

ФАЗОВЫЕ ПЕРЕХОДЫ В КИРАЛЬНЫХ МАГНЕТИКАХ: РАСЧЕТЫ КЛАССИЧЕСКИМ МЕТОДОМ МОНТЕ-КАРЛО

А. М. Белемук^{a,*}, С. М. Стишов^{a,b}

^a *Институт физики высоких давлений Российской академии наук
108840, Троицк, Москва, Россия*

^b *Физический институт им. П. Н. Лебедева Российской академии наук
119991, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 19 января 2020 г.,
после переработки 7 июля 2020 г.
Принята к публикации 7 июля 2020 г.

Обсуждаются фазовые переходы в киральных магнетиках по данным расчетов классическим методом Монте-Карло. В качестве модели используется спин-решеточный гамильтониан системы классических спинов, в котором учитывается обменное взаимодействие между спинами и взаимодействие Дзялошинского–Мория. Рассмотрено поведение магнитной теплоемкости, магнитной восприимчивости, интенсивности брэгговского рассеяния в зависимости от параметров модели. Проводится сравнение с экспериментальными данными.

DOI: 10.31857/S0044451020110115

1. ВВЕДЕНИЕ

Настоящая работа фактически является обширным дополнением к статье [1], что генетически связывает ее с работами А. С. Боровика-Романова, посвященными слабым ферромагнетикам, к каковым в полной мере можно отнести так называемые киральные магниты. Киральные магниты — металлические соединения MnSi, FeGe, полупроводник $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$, непроводящий мультиферроик с локализованными магнитными моментами Cu_2OSeO_3 — составляют класс материалов, характеризующийся наличием двух конкурирующих взаимодействий, обменного взаимодействия и взаимодействия Дзялошинского–Мория (ДМ) [2,3]. Названные киральные магнетики имеют нецентросимметричную кубическую структуру с пространственной группой $P2_13$, что обуславливает существование кирального взаимодействия ДМ. В нулевом магнитном поле конкуренция между ферромагнитным обменным взаимодействием и взаимодействием ДМ ведет к образованию спиральной магнитной структуры, причем ось спирали направлена вдоль кристаллографической оси [111]. Образование спиральной магнит-

ной структуры в этих материалах происходит в результате слабого фазового перехода первого рода из парамагнитного в упорядоченное спиральное состояние. Фазовый переход характеризуется наличием первого резкого максимума теплоемкости при температуре фазового перехода T_c и наличием второго флуктуационного максимума («плеча»), представляющего собой второй пологий максимум теплоемкости, расположенный немного выше T_c . Наличие резкого максимума и плеча обнаруживается также в других термодинамических и транспортных характеристиках этих материалов, а именно, в коэффициенте теплового расширения, производной электросопротивления от температуры, коэффициенте затухания звука [4].

Помимо необычных температурных зависимостей (аномалий) теплоемкости, магнитной восприимчивости и других термодинамических величин, связанных с гелимагнитным фазовым переходом, имеются также убедительные данные о наличии сильных спиновых флуктуаций при температурах, значительно больших температуры гелимагнитного фазового перехода T_c . Экспериментальные данные по малоугловому рассеянию нейтронов указывают на наличие ферромагнитных флуктуаций, однородно распределенных по всему \mathbf{q} -пространству [5, 6], при температурах значительно выше T_c . Однако с

* E-mail: abel@hppi.troitsk.ru

приближением к T_c характер флуктуаций меняется. При температурах несколько выше T_c в области плеча киральные флуктуации локализованы в сферическом слое с радиусом, равным волновому вектору спирали q_h . Наконец, при T_c резкие магнитные брэгговские пики появляются в направлении $\langle 111 \rangle$, что и означает переход в спирально-упорядоченную фазу с периодом модуляций $\lambda_h = 2\pi/q_h$. Поведение киральной системы в магнитном поле также представляет большой интерес. Так, в области плеча теоретически предсказано возникновение различных сложных магнитных структур, что находит подтверждение в экспериментах [7–10].

В настоящей работе мы исследуем природу фазового перехода в киральных магнитах на основе классического метода Монте-Карло. В качестве гамильтониана гелимагнетика рассмотрим спин-решеточный гамильтониан, включающий гейзенберговское обменное взаимодействие между спинами и взаимодействие ДМ. Эта модель позволяет правильно описать фазовую диаграмму MnSi в переменных температуры и магнитного поля (T, B) [11]. При вариации амплитуды D взаимодействия ДМ эта модель ведет к необычным магнитным свойствам, возникающим благодаря конкуренции обменного взаимодействия и взаимодействия ДМ [12]. В частности, эта конкуренция приводит к тому, что плечо в термодинамических характеристиках при магнитном фазовом переходе возникает вследствие возмущения виртуального ферромагнитного фазового перехода второго рода геликоидальными флуктуациями, возникающими благодаря взаимодействию ДМ. Другими словами, плечо можно интерпретировать как ферромагнитный фазовый переход второго рода, размытый геликоидальными флуктуациями, которые в конечном счете конденсируются в спирально-упорядоченную фазу. Это заключение хорошо согласуется с термодинамическими данными экспериментов в MnSi [13].

В рамках спин-решеточного гамильтониана также удастся учесть коллективизированный характер электронной подсистемы в MnSi. Для этого амплитуда спиновой переменной на узле рассматривается как флуктуирующая переменная. На этом пути удастся найти зависимость плеча от величины введенных продольных спиновых флуктуаций [14].

Другим интересным экспериментальным фактом, касающимся поведения гелимагнетиков, является существование «вольхардтовской» инвариантности [13, 15], когда кривые зависимости теплоемкости от температуры, измеренные при разных значениях магнитного поля, пересекаются в одной точке.

Данные вычислений методом Монте-Карло позволяют выяснить приближенный характер пересечения кривых теплоемкости и условия возникновения вольхардтовской инвариантности [16]. Определяющим здесь служит наличие относительно большого параметра взаимодействия ДМ и слабость магнитных полей.

В последнем разделе работы мы обсуждаем возможность моделирования зависимости температуры фазового перехода от давления. Эта зависимость существенно разная для гелимагнетика с коллективизированными электронами, MnSi, и гелимагнетика с локализованными спинами, Cu_2OSeO_3 [17]. Оказывается, что, вводя определенные модельные представления об эволюции эффективных параметров спин-решеточного гамильтониана от давления, можно приближенно получить правильный ход зависимости критической температуры от давления [18].

2. ПРИРОДА МАГНИТНОГО ФАЗОВОГО ПЕРЕХОДА

В качестве модели кирального магнетика рассматривается гамильтониан системы классических спинов $\mathbf{S}_\mathbf{r} = (S_\mathbf{r}^x, S_\mathbf{r}^y, S_\mathbf{r}^z)$ единичной длины, $|\mathbf{S}_\mathbf{r}| = 1$, размещенных в узлах простой кубической решетки. Взаимодействие между спинами моделируется с помощью обменного взаимодействия и взаимодействия ДМ [11, 19]:

$$H_{hm} = - \sum_{\mathbf{r}, \mathbf{r}'} \left[J_{\mathbf{r}\mathbf{r}'} \mathbf{S}_\mathbf{r} \cdot \mathbf{S}_{\mathbf{r}'} + D_{\mathbf{r}\mathbf{r}'} (\mathbf{S}_\mathbf{r} \times \mathbf{S}_{\mathbf{r}'}) \cdot \mathbf{n}_{\mathbf{r}\mathbf{r}'} \right]. \quad (1)$$

Амплитуды $J_{\mathbf{r}\mathbf{r}'}$ обменного взаимодействия и $D_{\mathbf{r}\mathbf{r}'}$ взаимодействия ДМ предполагаются ненулевыми для взаимодействия ближайших соседей (J, D) и для четвертых ближайших соседей (J', D'), единичный вектор $\mathbf{n}_{\mathbf{r}\mathbf{r}'}$ направлен от узла \mathbf{r} к узлу \mathbf{r}' . Суммирование по \mathbf{r} идет по всей решетке, суммирование по \mathbf{r}' — по половине первых ближайших соседей узла \mathbf{r} ($\mathbf{r}' = \mathbf{r} + \hat{x}, \mathbf{r} + \hat{y}, \mathbf{r} + \hat{z}$) и по половине четвертых ближайших соседей ($\mathbf{r}' = \mathbf{r} + 2\hat{x}, \mathbf{r} + 2\hat{y}, \mathbf{r} + 2\hat{z}$), постоянная решетки принята равной единице, $a = 1$.

Обменное взаимодействие между ближайшими соседями ($J > 0$) стремится установить ферромагнитное спиновое упорядочение, в то время как взаимодействие ДМ стремится развернуть спины ближайших соседей друг относительно друга на некоторый угол. Результирующий угол разворота θ определяется отношением между амплитудами J и D , $\text{tg } \theta = D/J$. Взаимодействие между четвертыми ближайшими соседями (узлы \mathbf{r}' на расстоянии $2a$

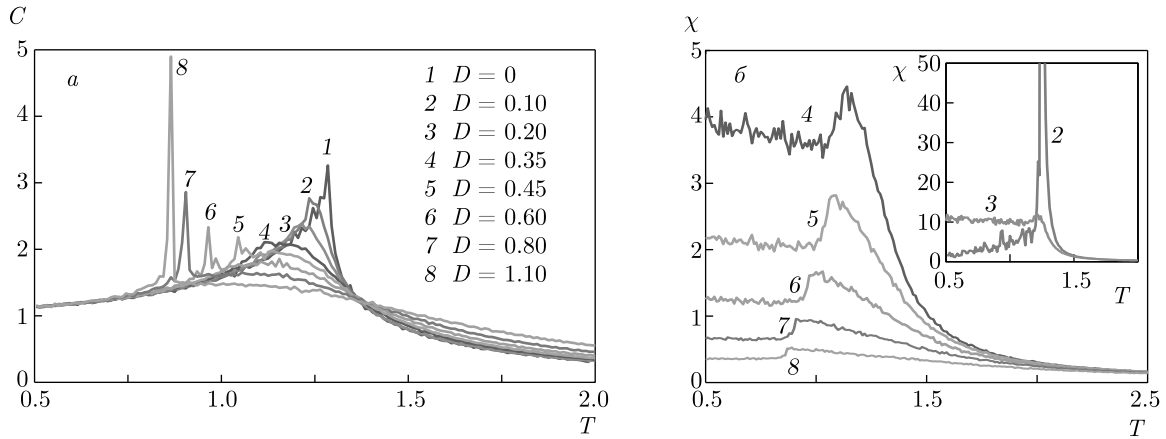


Рис. 1. (В цвете онлайн) *а*) Поведение теплоемкости для спин-решеточного гамильтониана (1) при вариации параметра D . *б*) Температурные зависимости магнитной восприимчивости при различных значениях D , приведенных на рис. *а*

от узла \mathbf{r}) введено, чтобы компенсировать анизотропию, возникающую при переходе от непрерывного распределения спинов к дискретному; соответствующие амплитуды взаимодействия фиксированы и равны $J' = -J/16$ и $D' = -D/8$ [11]. Введение дополнительных амплитуд J' и D' позволяет правильно описать положение границы скирмионной фазы на плоскости (B, T) при наложении внешнего магнитного поля B [11].

Вычисления [12] проводились с помощью классического метода моделирования Монте-Карло и алгоритма Метрополиса на кубической решетке $L \times L \times L$ с периодическими граничными условиями, использовался размер решетки $L = 30$. Ниже параметр обменного взаимодействия положен равным единице, $J = 1$, соответственно температура выражена в единицах J , теплоемкость и магнитная восприимчивость — в безразмерных единицах.

Очевидно, что модель, описываемая гамильтонианом (1), имеет разные основные состояния при $D = 0$ и $J = 0$. Поэтому при конкурирующих обменном и ДМ-взаимодействиях происходят сильные флуктуации, которые при некотором значении отношения D/J приводят к изменению характера фазового перехода, а именно, от второго рода к первому. На рис. 1 показано поведение теплоемкости $C(T)$ и магнитной восприимчивости $\chi(T)$ системы при изменении параметра взаимодействия ДМ. При $D < 0.3$ на кривой $C(T)$ явно наблюдается максимум, унаследованный от сингулярного поведения теплоемкости $C(T)$ ферромагнетика ($D = 0$) при непрерывном фазовом переходе и размытый киральными флуктуациями (рис. 1*а*). С увеличением D максимум теплоемкости постепенно превращается в поло-

гий максимум (плечо), который затем расплывается и постепенно пропадает при $D > 1$. При $D > 0.3$ помимо плеча наблюдается также отчетливый резкий максимум теплоемкости (первый максимум теплоемкости при T_c), отвечающий фазовому переходу первого рода в спиновой системе. Наличие плеча в поведении теплоемкости с высокотемпературной стороны от первого максимума связано с разрушением ферромагнитного фазового перехода второго рода и вызвано интенсивными геликоидальными флуктуациями.

На температурных зависимостях магнитной восприимчивости (рис. 1*б*) также наблюдается наличие максимума, величина которого значительно уменьшается с ростом D , а сама зависимость $\chi(T)$ принимает форму, близкую к ступеньке.

На рис. 2 показана зависимость теплоемкости от линейного размера системы L . В низкотемпературной фазе значению параметра взаимодействия ДМ $D = 1.1$ соответствует спираль с периодом, приблизительно равным восьми постоянным решеткам, $\lambda_h = 8a$ (при $a = 2.4$ нм это соответствует периоду модуляций 190 \AA , наблюдаемому в MnSi). Видно, что размер системы практически не влияет на характер перехода и форму кривой $C(T)$. То, что при температуре T_c происходит именно переход первого рода, следует из формы кривой распределения плотности энергии системы $P(E/N)$, $N = L^3$, показанной на вставке к рис. 2. Распределение $P(E/N)$ имеет двухпиковую структуру, характерную для фазового перехода первого рода.

Эволюция спиновой конфигурации с температурой показана на рис. 3. Приведены тепловое среднее

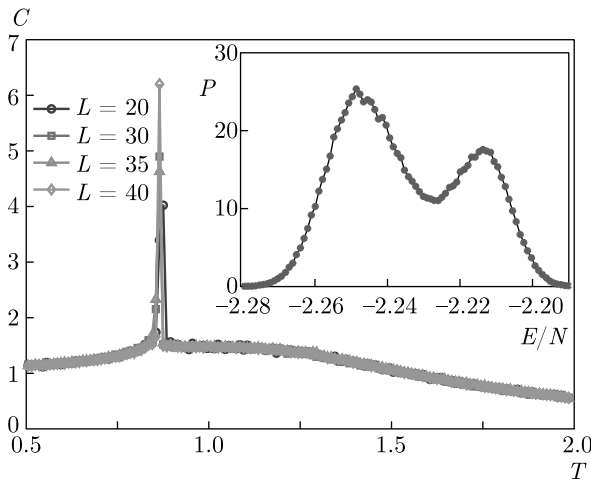


Рис. 2. (В цвете онлайн) Зависимость теплоемкости от размера L системы для амплитуды взаимодействия ДМ $D = 1.1$. Вставка — функция распределения плотности энергии $P(E/N)$ при температуре перехода $T_c = 0.86$. Двухпиковая структура функции $P(E/N)$ свидетельствует о фазовом переходе первого рода

$\langle \mathbf{S}_r \rangle$ и профиль брэгговской интенсивности

$$I(\mathbf{q}) \propto |\langle \mathbf{S}_q \rangle|^2,$$

$$\langle \mathbf{S}_q \rangle = \frac{1}{N} \sum_r \langle \mathbf{S}_r \rangle e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}}.$$

Показана проекция функции $I(\mathbf{q})$ на плоскость (q_x, q_y) , $I^*(q_x, q_y) = \sum_{q_z} I(\mathbf{q})$. Значению $D = 1.1$ отвечает температура перехода $T_c \simeq 0.86$. При температуре ниже температуры перехода ($T = 0.80$) спины приобретают структуру спирали, профиль брэгговской интенсивности при этом имеет двухпиковую структуру в точках, отвечающих проекции вектора спирали $\pm \mathbf{Q}$ на плоскость (q_x, q_y) . Немного выше T_c ($T = 0.90$) распределение спинов сильно меняется, профиль брэгговской интенсивности несколько размывается и имеет четырехпиковую структуру. При дальнейшем увеличении температуры профиль брэгговской интенсивности трансформируется в кольцеобразную форму ($T = 1.20$). Внимательный анализ спиновой конфигурации показывает, что существуют узлы с нулевым значением среднего спина, $\langle \mathbf{S}_r \rangle = 0$. Такие конфигурации появляются в полиспиральных состояниях, теоретически предсказанных для двумерных моделей с ДМ-взаимодействием [20] или для модели Гейзенберга на треугольной решетке [21]. Итак, при температурах, соответствующих или лежащих около максимума плеча теплоемкости, спиновые конфигурации отвечают полиспиральным спиновым состояниям, которые

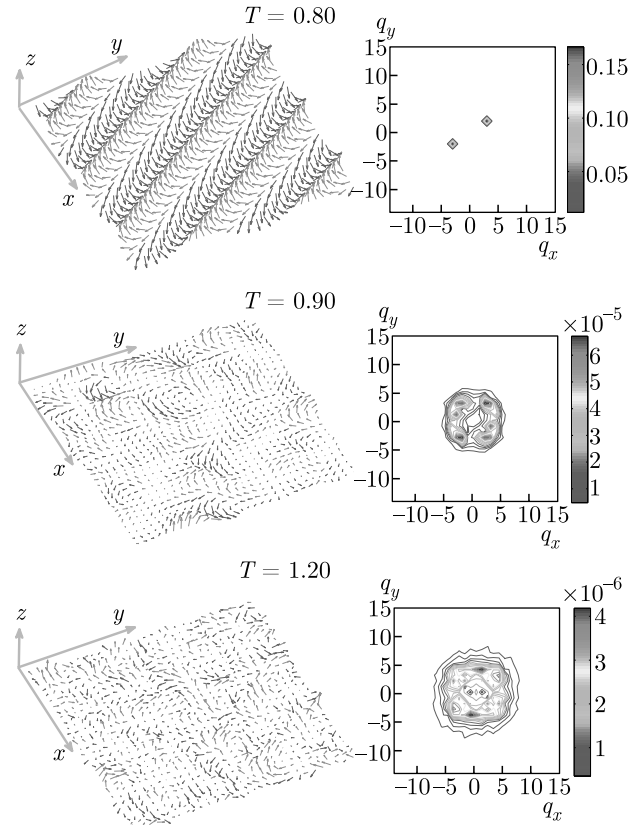


Рис. 3. (В цвете онлайн) Конфигурация спинов $\langle \mathbf{S}_r \rangle$ в плоскости xy (слева) и соответствующий профиль брэгговской интенсивности I^* , спроектированной на плоскость (q_x, q_y) (справа), при температурах ниже и выше температуры перехода $T_c \simeq 0.86$ для амплитуды ДМ-взаимодействия $D = 1.1$. Спины с положительным (отрицательным) значением S_z показаны красным (синим). Размер спинов пропорционален $|\langle \mathbf{S}_r \rangle|$. Расстояния в обратном пространстве выражены в единицах $2\pi/L$

постепенно плавятся с увеличением температуры, и система переходит в парамагнитное состояние. Соответственно, с повышением температуры профиль брэгговской интенсивности из кольцеобразной формы постепенно трансформируется в размытое пятно около нулевого волнового вектора.

3. ВЛИЯНИЕ ПРОДОЛЬНЫХ ФЛУКТУАЦИЙ

Зонные гелимагнетики типа MnSi имеют разные локальные магнитные моменты в магнитно-упорядоченном и парамагнитном состояниях, что говорит о наличии продольных спиновых флуктуаций (ПСФ) в системе. Поэтому нет причины предполагать фиксированную величину спина при ненулевых температурах в спин-решеточной модели. ПСФ можно ввести в модель (1), используя не фиксированные, а переменные спиновые амплитуды $|\mathbf{S}_r|$ на

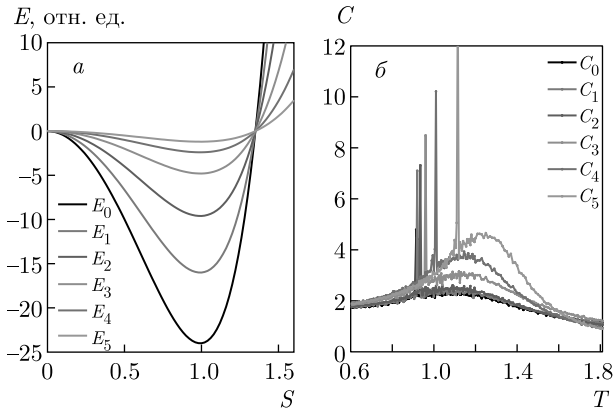


Рис. 4. (В цвете онлайн) Зависимости энергии ПСФ от величины спина (а) и соответствующие температурные зависимости теплоемкости (б)

каждом узле [14]. Энергию ПСФ можно аппроксимировать полиномом по степеням $|\mathbf{S}_r|$ [22]. Таким образом, к гамильтониану H_{hm} (1) добавляется дополнительное слагаемое

$$H_{lf} = \sum_{\mathbf{r}} E(S_{\mathbf{r}}), \quad E(S_{\mathbf{r}}) = a_1 S_{\mathbf{r}}^2 + a_2 S_{\mathbf{r}}^4 + a_3 S_{\mathbf{r}}^6, \quad (2)$$

учитывающее зависимость энергии ПСФ $E(S_{\mathbf{r}})$ от величины локального момента $S_{\mathbf{r}} = |\mathbf{S}_r|$, образующегося на узле \mathbf{r} . При этом величина $S_{\mathbf{r}}$ теперь трактуется как новая независимая флуктуирующая переменная.

Коэффициенты разложения $E(S_{\mathbf{r}})$ по степеням $S_{\mathbf{r}}$ зависят от зонной структуры материала и находятся из зонных расчетов *ab initio* [23]. Мы рассмотрим приближение, в котором коэффициенты a_1, a_2, a_3 вводятся эмпирическим путем как внешние заданные параметры. Равновесное значение величины спина на узле \mathbf{r} , $m = \langle S_{\mathbf{r}} \rangle$, определяется положением минимума \bar{S} и глубиной \bar{E} функциональной зависимости $E(S)$, которые являются двумя основными параметрами, характеризующими профиль функции $E(S)$.

Интересно исследовать поведение теплоемкости для различных форм энергии ПСФ $E(S)$. Рассмотрим, например, несколько профилей для функции $E(S)$, показанных на рис. 4. Функции $E_i(S)$ имеют минимум при одном значении $\bar{S} = 1$, но различные значения глубины ямы \bar{E} . Профиль $E_0(S)$ с максимальным значением глубины отвечает отношению $|\bar{E}|/J \simeq 24$, которое используется при расчетах в железе [22]. Остальные профили $E_i, i = 1, \dots, 5$, характеризуются меньшими значениями глубины \bar{E} . Соответствующие этим данным теплоемкости для значения $D = 0.75$ приведены на рис. 4. Видно, что кри-

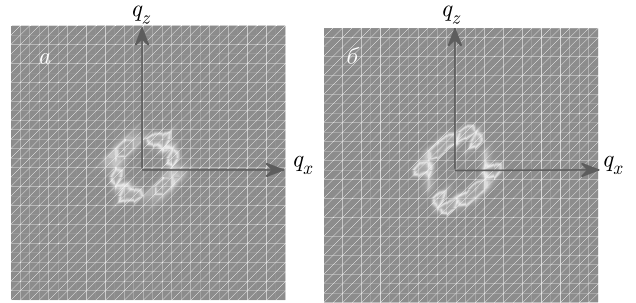


Рис. 5. (В цвете онлайн) Распределения брэгговской интенсивности $I(\mathbf{q})$ в плоскости (q_x, q_z) ($q_y = 0$) при температурах, отвечающих точкам максимума плеча теплоемкости $C(T)$, показанной на рис. 4, для кривой C_0 при $T = 1.12$ (а) и кривой C_5 при $T = 1.25$ (б). Соответствующие распределения спинов представлены на рис. 6

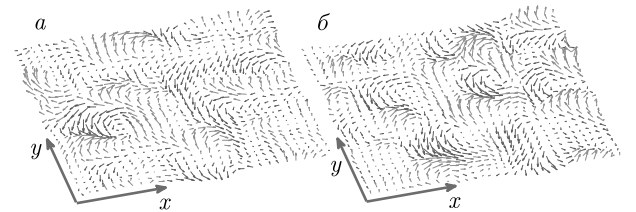


Рис. 6. (В цвете онлайн) Спиновая конфигурация $\langle S_{\mathbf{r}} \rangle$ в плоскости xy ($z = 20$) соответствует пологому максимуму кривой $C(T)$, показанному на рис. 4 для кривой C_0 при $T = 1.12$ (а) и для кривой C_5 при $T = 1.25$ (б). Соответствующие распределения брэгговской интенсивности представлены на рис. 5

вая C_0 , которая отвечает профилю E_0 с наибольшей глубиной, практически не отличается от соответствующей кривой в модели с фиксированной длиной спина $|\mathbf{S}_r| = 1$. С уменьшением глубины $|\bar{E}|$ положение температуры T_c фазового перехода первого рода медленно смещается в сторону более высоких температур, при этом амплитуда и ширина плеча заметно увеличиваются. Экспериментально наблюдаемые зависимости теплоемкости $C(T)$ [2–4] имеют достаточно выраженный профиль плеча и более соответствуют кривым, представленным на рис. 4 и учитывающим ПСФ.

На рис. 5 показано распределение брэгговской интенсивности $I(\mathbf{q})$ в плоскости (q_x, q_z) . Приведены два характерных распределения интенсивности, первое (а) соответствует самому глубокому профилю (E_0), а второе (б) самому мелкому (E_5) профилю энергии продольных спиновых флуктуаций. Температуры выбраны таким образом, чтобы они соответствовали максимуму плеча теплоемкости, показанной на рис. 4. Спиновые конфигурации приведены на рис. 6. Интенсивность в центральной точке $\mathbf{q} = 0$

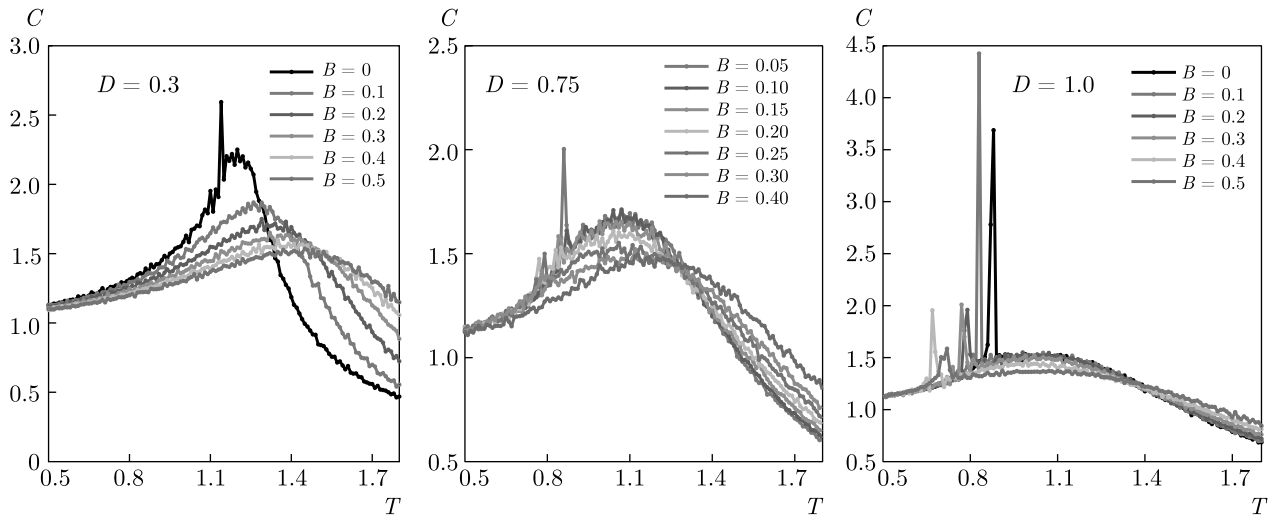


Рис. 7. (В цвете онлайн) Зависимости теплоемкости от температуры для различных значений приложенного внешнего поля B и параметра D

равна нулю, в то время как для гейзенберговского ферромагнетика распределение $I(\mathbf{q})$ в парамагнитной фазе при $T > T_c$ имело бы вид пятна с центром в $\mathbf{q} = 0$. Распределение $I(\mathbf{q})$ имеет форму кольца, что совпадает с результатами многих экспериментов по малоугловому рассеянию нейтронов [5, 6]. Отметим, что приближенная кольцеобразная форма распределения интенсивности получается как для подавленных ПСФ (глубокий минимум $E(S)$), так и для развитых ПСФ (мелкий профиль $E(S)$). Радиус кольца q_0 также не зависит от глубины профиля $E(S)$, а определяется единственным образом отношением взаимодействия ДМ и константы обменного взаимодействия.

Наличие пиков интенсивности $I(\mathbf{q})$ при конечных q_0 указывает на существование некоторой хорошо определенной внутренней магнитной структуры. Распределение спинов, иллюстрирующее кольцевой профиль интенсивности $I(\mathbf{q})$, показано на рис. 6. Представленное распределение показывает тепловое среднее $\langle \mathbf{S}_r \rangle$ в некоторой плоскости решетки спинов (так как средние величины спинов малы, $|\langle \mathbf{S}_r \rangle| \simeq 0.1$, для наглядности длина спинов домножена на некоторый множитель). Показанное распределение напоминает магнитные вихри. Также имеются узлы с почти нулевым значением намагниченности (т. е. среднего спина $\langle \mathbf{S}_r \rangle$). Вектор намагниченности вращается в двух взаимно перпендикулярных направлениях, что напоминает флуктуирующие фрагменты скирмионной решетки.

4. ИНВАРИАНТНОСТЬ ВОЛЬХАРДТА

Еще одним интересным экспериментальным свидетельством необычных свойств гелимагнетиков служит наличие инвариантности Вольхардта в поведении теплоемкости [13, 24]. Оказывается, что кривые теплоемкости $C(T)$, измеренные в различных магнитных полях, пересекаются в одной точке пересечения Вольхардта T^* [15]. Эта точка видна в магнитных полях вплоть до $B \simeq 0.5$ Тл [24, 25]. Эта точка лежит на высокотемпературной стороне плеча и, что интересно отметить, совпадает с точкой перегиба кривой магнитной восприимчивости $\chi(T)$ [24, 26]. Более того, точка пересечения Вольхардта отчетливо видна также и в поведении теплоемкости в нулевом внешнем магнитном поле, что проиллюстрировано нами выше на рис. 1. Здесь пересекаются в одной точке теплоемкости, вычисленные для различных величин амплитуды взаимодействия ДМ, что также служит проявлением инвариантности Вольхардта.

Для расчета поведения теплоемкости в магнитном поле к гамильтониану (1) следует добавить слабое, учитывающее взаимодействие магнитных моментов с внешним магнитным полем,

$$H_m = -\mathbf{B} \cdot \sum_{\mathbf{r}} \mathbf{S}_{\mathbf{r}}.$$

На рис. 7 показана зависимость теплоемкости для нескольких значений амплитуды взаимодействия ДМ [16]. Для малых D ($D = 0.3$) при увеличении B плечо быстро смещается в сторону высоких тем-

ператур, при этом ширина плеча увеличивается. Инвариантность Вольхардта отсутствует, кривые теплоемкости пересекаются друг с другом при разных температурах. С увеличением амплитуды D аномалия плеча расширяется, профили кривых теплоемкости становятся более плоскими. При $D = 0.75$ пересечение кривых $C(T)$ происходит почти в одной точке, около $T^* \simeq 1.3$, а при $D = 1.0$ пересечение видно при $T^* \simeq 1.4$. Более тщательный анализ [16] показывает, что на самом деле пересечение происходит в некоторой узкой области около указанных точек. При этом чем больше D , тем меньше ширина этой области. Максимум плеча в обоих случаях расположен около $T \simeq 1.0$ и не меняется с увеличением магнитного поля. Имеется также острый пик теплоемкости, характерный для перехода первого рода, который виден при малых полях. Анализ функции распределения энергии показывает, что при $D = 0.75$ переход будет переходом первого рода при $B \lesssim 0.05$, а при $D = 1.0$ при $B \lesssim 0.1$. При увеличении поля острый пик перехода первого рода сменяется размытым пиком перехода второго рода [16].

Объяснить появление точки пересечения Вольхардта при температуре T^* можно следующим образом [15]. Во-первых, в высокотемпературном пределе существует правило сумм для изменения энтропии $S(T, B)$ по отношению к изменению поля B . Поскольку в спиновых системах при высоких температурах (выше характерного масштаба взаимодействия в системе, как, например, обмена J в нашем случае) величина $S(T, B)$ выходит на не зависящую от поля константу, то производная

$$\frac{\partial S(T, B)}{\partial B} = \int_0^\infty \frac{dT'}{T'} \frac{\partial C(T', B)}{\partial B}$$

должна равняться нулю. Отсюда следует, что существует такая точка $T^*(B)$, в которой

$$\left. \frac{\partial C(T, B)}{\partial B} \right|_{T^*} = 0.$$

Во-вторых, может оказаться, что положение точки T^* не зависит или почти не зависит от величины поля B , это и будет означать наличие инвариантности Вольхардта [15]. Второе условие всегда будет выполняться в слабых полях, т. е. в линейном режиме, когда намагниченность прямо пропорциональна полю, $M(T) = \chi(T)B$, и если магнитная восприимчивость $\chi(T)$ имеет точку перегиба при некотором T^* , т. е. $\chi''(T)|_{T^*} = 0$. Тогда из соотношения Максвелла для свободной энергии, $(\partial S/\partial B)_T = (\partial M/\partial T)_B$, находим [15]

$$\begin{aligned} \left. \frac{\partial C(T, B)}{\partial B} \right|_{T^*} &= T \left. \frac{\partial^2 S}{\partial T \partial B} \right|_{T^*} = \\ &= T \left. \frac{\partial^2 M(T, B)}{\partial T^2} \right|_{T^*} \approx T^* B \chi''(T^*) = 0. \end{aligned} \quad (3)$$

Линейную зависимость намагниченности M от поля B убедительно продемонстрировал эксперимент [24]: в MnSi линейная зависимость $M \propto B$ наблюдалась вплоть до полей $B \simeq 0.5$ Тл. С микроскопической точки зрения, точка перегиба кривой магнитной восприимчивости $\chi(T)$ возникает вследствие сильного взаимодействия между киральными флуктуациями, которые подавляют рост корреляционной длины при уменьшении температуры [26]. Точка пересечения Вольхардта также видна и на рис. 1, где кривые теплоемкости в нулевом магнитном поле пересекаются в одной точке при изменении параметра D . В этом случае существование точки пересечения следует из правила сумм для изменения энтропии по отношению к D в высокотемпературном режиме, а параметром, сопряженным к D , будет служить величина волнового вектора спирали, определяющего длину модуляций в спиральной фазе.

Резюмируя, отметим, что хотя взаимодействие ДМ и ответственно за существование точки пересечения Вольхардта и количественно характеризует силу киральных флуктуаций в системе, тем не менее оно не определяет положения самой точки пересечения T^* . Масштаб температуры T^* по порядку величины совпадает с параметром обменного взаимодействия J . Точное положение T^* определяется в результате взаимодействия киральных и ферромагнитных флуктуаций. Увеличение магнитного поля размывает аномалию плеча и ведет к перераспределению веса плеча теплоемкости в сторону высоких температур, что и приводит к феномену инвариантности Вольхардта [13].

5. ЗАВИСИМОСТЬ ОТ ДАВЛЕНИЯ

Хорошо известно, что при увеличении давления температура фазового перехода T_c уменьшается и стремится к нулю в большинстве магнетиков с коллективизированными электронами. Типичным примером такого поведения служит фазовый переход в MnSi [2]. Противоположным примером служит поведение T_c в изоляторе Cu_2OSeO_3 , в котором T_c растет с увеличением давления. На рис. 8 приведен пример эволюции производной электросопротивления по температуре, $d\rho/dT$, в MnSi при изменении внешнего давления [4, 25]. Известно, что зависимость $d\rho/dT$ точно воспроизводит все термодина-

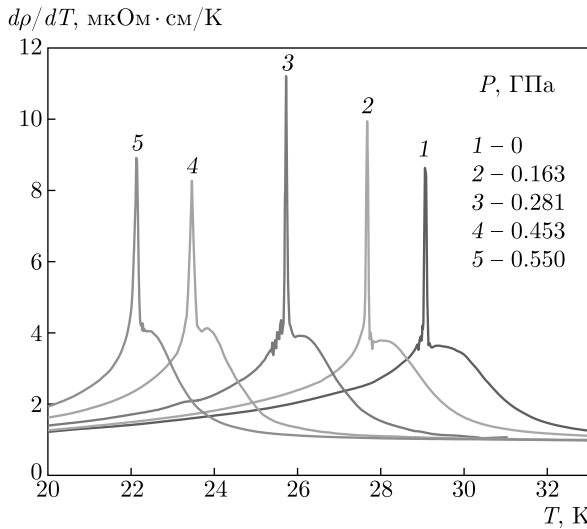


Рис. 8. (В цвете онлайн) Экспериментальные зависимости производной электросопротивления от температуры в MnSi при различных значениях приложенного внешнего давления [4, 25]

мические особенности магнитного фазового перехода в MnSi, а именно, имеется почти полное совпадение зависимости $d\rho/dT$ (приведенной к соответствующим единицам) с поведением теплоемкости $C(T)$. Поэтому поведение $d\rho/dT$ можно рассматривать как полный аналог поведения теплоемкости $C(T)$ под действием давления.

Видно, что с увеличением давления первый резкий максимум и второй пологий максимум начинают смещаться как целое в сторону низких температур, при этом ширина плеча несколько уменьшается. При более высоких давлениях (не проиллюстрированных на рис. 8) первый резкий максимум, характеризующий фазовый переход первого рода, расплывается и сливается с плечом в один небольшой максимум, который может указывать на размытый фазовый переход второго рода. Соответствующая зависимость температуры фазового перехода от давления в MnSi, $T_c = T_c(P)$, воспроизведена на рис. 9. На этом же рисунке в качестве противоположного примера проиллюстрировано поведение T_c в гелимагнитном изоляторе Cu_2OSeO_3 , в котором первый пик и плечо смещаются при приложении давления в сторону высоких температур [17]. Таким образом, для термодинамических функций гелимагнетиков характерна нетривиальная зависимость от внешнего давления, зависящая от материала гелимагнетика.

Для описания влияния давления на фазовый переход в рамках эффективной спин-решеточной мо-

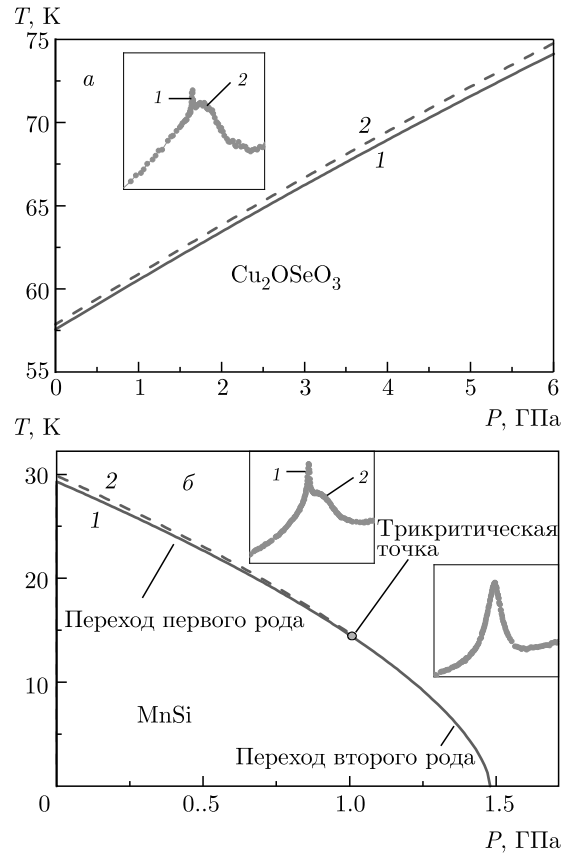


Рис. 9. Фазовые диаграммы гелимагнетика Cu_2OSeO_3 (а) и MnSi (б) в зависимости от температуры и приложенного давления [17]. Кривая 1 показывает эволюцию первого резкого максимума теплоемкости, кривая 2 — смещение флуктуационного максимума (плеча) теплоемкости

дели в гамильтониане модели (1) следует явно задать вид зависимостей амплитуд взаимодействия J и D от давления [18]. Определение характера эволюции амплитуд взаимодействия от давления требует знания эволюции электронной зонной структуры материала под давлением, что можно найти из зонных расчетов *ab initio* [23].

Рассмотрим приближение, в котором изменение давления эффективно можно описать как изменения величин амплитуд J и D . Рассчитанные кривые теплоемкости $C(T)$, см. рис. 1 и 2, зависят от приведенной температуры T/J . Если предположить, что с увеличением давления происходит эффективное уменьшение спин-спинового обменного взаимодействия (параметра J), то это будет приводить к сужению флуктуационного максимума (плеча), что очень похоже на то, что происходит с увеличением давления в MnSi. Такое поведение можно смоделировать, предположив, что давление и параметр об-

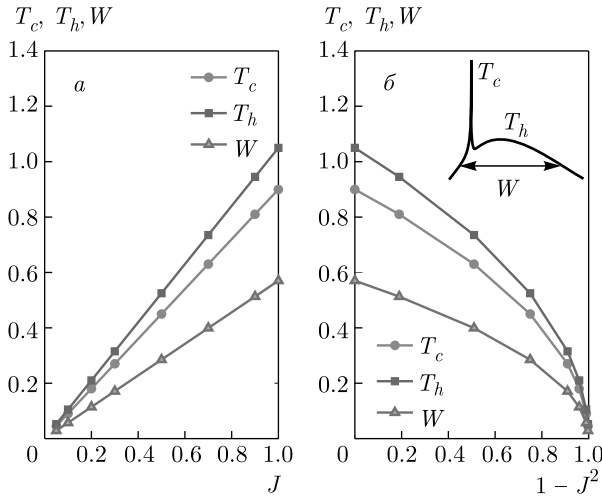


Рис. 10. (В цвете онлайн) Зависимости температуры фазового перехода T_c , температуры второго максимума T_h и ширины плеча W от константы обменного взаимодействия J (a) и $1 - J^2$ (b); $D = 0.8J$

мена связаны соотношением $P \propto 1 - J^2$, что соответствует эмпирической зависимости $T_c \propto (P_c - P)^{1/2}$ используемой для описания зависимости T_c от P в ряде зонных магнетиков [27]. Соответствующие зависимости температуры фазового перехода T_c , температуры второго максимума T_h и ширины плеча W как функции от $P \propto 1 - J^2$ хорошо передают кривую зависимости $T_c(P)$ в MnSi и показаны на рис. 10б. Мы предполагаем также, что вдоль линии перехода $T_c(P)$ отношение D/J эффективно убывает с увеличением давления, что соответствует подавлению первого максимума теплоемкости.

Другим сценарием поведения параметра J служит пример гелимагнетика Cu_2OSeO_3 с локализованными спинами. Здесь увеличение давления ведет к уменьшению расстояния между спинами и, следовательно, к увеличению параметра обменного взаимодействия J . Соответствующие зависимости T_c , T_h и W как функции от $P \propto J$ показаны на рис. 10а. Они хорошо передают кривую зависимости $T_c(P)$ в Cu_2OSeO_3 , показанную на рис. 9а.

6. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В итоге можно заключить, что классический метод моделирования Монте-Карло спиновой системы с конкурирующими взаимодействиями J и D хорошо воспроизводит экспериментальные данные, полученные для зонного магнетика MnSi и изолятора Cu_2OSeO_3 . При этом, возникновение

флуктуационного максимума (плеча) на кривой теплоемкости является следствием виртуального ферромагнитного фазового перехода второго рода, разрушенного геликоидальными флуктуациями. В результате область плеча характеризуется сложной спиновой структурой, возникающей из-за конкурирующих ферромагнитных и геликоидальных флуктуаций. При понижении температуры система не может перейти в упорядоченное состояние непрерывным образом, происходит переход к спиральной структуре посредством перехода первого рода. Таким образом, конкурирующая природа взаимодействий есть основной фактор, обуславливающий наличие фазового перехода первого рода в геликоидальных магнетиках со взаимодействием ДМ. Коллективизированную природу магнитного момента в MnSi можно приближенно учесть в рамках спин-решеточного гамильтониана, вводя дополнительную степень свободы, связанную с амплитудой спиновой переменной на узле. Оказывается, что такой учет существенно меняет величину флуктуационного максимума (плеча), в частности, амплитуда плеча значительно растет с ростом продольных спиновых флуктуаций; при этом структура зависимости $C(T)$ остается той же самой, т.е. имеются резкий первый максимум теплоемкости и плечо. При этом также сохраняется структура зависимости брэгговской интенсивности в \mathbf{q} -пространстве, а именно, плечу теплоемкости отвечает кольцеобразная структура брэгговской интенсивности.

Финансирование. Работа поддержана Российским фондом фундаментальных исследований (гранты №№ 19-02-00509, 18-02-00183) (А. М. Б. и С. М. С.) и Российским научным фондом (грант № 17-12-01050) (С. М. С.).

ЛИТЕРАТУРА

1. А. Е. Петрова, С. М. Стишов, ЖЭТФ **158**, 213 (2020).
2. С. М. Стишов, А. Е. Петрова, УФН **181**, 1157 (2011).
3. С. М. Стишов, А. Е. Петрова, УФН **187**, 1365 (2017).
4. А. Е. Petrova and S. M. Stishov, J. Phys.: Condens. Matter **21**, 196001 (2009).

5. S. V. Grigoriev, S. V. Maleyev, A. I. Okorokov, Yu. O. Chetverikov, R. Georgii, P. Böni, D. Lamago, H. Eckerlebe, and K. Pranzas, *Phys. Rev. B* **72**, 134420 (2005).
6. C. Pappas, E. Lelièvre-Berna, P. Falus, P. M. Bentley, E. Moskvina, S. Grigoriev, P. Fouquet, and B. Farago, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 197202 (2009).
7. S. Seki, J.-H. Kim, D. S. Inosov, R. Georgii, B. Keimer, S. Ishiwata, and Y. Tokura, *Phys. Rev. B* **85**, 220406(R) (2012).
8. T. Adams, A. Chacon, M. Wagner, A. Bauer, G. Brandl, B. Pedersen, H. Berger, P. Lemmens, and C. Pfleiderer, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 237204 (2012).
9. E. Moskvina, S. Grigoriev, V. Dyadkin, H. Eckerlebe, M. Baenitz, M. Schmidt, and H. Wilhelm, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 077207 (2013).
10. S. V. Grigoriev, N. M. Potapova, E. V. Moskvina, V. A. Dyadkin, Ch. Dewhurst, and S. V. Maleyev, *Письма в ЖЭТФ* **100**, 238 (2014).
11. S. Buhrandt and L. Fritz, *Phys. Rev. B* **88**, 195137 (2013).
12. A. M. Belemuk and S. M. Stishov, *Phys. Rev. B* **95**, 224433 (2017).
13. S. M. Stishov and A. E. Petrova, *Phys. Rev. B* **94**, 140406(R) (2016).
14. A. M. Belemuk and S. M. Stishov, *Phys. Rev. B* **97**, 144419 (2018); *J. Phys.: Condens. Matter* **31**, 135801 (2019).
15. D. Vollhardt, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 1307 (1997).
16. A. M. Belemuk and S. M. Stishov, *Phys. Rev. B* **101**, 144426 (2020).
17. V. A. Sidorov, A. E. Petrova, P. S. Berdonosov, V. A. Dolgikh, and S. M. Stishov, *Phys. Rev. B* **89**, 100403(R) (2014).
18. A. M. Belemuk and S. M. Stishov, *Sol. St. Comm.* **267**, 6 (2017).
19. A. Hamann, D. Lamago, Th. Wolf, H. V. Löhneysen, and D. Reznik, *Phys. Rev. Lett.* **107**, 037207 (2011).
20. M. Ezawa, *Phys. Rev. B* **83**, 100408 (2011).
21. T. Okubo, S. Chung, and H. Kawamura, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 017206 (2012).
22. P.-W. Ma and S. L. Dudarev, *Phys. Rev. B* **86**, 054416 (2012).
23. J. Kübler, *J. Phys.: Condens. Matter* **18**, 9795 (2006).
24. A. Bauer, A. Neubauer, C. Franz, W. Münzer, M. Garst, and C. Pfleiderer, *Phys. Rev. B* **82**, 064404 (2010).
25. S. M. Stishov, A. E. Petrova, S. Khasanov, G. K. Panova, A. A. Shikov, J. C. Lashley, D. Wu, and T. A. Lograsso, *J. Phys.: Condens. Matter* **20**, 235222 (2008).
26. M. Janoschek, M. Garst, A. Bauer, P. Krautscheid, R. Georgii, P. Böni, and C. Pfleiderer, *Phys. Rev. B* **87**, 134407 (2013).
27. P. Mohn, *Magnetism in the Solid State, An Introduction*, Springer, Berlin (2006).