

# ФАЗОВАЯ ДИАГРАММА ГЕЛИКОИДАЛЬНОЙ СТРУКТУРЫ ДВУХПОДСИСТЕМНОГО ФРУСТРИРОВАННОГО АНТИФЕРРОМАГНЕТИКА

*С. Н. Мартынов*\*

*Институт физики им. Л. В. Киренского Сибирского отделения Российской академии наук  
660036, Красноярск, Россия*

Поступила в редакцию 20 мая 2008 г.

Для двухподсистемного антиферромагнетика с фрустрированным межподсистемным изотропным обменом показано существование в разложении термодинамического потенциала первых производных по векторам антиферромагнетизма подсистем — инварианта Лифшица. В приближении среднего поля линеаризацией вариационных уравнений для минимума свободной энергии выведено уравнение для границы температура–поле геликоидальной фазы двухподсистемного фрустрированного антиферромагнетика. Получены выражения для критического поля при  $T = 0$ , угла скоса моментов антиферромагнитных подрешеток и температуры спонтанного возникновения спирального упорядочения в отсутствие внешнего поля. Показано существование второй, более высокой, температуры появления геликоидальной магнитной структуры, индуцированной магнитным полем, с немонотонной зависимостью волнового вектора геликоида от внешнего поля. Численной минимизацией свободной энергии получены фазовая граница геликоидального состояния и температурная зависимость ориентации моментов магнитной подсистемы со слабым обменным взаимодействием. Показано, что переход в соизмеримую фазу является переходом первого рода с малым скачком намагниченности. Проведен сравнительный анализ поведения моделей с различным пространственным смещением ионов подсистем вдоль направления вектора геликоида. Предложен критерий выбора направления вектора несоизмеримой магнитной структуры.

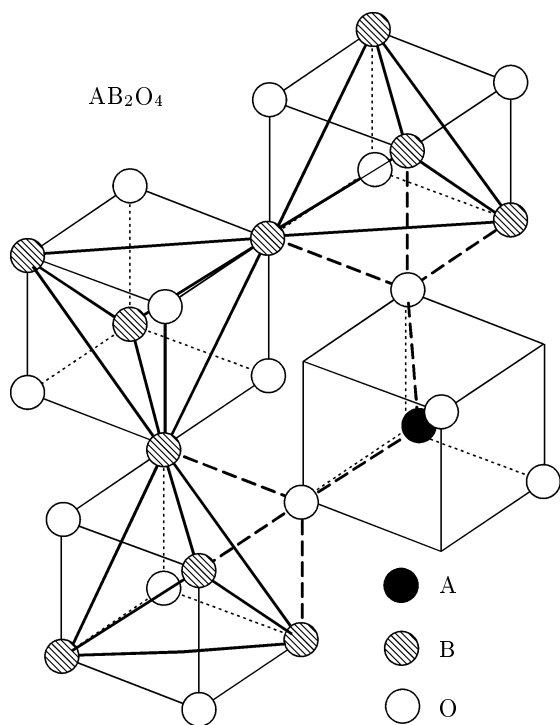
PACS: 75.10.-b, 75.10.Jm, 75.50.Ee, 75.50.-y

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Одной из причин появления магнитной структуры с периодом, несоизмеримым с периодом кристаллической решетки, — несоизмеримой магнитной структуры (НМС) — является конкуренция магнитных взаимодействий, различно ориентирующих моменты относительно друг друга. Примером таких взаимодействий являются антиферромагнитные обмены с разноудаленными магнитными соседями (модель ANNNI) [1]. Взаимная ориентация моментов зависит от соотношения обменов и, при выполнении порогового условия для этого соотношения, в простейшем случае формируется спиральное (геликоидальное) упорядочение. Предельным случаем конкуренции обменных взаимодействий является фрустрация — сочетание конкурирующих обме-

нов, при котором существует вырождение по энергии различных состояний с коллинеарными ориентациями магнитных моментов. Примером такой системы является треугольная кристаллическая решетка с антиферромагнитным обменом между ближайшими соседями. Снятие этого вырождения также происходит с образованием неколлинеарной магнитной структуры, и выбор одной из нескольких конфигураций магнитных моментов с минимальной энергией (основного состояния) описывает дополнительный параметр порядка — хиральность [2–4]. При рассмотрении магнетиков, образованных моментами различных ионов или ионов в различном кристаллическом окружении — многоподсистемных магнетиков, — число возможных магнитных структур существенно возрастает. Это является следствием увеличения числа допустимых симметрией взаимодействий и появления новых — межподсистемных. Возможность при этом построить коллинеарное основ-

\*E-mail: UnonaV@iph.krasn.ru



**Рис. 1.** Фрагмент кристаллической структуры кубической шпинели: сплошные линии — обмен внутри подсистемы В, штриховые — пути фрустрированного межподсистемного обмена

ное состояние является скорее исключением. Как правило, возникающее магнитное упорядочение становится результатом конкуренции многих взаимодействий и имеет сложный неколлинеарный характер.

Первое теоретическое обоснование нестабильности коллинеарной магнитной структуры относительно малых искажений спирального типа в двухподсистемном магнетике было сделано Капланом с соавторами [5–9] практически одновременно с первыми экспериментальными работами, показавшими существование НМС в металлах редкоземельной и переходной групп. В подробно исследованной ими структуре кубической шпинели  $AB_2O_4$ , где А и В — магнитные ионы в тетра- и октаэдрическом окружении, возрастание внутриподсистемного антиферромагнитного обмена между В-ионами до величины близкой к межподсистемному обмену приводило к основному состоянию типа ферромагнитной спирали. Дальнейшее увеличение относительной величины В-обмена делало нестабильным и это состояние, приводя к более сложной НМС, вид которой определить не удалось. Подробное описание результатов анализа магнитных структур шпинелей можно най-

ти в книгах [10, 11]. Причиной такого сложного характера упорядочения является обмен в подсистеме В-ионов (В-подсистеме). Магнитные ионы в ней в отсутствие тетраэдрических искажений формируют элементарные блоки из правильных тетраэдров (рис. 1). Основное состояние такого отдельно взятого блока вырождено — существуют топологически неэквивалентные взаимные ориентации моментов в вершинах тетраэдров с одинаковой энергией обменных взаимодействий. В кубической шпинели с диамагнитными ионами в тетраэдрической позиции (А-позиции) эти блоки формируют антиферромагнитную пироклорную решетку [12–14], у которой многократное вырождение основного состояния приводит к магнитному поведению типа спиновой жидкости. Дальний магнитный порядок в такой системе устанавливается только в результате дополнительного искажения решетки или существования дополнительных анизотропных взаимодействий (например, диполь-дипольного) при температуре много меньшей температуры Кюри–Вейса [15, 16]. Геометрическая фрустрация обменов внутри подсистемы В формирует необходимые условия для появления сложной (двукратно модулированной [8]) НМС, что и происходит при увеличении роли этого обмена. С другой стороны, главной причиной возникновения геликоидальной НМС при доминирующем межподсистемном обмене является геометрическая фрустрация по межподсистемным обменным путям.

## 2. МОДЕЛЬ

Целью настоящей работы является изучение влияния геометрии межподсистемного фрустрированного обмена на условия появления НМС и выбор направления вектора такой структуры. Отдельный интерес представляет также изучение влияния температуры и магнитного поля на НМС. Различие в эффективных полях, действующих на моменты разных подсистем, ведет к разной зависимости подсистемных намагниченностей от поля и температуры и, как следствие, к более сложной, по сравнению с однородным магнетиком, фазовой диаграмме. Особого внимания заслуживает фазовая граница соизмеримого и несоизмеримого состояний. Так анализ полевой и температурной зависимостей вектора НМС и суммарной намагниченности в окрестности этой границы для метабората меди  $CuB_2O_4$  позволил сделать вывод о фрустрационном механизме формирования геликоида в этом двухподсистемном антиферромагнетике [17]. В  $CuB_2O_4$  все обменные взаимодействия

осуществляются через бор-кислородные тетраэдры, что ведет к большой протяженности и разветвленности обменных связей. В результате, помимо существования обменов между первыми и вторыми магнитными соседями в одной из подсистем, существуют три различных пути косвенного межподсистемного обмена. Это затрудняет выяснение влияния геометрии обменного взаимодействия на формирование НМС. Дальнейший анализ проведем в рамках максимально простого гамильтониана (1), содержащего по одному виду обменного взаимодействия внутри каждой подсистемы с константами  $J^A$  и  $J^B$  и один вид межподсистемного обменного взаимодействия с константой  $J^{AB}$ :

$$H = \mathbf{h} \left( \sum_i \mathbf{S}_i^A + \sum_j \mathbf{S}_j^B \right) + J^A \sum_{ii'} \mathbf{S}_i^A \cdot \mathbf{S}_{i'}^A + J^B \sum_{jj'} \mathbf{S}_j^B \cdot \mathbf{S}_{j'}^B + J^{AB} \sum_{ij} \mathbf{S}_i^A \cdot \mathbf{S}_j^B, \quad (1)$$

где  $\mathbf{h}$  — внешнее магнитное поле,  $\mathbf{S}_i^A$  и  $\mathbf{S}_i^B$  — спины подсистем А и В. Необходимым условием существования НМС является пространственное смещение координат ионов разных подсистем относительно друг друга в направлении вектора распространения спирали  $\mathbf{k}$ . Для выяснения влияния этого фактора проведем сравнение двух моделей с разным смещением  $\Delta c = (2l - 1)c/2$ ,  $l = 1, 2$ , где  $c$  — расстояние между ионами внутри подсистемы А с самым сильным обменом.

### 3. ОСНОВНОЕ СОСТОЯНИЕ

Пороговые условия для величин обменных взаимодействий, при которых возможно появление спиральной структуры для различных межподсистемных смещений в нулевом внешнем поле  $h = 0$ , нетрудно оценить из сравнения обменных энергий спиральной структуры и ферримагнитной структуры Яфета–Киттеля (рис. 2). Аналогичная процедура для  $l = 1$  и  $J^A = J^B$  применялась в работе [18], однако в силу последнего равенства энергия спиральной структуры сравнивалась с энергией антиферромагнитно-упорядоченных подсистем.

Минимизируя обменную энергию пары спинов разных подсистем для каждой фазы,

$$E_F^{1+1} = J^A S_A^2 \cos 2\gamma + J^B S_B^2 + 2J^{AB} S_A S_B \cos \gamma,$$

$$E_S^{1+1} = J^A S_A^2 \cos 2\gamma' + J^B S_B^2 \cos 2\gamma' + 2J^{AB} S_A S_B \cos(2l - 1)\gamma',$$

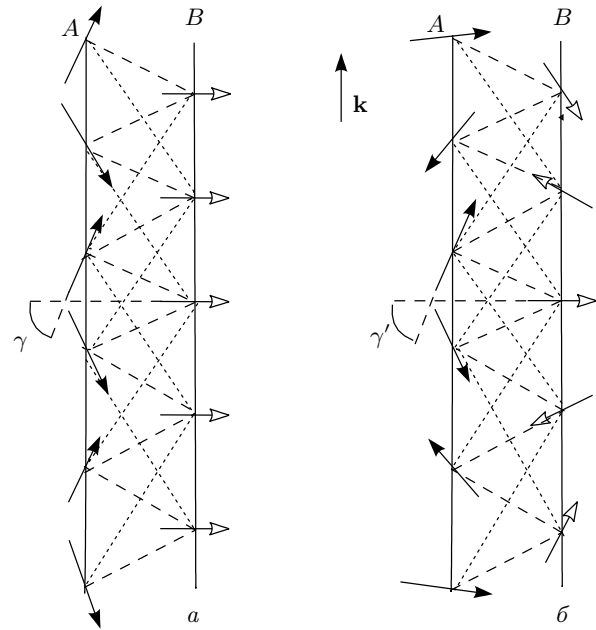


Рис. 2. Ферримагнитная структура Яфета–Киттеля (а) и спиральная структура (б): сплошные линии — обмен внутри подсистем; штриховые и пунктирные — межподсистемный обмен соответственно с ближайшими ( $l = 1$ ) и вторыми ( $l = 2$ ) соседями

по углам относительной ориентации  $\gamma$  и  $\gamma'$  и сравнивая эти энергии, получаем разные условия возникновения спирали:

$$\begin{aligned} l = 1, \quad J^B > 0 \quad (\text{AF}), \\ (J^{AB})^2 S_B^2 < 4J^A (J^A S_A^2 + J^B S_B^2), \\ J^B < 0 \quad (\text{F}), \\ (J^{AB})^2 S_B^2 > 4J^A (J^A S_A^2 + J^B S_B^2), \\ l = 2, \quad J^A \gg J^{AB}, J^B, \quad J^B J^A > -2(J^{AB})^2. \end{aligned} \quad (2)$$

При наличии доминирующего антиферромагнитного (AF) обмена в одной из подсистем (А) ферромагнитное (F) взаимодействие внутри второй подсистемы ( $J^B < 0$ ) всегда стабилизирует соизмеримую фазу Яфета–Киттеля при  $l = 1$ , а с некоторого порогового значения  $J^B$  это происходит и при  $l = 2$ . Если же обмен во второй подсистеме (В) антиферромагнитный,  $J^B > 0$ , то всегда нижней по энергии будет спиральная фаза. Важно отметить, что все эти условия не зависят от знака межподсистемного обмена и в случае  $l = 2$  не содержат значений спинов  $S^A$  и  $S^B$  — при выполнении пороговых условий для обменных взаимодействий спираль возникает сразу с появлением средней намагниченности в подсистеме В со слабым обменом.

## 4. ИНВАРИАНТ ЛИФШИЦА

При феноменологическом описании НМС важно определить содержит ли разложение термодинамического потенциала в окрестности фазового перехода (функционал Гинзбурга–Ландау) члены, линейные по пространственным производным от параметра порядка [1]. Для двухподсистемного магнетика также важно определить какие комбинации параметров порядка подсистем составляют такие инварианты. От этого зависит дальнейший анализ устойчивости и вида НМС. Симметричный анализ возможного вида такого разложения для  $\text{CuB}_2\text{O}_4$  [19] показал, что такой инвариант может быть получен как комбинация компонент параметров порядка разных подсистем. Это показывает, что механизмом, ответственным за возникновение НМС в метаборате меди, является межподсистемное взаимодействие. Однако антисимметричный обмен (взаимодействие Дзялошинского–Мория [20, 21]) между моментами разных подсистем, обычно ответственный за присутствие инварианта Лифшица, в случае  $\text{CuB}_2\text{O}_4$  не приводит к градиентным членам [17].

Градиентный член термодинамического потенциала может быть получен и для фрустрированного симметричного межподсистемного обмена, описываемого гамильтонианом (1), при континуальном переходе разложением классических моментов  $S_{r\pm a}^A$  и  $S_{r\pm a}^B$ . Для одного момента подсистемы А выражение для плотности энергии межподсистемного симметричного обмена имеет вид

$$\begin{aligned} \varepsilon_{AB}^{A1} &= \frac{1}{2} J_{AB} [\mathbf{S}_r^{A1} \cdot (\mathbf{S}_{r-a}^{B1} + \mathbf{S}_{r+a}^{B2})] = \\ &= \frac{1}{2} J_{AB} \mathbf{S}_r^{A1} \cdot \left[ \mathbf{S}_r^{B1} + \mathbf{S}_r^{B2} + a \left( \frac{\partial \mathbf{S}_r^{B2}}{\partial r} - \frac{\partial \mathbf{S}_r^{B1}}{\partial r} \right) + \right. \\ &\quad \left. + \frac{a^2}{2} \left( \frac{\partial^2 \mathbf{S}_r^{B2}}{\partial r^2} + \frac{\partial^2 \mathbf{S}_r^{B1}}{\partial r^2} \right) \right]. \end{aligned}$$

После суммирования по четырем моментам подрешеток обеих подсистем и последующего введения векторов ферромагнетизма и антиферромагнетизма получаем плотность энергии в виде

$$\begin{aligned} \sum_{AB} \varepsilon_{AB} &= J_{AB} \left\{ (\mathbf{S}_r^{A1} + \mathbf{S}_r^{A2}) \cdot (\mathbf{S}_r^{B1} + \mathbf{S}_r^{B2}) + \right. \\ &\quad + \frac{a}{2} \left[ (\mathbf{S}_r^{A1} - \mathbf{S}_r^{A2}) \cdot \frac{\partial (\mathbf{S}_r^{B2} - \mathbf{S}_r^{B1})}{\partial r} - \right. \\ &\quad \left. \left. - (\mathbf{S}_r^{B2} - \mathbf{S}_r^{B1}) \cdot \frac{\partial (\mathbf{S}_r^{A1} - \mathbf{S}_r^{A2})}{\partial r} \right] + \right. \\ &\quad + \frac{a^2}{4} \left[ (\mathbf{S}_r^{A1} + \mathbf{S}_r^{A2}) \cdot \frac{\partial^2 (\mathbf{S}_r^{B1} + \mathbf{S}_r^{B2})}{\partial r^2} + \right. \\ &\quad \left. \left. + (\mathbf{S}_r^{B1} + \mathbf{S}_r^{B2}) \cdot \frac{\partial^2 (\mathbf{S}_r^{A1} + \mathbf{S}_r^{A2})}{\partial r^2} \right] \right\} = \\ &= J_{AB} \left[ \mathbf{M}_r^A \cdot \mathbf{M}_r^B + \frac{a}{2} \left( \mathbf{L}_r^B \cdot \frac{\partial \mathbf{L}_r^A}{\partial r} - \mathbf{L}_r^A \cdot \frac{\partial \mathbf{L}_r^B}{\partial r} \right) + \right. \\ &\quad \left. + \frac{a^2}{4} \left( \mathbf{M}_r^A \cdot \frac{\partial^2 \mathbf{M}_r^B}{\partial r^2} + \mathbf{M}_r^B \cdot \frac{\partial^2 \mathbf{M}_r^A}{\partial r^2} \right) \right], \quad (3) \end{aligned}$$

где

$$\mathbf{M}_r^A = \mathbf{S}_r^{A1} + \mathbf{S}_r^{A2}, \quad \mathbf{M}_r^B = \mathbf{S}_r^{B1} + \mathbf{S}_r^{B2},$$

и

$$\mathbf{L}_r^A = \mathbf{S}_r^{A1} - \mathbf{S}_r^{A2}, \quad \mathbf{L}_r^B = \mathbf{S}_r^{B1} - \mathbf{S}_r^{B2}$$

— соответственно векторы ферро- и антиферромагнетизма каждой из подсистем.

Таким образом в термодинамическом потенциале появляется инвариант Лифшица, построенный на векторах антиферромагнетизма обеих подсистем. Отметим, что отсутствие центра инверсии как необходимое условие существования такого инварианта автоматически выполняется для взаимодействия между моментами разных подсистем. Существование градиентных членов для симметричного обмена при разложении в окрестности соответствующего соразмерного вектора магнитной структуры было показано в [1]. Для феноменологического анализа фрустрированной искаженной треугольной структуры использовался инвариант Лифшица, возникающий при отклонении от 120-градусной ориентации магнитных моментов, что приводило к НМС [22].

Для кристаллической структуры, допускающей наличие антисимметричного обмена, приводящего к спиральному скосу моментов,

$$H_D = \mathbf{D} \cdot \sum_r \mathbf{S}_r \times \mathbf{S}_{r+a}, \quad (4)$$

где  $\mathbf{D}$  — константа взаимодействия Дзялошинского–Мория; аналогичное разложение моментов двух антиферромагнитных подрешеток при континуальном переходе дает для плотности энергии

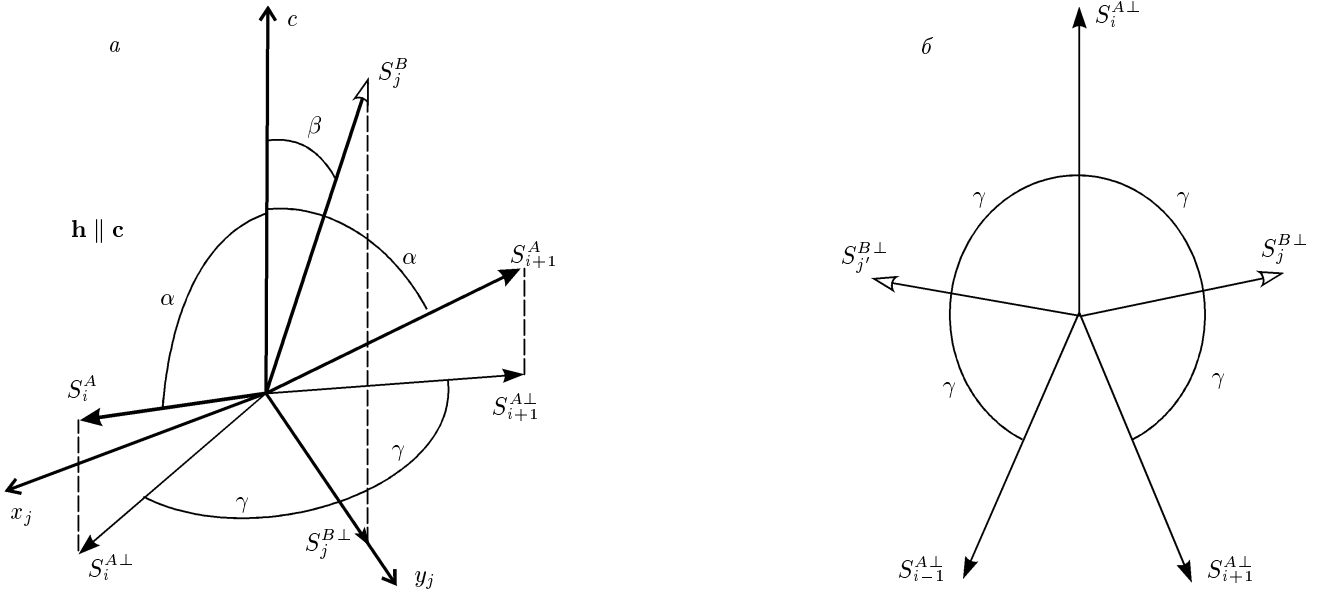


Рис. 3. Локальные ориентации спинов  $S_j^{A,B}$  в пространстве (а) и их проекций  $S_j^{A\perp}, S_j^{B\perp}$  на плоскости  $x_j y_j$  (б)

$$\begin{aligned} \varepsilon &\approx 2D^z a \left( S_r^{1x} \frac{\partial S^{2y}}{\partial r} - S_r^{1y} \frac{\partial S^{2x}}{\partial r} \right) = \\ &= 2D^z a \left( S_r^{2x} \frac{\partial S^{1y}}{\partial r} - S_r^{2y} \frac{\partial S^{1x}}{\partial r} \right) = \\ &= \mathbf{D} \cdot \left( \mathbf{M} \times \frac{\partial \mathbf{M}}{\partial r} - \mathbf{L} \times \frac{\partial \mathbf{L}}{\partial r} \right) \frac{a}{2}. \quad (5) \end{aligned}$$

Для антиферромагнетика  $\mathbf{M} \ll \mathbf{L}$  и ферромагнитным членом можно пренебречь. При внешнем формальном сходстве инвариантов (3) и (5) с первыми производными отметим, что в выражение (3) входят скалярные произведения векторов антиферромагнетизма и их производные для разных подсистем, в то время как при релятивистском механизме (выражение (5)) — векторное произведение. На коэффициент  $J_{AB}$  при градиенте (3) не накладывается ограничение по величине, существующее для взаимодействия (4),

$$D \sim \frac{\Delta g}{g} J, \quad (6)$$

где  $\Delta g$  — отклонение  $g$ -фактора от чисто спинового значения. Величина  $\Delta g/g$  вносит существенные ограничения на волновой вектор спирали для ионов в  $S$ -состоянии, для которых это отклонение невелико. Фактически относительное отклонение  $g$ -фактора определяет верхний предел волнового вектора НМС, сформированный релятивистским механизмом. Для НМС с фрустрационным механизмом такой предел отсутствует.

### 5. СВОБОДНАЯ ЭНЕРГИЯ

Разделение магнетика на подсистемы удобно прежде всего при описании его свойств при конечной температуре в приближении среднего поля:

$$\begin{aligned} V_{ij} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j &= \mathbf{h}_a^{eff} \cdot \mathbf{S}_i + \mathbf{h}_b^{eff} \cdot \mathbf{S}_j, \\ \mathbf{h}_{a,b}^{eff} &= f(\langle \mathbf{S}_i \rangle_T, \langle \mathbf{S}_j \rangle_T, \varphi_i, \varphi_j, h). \end{aligned}$$

Здесь  $V_{ij}$  включает все учитываемые моделью взаимодействия, а эффективные поля  $\mathbf{h}_{a,b}^{eff}$ , действующие на моменты каждой подсистемы, зависят от средних значений и углов  $\varphi_{i,j}$  взаимной ориентации взаимодействующих моментов. При этом равновесная намагниченность каждого момента подсистемы, находящегося в одинаковом по величине среднем поле, будет иметь одинаковую температурную зависимость. Таким образом, минимизация свободной энергии

$$F = -T \ln Z$$

по углам локальной ориентации моментов и их средним значениям с учетом самосогласования (вариационная процедура Эйлера–Лагранжа) полностью определяет равновесную структуру в приближении среднего поля. Простая трехмерная геликоидальная структура однозначно задается тремя углами взаимной ориентации моментов (принцип «равных относительных углов» [8]) (рис. 3). Единственным источником анизотропии в рассматриваемой моде-

ли (1) является внешнее магнитное поле. Это означает, что антиферромагнитно-упорядоченные моменты подсистемы А всегда разворачиваются перпендикулярно внешнему полю, что и определяет плоскость геликоида. Моменты подсистемы А (В) располагаются под углом  $\alpha$  ( $\beta$ ) к внешнему полю. Приближение среднего поля обеспечивает аддитивность свободной энергии по моментам подсистем:

$$F = -T \ln(Z_A Z_B) = -T(\ln Z_A + \ln Z_B),$$

где  $Z_{A,B}$  — статистические суммы по состояниям спинов подсистем. Для спина  $S = 1/2$

$$Z_{A,B} = Z_{1A,1B}^{N_{A,B}} = \left[ \exp\left(\frac{h_{a,b}^{eff}}{2T}\right) + \exp\left(-\frac{h_{a,b}^{eff}}{2T}\right) \right]^{N_{A,B}},$$

где  $Z_{1A,1B}$  — статистические суммы одного спина каждой подсистемы. В результате для свободной энергии получаем

$$F = -T(N_A \ln Z_{1A} + N_B \ln Z_{1B}) = N_A F_1, \quad (7)$$

$$F_1 = -T(\ln Z_{1A} + n \ln Z_{1B}), \quad n = \frac{N_B}{N_A},$$

а для средней намагниченности подсистем —

$$S_{A,B} = \frac{1}{2} \operatorname{th} \frac{h_{a,b}^{eff}}{2T}, \quad (8)$$

$$\frac{\partial F_1}{\partial \varphi_{i,j}} = -S_A \frac{\partial h_a^{eff}}{\partial \varphi_{i,j}} - n S_B \frac{\partial h_b^{eff}}{\partial \varphi_{i,j}} = 0. \quad (9)$$

При  $T = 0$  энтропийный вклад обращается в нуль и свободная энергия переходит в обменную энергию основного состояния.

Для модели с  $l = 1$ ,  $J^A > 0$ ,  $J^B > 0$ ,  $n = 1$  эффективные поля имеют вид

$$h_a^{eff} = h \cos \alpha - J^A S_A (\cos^2 \alpha + \sin^2 \alpha \cos 2\gamma) - J^{AB} S_B (\cos \alpha \cos \beta + \sin \alpha \sin \beta \cos \gamma),$$

$$h_b^{eff} = h \cos \beta - J^B S_B (\cos^2 \beta + \sin^2 \beta \cos 2\gamma) - J^{AB} S_A (\cos \alpha \cos \beta + \sin \alpha \sin \beta \cos \gamma). \quad (10)$$

Условие (2) означает, что эффекты, связанные с возникновением геликоида, происходят при температурах существенно более низких, чем температура Нееля в подсистеме А с самым большим обменным взаимодействием. Поэтому производной по углам от средней намагниченности этой подсистемы можно пренебречь:

$$\frac{\partial S_{A,B}}{\partial \varphi_{i,j}} = \frac{1 - 4S_{A,B}^2}{4T} \frac{\partial h_{a,b}^{eff}}{\partial \varphi_{i,j}}, \quad \frac{\partial S_A}{\partial \varphi_{i,j}} \ll 1,$$

$$\frac{\partial S_B}{\partial \alpha} = \frac{J^{AB} S_A (\sin \alpha \cos \beta - \cos \alpha \sin \beta \cos \gamma)}{4T(1 - 4S_B^2)^{-1} + J^B (\cos^2 \beta + \sin^2 \beta \cos 2\gamma)} \xrightarrow{\beta \rightarrow 0} J^{AB} \chi_B S_A \sin \alpha, \quad (11)$$

$$\chi_B = \left( \frac{4T}{1 - 4S_B^2} + J^B \right)^{-1}.$$

Производная свободной энергии по углам  $\varphi_{i,j} = \alpha, \beta, \gamma$  (см. выражение (9)) дает три уравнения для равновесных углов. При приближении к фазовой границе с ростом поля ( $h \rightarrow h_c$ ) углы  $\beta \rightarrow 0$ ,  $\gamma \rightarrow \pi/2$ . Производная свободной энергии по  $\alpha$  определяет продольную намагниченность подсистемы А:

$$\left. \frac{\partial F_1}{\partial \alpha} \right|_{\beta \rightarrow 0, \gamma \rightarrow \pi/2} = S_A \sin \alpha [h - 4J^A S_A \cos \alpha - 2J^{AB} S_B + J^{AB} (J^{AB} S_A \cos \alpha + J^B S_B) \chi_B] = 0,$$

откуда получаем

$$S_A \cos \alpha = \frac{h - 2J^{AB} S_B + J^{AB} J^B S_B \chi_B}{4J^A - (J^{AB})^2 \chi_B}. \quad (12)$$

На фазовой границе

$$S_B = \frac{1}{2} \operatorname{th} \frac{h - J^B S_B - J^{AB} S_A \cos \alpha}{2T}, \quad (13)$$

а два остальных уравнения линеаризуются относительно малых функций  $\sin \beta$  и  $\cos \gamma$ :

$$\begin{aligned} \frac{\partial F_1}{\partial \beta} \Big|_{\beta \rightarrow 0, \gamma \rightarrow \pi/2} &= \sin \beta [hS_B - 4J^B S_B^2 - \\ &- 2J^{AB} S_B S_A \cos \alpha + \\ &+ (J^{AB} S_A \cos \alpha + 4J^B S_B - h)\chi_B] + \\ &+ J^{AB} S_A \sin \alpha \cos \gamma \times \\ &\times [2S_B - (J^B S_B + J^{AB} S_A \cos \alpha)\chi_B] = 0, \end{aligned} \quad (14)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial F_1}{\partial \gamma} \Big|_{\beta \rightarrow 0, \gamma \rightarrow \pi/2} &= \\ &= S_A \sin \alpha \{ J^{AB} \sin \beta [(J^B S_B + \\ &+ J^{AB} S_A \cos \alpha)\chi_B - 2S_B] - \\ &- 4J^A S_A \sin \alpha \cos \gamma \} = 0. \end{aligned}$$

Условие существования нетривиальных решений по этим переменным дает соотношение между температурой и полем на фазовой границе:

$$\begin{aligned} 4J^A [hS_B - 4J^B S_B^2 - 2J^{AB} S_B S_A \cos \alpha - \\ - (h - 4J^B S_B^2 - J^{AB} S_A \cos \alpha) \times \\ \times (J^{AB} S_A \cos \alpha + J^B S_B)\chi_B] = \\ = (J^{AB})^2 [2S_B - (J^{AB} S_A \cos \alpha + J^B S_B)\chi_B]^2. \end{aligned} \quad (15)$$

Критическое поле при  $T \rightarrow 0$  получаем с учетом (12) при  $\chi_B \rightarrow 0$ :

$$h_c = \frac{4J^B S_B}{1 - J^{AB}/2J^A}. \quad (16)$$

Видно, что поле перехода в соизмеримое состояние совпадает с полем «схлопывания» антиферромагнитной структуры в подсистеме В и при низких температурах пропорционально ее намагниченности.

В отсутствие внешнего магнитного поля,  $h = 0$ , в рамках изотропной модели (1) формируется плоская спираль с произвольной ориентацией плоскости. Для ее описания достаточно в эффективных полях (10) положить  $\alpha = \beta = \pi/2$ :

$$\begin{aligned} h_a^{eff} &= -J^A S_a \cos 2\gamma - J^{AB} S_b \cos \gamma, \\ h_b^{eff} &= -J^B S_b \cos 2\gamma - J^{AB} S_a \cos \gamma. \end{aligned} \quad (17)$$

Таким образом, минимизация проводится только по одному углу  $\gamma$ . На фазовой границе

$$\begin{aligned} \frac{\partial S_B}{\partial \gamma} &= \sin \gamma \times \\ &\times \frac{J^{AB} S_A + 4J^B S_B \cos \gamma}{4T(1 - 4S_B^2)^{-1} + J^B \cos 2\gamma} \xrightarrow{\gamma \rightarrow \pi/2} J^{AB} S_A \chi'_B, \end{aligned} \quad (18)$$

где

$$\chi'_B = \left( \frac{4T}{1 - 4S_B^2} - J^B \right)^{-1}. \quad (19)$$

Угол между соседними спинами подсистемы А, задающий волновой вектор спирали в отсутствие внешнего поля, определяется выражением

$$\cos \gamma = -\frac{J^{AB} S_A S_B (2 + J^B \chi'_B)}{4J^A S_A^2 + 4J^B S_B^2 - (J^{AB})^2 S_A^2 \chi'_B}. \quad (20)$$

При  $T = 0$

$$\cos \gamma_0 = -\frac{J^{AB} S_A S_B}{2(J^A S_A^2 + J^B S_B^2)}. \quad (21)$$

Последнее выражение для одинаковых подсистем ( $J^A = J^B$ ,  $S_A = S_B$ ) переходит в результат модели ANNNI. Температуру  $T_{SS}$  появления спонтанной намагниченности в подсистеме В и, как следствие, геликоидальной структуры в системе можно получить из общего выражения (8) для равновесной намагниченности  $S_B$  подстановкой в нее соотношений (17) и (20):

$$\begin{aligned} S_B &= \frac{1}{2} \operatorname{th} \left[ \frac{S_B}{2T} \times \right. \\ &\times \left. \left( J^B + \frac{(J^{AB})^2 S_A^2 (2 + J^B \chi'_B)}{4J^A S_A^2 + 4J^B S_B^2 - (J^{AB})^2 S_A^2 \chi'_B} \right) \right]. \end{aligned} \quad (22)$$

В результате имеем

$$T_{SS} = \frac{J^B}{4} + \frac{3(J^{AB})^2}{32J^A} \left[ 1 + \sqrt{1 + \frac{16J^A J^B}{9(J^{AB})^2}} \right]. \quad (23)$$

Для выяснения роли пространственного смещения координат взаимодействующих спинов подсистем рассмотрим аналогичным образом случай  $l = 2$  с  $\Delta c = 3c/2$ . Для сравнения результатов анализа с данными по  $\text{CuB}_2\text{O}_4$ , где  $n = 2$ , учтем числа магнитных соседей внутри подсистем и между ними,

$$z_A = 4, \quad z_B = 2, \quad z_{AB} = 4, \quad z_{BA} = 2,$$

а также соответствующее расстояние между взаимодействующими В-спинами (рис. 4). Кроме того, анализ кривых намагниченности в полях, близких к фазовой границе [17], показал, что суммарное среднее поле обменных взаимодействий внутри В-подсистемы соответствует эффективному ферромагнитному обмену ( $J^B < 0$ ). С учетом этого выра-

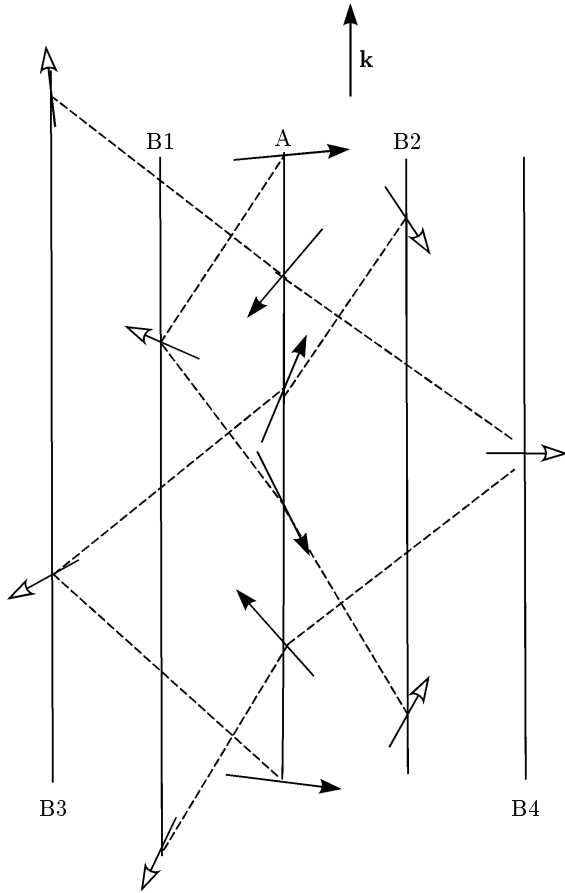


Рис. 4. Схема обменных взаимодействий модели с  $l = 2$  для  $\text{CuV}_2\text{O}_4$

жения для эффективных полей и продольной намагниченности А-подсистемы принимают вид

$$\begin{aligned}
 h_a^{eff} &= h \cos \alpha - 2J^A S_A (\cos^2 \alpha + \sin^2 \alpha \cos 2\gamma) - \\
 &\quad - 2J^{AB} S_B (\cos \alpha \cos \beta + \sin \alpha \sin \beta \cos 3\gamma), \\
 h_b^{eff} &= h \cos \beta - J^B S_B (\cos^2 \beta + \sin^2 \beta \cos 8\gamma) - \\
 &\quad - J^{AB} S_A (\cos \alpha \cos \beta + \sin \alpha \sin \beta \cos 3\gamma), \\
 S_A \cos \alpha &= \frac{h - 4J^{AB} S_B + 2J^{AB} J^B S_B \chi_B}{4J^A - (J^{AB})^2 \chi_B}.
 \end{aligned} \quad (24)$$

После минимизации свободной энергии получаем линейризованное уравнение для фазовой границы в этой модели:

$$\begin{aligned}
 4J^A [hS_B - 2J^{AB} S_B S_A \cos \alpha - (h - J^{AB} S_A \cos \alpha) \times \\
 \times (J^{AB} S_A \cos \alpha + J^B S_B) \chi_B] = \\
 = 9(J^{AB})^2 [2S_B - (J^{AB} S_A \cos \alpha + J^B S_B) \chi_B]^2. \quad (25)
 \end{aligned}$$

Выражения для критического поля, угла спирали при  $T = 0$  и температуры появления спонтанной на-

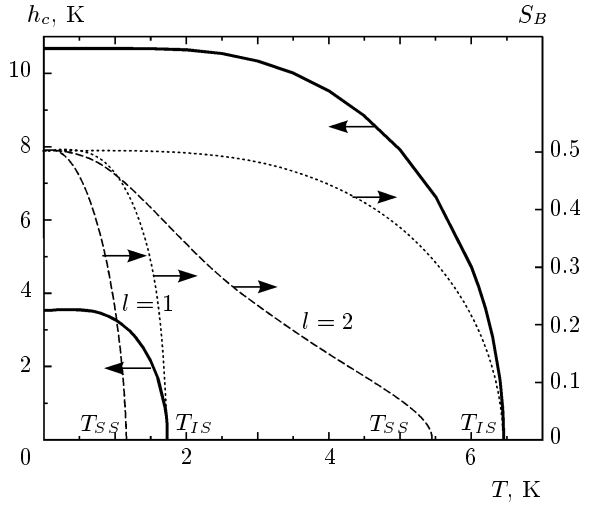


Рис. 5. Фазовая диаграмма геликоидального состояния (сплошные линии) и намагниченность В-подсистемы в нулевом (штриховые линии) и критическом (пунктирные линии) полях для моделей с  $l = 1$  (кривые при  $T < 2$  К) и с  $l = 2$  (кривые при  $T < 6.5$  К)

магниченности и, как следствие, спиральной фазы принимают вид

$$h_c = \frac{8(J^{AB})^2 S_B}{J^A}, \quad (26)$$

$$\cos \gamma_0 = -\frac{3J^{AB} S_A S_B}{2J^A S_A^2 - 32J^B S_B^2}, \quad (27)$$

$$\begin{aligned}
 T_{SS} &= -\frac{J^B}{4} + \\
 &\quad + \frac{27(J^{AB})^2}{32J^A} \left[ 1 + \sqrt{1 - \frac{16J^A J^B}{81(J^{AB})^2}} \right]. \quad (28)
 \end{aligned}$$

Видно, что, в отличие от выражения (16) для антиферромагнитного случая, при ферромагнитном обмене в В-подсистеме критическое поле определяется межподсистемным обменом.

## 6. ЧИСЛЕННАЯ МИНИМИЗАЦИЯ СВОБОДНОЙ ЭНЕРГИИ

Линеаризация вариационных уравнений для равновесных значений углов предполагает существование непрерывного перехода из спиральной фазы в соизмеримую структуру Яфета–Киттеля, т. е. переход по полю должен быть переходом второго рода.



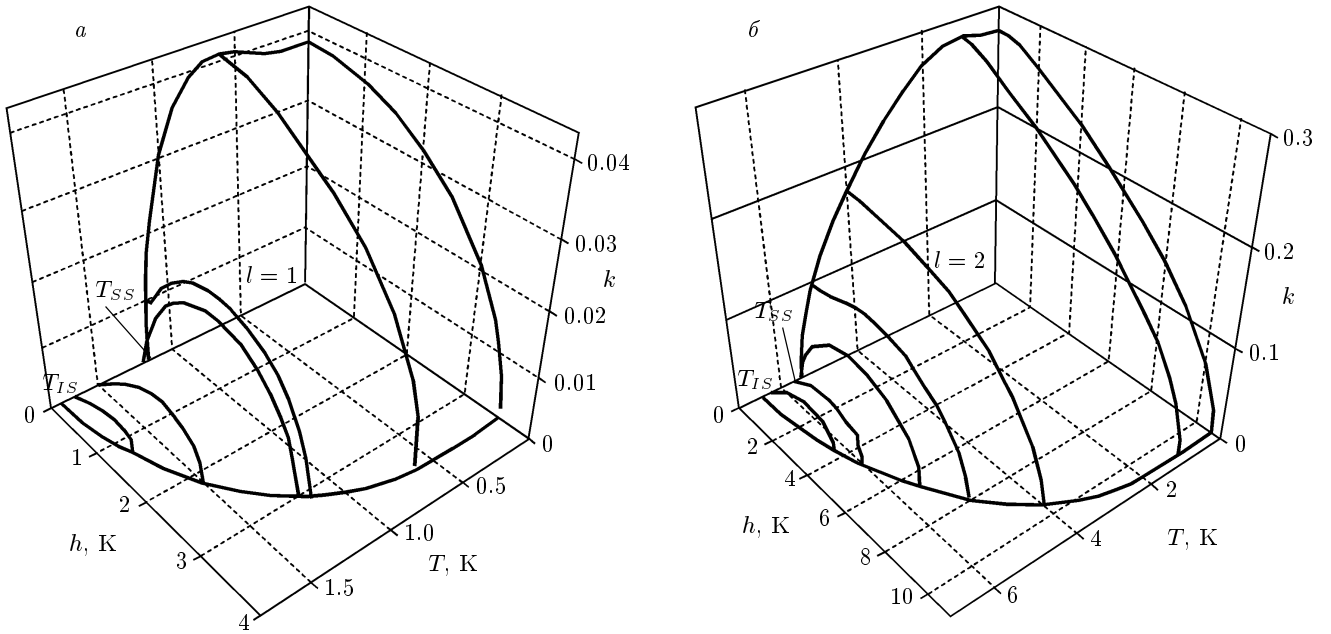


Рис. 6. Зависимость вектора НМС (в единицах обратной решетки) от температуры и поля для моделей с  $l = 1$  (а) и  $l = 2$  (б)

Чтобы это проверить, были проведены численная минимизация исходного выражения для свободной энергии (7) в приближении среднего поля и сравнение равновесного значения со значением минимума свободной энергии структуры Яфета – Киттеля. Одновременно определялась средняя намагниченность в В-подсистеме и волновой вектор геликоида. На рис. 5 показаны фазовые диаграммы для обеих моделей, полученные линеаризацией вариационных уравнений (15) и (25), и температурные зависимости намагниченностей  $S_B(T, h = 0)$  и  $S_B(T, h_c)$  в нулевом и критическом полях на фазовой границе, полученные численной минимизацией свободной энергии. Для обеих моделей температура  $T_{IS}$  появления НМС в поле существенно выше температуры  $T_{SS}$  спонтанного появления геликоидальной структуры в отсутствие поля. Абсолютные значения констант обменных взаимодействий принимались одинаковыми для обеих моделей:  $J^A = 45$  К,  $J^{AB} = 11.3$  К,  $J_{l=1}^B = -J_{l=2}^B = 2$  К. Значения магнитного поля, как и значения констант приведены в градусах Кельвина,  $1$  К =  $7400$  Э.

### 7. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Существование фазовой границы по магнитному полю в сравнительно малых полях, определя-

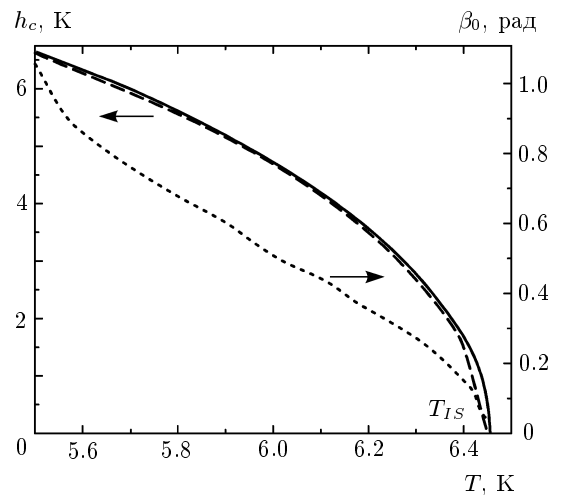


Рис. 7. Фрагмент фазовой границы:  $h_{c1}$  — результат численной минимизации свободной энергии (штриховая линия),  $h_{c2}$  — результат линейного приближения (25) (сплошная линия) и начальный угол  $\beta_0(T)$  ориентации подсистемы В для  $l = 2$  в спиральной фазе, индуцированной магнитным полем (пунктирная линия)

емых антиферромагнитным обменом в подсистеме В (модель с  $l = 1$ ) или межподсистемным обменом (модель с  $l = 2$ ), является принципиальным

отличием фрустрационного механизма от релятивистского. В последнем случае при отсутствии дополнительных анизотропных взаимодействий длиннопериодическая магнитная структура будет существовать вплоть до полей схлопывания антиферромагнитной подсистемы А. От НМС с конкуренцией обменных взаимодействий внутри одной из подсистем фрустрационный механизм отличает непрерывное изменение вектора структуры в широком интервале значений при изменении температуры и поля. На рис. 6 приведены полевые зависимости волнового вектора структуры, полученные численной минимизацией. Кроме того, пороговое условие для нашего случая носит скорее геометрический характер, а для антиферромагнитных взаимодействий в обеих подсистемах отсутствует вообще. Главной особенностью фазовой диаграммы (рис. 5, 6) является существование наряду с температурой  $T_{SS}$  спонтанного появления спиральной фазы температуры  $T_{IS}$ , ниже которой спиральное состояние существует только во внешнем магнитном поле — индуцированная спиральная (IS) фаза. В интервале температур  $T_{SS} < T < T_{IS}$  волновой вектор структуры имеет немонотонную полевую зависимость (рис. 6). Возникая сразу с появлением намагниченности в подсистеме В,  $k(h \rightarrow 0) \rightarrow 0$ , он растет с полем до максимального значения и затем убывает до малого критического значения  $k(h \rightarrow h_{c1}) \rightarrow k_c$ . При этом намагниченность подсистемы В возникает сразу с промежуточным углом ориентации относительно внешнего поля,  $0 < \beta_0 < \pi/2$  (рис. 7). При дальнейшем увеличении поля этот угол уменьшается до критического  $\beta(h \rightarrow h_{c1}) \rightarrow \beta_c$ , после чего скачком обращается в нуль. Критические значения параметров НМС определяют на фазовой плоскости линию, на которой значение ее свободной энергии совпадает со значением свободной энергии соизмеримой фазы Яфета–Киттеля (пунктир на рис. 7). Эта фазовая граница близка к фазовой границе линеаризованного приближения (фазового перехода второго рода при  $h = h_{c2}$ ), но не совпадает с ней,  $h_{c1}(T) < h_{c2}(T)$ . Таким образом, переход по полю из геликоидального состояния в соизмеримую фазу является фазовым переходом первого рода и сопровождается скачкообразным обращением в нуль волнового вектора и угла ориентации подсистемы В. Скачок суммарной намагниченности при этом мал ( $\Delta M < 10^{-4}M$  для использованных значений обменных). В  $\text{CuV}_2\text{O}_4$  на фазовой границе наблюдается двойной излом намагниченности того же порядка величины [17], который можно рассматривать как переход первого рода, растянутый в небольшом ин-

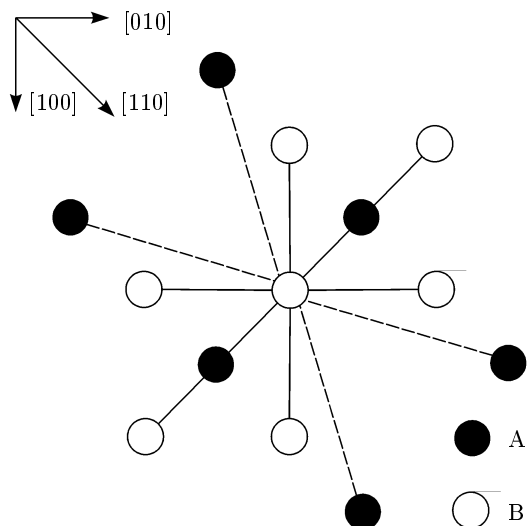


Рис. 8. Схема обменных связей внутри антиферромагнитной подсистемы (сплошные линии) и межподсистемных связей (штриховые линии) в нормальной кубической шпинели

тервале полей. На то, что фазовый переход по полю является переходом первого рода указывает и гистерезис при появлении поперечной намагниченности в соизмеримой фазе [23]. Кристаллическая структура  $\text{CuV}_2\text{O}_4$  допускает существование взаимодействия Дзялошинского–Мория между ионами подсистемы А, приводящего к скосу моментов антиферромагнитных подрешеток в базисной плоскости. Поэтому переход в продольном поле из геликоидальной фазы в соизмеримую структуру Яфета–Киттеля сопровождается скачкообразным появлением поперечной компоненты намагниченности. Существование индуцированного магнитным полем упорядочения как при  $T = 0$ , так и при конечных температурах является общим признаком сильнофрустрированных магнетиков [24, 25]. Особенностью двухподсистемного фрустрированного антиферромагнетика является то, что индуцированная полем геликоидальная структура представляет собой продолжение низкотемпературной НМС — фазовая граница при  $h \neq 0$  между ними отсутствует. В данном случае поле способствует появлению намагниченности в подсистеме со слабым обменом и, уже как следствие этого, спирали с равновесным промежуточным углом между этой намагниченностью и полем (см. рис. 7).

Наряду с общими особенностями НМС, формирующейся за счет снятия фрустрационного вырождения состояний, важно отметить существенное возрастание критического поля, величины волнового вектора НМС и температуры перехода при увели-

чении пространственного сдвига между ионами взаимодействующих подсистем (выражения (16), (21), (23) для модели с  $l = 1$  и (26)–(28) для модели с  $l = 2$ ). При этом направление вектора НМС определяется направлением наиболее протяженных межподсистемных связей в сравнении с внутрисистемным обменом. Так, в  $\text{CuV}_2\text{O}_4$  связи с  $l = 2$  и  $l = 3$ , также существующие в этой кристаллической структуре, имеют большую протяженность именно по оси  $c$ , чем связи с  $l = 1$ , ориентированные главным образом в базисной плоскости:

$$\Delta c(l = 2, 3) > \Delta a(l = 1) > \Delta c(l = 1).$$

Пути обменных связей между ионами подсистемы А в  $\text{CuV}_2\text{O}_4$  имеют такую же преимущественную ориентацию, что и связи с  $l = 1$ . Их протяженность в базисной плоскости больше протяженности межподсистемного обмена. Относительно тетрагональной оси  $c$  картина обратная — межподсистемные связи с  $l = 2$  и  $l = 3$  намного длиннее обменных путей подсистемы А в этом направлении. Это и обеспечивает выигрыш в общей энергии при однородном спиральном скосе моментов с  $\mathbf{k} \parallel \mathbf{c}$ .

В упомянутой выше структуре кубической нормальной шпинели с доминирующим межподсистемным обменным взаимодействием направление наиболее протяженных межподсистемных связей также совпадает с направлением вектора спирали [110] (рис. 8).

Данный критерий определения направления вектора НМС не является единственным или главным. Тетрагональное искажение шпинели, например, может привести к появлению геликоида с  $\mathbf{k} \parallel [001]$  [7]. В любом случае необходимо сравнивать магнитные структуры с минимальными значениями свободной (или обменной при  $T = 0$ ) энергии. Однако критерий наибольшей протяженности фрустрированных обменных связей позволяет существенно сузить область поиска состояния с абсолютным минимумом.

Автор благодарен А. И. Панкрацу за полезные обсуждения работы.

## ЛИТЕРАТУРА

1. Ю. А. Изюмов, *Дифракция нейтронов на длиннопериодических структурах*, Энергоатомиздат, Москва (1987), сс. 27, 154.
2. Н. Kawamura, J. Phys. Soc. Jpn. **54**, 3220 (1985); **56**, 474 (1987).
3. V. P. Plakhty, J. Kulda, D. Wisser et al., Phys. Rev. Lett. **85**, 3942 (2000).
4. Т. Hikiyara, М. Kaburagi, and Н. Kawamura, Phys. Rev. B **63**, 174430 (2001).
5. Т. А. Kaplan, Phys. Rev. **116**, 888 (1959); Phys. Rev. **119**, 1460 (1960).
6. D. Н. Lyons and Т. А. Kaplan, Phys. Rev. **120**, 1580 (1960).
7. Т. А. Kaplan, К. Dwight, D. Н. Lyons, and N. Menyuk, J. Appl. Phys. **32**, 13S (1961).
8. D. Н. Lyons, Т. А. Kaplan, К. Dwight, and N. Menyuk, Phys. Rev. **126**, 540 (1962).
9. N. Menyuk, К. Dwight, D. Н. Lyons, and Т. А. Kaplan, Phys. Rev. **127**, 1982 (1962).
10. С. Крупицка, *Физика ферритов*, т. 1, Мир, Москва (1976), с. 263.
11. С. М. Жилияков, Е. П. Найден, *Магнитная структура диамагнитноразбавленных кубических ферри-магнетиков*, Изд-во Томского ун-та, Томск (1990), с. 64.
12. R. Moessner and J. Т. Chalker, Phys. Rev. Lett. **80**, 2929 (1998).
13. S.-H. Lee, С. Broholm, W. Ratcliff et al., Nature **418**, 856 (2002).
14. С. С. Сосин, Л. А. Прозорова, А. И. Смирнов, УФН **175**, 92 (2005).
15. N. P. Raju, М. Doim, М. J. P. Gingras et al., Phys. Rev. B **59**, 14489 (1999).
16. J. D. М. Champion, А. S. Wills, Т. Fennel et al., Phys. Rev. B **64**, 140407(R) (2001).
17. С. Н. Мартынов, А. Д. Балаев, Письма в ЖЭТФ **85**, 649 (2007).
18. W. Zhang, W. М. Saslow, and М. Gabay, Phys. Rev. B **44**, 5129 (1991).
19. М. А. Попов, Г. А. Петраковский, В. И. Зиненко, ФТТ **46**, 478 (2004).
20. И. Е. Дзялошинский, ЖЭТФ **47**, 992 (1964).
21. Т. Moriya, Phys. Rev. **120**, 91 (1960).
22. М. Е. Zhitomirsky, Phys. Rev. B **52**, 353 (1996).
23. А. Pankrats, G. Petrakovskii, V. Tugarinov et al., J. Magn. Magn. Mater. **300**, e388 (2006).
24. М. Е. Zhitomirsky, А. Honecker, and О. А. Petrenko, Phys. Rev. Lett. **85**, 3269 (2000).
25. А. P. Ramirez, В. S. Shastry, А. Hayashi et al., Phys. Rev. Lett. **89**, 067202 (2002).