хотя указание на возможность концентрационных фазовых переходов и вытекает из полученных уравнений магнитного состояния, их численный анализ в настоящей работе не проводился из-за отсутствия экспериментальных данных.

Финансирование работы

Результаты были получены в рамках государственного задания Министерства науки и высшего образования России № FEUZ-2020-0020.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

[1] A.A. Povzner, A.G. Volkov, T.M. Nuretdinov. Solid State Commun, **298**, 113640 (2019).
[2] A.A. Povzner, A.G. Volkov, T.A. Nogovitsyna. Physica B **536**, (2018).
[3] S.V. Grigoriev, V.A. Dyadkin, E.V. Moskvin, D. Lamago, Th. Wolf, H. Eckerlebe, S.V. Maleyev. Phys. Rev. B **79**, 144417 (2009).
[4] A. Bauer, A. Neubauer, C. Franz, W. Münzer, M. Garst, C. Pfleiderer. Phys. Rev. B **82**, 064404 (2010).
[5] S.V. Demishev, I.I. Lobanova, A.V. Bogach, V.V. Glushkov, V.Yu. Ivanov, T.V. Ischenko, N.A. Samarin, N.E. Sluchanko, S. Gabani, E. Čižmár, K. Flachbart, N.M. Chubova, V.A. Dyadkin, S.V. Grigoriev. Письма в ЖЭТФ **103**, 365 (2016).
[6] А.А. Повзнер, Т.М. Нуретдинов, А.Г. Волков. ФТТ **61**, 630 (2019).
[7] W. Jiangab, G. Chenc, K. Liuc, J. Zangd, S.G.E. Velthuise, A. Hoffmanne. Phys. Rep. **704**, 1 (2019).
[8] T. Moriya. Phys. Rev. **120**, 91 (1960).
[9] J.A. Hertz, M.A. Klenin. Phys. Rev. B **10**, 1084 (1974).
[10] И.Е. Дзялошинский, П.С. Кондратенко. ЖЭТФ **70**, 1987 (1976).
[11] D.P. Rai, Sandeep, A. Shankar, A.P. Sakhya, T.P. Sinha, R. Khenata, M.P. Ghimire, R.K. Thapa. Mater. Res. Express **3**, 075022 (2016).
[12] ELK: A software package that implements the full-potential method FP-LAPW+l.o., http://elk.sourceforge.net.
[13] J. Hubbard. Phys. Rev. Lett. **3**, 77 (1959).

Редактор Ю.Э. Китаев