

ІНСТИТУТ
ФІЗИКИ
КОНДЕНСОВАНИХ
СИСТЕМ

ICMP-15-13U

Ю.І. Дубленич

ОСНОВНІ СТАНИ СИСТЕМИ КЛАСИЧНИХ СПІНІВ НА
АСИМЕТРИЧНІЙ ТРИКУТНІЙ ҐРАТЦІ І ПРОБЛЕМА
СПІНОВІ РІДИНИ У СПОЛУКАХ NiGa_2S_4 ТА FeGa_2S_4

УДК: 537.611.2; 538.971

PACS: 05.50.+q, 75.10.Hk, 75.25.-j

Основні стани системи класичних спінів на асиметричній трикутній ґратці і проблема спінової рідини у сполуках NiGa_2S_4 та FeGa_2S_4

Ю.І. Дубленич

Анотація. У роботі показано, що основний стан системи класичних спінів на асиметричній трикутній ґратці зі взаємодіями в межах елементарної трикутної плакетки можна побудувати, мінімізуючи функцію густини енергії для однієї такої плакетки. Навіть у тому разі, коли усі три кути між парами спінів на плакетці різні, існує аж п'ять типів глобальних конфігурацій основного стану. Найскладніший із них — спіральне чотирьохпідґраткове упорядкування. На основі цього результату запропоновано пояснення спінового безладу у сполуках NiGa_2S_4 і FeGa_2S_4 , який спостерігали експериментально.

Ground states of a system of classical spins on an asymmetric triangular lattice and the spin-liquid problem in NiGa_2S_4 and FeGa_2S_4 compounds

Yu.I. Dublanych

Abstract. It is shown that the ground state of a system of classical spins on a asymmetric triangular lattice with interactions within an elementary triangular plaquette can be constructed by minimizing the single plaquette energy density function. Even in the case when all the three angles between pairs of spins on the plaquette are different, there exist five types of global ground-state configurations. The most complicated of these is a spiral four sublattice ordering. On the base of this outcome the experimentally observed spin disorder in NiGa_2S_4 and FeGa_2S_4 compounds is explained.

Подається в Physical Review Letters
Submitted to Physical Review Letters

Препринти Інституту фізики конденсованих систем НАН України розповсюджуються серед наукових та інформаційних установ. Вони також доступні по електронній комп'ютерній мережі на WWW-сервері інституту за адресою <http://www.icmp.lviv.ua/>

The preprints of the Institute for Condensed Matter Physics of the National Academy of Sciences of Ukraine are distributed to scientific and informational institutions. They also are available by computer network from Institute's WWW server (<http://www.icmp.lviv.ua/>)

Юрій Ігорович Дубленич

ОСНОВНІ СТАНИ СИСТЕМИ КЛАСИЧНИХ СПІНІВ НА АСИМЕТРИЧНІЙ
ТРИКУТНІЙ ҐРАТЦІ І ПРОБЛЕМА СПІНОВОЇ РІДИНИ У СПОЛУКАХ
 NiGa_2S_4 ТА FeGa_2S_4

Роботу отримано 30 грудня 2015 р.

Затверджено до друку Вченою радою ІФКС НАН України

Рекомендовано до друку відділом квантової статистики

Виготовлено при ІФКС НАН України

© Усі права застережені

Коли в 1936 році Луї Ніель (Louis Néel) відкрив новий магнетний стан речовини — антиферомагнетизм, багато фізиків, зокрема Л. Ландау, скептично сприйняли його відкриття. Аргументи скептиків ґрунтувалися на квантових властивостях спіна. Вони твердили, що пара $|\uparrow\downarrow\rangle$ внаслідок квантових ефектів переходить у пару $|\downarrow\uparrow\rangle$, і тому говорити про якийсь певний напрям окремого спіна в такій парі немає сенсу. Однак згодом було виявлено велику кількість антиферомагнетиків, і відкриття Л. Ніеля відзначили Нобелівською премією з фізики за 1962 рік. До 1972 року у фізиці магнетизму тривала “ера Ніеля”. Проте 1973 року Пилип Андерсон повернувся до згаданих вище аргументів, висловивши припущення про існування квантової спінової рідини у сильно фрустрованій системі — моделі Гейзенберга на трикутній ґратці [1]. З того часу ідея про новий магнетний стан речовини — спінову рідину, яка може існувати навіть у границі нульової температури, — не давала спокою фізикам. І врешті спінову рідину було відкрито на фрустрованій трикутній [2] і на ще більш фрустрованій ґратці Каґоме [2].

Натепер є чимало сполук, у яких підозрюють наявність спінової рідини. Переважна більшість із них — це сполуки з магнетними атомами, що несуть спін $1/2$. Однак вважають, що квантова спінова рідина може існувати не лише в системах зі спіном $S = 1/2$, а й з більшим спіном. 2005 року С. Накацуї зі співавторами вперше повідомив про ознаки спінової рідини у сполуці зі спіном $S = 1$ [4–6]. У цій сполуці — NiGa_2S_4 — магнетні атоми нікелю утворюють шари з ідеальною трикутною ґраткою. До того ж, взаємодія між спінами атомів сусідніх шарів значно менша, ніж у межах одного шару.

Окрім квантової спінової рідини існує ще й класична спінова рідина, її було виявлено у сполуках так званого спінового льоду [7]. Однак, на відміну від квантової, у класичній спіновій рідині за низьких температур спіновий безлад заморожується.

С. Накацуї та інші в NiGa_2S_4 виявили цікаву чотиріпідґраткову спінову структуру близького порядку. Такі самі властивості й спінову структуру має й сполука FeGa_2S_4 , де атоми заліза несуть спін $S = 2$ [5]. Це наптовхує на думку, що, може, властивості спінової рідини у цих сполуках піддаються поясненню на основі класичної спінової моделі.

Основні стани системи класичних спінів на симетричній трикутній ґратці було детально проаналізовано в роботах [8,9] (див. також цитовану там літературу). Однак, симетрична трикутна ґратка, унаслідок існування механічних напружень та різного роду дефектів, може втрачати симетричність. Тому ми вирішили проаналізувати

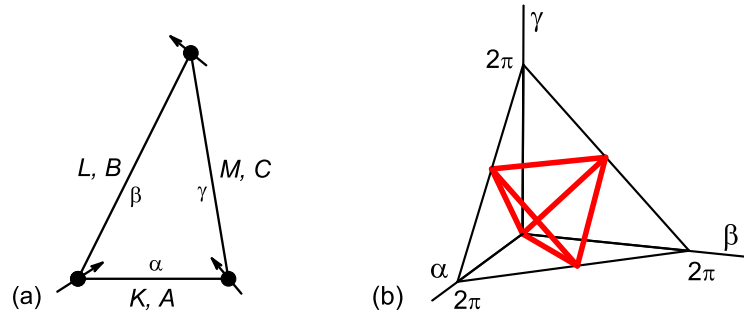


Рис. 1. а) Елементарна трикутна плакетка асиметричної трикутної ґратки зі спінами у вершинах і парні взаємодії між сусідніми спінами (лінійні і біквдратичні). б) Тетраедр зміни кутів α, β і γ .

основні стани системи класичних спінів на асиметричній трикутній ґратці. Ми виявили кілька цікавих типів спінових упорядковань з однаковою енергією, зокрема складне чотирьохпідґраткове впорядкування, яке наведене в роботах [4, 6].

Розгляньмо спочатку асиметричну трикутну плакетку з класичними спінами (одиничними 3-векторами) у її вершинах і парними лінійними (K, L і M) та біквдратичними (A, B і C) взаємодіями між спінами (в розрахунку на одну плакетку) [Рис. 1(a)]. Нехай α, β і γ — кути між парами спінів ($0 \leq \alpha, \beta, \gamma \leq \pi$). Тоді ці кути задовольняють такі нерівності:

$$\begin{aligned} \alpha + \beta + \gamma &\leq 2\pi, \\ -\alpha + \beta + \gamma &\geq 0, \\ \alpha - \beta + \gamma &\geq 0, \\ \alpha + \beta - \gamma &\geq 0. \end{aligned} \quad (1)$$

Розв'язок цих нерівностей — тетраедр, зображений на Рис. 1(b). Якщо хоч одна із цих нерівностей перетворюється в рівність, то вектори компланарні. Це відповідає поверхні тетраедра.

Енергія взаємодії спінів плакетки, зображеної на Рис. 1(a):

$$E = K \cos \alpha + L \cos \beta + M \cos \gamma - A \cos^2 \alpha - B \cos^2 \beta - C \cos^2 \gamma. \quad (2)$$

Якщо вона сягає мінімуму у внутрішній точці тетраедра [Рис. 1(b)], то цей мінімум визначається з умов рівності нулю похідних:

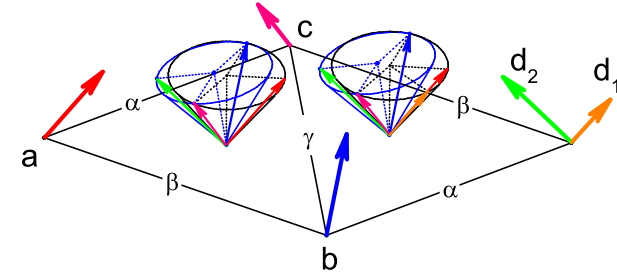


Рис. 2. Два способи побудови третього спіна трикутної плакетки (вектори \vec{d}_1 і \vec{d}_2), якщо два інші (\vec{b} і \vec{c}) задано, як і кути (α, β і γ) між усіма парами спінів плакетки.

$$\begin{aligned} \frac{\partial E}{\partial \alpha} &= (-K + 2A \cos \alpha) \sin \alpha, \\ \frac{\partial E}{\partial \beta} &= (-L + 2B \cos \beta) \sin \beta, \\ \frac{\partial E}{\partial \gamma} &= (-M + 2C \cos \gamma) \sin \gamma. \end{aligned} \quad (3)$$

Звідки

$$\cos \alpha = \frac{K}{2A}, \quad \cos \beta = \frac{L}{2B}, \quad \cos \gamma = \frac{M}{2C}. \quad (4)$$

Розгляньмо випадок, коли кути α, β і γ різні. Як від локальної конфігурації основного стану плакетки перейти до глобального основного стану нескінченної ґратки? У кожній плакетці на ґратці кути між відповідними парами спінів мають бути α, β і γ .

Розв'язками рівнянь

$$\vec{a} \cdot \vec{b} = \vec{c} \cdot \vec{d} = \cos \beta, \quad \vec{a} \cdot \vec{c} = \vec{b} \cdot \vec{d} = \cos \gamma, \quad (5)$$

де усі вектори — одиничні, є такі вектори \vec{d}_1 і \vec{d}_2 (Рис. 2):

$$\vec{d}_1 = -2 \frac{\vec{a} \cdot (\vec{b} - \vec{c})}{(\vec{b} - \vec{c})^2} (\vec{b} - \vec{c}) + \vec{a}. \quad (6)$$

$$\vec{d}_2 = 2 \frac{\vec{a} \cdot (\vec{b} + \vec{c})}{(\vec{b} + \vec{c})^2} (\vec{b} + \vec{c}) - \vec{a}. \quad (7)$$

Перетворення (6) залишає конус, на поверхні якого лежать вектори \vec{a} , \vec{b} і \vec{c} , незмінним, тобто вектор \vec{d}_1 лежить на поверхні того ж конуса. Це перетворення змінює кіральність: якщо трійка векторів \vec{a} , \vec{b} і \vec{c} права (ліва), то трійка \vec{d}_1 , \vec{b} і \vec{c} ліва (права).

Перетворення (7) перетворює конус, на поверхні якого лежать вектори \vec{a} , \vec{b} і \vec{c} , і який характеризується центральним вектором \vec{v}_1 , у конус з таким центральним вектором:

$$\vec{v}_2 = 2 \frac{\vec{v}_1 \cdot (\vec{b} + \vec{c})}{(\vec{b} + \vec{c})^2} (\vec{b} + \vec{c}) - \vec{v}_1. \quad (8)$$

Легко переконатися, що вектори \vec{v}_1 і \vec{v}_2 колінеарні. Це перетворення не змінює кіральності: якщо трійка векторів \vec{a} , \vec{b} і \vec{c} права (ліва), то трійка \vec{d}_2 , \vec{b} і \vec{c} також права (ліва).

Отож глобальна спінова конфігурація трикутної ґратки цілком визначена, якщо задана будь-яка пара сусідніх спінів і кіральність

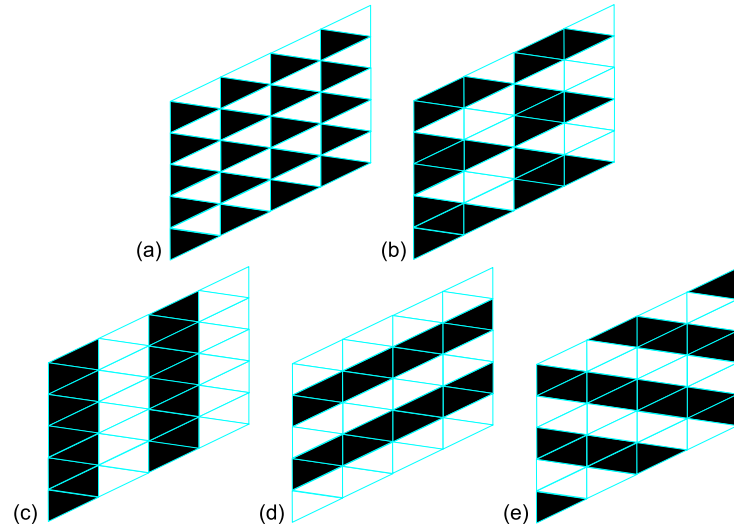


Рис. 3. Три типи структур, що можливі у системі класичних спінів на асиметричній трикутній ґратці: а) спіральна конічна структура; б) чотирипідґраткова спіральна конічна структура; с), д), е) дво-підґраткові спіральні конічні структури (див. Рис. 4–6). Чорний колір трикутника означає, що трійка векторів у його вершинах права, а білий — що ліва (або навпаки).

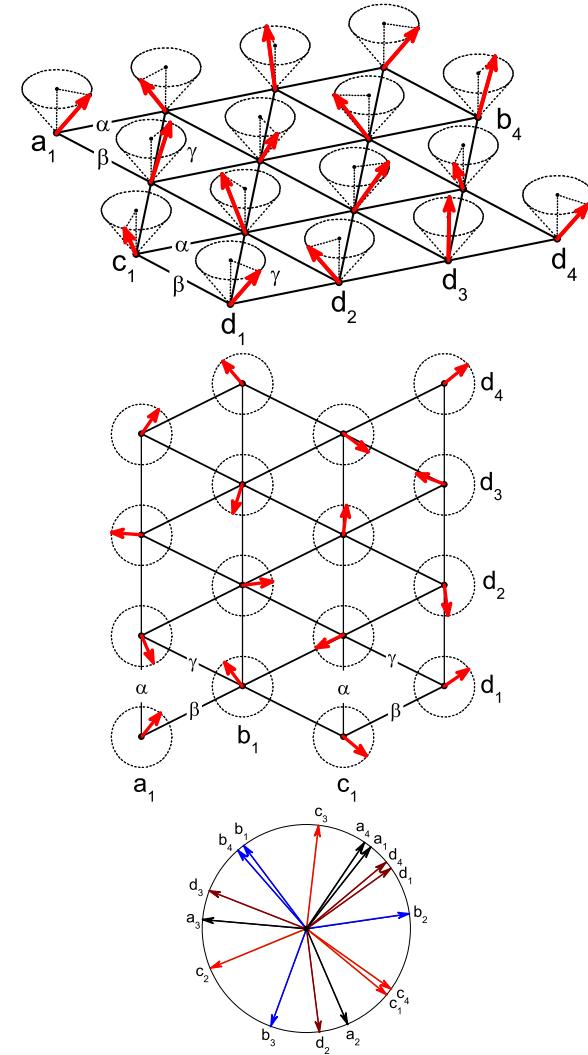


Рис. 4. Конічна конфігурація, що відповідає Рис. 3(а). Показано вид збоку і зверху. На нижньому рисунку усі спіни зображено на одному конусі (вид зверху).

для кожної плакетки. Однак, це не означає, що кіральності плакеток можна вибирати довільним чином. Аналітичний аналіз з використа-

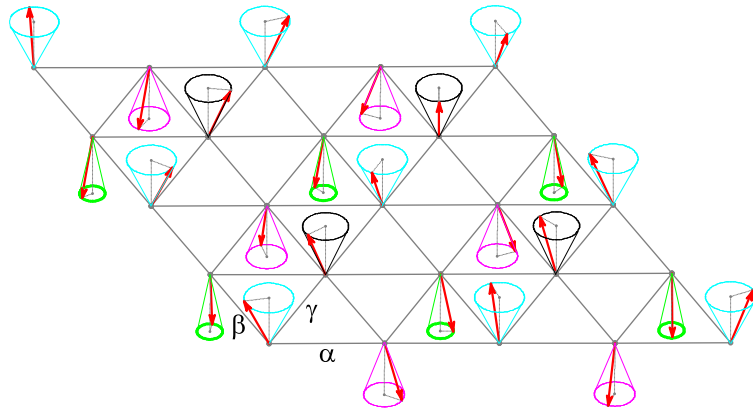


Рис. 5. Чотирипідґраткова спінова конфігурація, що відповідає Рис. 3(b). Конуси для різних підґраток зображені різними кольорами. У межах кожної підґратки спінова структура — звичайна спіральна конічна (див. Рис. 4), але на трикутній ґратці з удвічі більшими сталими ґратки.

нням програми “Maple” показує, що є лише п’ять можливостей. Усі вони зображені на Рис. 3, де чорний колір трикутника означає, що трійка векторів у його вершинах права, а білий — що ліва (або навпаки).

Приклади спінових конфігурацій, що відповідають можливим конфігураціям кіральності плакеток, показано на Рис. 4–6. Найпростіша із них та, що відповідає Рис. 3(a). Її зображено на Рис. 4. Це звичайна спіральна конічна структура, у якій за переходу з вузла на сусідній вузол вздовж того самого напрямку на ґратці спіні повертається на поверхні конуса на однаковий кут.

Найскладніша конфігурація — та, що відповідає Рис. 3(b). Її зображено на Рис. 5. Це — чотирипідґраткова спіральна конічна структура. На Рис. 5 конуси для кожної з чотирьох підґраток зображено різним кольором. У межах однієї підґратки виникає звичайна спінова конічна структура на трикутній ґратці з удвічі більшими сталими ґратки, така, як і в попередньому випадку.

Є ще один тип структур, що відповідає Рис. 3(c), (d) і (e). Це — двопідґраткові структури. На кожній підґратці виникає звичайна спіральна конічна структура, як на квадратній ґратці (Рис. 6).

Підбиймо підсумки. Отож, основний стан системи класичних спі-

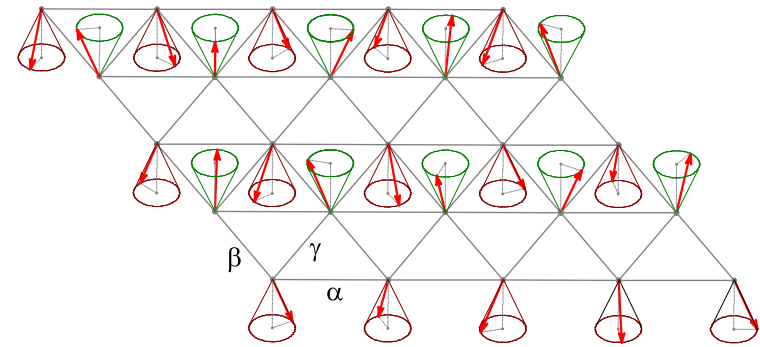


Рис. 6. Двопідґраткова спінова конфігурація, що відповідає Рис. 3 (c), (d) і (e).

нів на асиметричній трикутній ґратці можна побудувати, мінімізуючи енергію взаємодії в межах однієї елементарної трикутної плакетки, якщо взаємодії між спінами не виходять за межі плакетки. Якщо усі три кути між парами спінів плакетки різні, існує три різні типи глобальних структур основного стану. Найскладніший із них — несумірне спіральне чотирипідґраткове впорядкування. Подібний тип упорядкування спостерігали у сполуках NiGa_2S_4 та FeGa_2S_4 . Спіновий безлад у цих сполуках може бути результатом складної доменної структури, у якій є домени усіх трьох типів, бо усі ці структури основного стану мають однакову енергію.

Література

1. P. W. Anderson, *Resonating valence bonds: A new kind of insulator?* Mater. Res. Bull. **8**, 153 (1973).
2. M. Fu *et al.* *Evidence for a gapped spin-liquid ground state in a kagome Heisenberg antiferromagnet*, Science **350**, 655-658 (2015).
3. Y. Shimizu, K. Miyagaw, K. Kanoda, M. Maesato, G. Saito, *Spin liquid state in an organic Mott insulator with a triangular lattice*, Phys. Rev. Lett. **91**, 107001 (2003).
4. S. Nakatsuji, Y. Nambu, H. Tonomura, O. Sakai, S. Jonas, C. Broholm, H. Tsunetsugu, Y. Qiu, and Y. Maeno, *Spin Disorder on a Triangular Lattice*, Science **309**, 1697 (2005).
5. S. Nakatsuji, H. Tonomura, K. Onuma, Y. Nambu, O. Sakai, Y.

- Maeno, R. T. Macaluso, and Julia Y. Chan, *Spin Disorder and Order in Quasi-2D Triangular Heisenberg Antiferromagnets: Comparative Study of FeGa₂S₄, Fe₂Ga₂S₅, and NiGa₂S₄*, Phys. Rev. Lett. **99**, 157203 (2007).
6. S. Nakatsuji, Y. Nambu, and S. Onoda, *Novel Geometrical Frustration Effects in the Two-Dimensional Triangular-Lattice Antiferromagnet NiGa₂S₄ and Related Compounds*, J. Phys. Soc. Jpn. **79**, 011003 (2010).
 7. L. Balents, *Spin liquid in frustrated magnets*, Nature **464**, 199 (2010).
 8. S. E. Korshunov, F. Mila, and K. Penc, *Degeneracy and ordering of the noncoplanar phase of the classical bilinear-biquadratic Heisenberg model on the triangular lattice*, Phys. Rev. B **85**, 174420 (2012).
 9. S. Wenzel, S. E. Korshunov, K. Penc, and F. Mila, *Zero-temperature Monte Carlo study of the noncoplanar phase of the classical bilinear-biquadratic Heisenberg model on the triangular lattice*, Phys. Rev. B **88**, 094404 (2013).

CONDENSED MATTER PHYSICS

The journal **Condensed Matter Physics** is founded in 1993 and published by Institute for Condensed Matter Physics of the National Academy of Sciences of Ukraine.

AIMS AND SCOPE: The journal **Condensed Matter Physics** contains research and review articles in the field of statistical mechanics and condensed matter theory. The main attention is paid to physics of solid, liquid and amorphous systems, phase equilibria and phase transitions, thermal, structural, electric, magnetic and optical properties of condensed matter. Condensed Matter Physics is published quarterly.

ABSTRACTED/INDEXED IN: Chemical Abstract Service, Current Contents/Physical, Chemical&Earth Sciences; ISI Science Citation Index-Expanded, ISI Alerting Services; INSPEC; "Referatyvnyy Zhurnal"; "Dzherelo".

EDITOR IN CHIEF: Ihor Yukhnovskii.

EDITORIAL BOARD: T. Arimitsu, *Tsukuba*; J.-P. Badiali, *Paris*; B. Berche, *Nancy*; T. Bryk (Associate Editor), *Lviv*; J.-M. Caillol, *Orsay*; C. von Ferber, *Coventry*; R. Folk, *Linz*; L.E. Gonzalez, *Valladolid*; D. Henderson, *Provo*; F. Hirata, *Okazaki*; Yu. Holovatch (Associate Editor), *Lviv*; M. Holovko (Associate Editor), *Lviv*; O. Ivankiv (Managing Editor), *Lviv*; Ja. Ilnytskyi (Assistant Editor), *Lviv*; N. Jakse, *Grenoble*; W. Janke, *Leipzig*; J. Jedrzejewski, *Wroclaw*; Yu. Kalyuzhnyi, *Lviv*; R. Kenna, *Coventry*; M. Korynevskii, *Lviv*; Yu. Kozitsky, *Lublin*; M. Kozlovskii, *Lviv*; O. Lavrentovich, *Kent*; M. Lebovka, *Kyiv*; R. Lemanski, *Wroclaw*; R. Levitskii, *Lviv*; V. Loktev, *Kyiv*; E. Lomba, *Madrid*; O. Makhanets, *Chernivtsi*; V. Morozov, *Moscow*; I. Mryglod (Associate Editor), *Lviv*; O. Patsahan (Assistant Editor), *Lviv*; O. Pizio, *Mexico*; N. Plakida, *Dubna*; G. Ruocco, *Rome*; A. Seitsonen, *Zürich*; S. Sharapov, *Kyiv*; Ya. Shchur, *Lviv*; A. Shvaika (Associate Editor), *Lviv*; S. Sokołowski, *Lublin*; I. Stasyuk (Associate Editor), *Lviv*; J. Strečka, *Košice*; S. Thurner, *Vienna*; M. Tokarchuk, *Lviv*; I. Vakarchuk, *Lviv*; V. Vlachy, *Ljubljana*; A. Zagorodny, *Kyiv*

CONTACT INFORMATION:

Institute for Condensed Matter Physics
of the National Academy of Sciences of Ukraine
1 Svientsitskii Str., 79011 Lviv, Ukraine
Tel: +38(032)2761978; Fax: +38(032)2761158
E-mail: cmp@icmp.lviv.ua <http://www.icmp.lviv.ua>