

斯格明子相关的螺旋磁有序体系的临界行为

张蕾

Critical behaviors of helimagnetic ordering systems relating to skyrmion

Zhang Lei

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 67, 137501 (2018) DOI: 10.7498/aps.67.20180137

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.67.20180137>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2018/V67/I13>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

[磁性材料磁有序的分子场来源](#)

Molecular field origin for magnetic ordering of magnetic materials

物理学报.2017, 66(6): 067501 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.067501>

[磁性材料磁有序的分子场来源](#)

Molecular field origin for magnetic ordering of magnetic materials

物理学报.2017, 66(6): 067501 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.067501>

[磁阱中超冷玻色气体临界行为的观测](#)

Observation of critical behavior of ultra-cold Bose gas in a magnetic trap

物理学报.2016, 65(11): 110504 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.110504>

[垂直磁各向异性自旋阀结构中的铁磁共振](#)

Ferromagnetic resonance in spin valve structures with perpendicular anisotropy

物理学报.2014, 63(21): 217601 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.217601>

[直接利用磁场和温度精确确定磁性材料 \$\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3\$ 和 \$\text{Pr}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3\$ 的电阻率](#)

Prediction of the magneto-resistivity of manganese oxides $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$ and $\text{Pr}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ via temperature and magnetic field

物理学报.2013, 62(1): 017601 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.017601>

专题: 磁斯格明子

斯格明子相关的螺旋磁有序体系的临界行为*

张蕾†

(中国科学院强磁场科学中心, 极端条件凝聚态物理省重点实验室, 合肥 230031)

(2018年1月19日收到; 2018年3月12日收到修改稿)

介绍了与斯格明子相关的螺旋磁有序体系的临界行为. 首先阐述了连续相变中的临界现象、临界指数、标度律、普适性等概念; 随后介绍了磁相变体系中几种临界指数的获得方法, 包括直流磁性迭代法、磁熵变法; 进而, 分析了几类与斯格明子相关的螺旋磁有序体系的临界行为. MnSi 是典型的斯格明子材料, 临界指数显示其磁性行为符合三重临界行为. MnSi 的临界行为揭示: 外磁场可以抑制这一体系在零场下的一级相变, 使其转变为二级相变, 从而在螺旋磁有序、锥形磁有序、顺磁相的三相交汇点形成三重临界点. 斯格明子体系 FeGe 和 Cu_2OSeO_3 的临界行为符合三维海森伯相互作用, 表明它们的磁性行为主要是由近邻的各向同性的自旋耦合作用所决定; 而 $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ 和新发现的斯格明子体系 $\text{Fe}_{1.5-x}\text{Co}_x\text{Rh}_{0.5}\text{MoN}$ 的临界行为显示 Co 掺杂可以有效地调制其中的磁性耦合. 对螺旋磁有序体系的临界行为研究表明, 尽管这些体系都表现出类似的斯格明子态, 但是它们的磁性耦合机制却大不相同, 并且其耦合机制可以受到外界手段的调制. 最后, 根据普适性原理和标度方程, 阐述了一种构建磁场诱导相变体系在临界温度附近 H - T 相图的方法.

关键词: 斯格明子, 螺旋磁有序, 临界指数, 普适性

PACS: 75.10.-b, 05.70.Jk, 76.50.+g, 85.75.-d

DOI: 10.7498/aps.67.20180137

1 引言

由于潜在的应用价值和新奇的物理特性, 斯格明子 (skyrmion) 材料引起了广泛的关注和研究^[1-7]. 斯格明子是一种涡旋状结构的螺旋磁有序构型, 具有拓扑保护、纳米尺寸、低电流驱动等特性^[6,7], 使其在自旋电子存储器件应用方面具有重要的价值^[8-19]. 斯格明子构型最初由英国物理学家 Tony Skyrme 提出, 用于描述核物理领域中一种拓扑稳定的场构型^[20], 后来扩展到物理学其他领域^[21]. 在磁性材料领域, 理论预言, 斯格明子态会形成于具有 Dzyaloshinskii-Moriya (DM) 相互作用的螺旋磁有序体系中^[6,22]. 实验上, 斯格明子最初在螺旋磁有序 MnSi 体系中被发现. 当温度接近居里温度 T_C , 在 T_C 以下特定的磁场-温度区间内会

出现一个反常的磁有序相, 最初被称为 A 相^[23,24]. 在随后的中子衍射实验中, 证明了 A 相正是具有拓扑性的磁斯格明子态^[1]. 2010 年, 日本科学家 Yu 等^[7] 利用洛伦兹透射电镜, 直接在实空间上观察到了高度稳定的斯格明子相. 随后, 人们又陆续在其他螺旋磁有序体系 B20 材料中也观察到了斯格明子相, 如 $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$, $\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Si}$, $\text{Mn}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$, FeGe, Cu_2OSeO_3 ^[2,25-29] 等. 此外, 在多种磁性薄膜材料中也发现了斯格明子相, 如 PdFe/Ir(111), Fe/Ir(111), FeGe, MnSi 薄膜^[30-34] 等.

斯格明子一般出现在具有手性的螺旋磁有序体系中. 在具有非中心对称空间结构的磁性材料中, 由于对称中心的缺失会导致 DM 相互作用的出现, 使自旋排列受到晶格对称性的调制. DM 相互作用的能量一般比铁磁交换作用小 1—2 个数量级, 因此可以对铁磁排列造成影响^[35,36]. DM 相

* 国家重点研发计划 (批准号: 2017YFA0303201)、国家自然科学基金 (批准号: 11574322) 和国家自然科学基金大科学装置联合基金 (批准号: U1732276) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: zhagnlei@hmf.ac.cn

相互作用和铁磁交换作用的竞争,会导致磁矩逐渐偏离铁磁排列方向,相邻磁矩之间形成一个很小的夹角,如图1所示.因此,在零磁场下,体系会形成螺旋磁有序的基态.当施加外磁场时,螺旋磁有序基态会被逐渐极化为沿外磁场方向的锥形磁有序.由于磁性交换作用、各向异性、偶极子作用、自旋涨落、热涨落等各种能量的竞争和平衡,在 T_C 以下特定的温度(T)和磁场(H)范围内,就会形成稳定的涡旋状斯格明子结构.斯格明子具有拓扑性,对其磁矢量进行空间积分 $Q = 1$ 或 -1 (其中 $Q = \frac{1}{4\pi} \int_A \mathbf{N} \cdot \left(\frac{\partial \mathbf{N}}{\partial x} \times \frac{\partial \mathbf{N}}{\partial y} \right) dx dy$), \mathbf{N} 是归一化磁矢量)^[36,37].对于单个的斯格明子 $Q = 1$,而 $Q = -1$ 表示反斯格明子;对于螺旋磁结构和铁磁态, $Q = 0$.这几种状态之间被势垒隔开,在磁矢量连续时相互间是禁止转换的,即所谓的拓扑保护(topological protection).这种拓扑保护可以使斯格明子具有高稳定的特性.此外,斯格明子是具有纳米尺度的准粒子,在外界条件的影响下(电场、磁场、应力等),斯格明子作为一个准粒子,可以运动、转动、形成斯格明子晶格等.并且驱动其运动所需电流非常小(电流密度 $J = 10^2$ A/cm),是翻转磁畴所需电流的十万分之一^[37-40].在技术上,已经利用自旋极化隧道电流在PdFe/Ir(111)薄膜上实现了单个斯格明子的写入和擦除^[41].因此,基于斯格明子的自旋电子器件,将具有高稳定性、高存储密度、低电流驱动等特点.

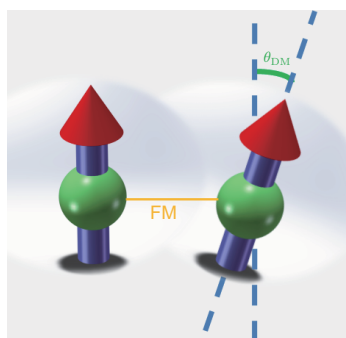


图1 铁磁(FM)交换所造成的自旋平行排列和DM相互作用所导致的自旋偏转

Fig. 1. The parallel arrangement of spins caused by the ferromagnetic (FM) interaction and the rotation from DM interaction.

本文重点讨论该类材料中相变的临界现象,对与斯格明子相关的螺旋磁有序体系的临界行为、临界指数、标度律等研究进展进行阐述.临界行为和临界指数,能够反映体系中自旋作用的维度、相干

长度、自旋之间的关联距离等信息,能够有效地揭示磁有序体系中自旋之间的相互作用和耦合机制.对斯格明子体系临界行为的研究,能够揭示其磁性作用的机制,为其应用提供物理基础.

2 临界现象和临界指数

2.1 相变和临界点

物质的相(phase)是指热力学系统(或它的一部分)具有均匀的物理性质.相变是物质从一种相转变为另一种相的过程,其序参量发生改变,如固相、液相、气相、顺磁相、铁磁相、反铁磁相、超导相、超流相^[42]等.不同的相对应于不同的序参量.根据热力学势函数及其导数,可以对相变进行分类.如果热力学势函数在相变点连续,而其一阶导数不连续,称成为一级相变.一级相变伴随有体积和潜热的变化.如果相变发生时,不仅热力学势函数连续,并且它的一阶导数也连续,这类相变叫二级相变.二级相变没有体积和潜热变化,但比热、压缩率、磁化率等物理量会出现突变.习惯上把二级及其以上的高阶相变统称为连续相变(continuous phase transition),相变点则为临界点(critical point)^[42].所谓连续相变,是指在临界点 T_C 处序参量连续地从零变到非零值的相变.序参量反映了体系的内部状态,只要它具有无穷小的非零值,就意味着对称性质发生了改变,出现了新的有序相.物理参数的无穷小变化引起的对称性破缺,是连续相变的本质.临界现象是指在连续相变过程中,超过临界点,相与相之间的区别不复存在.也就是说,在临界点分不出相变前后两相的差别^[43].相变与临界现象总伴随着热力学量的奇异性,如不连续或者发散.在相变点关联长度可表示为 $\xi = \xi_0 [(T - T_C)/T_C]^{-\nu}$ (ξ_0 是零温关联长度, ν 是临界指数, T_C 是临界点温度).可以看出,关联长度在临界点是发散的,关联长度无穷大.临界点的一个典型现象就是临界乳光现象.由于在临界点关联长度是发散的,从而导致折射率发生变化,这是造成临界乳光现象的本质原因^[43].

2.2 标度律

对于一个体系,通过选择合适的参量,可以对描述体系的物理量进行重新标定.经过重新标定后,体系的物理行为可以用一个普适的、统一的规

律来描述, 这一过程叫做标度 (scaling). 而在标度过程中的指数即为临界指数, 它则揭示了体系的内在机制. 对于连续磁相变, 在临界点 T_C 温度附近, 物理量和临界指数存在着如下关系 [44,45]:

自发磁化强度用幂指数描述,

$$M_S \propto (T_C - T)^\beta; \quad (1)$$

磁化强度用幂指数描述,

$$M \sim |h|^{1/\delta}; \quad (2)$$

关联长度趋近无限大,

$$\xi(T) \sim (T - T_C)^{-\nu}; \quad (3)$$

关联函数与距离有幂指数关系,

$$\Gamma_c(r) \sim \frac{1}{r^{d-2+\eta}}; \quad (4)$$

初始磁化率为

$$\chi_0 \sim (T - T_C)^{-\gamma}; \quad (5)$$

比热为

$$C_h \sim (T - T_C)^{-\alpha}; \quad (6)$$

其中 $\alpha, \beta, \gamma, \delta, \eta, \nu, \sigma$ 是临界指数; d 是空间维度. 对于连续相变, 其关联长度为 $\xi = \xi_0[(T - T_C)/T_C]^{-\nu}$. 在临界点, 关联长度无穷大. 也就是说, 对于一个无限大的磁性体系, 在临界点, 临界涨落使得任意远的两处磁矩都是关联的. 因此, 当改变量度晶体的尺寸时, 自由能函数应保持不变. 利用这种标度变换, 可以求出各临界指数之间的关系, 就是所谓的标度律. 临界指数之间的标度律关系为 [44,45]:

Rushbrooke's law

$$\alpha + 2\beta + \gamma = 2, \quad (7)$$

Widom's law

$$\gamma = \beta(\delta - 1), \quad (8)$$

Fisher's law

$$\gamma = \nu(2 - \eta), \quad (9)$$

Josephson's law

$$\nu d = 2 - \alpha. \quad (10)$$

标度律是Widom在对热力学势的奇异部分做标度时首先提出的, 后来, Katanov将标度思想用于伊辛模型, 不但给标度律以鲜明的物理图像, 而且预

言了与关联函数有关的标度律. 由标度律可见, 临界指数之间并不是独立的, 它们之间相互联系, 互为制约. 进一步, 根据标度假设方程, 对于磁性体系, 在临界点温度附近的等热磁化强度 $M(H)$ 曲线应该符合以下标度方程 [45]:

$$M(H, \varepsilon) = \varepsilon^\beta f_\pm(H/\varepsilon^{\beta+\gamma}), \quad (11)$$

其中 $\varepsilon = (T - T_C)/T_C$ 为约化温度, M 为磁化强度, H 为磁场强度, f 为归一化函数, f_+ 对应于 T_C 以上, f_- 对应 T_C 以下. 经过重新标度后, 临界温区的 $M(H)$ 曲线会分开为独立的两支, 其中相变温度以上的 $M(H)$ 为一支, 相变温度以下的 $M(H)$ 为另一支. 也就是说, T_C 以上的 $M(H)$ 曲线符合一种统一的行为, 而 T_C 以下的 $M(H)$ 曲线符合另一种统一的行为, 如图 2 所示 [46]. 这种关系即使延伸到低磁场区域也一样有效, 如图 2 中插图所示. 此外, 标度方程也可写成其他形式, 如 [45]:

$$\frac{M}{H^{1/\delta}} = h\left(\frac{\varepsilon}{H^{1/(\beta+\gamma)}}\right), \quad (12)$$

其中 h 是归一化函数. 这样, 在 T_C 附近的 $M(H)$ 曲线经过重新标度后, 会归一化到一条统一的、普适

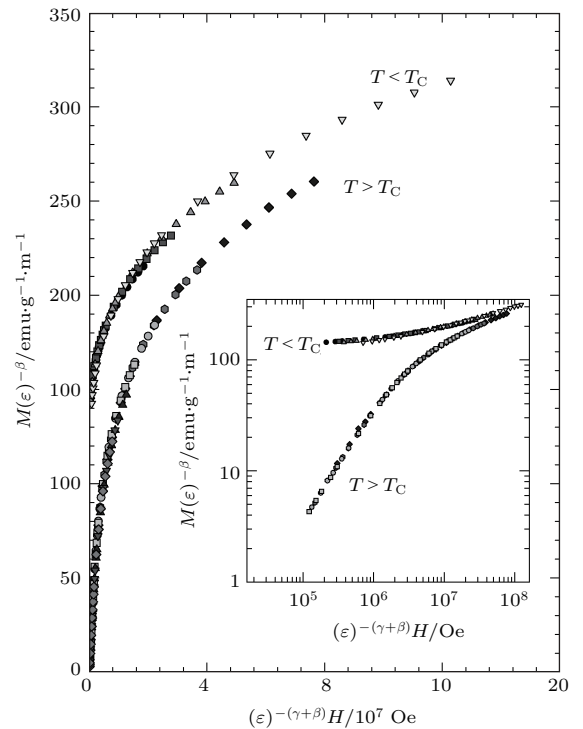


图 2 $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ 中等热 $M(H)$ 曲线在临界温区的标度行为 [46]

Fig. 2. The scaling of isothermal magnetization $M(H)$ of $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ below and above T_C [46].

的曲线上, 如图 3 所示. 在这条普适的曲线上, T_C 恰好落在重新标度后的零点处, 零点以下对应 T_C 温度以下的 $M(H)$ 曲线, 而零点以上对应的是 T_C 温度以上的 $M(H)$ 曲线. 可见, 临界温区的 $M(H)$ 行为可以用一种统一的规律去描述, 这种标度反映了体系的一种普适性行为.

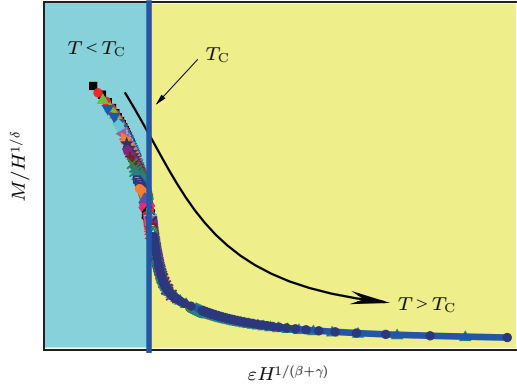


图 3 等热 $M(H)$ 曲线在临界温区的普适性标度
Fig. 3. The scaling of isothermal magnetization $M(H)$.

2.3 Arrott 图

按照朗道平均场相变 (Landau mean-field phase transition) 理论, 对于一个磁性体系, 在接近相变温度时, 体系的自由能 F 为 [47,48]

$$F(M) = -HM + a \frac{T - T_C}{T_C} M^2 + bM^4 + \dots, \quad (13)$$

其中 a 和 b 是和温度无关的常数. 而在能量最小化的条件下 $[\partial F(M)/\partial M = 0]$, 磁性方程演变为 [47,48]

$$M^2 = \frac{1}{4b} \frac{H}{M} - \frac{a}{2b} \epsilon. \quad (14)$$

也就是说, 在朗道平均场条件下, 把 $M(H)$ 曲线关系变为 M^2 对 H/M 的关系, 则 M^2 对 H/M 的关

系呈线性, 并且在临界点附近会形成彼此平行的一系列直线, 而在 T_C 处的 $H/M - M^2$ 线恰好经过零点. M^2 对 H/M 的关系即构成 Arrott 图 [47-50]. 一般而言, 在 Arrott 图中, T_C 温度以上的 $M^2 - H/M$ 关系在 y 坐标轴上的截距为负; T_C 温度以下的 $M^2 - H/M$ 的关系在 y 坐标轴上的截距为正, T_C 点的 $H/M - M^2$ 的关系恰好经过零点. 并且, 按照 Banerjee 判据, Arrott 图中 M^2 对 H/M 关系的斜率 (S) 反映了相变的类型 [50]. 斜率为正 ($S > 0$), 说明相变是二级相变, 也即连续相变. 而斜率为负 ($S < 0$), 表明相变为一二级相变, 如图 4 所示. 研究表明, 掺杂、磁场、压力等手段可以抑制体系的一级相变从而转变为二级相变. 在钙钛矿锰氧化物 $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ 中, 随着 Sr 掺杂, Arrott 图中的斜率由负值 ($x = 0$) 变为正值 ($x = 0.05$). 这表明随着 Sr 掺杂, 体系的相变由一级相变转变为二级相变 [51]. 事实上, 在 $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ 体系中, 通过 Sr 掺杂, 逐渐的抑制了 $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ ($x = 0$) 中的一级相变, 使得一级相变转变为二级相变. 并且, 在一级相变和二级相变的交界处, 出现了一个三重临界点. 通过 Arrott 图, 可以对相变进行初步分析, 判断磁相变是否属于连续相变, 并且大致确定临界点的温度.

3 临界指数的获得方法

对于磁性相变, 临界指数可以反映出磁有序类型、相干长度、关联距离等信息, 是揭示磁性材料中自旋之间相互作用内在机制的重要参数. 因此, 临界指数的获得, 对研究磁性相变具有重要的物理意义. 本文介绍两种通过磁性测量手段获得临界指数的方法.

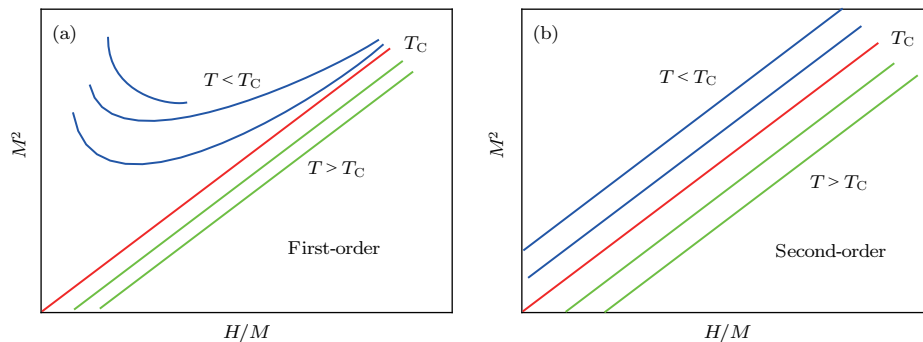


图 4 (a) 一级相变和 (b) 二级相变的 Arrott 图 Arrott 图的斜率由负 ($S < 0$) 变为正 ($S > 0$), 体系的相变由一级相变转变为二级相变
Fig. 4. The Arrott plot of M^2 vs. H/M for the (a) first- and (b) second-order phase transitions: the slope changes from $S < 0$ to $S > 0$ indicating the order of phase transition changes from first-order to second order.

3.1 直流磁性迭代法

对于二级铁磁相变(连续相变), 更一般的情况下, 在临界温区附近, 等热 $M(H)$ 曲线符合 Arrott-Noakes 状态方程 [52]:

$$(H/M)^{1/\gamma} = (T - T_C)/T_C + (M/M_1)^{1/\beta}, \quad (15)$$

其中 M_1 为常数. 此方程也可以简化为 [53]

$$(H/M)^{1/\gamma} = A' + B'M^{1/\beta}, \quad (16)$$

其中 A' 和 B' 为参数. 在合适的临界指数下, $(M)^{1/\beta}-(H/M)^{1/\gamma}$ 的关系在高场下的行为是一系列互相平行的直线, 如图 5(a) 所示 [53]. 并且, A' 为一条在 T_C 温度点穿过零点的直线, B' 为一条在 T_C 点达到最低点的曲线, 如图 5(b) 所示. 我们把 $(M)^{1/\beta}-(H/M)^{1/\gamma}$ 关系叫做修正的 Arrott 图(modified Arrott plot, MAP) [52]. 事实上, Arrott 图是 MAP 图的一种特殊的形式. 在朗道平均场条件下, 临界指数为 $\beta = 0.5, \gamma = 1.0$. 因此 $(M)^{1/\beta}-(H/M)^{1/\gamma}$ 关系退变为 $(M)^2-(H/M)$, 这正是 Arrott 图的一般形式. 可见 Arrott 关系是 Arrott - Noakes 状态方程在朗道平均场条件下的特殊形式.

和磁性参量相关的临界指数有 β, γ, δ , 其中 β 是和自发磁化强度 (M_S) 相关的临界指数, γ 是和初始磁化率 (χ_0) 相关的临界指数, δ 是和临界点 (T_C) 相关的临界指数. 对于临界指数 β, γ, δ , 在临界温度附近符合下列磁性方程 [45,54]:

$$M_S(T) = M_0(-\varepsilon)^\beta, \quad \varepsilon < 0, \quad T < T_C, \quad (17)$$

$$\chi_0(T)^{-1} = (h_0/M_0)\varepsilon^\gamma, \quad \varepsilon > 0, \quad T > T_C, \quad (18)$$

$$M = DH^{1/\delta}, \quad \varepsilon = 0, \quad T = T_C, \quad (19)$$

其中 M_S 为自发磁化强度; χ_0 为初始磁化率; $\varepsilon = (T - T_C)/T_C$ 为约化温度; h_0, M_0, D 是临界磁振幅. 由 Arrott-Noakes 状态方程(即方程(15))可知, $(M)^{1/\beta}-(H/M)^{1/\gamma}$ 呈线性关系. 而 $M^{1/\beta}$ 在纵坐标轴上的截距是 $(M_S)^{1/\beta}$, 和自发磁化强度相关; $(H/M)^{1/\gamma}$ 在横坐标轴上的截距正是 $(\chi_0^{-1})^{1/\gamma}$, 和初始磁化率的倒数相关. 如果我们把等热 $M(H)$ 曲线的关系变为 $(M)^{1/\beta}-(H/M)^{1/\gamma}$, 那么, 我们可以利用横坐标和纵坐标的截距分别得到 M_S 和 χ_0^{-1} 对于温度 T 的关系, 即 $M_S(T)$ 和 $\chi_0^{-1}(T)$.

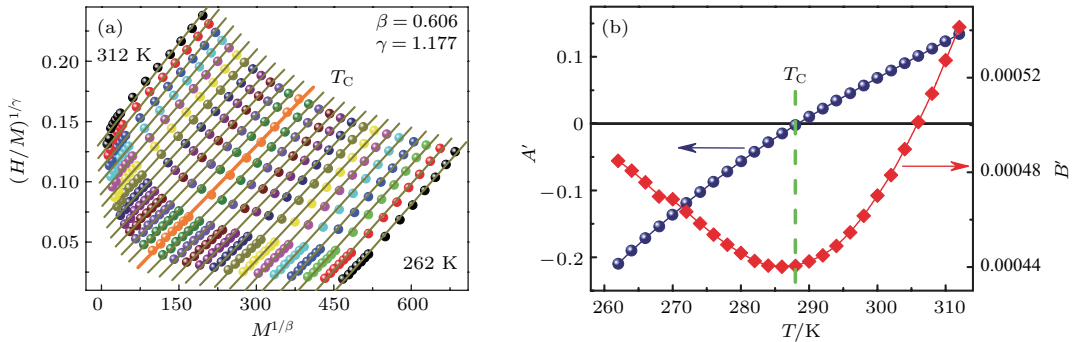


图5 反钙钛矿 AICMn₃ 的 MAP 以及参数 A' 和 B' 随温度的变化 [53]

Fig. 5. The MAP of the antiperovskite AICMn₃ and the temperature dependence of parameters of A' and B' [53].

但是, 在实际情况中, 往往预先不知道体系的临界指数, 很难直接获得 $M_S(T)$ 和 $\chi^{-1}(T)$ 的关系. 因此可以用迭代法进行多次迭代拟合, 最后得出临界指数 [56]. 运用迭代法拟合之前, 要先选一组合适的初始参数. 这时需要先对体系中的磁性相互作用做初步的分析, 比如材料可能所具有的空间维度、自旋维度、最近邻自旋耦合强度、次近邻自旋耦合强度等. 根据已有的自旋之间的耦合信息, 选择几种比较接近的理论模型, 把其临界指数作为初始参数进行尝试. 把这几种理论

模型的临界指数代入材料的等热 $M(H)$ 中, 做出所对应的 $(M)^{1/\beta}-(H/M)^{1/\gamma}$ 关系, 即 MAP 图, 如图 6(a)–(c) 所示. 根据 Arrott-Noakes 状态方程和 MAP 图可知, 在临界温度区域 $(M)^{1/\beta}-(H/M)^{1/\gamma}$ 关系呈一系列平行的直线. 因此, 合适的临界指数使得 $(M)^{1/\beta}-(H/M)^{1/\gamma}$ 关系在高场下呈一系列彼此平行的直线. 通过线性拟合高场下的数据, 可以得到每个温度点 $(M)^{1/\beta}-(H/M)^{1/\gamma}$ 关系的斜率 (S). 为了获得最接近的初始参数, 再定义一个归一化斜率 NS , 其中 $NS = S(T)/S(T_C)$. 然后把不

同模型获得的 NS 相对于温度的曲线进行比较. 我们知道, 对于一个理想的模型, $(M)^{1/\beta}-(H/M)^{1/\gamma}$ 关系呈一系列彼此平行的直线, 因此每条 $(M)^{1/\beta}-(H/M)^{1/\gamma}$ 关系具有相同的斜率, 并且和 T_C 温度的 $(M)^{1/\beta}-(H/M)^{1/\gamma}$ 的斜率相等. 因此, 对于理想情

况, 归一化斜率 NS 随温度应该是不变的, 并且其数值等于“1”. 据此可知, 最接近材料实际的理论模型所获得的 NS 应该最接近于“1”, 如图 6 (d) 所示. 通过这种方法, 可以确定一个比较接近材料实际磁性相互作用的初始临界指数 [55].

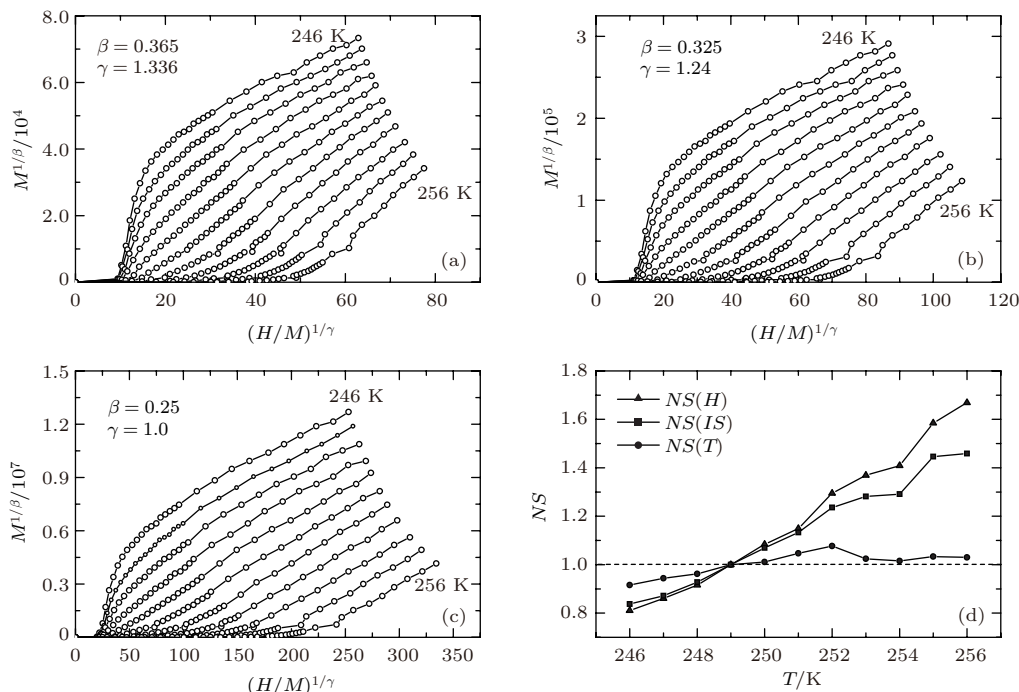


图 6 不同模型下的 MAP 图以及归一化斜率 NS 随温度的变化 [55]

Fig. 6. The MAP based on different models and the temperature dependence of the normalized slopes NS [55].

获得了初始的临界指数后, 就可以对磁化曲线进行迭代法拟合. 以初始的临界指数为基础, 重新对临界点温区的等热 $M(H)$ 曲线做图, 得到 MAP 图, 即 $(M)^{1/\beta}-(H/M)^{1/\gamma}$ 关系, 分别截取纵坐标截距 Y_0 和横坐标的截距 X_0 . 从前面的分析可知, $M_S = (Y_0)^\beta$, $(X_0^{-1}) = (X_0)^\gamma$, 如图 7 所示. 这样, 可以得到一组 M_S 和 X_0^{-1} 对于温度 T 的关系, 即 $M_S(T)$ 和 $X_0^{-1}(T)$. 利用方程 (17) 和 (18), 对 $M_S(T)$ 和 $X_0^{-1}(T)$ 关系进行拟合, 得出一组指数 β 和 γ . 然后用获得的 β 和 γ 再做出体系的 MAP 图, 再次利用截距得出 $M_S(T)$ 和 $X_0^{-1}(T)$ 关系. 再次对 $M_S(T)$ 和 $X_0^{-1}(T)$ 进行拟合后, 得出另外一组指数 β 和 γ , 如图 7 所示. 如此, 经过反复迭代. 当 β 和 γ 基本不变时, 得出最终结果, 此结果最接近材料的实际临界指数 [55]. 可以看出, 经过反复迭代, β 和 γ 最终结果对初始参数的依赖不大. 如果初始参数选择接近于最终的拟合结果, 则迭代的次数少. 如果初始参数选择偏离最终拟合结果较大, 则经过多次迭代, 得到的最终结果偏差也并不会很大, 只是

迭代次数较多, 计算量增加.

更进一步, 为了得到更精确的得到临界指数, 还可以用 Kouvel-Fisher (KF) 方法进行拟合. 对方程 (17) 和 (18) 两边微分, 可以得到 [56]:

$$\frac{M_S(T)}{dM_S(T)/dT} = \frac{T - T_C}{\beta}, \quad (20)$$

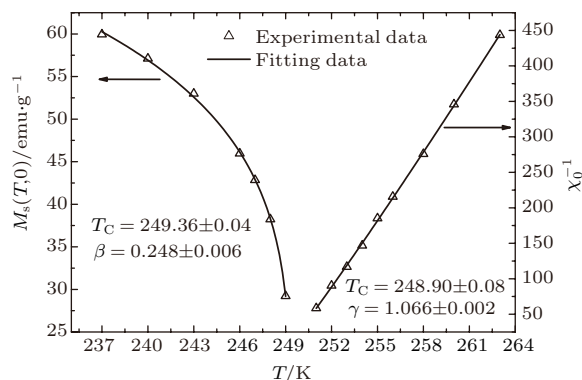


图 7 利用迭代法对 $M_S(T)$ 和 $X_0^{-1}(T)$ 进行拟合 [55]

Fig. 7. The fitting of $M_S(T)$ and $X_0^{-1}(T)$ by the iterative method [55].

$$\frac{\chi_0^{-1}(T)}{d\chi_0^{-1}(T)/dT} = \frac{T - T_C}{\gamma}. \quad (21)$$

可以看出, $\frac{M_S(T)}{dM_S(T)/dT}$, $\frac{\chi_0^{-1}(T)}{d\chi_0^{-1}(T)/dT}$ 对 T 的关系中应该呈直线, 而斜率 k 分别为 $1/\beta$ 和 $1/\gamma$. 因此, 可以分别对 $M_S(T)/[dM_S(T)/dT]-T$ 和 $\chi_0^{-1}(T)/[d\chi_0^{-1}(T)/dT]-T$ 关系进行线性拟合, 从而得出临界指数 β 和 γ , 如图 8 所示 [55].

临界指数 δ 和临界点 T_C 的 $M(H)$ 相关, 可以由临界点的等热 $M(H)$ 直接得到. 根据方程 (19), 方程两边取对数可以得到 $\log(M)-\log(H)$ 为线性关系 (或者是 $\ln(M)-\ln(H)$ 关系), 而斜率为 $1/\delta$. 因此, 直接对 $\log(M)-\log(H)$ 关系 (或 $\ln(M)-\ln(H)$ 关系) 进行线性拟合, 即可以得到 $1/\delta$ [45,54]. 图 9 为临界点的等热 $M(H)$ 关系和 $\ln(M)-\ln(H)$ 关系, 可见 $\ln(M)-\ln(H)$ 为线性.

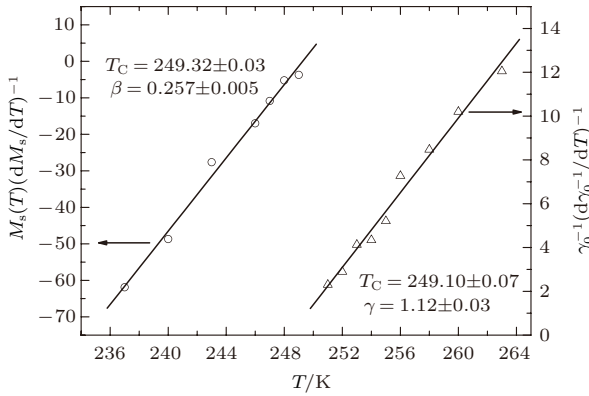


图 8 利用 KF 法拟合的临界指数 [55]

Fig. 8. The linear fitting of the critical exponents obtained by KF method [55].

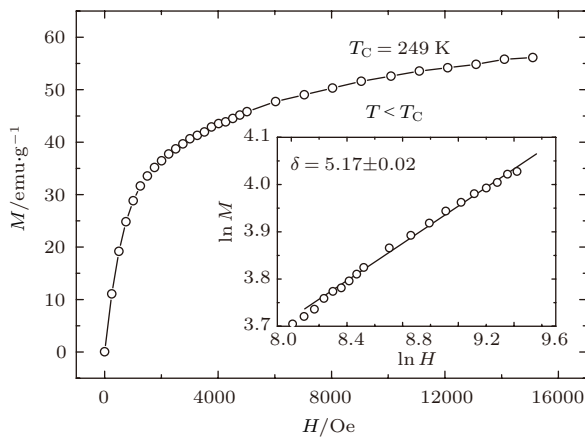


图 9 在临界点 T_C 的等热 $M(H)$ 曲线 (插图为 $\ln(M)-\ln(H)$ 关系线性拟合得到 δ 值) [55]

Fig. 9. The isothermal magnetization $M(H)$ at the critical temperature T_C (the inset shows the value of δ from linear fitting of $M(H)$ on $\ln-\ln$ scale [55]).

3.2 磁熵变法

当磁相变发生时, 体系的磁熵 (S_M) 就会发生变化. 磁熵是反映体系自旋有序度的物理量, 而磁熵变反映了体系相变的剧烈程度. 相变越剧烈, 磁熵的变化越大. 磁熵变 (ΔS_M) 的定义为 [57]

$$\Delta S_M = \int_0^H \left(\frac{\partial M}{\partial T} \right)_H dH. \quad (22)$$

我们知道, 磁化强度 M 在临界点附近符合 Arrott-Noakes 状态方程 (方程 (15)). 此方程可以变形为 [58]

$$H^{1/\gamma} = a(T - T_C)M^{1/\gamma} + bM^{1/\beta+1/\gamma}. \quad (23)$$

对变形的 Arrott-Noakes 状态方程两边进行微分, 可以得到 [58]

$$\left. \frac{\partial M}{\partial T} \right|_{T=T_C} = \frac{-a\beta\gamma}{b^{(\beta+\gamma\beta)/(\beta+\gamma)}(\beta+\gamma)} \times H^{(\beta-1)/(\beta+\gamma)}. \quad (24)$$

把方程 (24) 代入磁熵变的定义式方程 (22) 中, 经过简化, 可以得到在临界点 T_C 处的关系式为 [58]

$$\Delta S_M \Big|_{T=T_C} = \frac{-a\beta\gamma}{b^{(\beta+\gamma\beta)/(\beta+\gamma)}(2\beta+\gamma-1)} \times H^{(\beta-1)/(\beta+\gamma)+1}. \quad (25)$$

由 (25) 式可知, 在 T_C 处的磁熵变值是一个关于外磁场 H 和临界指数的函数. 简化该方程式, 可以得出在 T_C 处磁熵变随外磁场 H 和临界指数的关系为 [58]:

$$|\Delta S_M^{PK}| \propto H^n, \quad (26)$$

$$n = 1 + \frac{\beta-1}{\beta+\gamma}. \quad (27)$$

可以看出, 磁熵变和磁场之间存在指数关系, 而这一指数由临界指数所决定. 事实上, 不仅仅是磁熵变的最大值和外磁场有关系, 其半高全宽 (δ_{FWHM})、相对制冷率 (relative cooling power, RCP) 等参数均和磁场存在指数关系 [59,60]. 表 1 给出了磁熵变的参量和外磁场的指数关系.

利用磁熵变及其参数和磁场的关系, 也可以得到临界指数. 磁熵变曲线可以从实验上测量获得. 实验上先测量出不同磁场下体系的磁熵变曲线, 如图 10 (a) 所示. 磁熵变曲线一般在 T_C 处达到最大值, 并且磁熵变曲线随磁场的变化而变化. 提取磁熵变的最大值、半高全宽、RCP 等参量, 它们都随外磁场 H 呈不同的指数关系, 不同的临界指数决定

不同的指数, 如图 10(b) 所示. 用指数关系对磁熵变的参量进行拟合, 结合磁熵变随磁场变化的指数

表 1 磁熵变曲线的参数和磁场的指数关系 [59]

Table 1. The exponent relations between the parameters of the magnetic entropy change and the external field (parameter $\propto H^{\text{exponents}}$) [59].

Parameter	Exponent
T_r	$1/\Delta$
$T_{PK} - T_C$	$1/\Delta$
$T_{PK} - T_C$	
$\Delta S_M(T = T_C)$	$1 + 1/\delta(1 - 1/\beta) = (1 - \alpha)/\Delta$
$\Delta S \frac{PK}{M}$	$1 + 1/\delta(1 - 1/\beta) = (1 - \alpha)/\Delta$
RC_{Area} or RC_{FWHM}	$1 + 1/\delta$

所涉及指数与临界指数相关

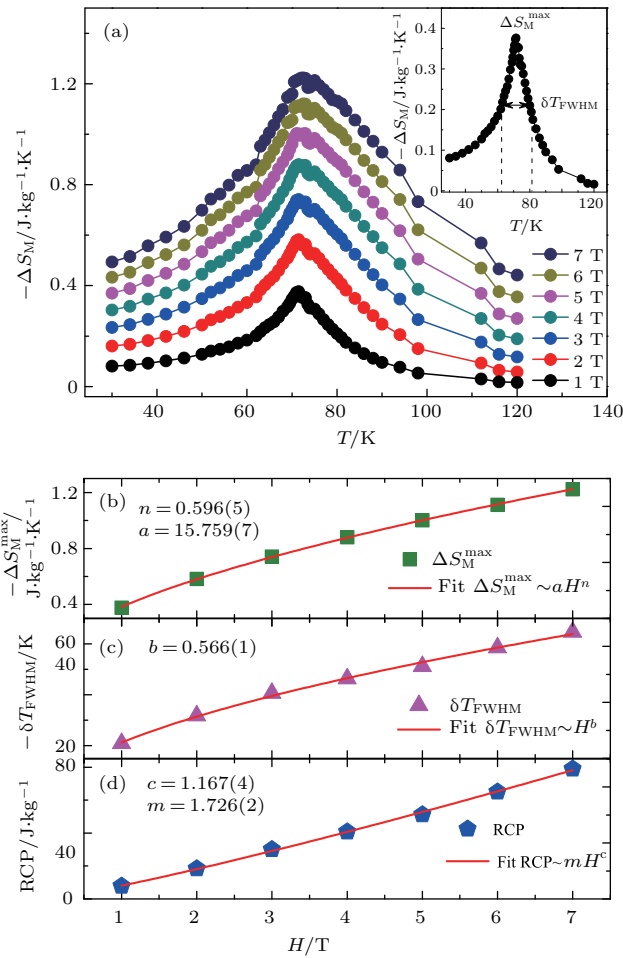


图 10 (a) 巡游铁磁 $Cr_{11}Ge_{19}$ 在不同磁场下相变的磁熵变曲线; (b)–(d) 磁熵变参数随外磁场的变化曲线以及拟合结果 [61]
Fig. 10. The $\Delta S_M(T, H)$ curves of the itinerant ferromagnetic $Cr_{11}Ge_{19}$: (a) The temperature dependence of $\Delta S_M(T, H)$ curves under different field (the inset shows the parameters); (b)–(d) the temperature dependence of parameters fitted by the exponent relation [61].

关系, 就可以从实验上拟合得出 n . 根据方程 (26) 和 (27), n 由临界指数 β, γ 所决定. 另一方面, 结合 Widom's law (即方程 (8)), 最后可得出临界指数 [60,61].

磁熵变曲线的参数的变化和临界指数密切相关. 利用磁熵变的参数随外磁场的关系, 可以得出临界指数. 而获得的临界指数也可以对磁熵变曲线进行普适性标度. 先定义一个简化温度 θ (reduced temperature) 和一个参考温度 T_r . 简化温度 θ 的定义为 [59]

$$\theta = \begin{cases} \theta_+ = (T - T_C)/(T_{r2} - T_C), & T > T_C, \\ \theta_- = (T_C - T)/(T_{r1} - T_C), & T \leq T_C, \end{cases} \quad (28)$$

其中 T_{r1} 和 T_{r2} 为参考温度, 其定义为

$$\Delta S_M(T_{r1}, T_{r2}) = \frac{1}{2} \Delta S_M^{\max}.$$

一般情况下, 当 $T = T_{r1}$ 时, $\theta = -1$ ($T < T_C$); 当 $T = T_{r2}$ 时, $\theta = +1$ ($T > T_C$). 如果磁熵变曲线左右对称, 则 $|T_{r1} - T_C| = |T_C - T_{r2}|$, 也就是说 T_{r1} 和 T_{r2} 对称地分布于 T_C 的两边. 很多情况下, 由于退磁能、形状效应等影响, 磁熵变曲线左右不对称. 在这种情况下, 则 $|T_{r1} - T_C| \neq |T_C - T_{r2}|$, 也就是说 T_{r1} 和 T_{r2} 不对称, 要分别定义两个 T_r (即 T_{r1} 和 T_{r2}). 横坐标则归一化为 $\Delta S_M/\Delta S_M^{\max}$. 这样就可以对不同磁场下的磁熵变曲线进行普适性标度, 如图 11(a) 所示. 经过普适性标度后, 不同磁场下的磁熵变曲线统一为一条普适的曲线, 而这条曲线只由材料的本质磁性决定, 和测量条件无关. 进一步结合临界指数, 对磁熵变进行标度, 如图 11(b) 所示. 同样, 经过标度后, 不同磁场下的磁熵变统一为一条普适的曲线.

磁熵变的普适性标度可以用来对实验上的磁熵变进行外延性计算. 既然对于同一种材料, 磁熵变曲线可以标度为一条普适统一的曲线, 那么就可以拟合出这条曲线. 依据这条普适的曲线, 就可以计算出不同磁场和温度下的磁熵曲线, 并可以延伸到实验室条件以外的点. 如图 12 所示, 图中的点为实验测量的数据, 而曲线是根据普适曲线计算的数值. 可见, 计算的曲线已经延伸到测量的范围之外. 这样, 我们只要知道了一个已知材料的磁熵变普适性曲线, 就可以对任意温度和磁场下的磁熵变数值进行外推计算 [62].

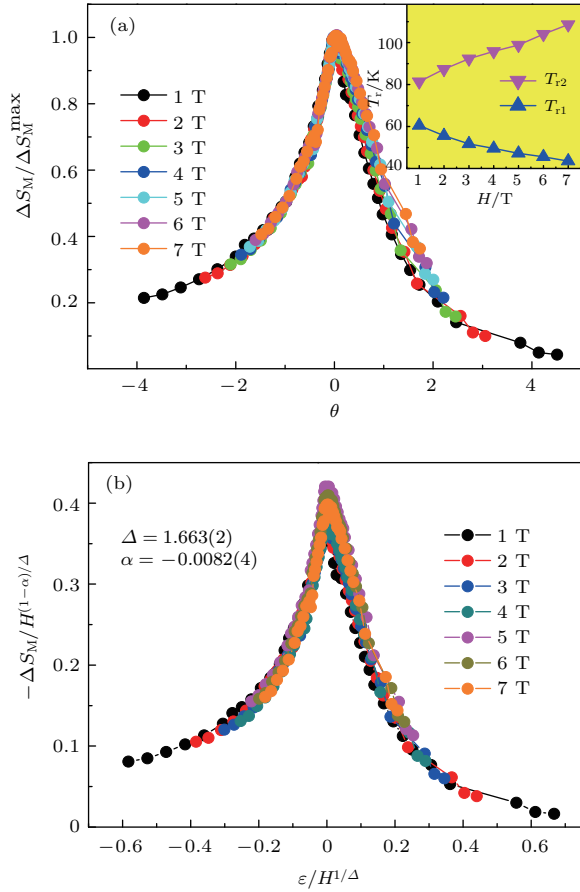


图 11 利用临界指数对 $\text{Cr}_{11}\text{Ge}_{19}$ 的磁熵变曲线进行普适性标度 [61]

Fig. 11. Scaling of the $\Delta S_M(T, H)$ curves: (a) The normalized $\Delta S_M(T, H)$ as a function of θ (the inset gives T_{r1} and T_{r2} as a function of H); (b) scaled $\Delta S_M(T, H)$ vs. scaled temperature using critical exponents [61].

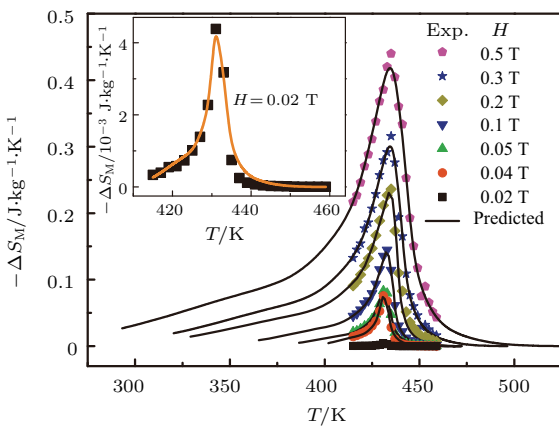


图 12 尖晶石 CuCr_2Se_4 中利用普适性曲线对磁熵变的外延计算 [62]

Fig. 12. Comparison of the experimental $\Delta S_M(T, H)$ (scattering symbols) and predictions (solid curves) using the universal curve for the spinel selenide CuCr_2Se_4 (the inset shows the magnification of $\Delta S_M(T, H)$ for $H = 0.02$ T) [62].

磁熵变的普适性标度, 可以用来判断相变. 如果磁熵变可以被标度为一条普适的曲线, 说明相变是二级相变. 反之, 如果磁熵变不能被标度为统一的曲线, 出现发散的情况, 则说明该相变为一级相变. 如图 13 所示, 对 MnSi 在不同磁场下的磁熵变曲线进行标度, 发现在低场下其磁熵变不能被标度为普适的曲线, 即在低场下是发散的. 这说明 MnSi 中的磁相变在低场下不是二级相变. 实际 MnSi 在低场下的磁相变是一个由涨落导致的弱一级相变 [63].

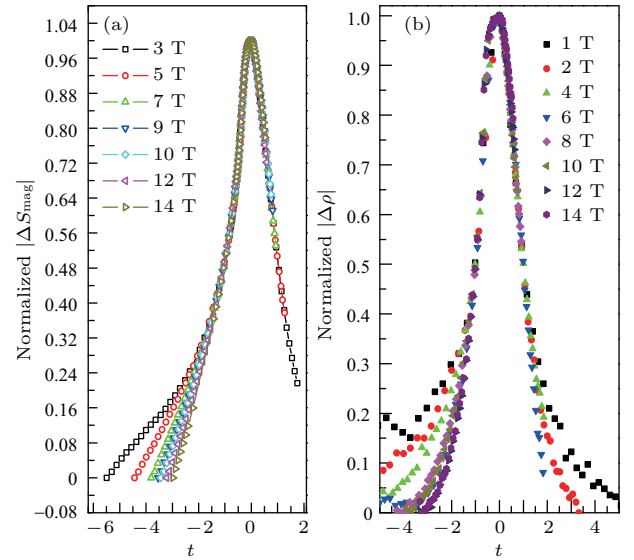


图 13 对 MnSi 的磁熵变曲线进行普适性标度, 低场的发散说明 MnSi 在低场的相变不是二级相变 [63]

Fig. 13. The universal scaling of the $\Delta S_M(T, H)$ curves for MnSi, the divergence at low field indicates that the phase transition is not a second-order one [63].

4 斯格明子体系的临界行为

4.1 MnSi

具有 B20 立方结构的 MnSi, 属于 $P2_13$ 空间群, 是最早被发现具有斯格明子相的材料. 早期的研究发现, 当温度接近居里温度时, 在居里温度以下特定的磁场-温度区间内会出现一个反常的磁有序相, 最初被称为 A 相 [22-25]. 随后的中子衍射实验, 证明了 A 相正是具有拓扑性的斯格明子相 [1]. 而利用洛伦兹透射电子显微镜, 可以直接在实空间中观察到 MnSi 中高度稳定的斯格明子相 [7]. 事实上, 除了斯格明子的发现, MnSi 一直是一个备受关注的热门材料. MnSi 中具有很多其他奇特的物理性质, 如巡游铁磁性、非费米液体行为、量子磁相变等. MnSi 具有丰富的磁相互作用, 其相图也

很复杂^[64–67]. 在零磁场条件下, MnSi在低温下呈现出螺旋磁有序的基态, 随着温度的升高, 螺旋磁有序逐渐被极化为锥形磁有序. 随着温度的升高, MnSi在 $T_C \sim 30.5$ K发生磁有序到顺磁的转变. 而斯格明子相就出现在 T_C 以下很窄的磁场温度区间内($B \sim 1\text{--}2$ kOe, $T \sim 27\text{--}29.5$ K)^[68–71].

按照Brazovskii的理论预言^[72], 在零磁场下, MnSi中从顺磁态到螺旋磁有序的相变是一个由临界涨落引起的一级相变. 而随后的中子散射实验、重整化群理论和蒙特卡罗计算均证明了这一结论. 实验证明, 外磁场、压力等可以抑制这个弱的一级相变, 使其变为二级相变. 而在一级相变、二级相变以及顺磁相变的边缘处, 会形成一个三重临界点. 因此, 对MnSi的临界行为和临界指数进行研究, 可以揭示其中复杂的磁相互作用和多种相的竞争^[73,74].

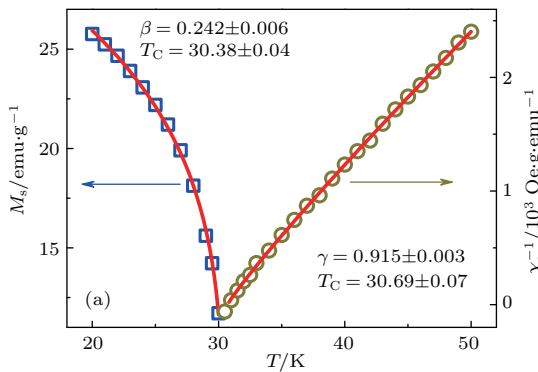
采用磁化率迭代法, 对MnSi单晶样品磁相变的临界行为进行拟合, 得到临界指数. 经过拟合, 得到MnSi中和磁性相关的临界指数为 $\beta = 0.242(6)$, $\gamma = 0.915(3)$, $\delta = 4.734(6)$, 如图14所示^[73]. 这一结果非常符合三重临界平均场行为($\beta = 0.25$, $\gamma = 1.0$, $\delta = 5.0$). Samatham等也利用磁熵变法, 对多晶MnSi的临界指数进行了拟合. 实验上得出MnSi的磁熵变曲线, 再对磁熵变的参数进行拟合. 它们利用磁熵变和磁场之间的指数关系包括^[63]:

$$|\Delta S_{\text{mag}}|^{\text{peak}} \propto H^n, \quad (29)$$

$$RCP \propto H^{1+\frac{1}{\delta}}, \quad \Delta = \beta\delta, \quad (30)$$

$$n = 1 + \frac{1}{\delta} \left(1 - \frac{1}{\beta}\right), \quad (31a)$$

$$n = 1 + \frac{(\beta - 1)}{(\beta + \gamma)}, \quad (31b)$$



$$\frac{\Delta S_{\text{mag}}}{a_H} = H^n s \left(\frac{t}{H^{1/\Delta}} \right). \quad (32)$$

拟合得出的结果为 $\beta = 0.25(2)$, $\gamma = 1.29(2)$, $\delta = 6.18(2)$, 如图15所示^[63]. 此外, Chattopadhyay等^[74]也用MAP方法对MnSi多晶样品的指数进行了拟合, 它们得到的结果是 $\beta = 0.238(1)$, $\gamma = 1.20(1)$, $\delta = 6.10(1)$. 用不同方法所得到的临界指数列于表2中进行对比. 虽然使用不同的方法和不同样品所拟合的结果稍有差别, 单晶和多晶等晶体质量也会对拟合结果造成一定的误差, 但是总体上MnSi的临界指数接近三重临界平均场理论所预言的临界指数值($\beta = 0.25$, $\gamma = 1.0$, $\delta = 5.0$). MnSi的临界指数说明其临界行为符合三重临界平均场行为.

MnSi的三重临界平均场临界行为, 说明MnSi中的自旋耦合属于长程相互作用. 对于一个均匀磁性体系, 自旋相互作用的衰减距离 J 决定磁相变的普适性. Fisher等从理论上把这种相互作用当做两个自旋相互吸引, 按照重整化群理论, 作用距离 J 随着空间距离 r 衰减, 而这个衰减函数 $J(r)$ 可以写成^[75–77]:

$$J(r) \sim r^{-(d+\sigma)}, \quad (33)$$

其中 d 代表材料的空间维度 (spatial-dimensionality), σ 是临界指数. 并且 σ 和 γ 的关系为^[76–78]

$$\gamma = 1 + \frac{4}{d} \left(\frac{s+2}{s+8} \right) \Delta\sigma + \frac{8(s+2)(s-4)}{d^2(s+8)^2} \times \left[1 + \frac{2G \left(\frac{d}{2} \right) (7s+20)}{(s-4)(s+8)} \right] \Delta\sigma^2 + \dots, \quad (34)$$

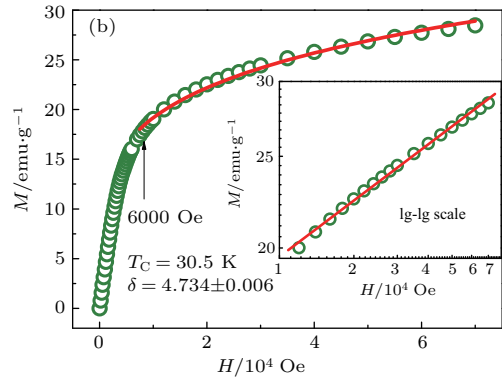


图14 用迭代法拟合MnSi的临界指数^[73]

Fig. 14. The critical exponents obtained by an iterative method^[73].

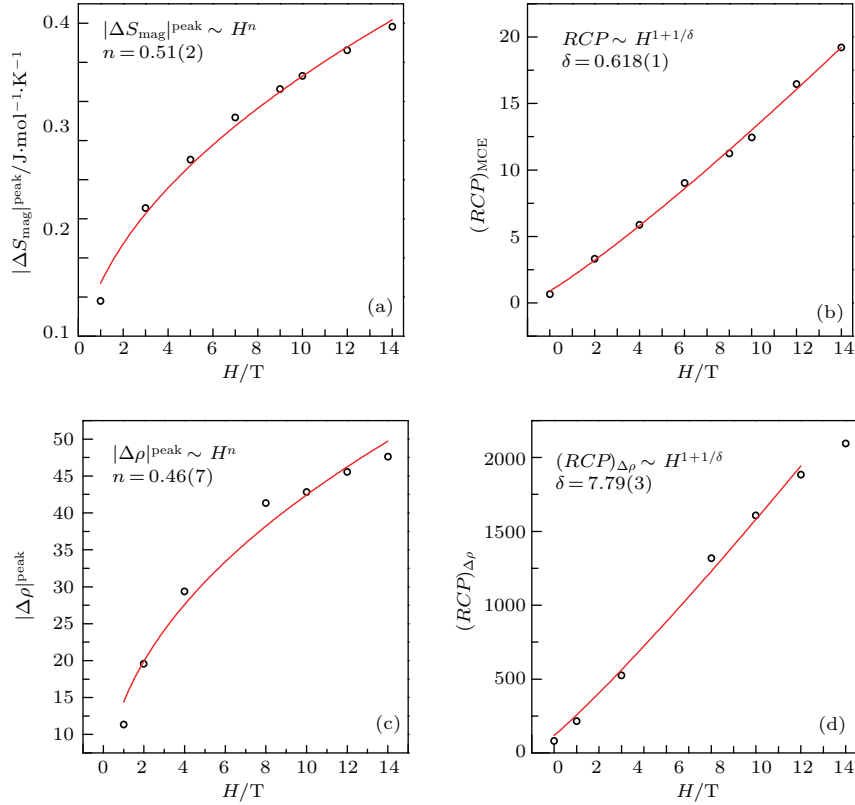

 图 15 利用磁熵变和磁场的关系拟合 MnSi 的临界指数^[63]

 Fig. 15. The critical exponents of MnSi fitted by the exponent relation between magnetic entropy change and the field^[63].

其中 $\Delta\sigma = \left(\sigma - \frac{d}{2}\right)$, $G\left(\frac{d}{2}\right) = 3 - \frac{1}{4}\left(\frac{d}{2}\right)^2$; s 表示自旋相互作用的维度 (spin-dimensionality). 忽略方程 (34) 中的高阶无穷小, 可以做近似计算. 忽略高阶项后, 可以得到近似结果为

$$\gamma = 1 + \frac{4}{d} \left(\frac{s+2}{s+8} \right) \Delta\sigma + \frac{8(s+2)(s-4)}{d^2(s+8)^2} \times \left[1 + \frac{2G\left(\frac{d}{2}\right)(7s+20)}{(s-4)(s+8)} \right] \Delta\sigma^2. \quad (35)$$

这样, 根据 γ 就可以对材料的自旋作用的衰减函数进行分析. 一般而言, 对于一个三维体系有 $d = 3$, 则衰减函数 $J(r) \sim r^{-(3+\sigma)}$. 对于 $\sigma \geq 2$, 体系的磁性耦合属于三维海森伯相互作用, $J(r)$ 的衰减函数小于 $J(r) \sim r^{-5}$, 也就是说体系的磁性耦合属于各向同性的短程相互作用, 自旋和自旋之间相互作用随空间距离衰减的快. 而对于 $\sigma \leq 2/3$, 体系磁性耦合属于平均场相互作用, $J(r)$ 的衰减函数大于 $J(r) \sim r^{-4.5}$, 说明体系的磁性耦合属于长程的相互作用, 自旋和自旋之间相互作用随空间距离衰减的慢. 而 $J(r)$ 在 $r^{-4.5}$ 和 r^{-5} 之间, 则不能用一种单一的相互作用去描述自旋间的相互作用.

进一步, 可以对 MnSi 中的自旋耦合的衰减函数进行分析. 在 MnSi 中, γ 已经通过拟合获得, 而材料是一个三维的材料, 可以取 $d = 3$. 经过计算, 得到 MnSi 中自旋相互作用的衰减函数为 $J(r) \sim r^{-4.3}$, 这一结果揭示 MnSi 中的自旋相互作用随空间距离衰减的慢, 是属于一个长程的相互作用. 进一步, 可以得出其他的临界指数 $\nu = 0.688(9)$ ($\nu = \gamma/\sigma$), 这一结果非常接近于小角中子散射 small-angle polarized neutron scattering (SAPNS) 得到的结果 $0.62(1)$ ^[78]. 其中, ν 是和相干长度相关的临界指数 ($\xi = \xi_0[(T - T_C)/T_C]^{-\nu}$), 反映了相干长度在临界点的发散情况.

获得了体系的临界指数, 就可以对等热 $M(H)$ 磁化曲线进行重新标度, 这也是检验临界指数是否准确的手段之一. 如图 16(a) 所示, MnSi 的等热 $M(H)$ 曲线经过临界指数和标度方程的重新标度, 分开为 T_C 温度以上和 T_C 温度以下的独立的两支. 这两支曲线具有普适性, 即临界温区附近的所有温度点的等热 $M(H)$ 曲线经过标度后, 都落在了这两支上. 按照标度方程, 低场下的等热 $M(H)$ 曲线也应该落在这两支曲线上. 图 16(a) 插图给出了对

数坐标下的标度曲线, 对数坐标放大了低场下的曲线. 研究发现, T_C 以上所有的曲线在低磁场下仍然可以标度到一条曲线上. 但是, T_C 以下的实验点却呈现发散的趋势. 并且, 这种发散是很有规律的. 更进一步, 可以用重整化磁化强度 (m) 和重整化磁场 (h) 来使这种发散变得更明显. 如图 16(b) 所示, 从 m^2-h/m 的关系中可以看出, 在高场下等热 $M(H)$ 曲线是可以标度到一条线上, 而低场曲线开始有规律地发散. 我们把这些发散点所对应的磁场值和温度值以及相变的 T_C 提取出来, 做成 $H-T$ 关系, 如图 16(b) 中插图所示. 可以看出, 这些发散的点正是一级相变和二级相变的分界线. 在这条线的下方对应的是低磁场下的一级相变, 和理论预言的一致. 而在分界线上方是高磁场下的二级相变区域, 是被磁场抑制成的二级相变. 这条一级和二级

相变的分界线和顺磁相变的分界线相交的点, 正是三重临界点. 所谓三重临界点是指在相图中三种相交于一点, 在 MnSi 中, 这三相分别是螺旋磁有序相、锥形磁有序相、顺磁相. MnSi 中的三种临界点也可以由其他方法得到, 如比热法 [71]. 精确测量 MnSi 相变处的比热, 得到精细的相图, 如图 17 所示, 也可以得到 MnSi 的三重临界点. 利用临界分析方法所得到的三重临界点与比热得到的三重临界点一致.

在标度的过程中, 之所以出现这种发散是由于磁场诱导相变所导致的. 磁性随磁场的变化过程中发生了相变, 其磁化曲线也会随之发生变化. 反映在标度方程 (11) 上, 就是曲线斜率的突然变化. 这里所讨论的临界行为的方程 (11) 是应用于连续相变中, 即二级相变. 而对于一级相变, 这些方程不再

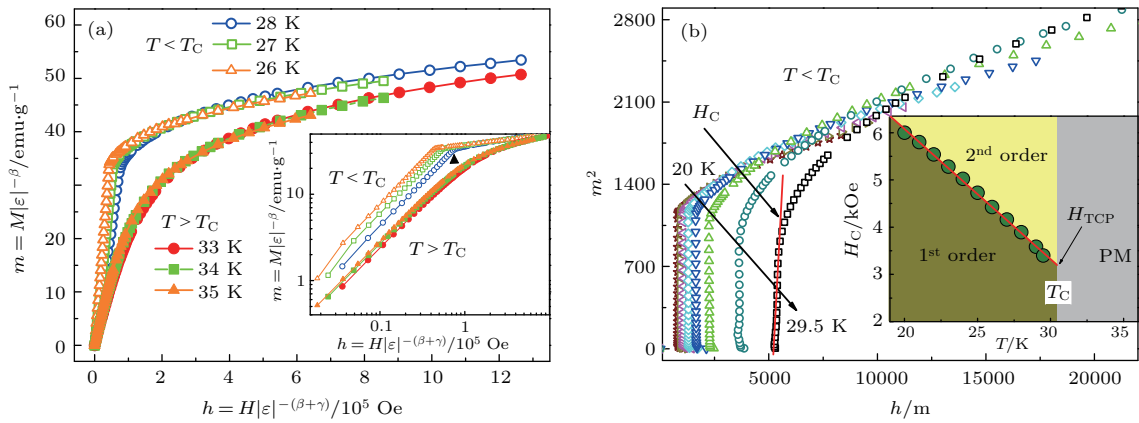


图 16 (a) 利用临界指数对 MnSi 的等热 $M(H)$ 曲线进行标度后的 $m(h)$ 关系; (b) T_C 温度以下的 m^2-h/m 关系 (插图为 MnSi 的三重临界点) [73]

Fig. 16. (a) Scaling plots of the renormalized magnetization m vs renormalized field h around the critical temperatures for MnSi; (b) m^2 vs. h/m below T_C in lower field region (the inset shows the tricritical point of MnSi) [73].

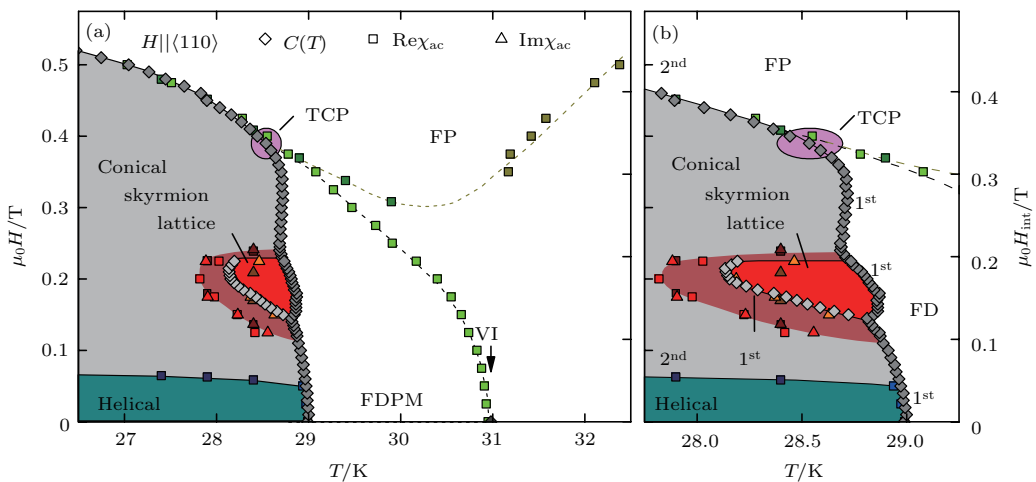


图 17 (a) 用比热法测定的 MnSi 相图; (b) 放大的相变区域和三重临界点的位置 [71]

Fig. 17. (a) Magnetic phase diagram of MnSi derived from the specific heat; (b) the enlarged section of panel (a) and the tricritical point [71].

表 2 与斯格明子相关的螺旋磁有序体系的临界指数以及几种理论模型的数值

Table 2. Comparison of critical exponents of the skyrmion materials with different theoretical models (MAP = modified Arrott plot; Hall = Hall effect; ND = neutron diffraction; AC = ac susceptibility; KF = Kouvel-Fisher plots; SC = single crystal; PC = polycrystal).

Composition	Technique	Ref.	T_C/K	β	γ	δ
MnSi ^{SC}	MAP	[73]	30.5	0.242(6)	0.915(3)	4.734(6)
MnSi ^{SC}	MCE	[57]	29.67	0.25(2)	1.29(2)	6.18(2)
MnSi ^{PC}	MAP	[74]	29.67	0.238(1)	1.20(1)	6.1(1) ^{cal}
MnSi ^{SC}	ND	[78]	28.82	0.221(1)	—	—
FeGe ^{PC}	MAP	[84]	283	0.336(4)	1.352(3)	5.267(1)
FeGe ^{SC}	KF	[85]	278.6	0.369(8)	1.337(9)	4.787(5)
Cu ₂ OSeO ₃ ^{SC}	AC	[91]	58.3	0.37(1)	1.44(4)	4.9(1)
Fe _{0.8} CO _{0.2} Si ^{PC}	Hall	[93]	36.0	0.371(1)	1.38(2)	4.78(1)
Fe _{0.7} CO _{0.3} Si ^{PC}	MAP	[94]	48.1(1)	0.387(3)	1.382(8)	4.678(1)
Fe _{0.5} CO _{0.5} Si ^{PC}	MAP	[94]	43.1(1)	0.357(6)	1.293(3)	4.574(2)
Fe _{0.4} CO _{0.6} Si ^{PC}	MAP	[94]	25.1(1)	0.331(2)	1.230(4)	4.452(1)
Fe _{1.0} Co _{0.5} Rh _{0.5} Mo ₃ N	MAP	[100]	120.6(9)	0.3756(5)	1.2848(6)	4.8178(8)
Fe _{0.5} Co ₁ Rh _{0.5} Mo ₃ N	MAP	[100]	84.7(6)	0.3796(1)	1.1901(7)	4.8363(1)
Fe _{0.3} Co _{1.2} Rh _{0.5} Mo ₃ N	MAP	[100]	37.2(9)	0.3802(1)	1.3184(3)	4.7621(7)
3D-Heisenberg	Theory	[105]	—	0.365	1.386	4.8
3D-XY	Theory	[105]	—	0.346	1.316	4.81
3D-Ising	Theory	[105]	—	0.325	1.24	4.82
Tricritical mean field	Theory	[70]	—	0.25	1.0	5.0
Mean field	Theory	[70]	—	0.5	1.0	3.0

有效, 因此会造成发散. 而在 MnSi 中, 低场下的相变是一级相变, 因此这些临界方程在低场是无效的. 而磁场抑制了一级相变, 在强磁场下表现出二级相变, 因此这些方程在高场下是有效的. 方程失效的地方正是造成标度曲线发散的地方. 因此, 利用这种发散, 恰好可以区分出一级相变和二级相变的边界 [73].

4.2 FeGe/Cu₂OSeO₃

我们知道, 如果要将斯格明子器件化, 其工作温度必须在室温附近. 而目前大部分的斯格明子材料的相变温度都很低, 并且斯格明子的产生需要一定的外磁场. 苛刻的温度和磁场条件, 极大地限制了其应用前景. 在目前所知的 B20 结构的斯格明子材料中, FeGe 具有最高的居里温度, 大约为 278 K 左右, 非常接近于室温. 块材的 FeGe 样品其相变温

度大约为 278.2 K, 而 FeGe 薄膜样品中, 在 275 K 温度下发现了斯格明子相, 其存在的磁场区域约为 0.15—0.4 kOe. 并且实验证明, FeGe 中的斯格明子可以被晶格所调控. 因此, FeGe 是最有潜力应用于存储材料的斯格明子材料之一. 除此之外, FeGe 还具有其他复杂的磁结构和磁相变. 比如在 T_C 温度以上发现了很强的自旋涨落, 造成了所谓的先驱现象. 更有趣的是, 在零磁场条件下, FeGe 的螺旋磁有序在 211 K 时发生自旋有序的再取向, 自旋取向从原来的 $\langle 100 \rangle$ 方向转变到沿着 $\langle 111 \rangle$ 方向 [79–83].

对 FeGe 的临界行为的研究有助于更好地揭示其中的自旋耦合机制, 从而为提高其相变温度和器件化奠定基础. 随着温度的降低, FeGe 在 285 K 左右就有顺磁-螺磁相变的迹象, 这与相变温区很强的涨落有关. 与其他的斯格明子材料类似, FeGe 在相变温度附近存在很强的涨落温区, 这一涨落区

域在 $T_C = 278.2(3)$ K 到 $T^* = 280$ K 之间. Zhang 课题组和 Wilhelm 课题组分别对多晶和单晶 FeGe 样品的临界行为进行了研究. 利用磁性迭代法, 获得的 FeGe 多晶样品的临界指数为 $\beta = 0.336(4)$, $\gamma = 1.352(3)$, $\delta = 5.276(1)$ [84]. 多晶的临界指数显示, FeGe 的临界指数很接近三维海森伯模型. 但是 β 的值比理论值偏小, 这可能预示着其中存在一定的各向异性相互作用. 随后, Wilhelm 等 [85] 对 FeGe 单晶样品进行了详细的研究, 获得的临界指数为 $\beta = 0.368(8)$, $\gamma = 1.382(9)$, $\delta = 4.787(5)$, 非常符合三维海森伯模型理论所给出的值, 说明 FeGe 中的自旋耦合属于各向同性的短程相互作用. 此外, 利用比热关系, 它们还获得了与有序度相关的临界指数 $\alpha = -0.133$. 这些结果更进一步证明了 FeGe 的临界行为属于三维海森伯相互作用, 如图 18 所示. 表 2 列出了不同课题组所获得的 FeGe 的临界指数. 但是, 单晶的临界行为并没有显示该体系有各向异性的相互作用, 说明各向异性的相互作用可能来自于多晶的不均匀性. Fan 等对用不同的模型和方法获得的 FeGe 的临界指数进行分析后, 又结合磁熵变对这一体系的临界行为进行了研究, 获得的临界指数为 $\beta = 0.378$, $\gamma = 1.436$, $\delta = 4.803$, 也确定其自旋耦合属于三维海森伯交换作用, 并且精确地确定了单晶样品的 T_C [86].

依据临界指数, 可以对 FeGe 的等热 $M(H)$ 曲线进行普适性标度. 根据标度方程 (11), FeGe 的等热 $M(H)$ 曲线可以被标度为普适的两条曲线, 分别

对应于相变温度以上和相变温度以下的 $M(H)$ 曲线. 经过标度后, FeGe 在临界点附近的等热 $M(H)$ 曲线分为两支, 如图 19 (a) 所示. 根据标度方程 (12), 可以进一步对等热 $M(H)$ 曲线进行标度. 经过普适性标度后, FeGe 的 $M(H)$ 曲线落入一条统一、普适的曲线上, 并且 T_C 恰好落在重新标度后的零点上 [84]. 可见, 经过标度后, FeGe 的等热 $M(H)$ 曲线是符合一种统一的行为的, 这些标度说明了临界指数的正确性 [84].

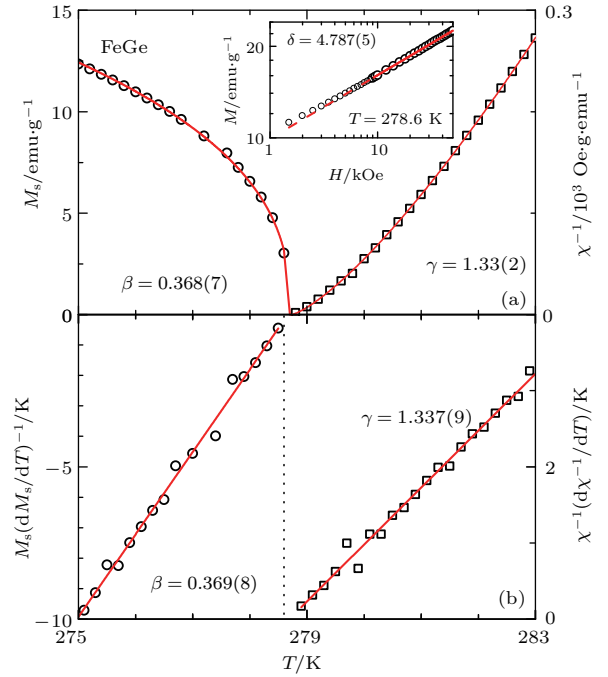


图 18 FeGe 单晶样品的临界指数 [85]

Fig. 18. The critical exponents of single crystal FeGe [85].

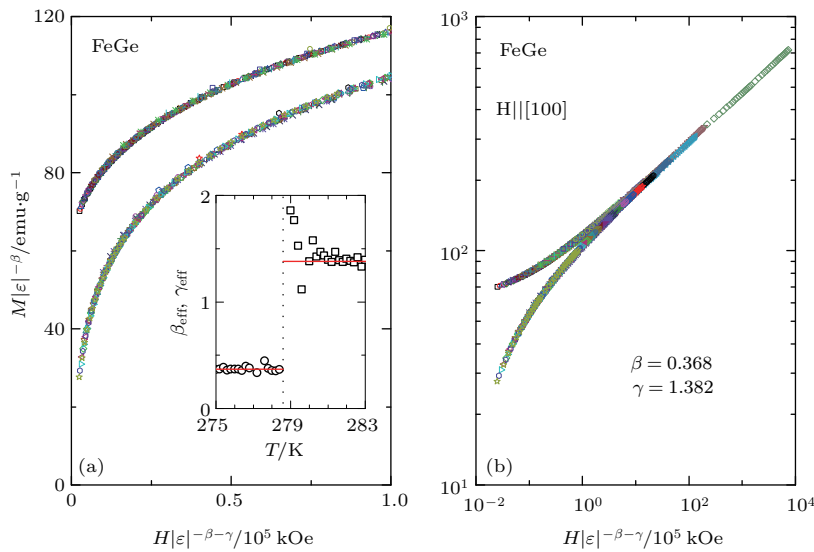


图 19 FeGe 体系的等热 $M(H)$ 曲线的普适性标度 [85]

Fig. 19. The universal scaling of the isothermal magnetization $M(H)$ of FeGe [85].

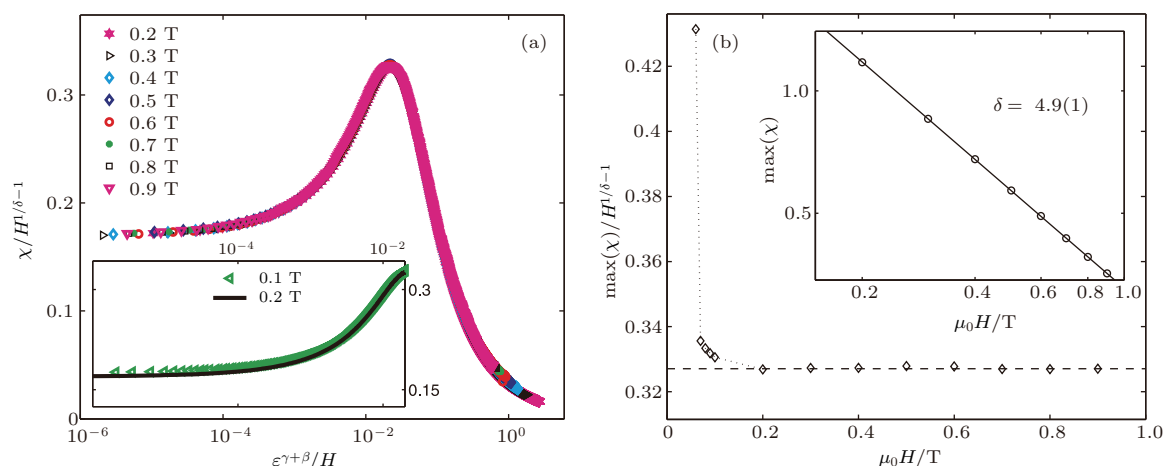


图 20 斯格明子材料 Cu_2OSeO_3 临界指数的拟合 [91]

Fig. 20. The fitted critical exponents of skyrmion material Cu_2OSeO_3 [91].

事实上, 另一种斯格明子材料 [2,87–90] Cu_2OSeO_3 自旋相互作用也属于三维海森伯作用. 具有立方结构的 Cu_2OSeO_3 和 MnSi , FeGe 等具有类似的结构, 也属于 $P2_13$ 空间群. 在 Cu_2OSeO_3 中, Cu 具有两种不等价的位置, 最近邻的 Cu 呈反铁磁耦合. 两种不等价位置的 Cu 的比例为 3 : 1, 所以会出现三上一下的亚铁磁有序. 而这种亚铁磁有序又会受到 DM 相互作用调制. 当施加一个弱的外磁场时, 在 $T_C = 58.8 \text{ K}$ 以下温区内形成稳定的斯格明子态. 但是与 MnSi 不同, Cu_2OSeO_3 是一个磁电绝缘体. Cu_2OSeO_3 中的磁电耦合是由于 d-p 杂化造成的, 这解释了 Cu_2OSeO_3 中形成斯格明子时特殊的极化效应. 研究认为, 在 Cu_2OSeO_3 中, 当施加电场时, 电偶极可以分配到单个的斯格明子上, 并且电场可以驱使斯格明子转动. Živković 等 [91] 通过磁化率的拟合, 给出了 Cu_2OSeO_3 在 $T_C = 58.3(1) \text{ K}$ 的临界指数为 $\beta = 0.37(1)$, $\gamma = 1.44(4)$, $\delta = 4.9(1)$, 如图 20 所示; 指数列于表 2 中. 其临界指数的值也符合三维海森伯模型. 这说明 Cu_2OSeO_3 中的磁性耦合作用属于三维海森伯作用, 类似于 FeGe 中的自旋作用机制. 我们知道, MnSi 中的相变可以用 Brazovskii 理论来解释. 但是 Cu_2OSeO_3 中的机制却与 MnSi 大不相同. Živković 等 [91] 认为, 在低磁场下, Cu_2OSeO_3 中的相变机制可以用 Wilson-Fischer 图像来解释.

4.3 $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}/\text{Fe}_{1.5-x}\text{Co}_x\text{Rh}_{0.5}\text{Mo}_3\text{N}$

在螺旋磁有序的斯格明子体系中, $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ 的性质可以通过 Co 掺杂来调控. FeSi 是一个具有强关联窄能带的顺磁材料, 而 CoSi 是一个抗磁金

属. 但是, $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ 却表现出巡游磁性的性质. 通过 Co 掺杂的调制, $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ 中的手性可以由右旋调制为左旋, 在 $x \sim 0.65$ 处发生手性的转变. 并且, 其物性也可以通过 Co 的含量来调节. 实验证明, $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ 的手性的改变是因为 Co 掺杂影响了 DM 相互作用, 从而导致手性的改变 [92,93].

因此, 对 $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ 临界行为的研究可以揭示这一体系的磁性随 Co 掺杂的改变是如何演变的. Jiang 等 [93] 对 $\text{Fe}_{0.8}\text{Co}_{0.2}\text{Si}$ 的霍尔电阻及其临界行为进行了研究, 如图 21 所示. 它们拟合得出的临界指数为 $\delta = 4.78(1)$, $\beta = 0.37(1)$, $\gamma = 1.38(2)$, 见表 2. $\text{Fe}_{0.8}\text{Co}_{0.2}\text{Si}$ 临界指数接近三维海森伯模型的理论值, 说明自旋相互作用是短程的各向同性相互作用. 如前所述, $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ 的自旋相互作用是随着 Co 含量的变化而改变的, 因此对 $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ 系列样品的研究可以揭示其磁性和自旋相互作用的变化. 对 $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ 系列样品的临界行为研究, 得出的临界指数随着 Co 含量的变化而变化 [94]. 表 2 列出了 $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ 的临界指数, 可以看出, 随着 Co 含量的增加, β 和 γ 的值均在减小. 对于 $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ ($x = 0.2$ 和 0.3) 是属于三维海森伯模型的, 但是 $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ ($x = 0.5$) 就非常接近于 3D-XY 模型, 而 $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ ($x = 0.6$) 接近于 3D-Ising 模型. 其临界指数由低掺杂时的三维海森伯模型, 逐渐过渡到接近各向异性很强的伊辛模型. 这表明其中的自旋耦合由三维各向同性的相互作用逐渐过渡到较强的各向异性. 图 22 给出了 $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ 中的临界行为随 Co 含量的变化, 说明 Co 掺杂增强了体系的各向异性磁性耦合.

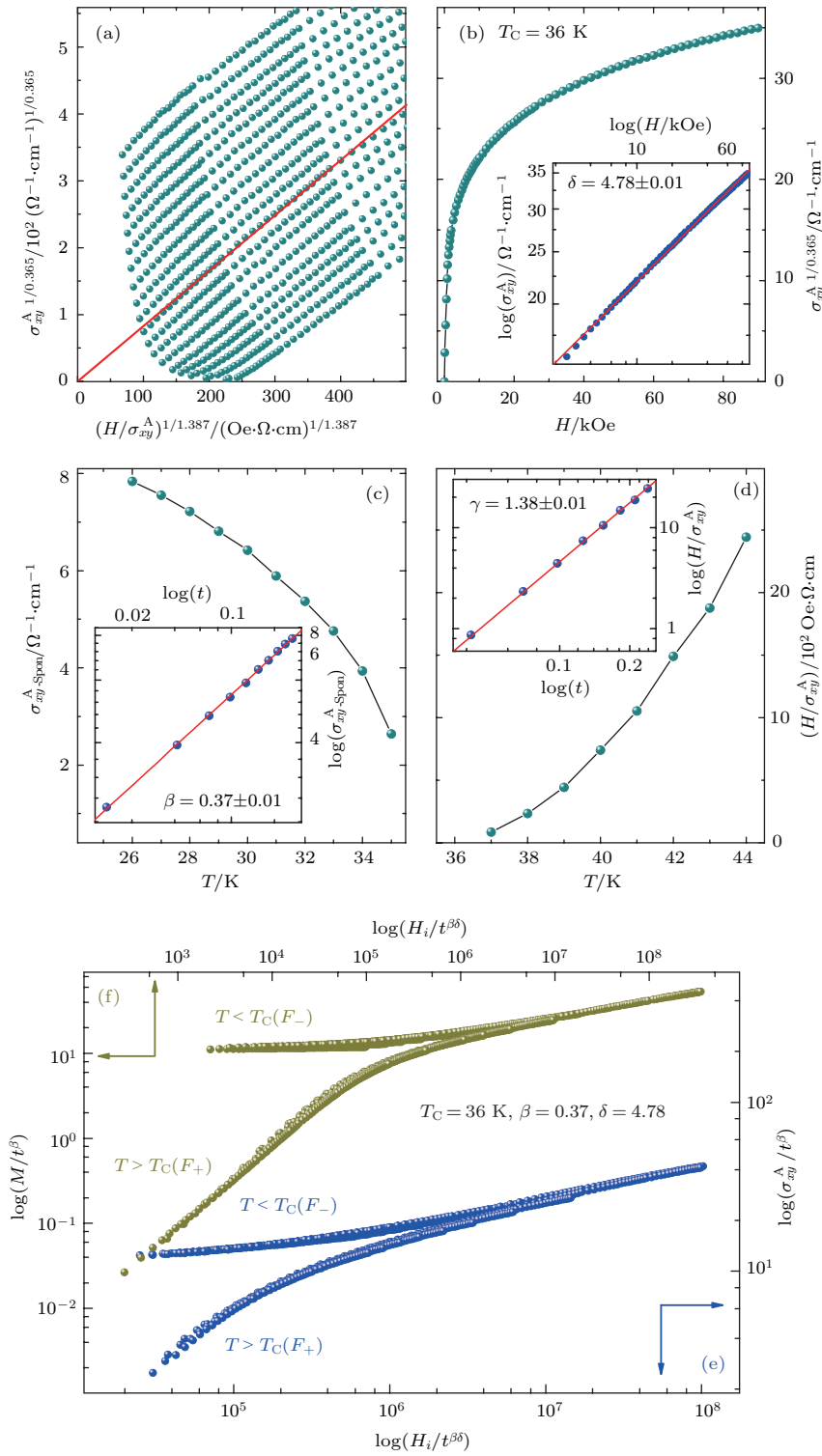


图 21 $\text{Fe}_{0.8}\text{Co}_{0.2}\text{Si}$ 中基于霍尔效应的临界行为分析 (a) 霍尔电导和磁场的关系; (b) 在临界点的霍尔电导; (c), (d) 对 β , γ , δ 的拟合; (e), (f) 普适性标度 [93]
 Fig. 21. The study of critical behavior of $\text{Fe}_{0.8}\text{Co}_{0.2}\text{Si}$ based on Hall effect: (a) The field dependence of the Hall conductivity; (b) the critical Hall conductivity at T_C vs. H ; (c), (d) the fitted data of critical exponents of β , γ and δ ; (e), (f) the universal scaling [93].

此外, 利用临界指数 [95] 可以对 $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ 体系的磁熵变进行研究. 对 $\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{Si}$ 的磁熵变曲线进行普适性标度, 如图 23 所示. 研究发现, 在高

场下, 磁熵曲线可以标度为一条普适的曲线, 说明相变为二级相变. 而在低场下, 磁熵变曲线不能被很好地标度, 呈发散趋势, 说明低场下的相变为

弱的一级相变. 这一结论和中子衍射的结果相一致. $\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{Si}$ 的这一性质和 MnSi 中的相变非常类似.

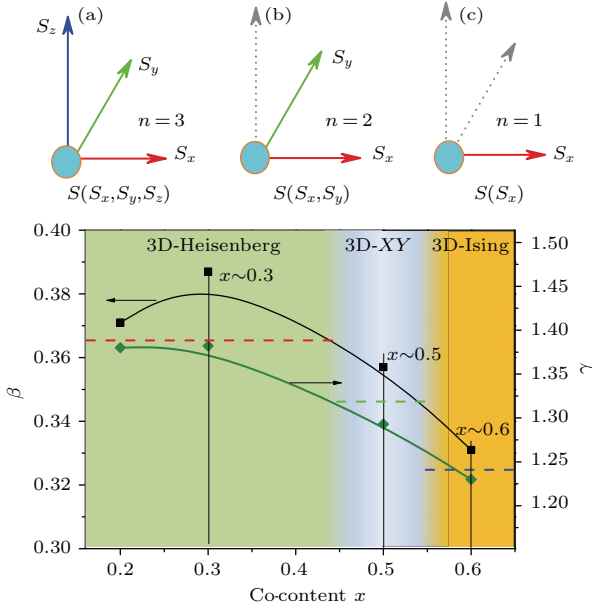


图 22 随着 Co 含量的增加, $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ 的临界指数转变说明了自旋相互作用发生了变化 [94]

Fig. 22. The critical exponents of $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ changing with the increase of Co, which indicates the change of spin interactions [94].

最近, 在一类新的氮化物体系 $\text{A}_2\text{Mo}_3\text{N}$ 中也发现了斯格明子相. 具有立方结构的 $\text{A}_2\text{Mo}_3\text{N}$ 的空间群为 $P4_132$, 其母体 $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{N}$, $\text{Co}_2\text{Mo}_3\text{N}$ 和 $\text{Rh}_2\text{Mo}_3\text{N}$ 的基态分别为铁磁、反铁磁和超导态. 理论预言, $\text{A}_2\text{Mo}_3\text{N}$ 中具有 DM 相互作用, 并且通过合适的调制, 会出现斯格明子相. 实验上, 通过 A 位的调制, 在 $\text{Fe}_{1.5-x}\text{Co}_x\text{Rh}_{0.5}\text{Mo}_3\text{N}$ 中发现了斯格明子相 [96-99]. 对 $\text{Fe}_{1.5-x}\text{Co}_x\text{Rh}_{0.5}\text{Mo}_3\text{N}$ 临界行为进行拟合, 得到临界指数, 如图 24 所示, 指数

列于表 2 中. 随着 Co 含量的变化, 其临界指数也发生了变化. 临界行为的研究表明, 其磁性相互作用和 $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ 类似, 可以被 Co 的含量有效的调控. 对于 $\text{Fe}_{1.5-x}\text{Co}_x\text{Rh}_{0.5}\text{Mo}_3\text{N}$, 高掺杂下样品 ($x = 1.2$) 的临界指数很好地符合三维海森伯模型. 而随着 Co 含量的减少, 体系表现出的各向异性磁相互作用越来越强 [100].

5 普适性和相图

普适性 (universality) 是物理领域的一个核心概念. 各种物理体系可以分成若干普适类 (universality class), 每个普适类的临界特性完全相同. 在相变中, 它是描述相变在临界点附近的一个综合的标度行为. 在获得临界指数的基础上, 就可以对体系的标度行为进行分析. 对于磁性相变, 我们引入重整化磁化强度 (renormalization magnetization) 和重整化磁场 (renormalization field) 的概念, 重整化磁化强度 m 和重整化磁场为 h 的定义分别为 [45]:

$$m \equiv \varepsilon^{-\beta} M(H, \varepsilon), \tag{36}$$

$$h \equiv H \varepsilon^{-(\beta+\gamma)}. \tag{37}$$

根据标度方程, m 和 h 的关系为

$$m = f_{\pm}(h), \tag{38}$$

其中 f_+ 和 f_- 分别为归一化函数, 分别对应相变温度点以上 ($T > T_C$) 和相变以下 ($T < T_C$) 的函数. 由标度方程可知, 在临界点温度附近的 m 对于 h 的函数会分为独立并且普适的两支, 相变以上和相变以下的点会分别归一化到这两支独立的曲线上. 由于临界指数是外推到零点的, 因此, 一般情况下, 这个普适性对于低磁场的曲线也适用.

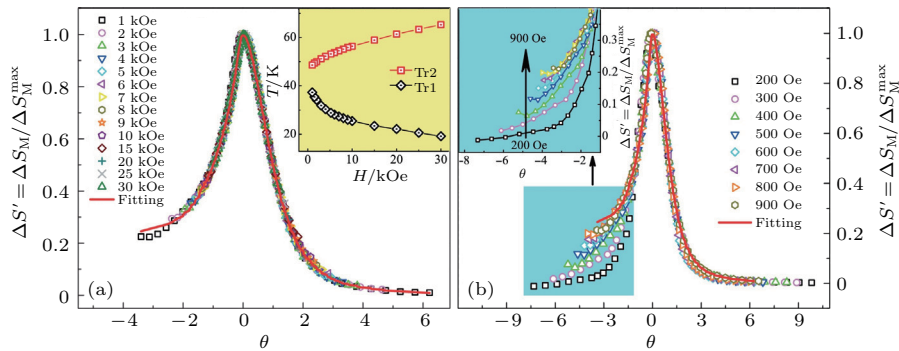


图 23 $\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{Si}$ 的磁熵变曲线普适性标度 (a) 高场下标度为一条普适的曲线; (b) 低场下发散, 说明低场下的相变为弱的一级相变 [95]

Fig. 23. The universal scaling of ΔS_M curves for $\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{Si}$: (a) All experimental data collapse into a single universal curve in high field region; (b) the divergence in low field region showing a weak first-order phase transition [95].

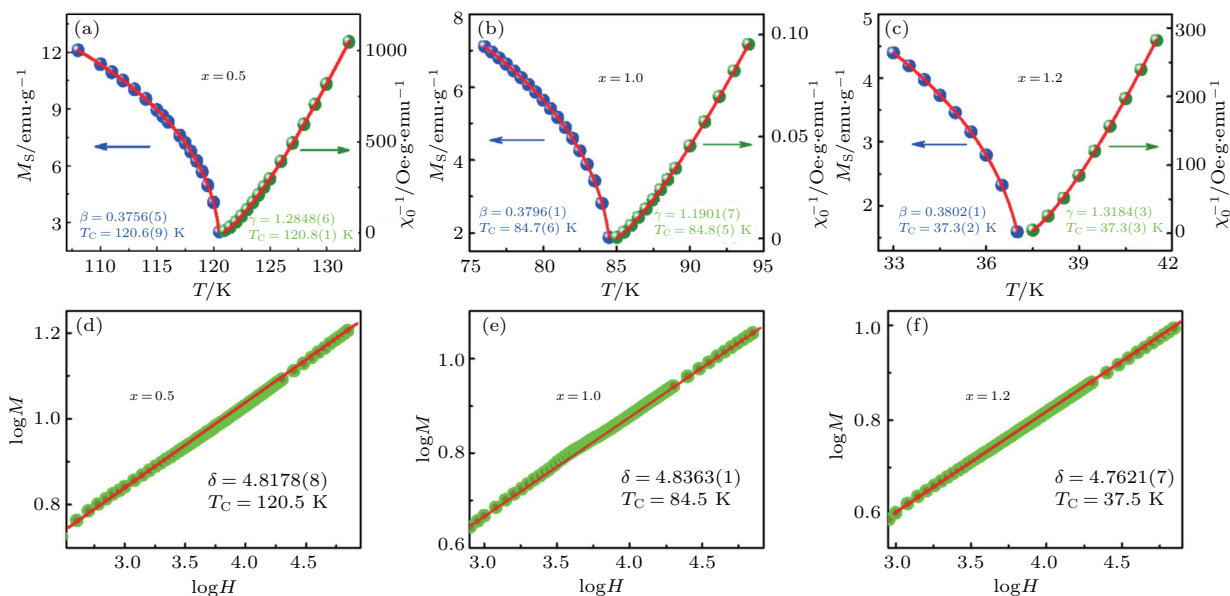


图 24 $\text{Fe}_{1.5-x}\text{Co}_x\text{Rh}_{0.5}\text{Mo}_3\text{N}$ 的临界指数拟合 [100]

Fig. 24. The fitted of critical exponents for $\text{Fe}_{1.5-x}\text{Co}_x\text{Rh}_{0.5}\text{Mo}_3\text{N}$ [100].

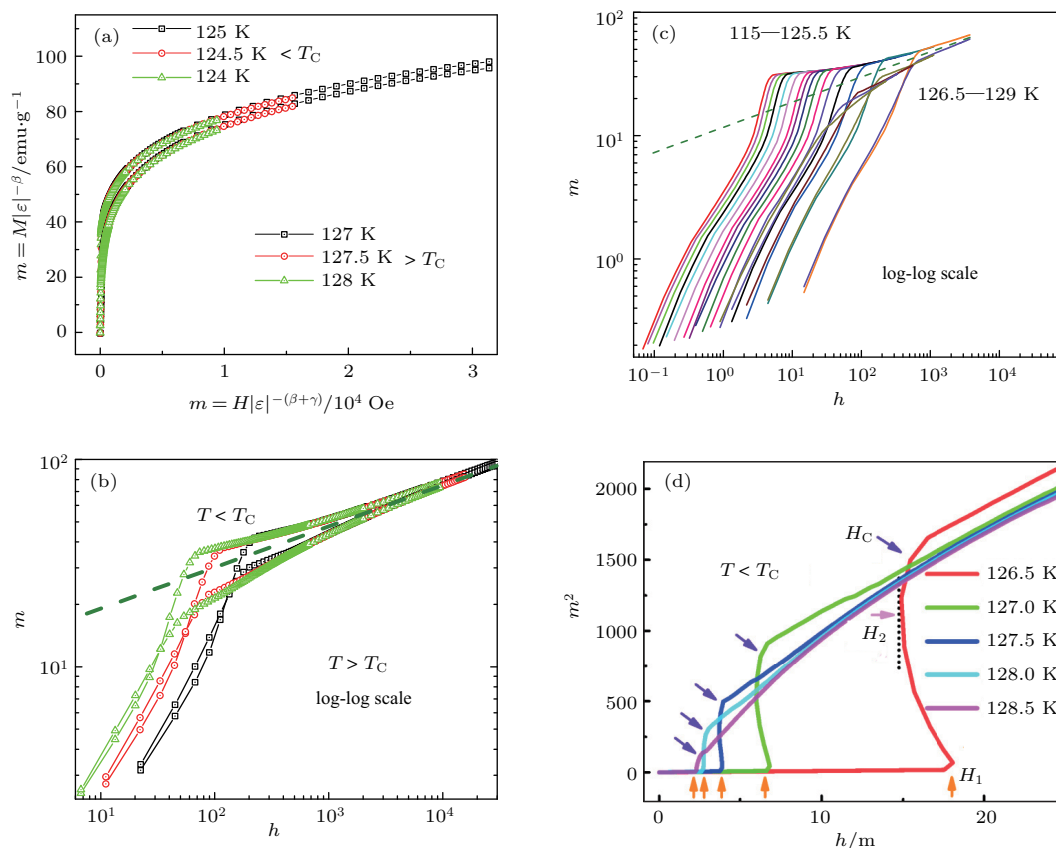


图 25 以重整化磁化强度 m 和重整化磁场 h 对 $M(H)$ 曲线进行重新标度, 相变发生时 $m(h)$ 的斜率发生改变 [104]

Fig. 25. Scaling plot of m vs. h around T_C for the isothermal $M(H)$ curves, the slope of $m(h)$ curves changes when the phase transition occurs [104].

但是对于有磁场诱导相变的体系, 普适性在相变的点会发生发散, 造成曲线不能归一化到普适的曲线上. 利用这一点, 可以做出体系在相变点的

详细相图. 如图 25 所示. 以 $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$ 为例, 层状的 $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$ 是由 Cr 插层到 NbS_2 中形成的. 对于 $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$, 由于单轴非中心对称的晶体结构, 导

致了体系中DM相互作用的出现. 而DM相互作用和铁磁交换作用的竞争, 使体系呈现出螺旋磁有序的基态. 在零磁场的条件下, 当温度降低到相变温度 T_c 以下, 会形成螺旋磁有序的基态. 而施加一定的外磁场, 就会使螺旋磁有序逐渐调制到磁孤子态(chiral magnetic soliton). 进一步增加外磁场强度, 磁孤子态最终被极化为铁磁态(polarized ferromagnetic). 磁孤子是一种自旋按螺旋方式排列形成的“孤子状”“准粒子”磁构型, 其可以在材料中运动、传播, 并且可以形成手性磁孤子晶格(chiral magnetic soliton lattice) [18,101–103].

对于 $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$, 在相变点附近的 $m(h)$ 曲线应该分成相变以上和相变以下的两支. 而在低场下, 原本应该分开的两支, 因为有低场磁场诱导相变, 变为有规律的发散. 借助临界指数, 对临界区域的磁化曲线进行了重新标度. 进一步, 把相变点的曲线做成 m^2-h/m 关系, 就可以得到磁场诱导相变的相变磁场(H_c). 把这些点重新做图, 就可以得到体系在临界点附近的相图, 如图26所示. 通过标度率的分析, 构建了在相变温度附近详细的 $H-T$ 相图. $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$ 的 $H-T$ 相图显示, 其在相变温度附近存在多种磁有序相(包括螺旋磁有序相, CSL-1态, CSL-2态, 顺磁相, 极化铁磁相). 相图揭示了其在相变温度附近存在两个临界点: 一个临界点在手性磁孤子态、极化铁磁态和顺磁态的交汇点(约310 Oe); 另一个临界点在螺旋磁有序态、手性磁孤子态和顺磁态的交汇点(~ 85 Oe). 每次的磁场诱导相变, 对应地在 m^2-h/m 曲线上都会有对应的拐点. 利用 m^2-h/m 曲线, 可以清楚地看到相变的临界磁场, 并且对于不同的磁有序相. 这种构建相图

的方法, 可以很细致地区分相变点附近的各种有序相, 对磁场诱导相变非常敏感, 对相变点附近详细相图的建立非常有效 [104].

6 总结与展望

通过临界指数的拟合、标度律的分析、普适性的研究, 对具有斯格明子相的不同的螺旋磁有序体系的临界行为进行了探讨. 虽然这些螺旋磁有序体系都具有斯格明子相, 但是它们却具有不同的微观磁性相互作用和不同的自旋耦合类型. 研究发现, 通过适当的调制手段, 可以有效地调节体系的自旋相互作用, 从而发生自旋耦合类型的转变, 进而宏观磁行为也发生改变. 通过普适性标度关系, 可以构建磁场诱导相变体系在临界点 T_c 的详细的 $H-T$ 相图.

感谢南京航空航天大学樊济宇副教授的讨论, 感谢中国科学技术大学刘威博士在公式和图标编辑中的工作.

参考文献

- [1] Mühlbauer S, Binz B, Jonietz F, Pfleiderer C, Rosch A, Neubauer A, Georgii R, Böni P 2009 *Science* **323** 915
- [2] Seki S, Yu X Z, Ishiwata S, Tokura Y 2012 *Science* **336** 198
- [3] Jiang W J, Chen G, Liu K, Zang J D, Velthuis S G E, Hoffmann A 2017 *Phys. Rep.* **704** 1
- [4] Zheng F S, Li H, Wang S S, Song D S, Jin C M, Wei W S, Kovács A, Zang J D, Tian M L, Zhang Y H, Du H F, Dunin-Borkowski R E 2017 *Phys. Rev. Lett.* **119** 197205
- [5] Munzer W, Neubauer A, Adams T, Mühlbauer S, Franz C, Jonietz F, Georgii R, Boni P, Pedersen B, Schmidt M, Rosch A, Pfleiderer C 2010 *Phys. Rev. B* **81** 041203
- [6] Rößler U K, Bogdanov A N, Pfleiderer C 2006 *Nature* **442** 797
- [7] Yu X Z, Onose Y, Kanazawa N, Park J H, Han J H, Matsui Y, Nagaosa N, Tokura Y 2010 *Nature* **456** 901
- [8] Psaroudaki C, Hoffman S, Klinovaja J, Loss D 2017 *Phys. Rev. X* **7** 041045
- [9] Kurumaji T, Nakajima T, Ukleev V, Feoktystov A, Arima T, Kakurai K, Tokura Y 2017 *Phys. Rev. Lett.* **119** 237201
- [10] Kharkov Y A, Sushkov O P, Mostovoy M 2017 *Phys. Rev. Lett.* **119** 207201
- [11] Jiang W J, Upadhyaya P, Zhang W, Yu G Q, Jungfleisch M B, Fradin F Y, Pearson J E, Tserkovnyak Y, Wang K L, Heinonen O, Velthuis S G E, Hoffmann A 2015 *Science* **349** 283

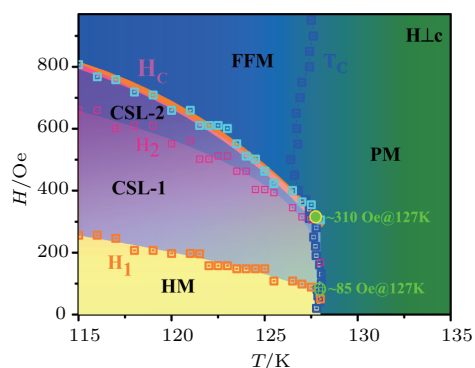


图26 根据标度方程和临界指数所获得的临界点附近的 $H-T$ 相图 [104]

Fig. 26. The $H-T$ phase diagram in the vicinity of the phase transition based on the scaling equation and critical exponents [104].

- [12] Nayak A K, Kumar V, Ma T P, Werner P, Pippe E, Sahoo R, Damay F, Rößler U K, Felser C, Parkin S S P 2017 *Nature* **548** 561
- [13] Soumyanarayanan A, Reyren N, Fert A, Panagopoulos C 2016 *Nature* **539** 509
- [14] Zhang X C, Xia J, Zhou Y, Liu X X, Zhang H, Ezawa M 2017 *Nat. Commun.* **8** 1717
- [15] Mohseni S, Sani S, Persson J, Nguyen T, Chung S, Pogoryelov Y, Muduli P, Iacocca E, Eklund A, Dumas R, Bonetti S, Deac A, Hofer M, Akerman J 2013 *Science* **339** 1295
- [16] Zhang X, Xia J, Zhou Y, Wang D, Liu X, Zhao W, Ezawa M 2016 *Phys. Rev. B* **94** 094420
- [17] Du H F, Ning W, Tian M L, Zhang Y H 2013 *Phys. Rev. B* **87** 014401
- [18] Togawa Y, Kousaka Y, Nishihara S, Inoue K, Akimitsu J, Ovchinnikov A S, Kishine J 2013 *Phys. Rev. Lett.* **111** 197204
- [19] Rybakov F, Borisov A, Blügel S, Kiselev N 2015 *Phys. Rev. Lett.* **115** 117201
- [20] Skyrme T H R 1962 *Nucl. Phys.* **31** 556
- [21] Brown G, Rho M 2010 *The Multifaced Skyrmions* (Singapore: World Scientific)
- [22] Bogdanov A N, Yablonskii D A 1989 *Sov. Phys. JETP* **68** 101
- [23] Neubauer A, Pfleiderer C, Binz B, Rosch A, Ritz R, Niklowitz P G, Böni P 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 186602
- [24] Ishikawa Y, Arai M 1984 *J. Phys. Soc. Jpn.* **53** 2726
- [25] Thessieu C, Pfleiderer C, Stepanov A N, Flouquet J 1997 *J. Phys.: Condens. Matter* **9** 6677
- [26] Yu X Z, Kanazawa N, Onose Y, Kimoto K, Zhang W Z, Matsui Y, Tokura Y 2011 *Nat. Mater.* **10** 106
- [27] Grigoriev S V, Dyadkin V A, Moskvina E V, Lamago D, Wolf T, Eckerlebe H, Maleyev S V 2009 *Phys. Rev. B* **79** 144417
- [28] Shibata K, Yu X Z, Hara T, Morikawa D, Kanazawa N, Kimoto K, Ishiwata S, Matsui Y, Tokura Y 2013 *Nat. Nanotechnol.* **8** 723
- [29] Adams T, Chacon A, Wagner M, Bauer A, Brandl G, Pedersen B, Berger H, Lemmens P, Pfleiderer C 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 237204
- [30] Ding H F, Schmid A K, Li D Q, Guslienko K Y, Bader S D 2005 *Phys. Rev. Lett.* **94** 157202
- [31] Sonntag A, Hermenau J, Krause S, Wiesendanger R 2014 *Phys. Rev. Lett.* **113** 077202
- [32] Simon E, Palotas K, Rozsa L, Udvardi L, Szunyogh L 2014 *Phys. Rev. B* **90** 094410
- [33] Miao B F, Sun L, Wu Y W, Tao X D, Xiong X, Wen Y, Cao R X, Wang P, Wu D, Zhan Q F, You B, Du J, Li R W, Ding H F 2014 *Phys. Rev. B* **90** 174411
- [34] Dai Y Y, Wang H, Tao P, Yang T, Ren W J, Zhang Z D 2013 *Phys. Rev. B* **88** 054403
- [35] Siegfried S A, Altyntbaev E V, Chubova N M, Dyadkin V, Chernyshov D, Moskvina E V, Menze D, Heinemann A, Schreyer A, Grigoriev S V 2015 *Phys. Rev. B* **91** 184406
- [36] Nagaosa N, Tokura Y 2013 *Nat. Nanotechnol.* **8** 89
- [37] Jonietz F, Muhlbauer S, Pfleiderer C, Neubauer A, Münzer W, Bauer A, Adams T, Georgii R, Boni P, Duine R, Everschor K, Garst M, Rosch A 2010 *Science* **330** 1648
- [38] Schulz T, Ritz R, Bauer A, Halder M, Wagner M, Franz C, Pfleiderer C, Everschor K, Garst M, Rosch A 2012 *Nat. Phys.* **8** 301
- [39] Yu X Z, Kanazawa N, Zhang W Z, Nnagai T, Hara T, Kimoto K, Mmatsui Y, Oonose Y, Tokura Y 2012 *Nat. Commun.* **3** 988
- [40] Iwasaki J, Mochizuki M, Nagaosa N 2013 *Nat. Commun.* **4** 1463
- [41] Romming N, Hanneken C, Menzel M, Bickel J, Wolter B, Bergmann K, Kubetzka A, Wiesendanger R 2013 *Science* **341** 636
- [42] Yu L, Hao B L 1992 *Phase Transition and Critical Phenomenon* (Beijing: Science Press) p9 (in Chinese) [于淦, 郝柏林 1992 相变和临界现象 (北京: 科学出版社) 第9页]
- [43] Yu L, Hao B L 1992 *Phase Transition and Critical Phenomenon* (Beijing: Science Press) p83 (in Chinese) [于淦, 郝柏林 1992 相变和临界现象 (北京: 科学出版社) 第83页]
- [44] Jiang S T, Li W L 2003 *Magnetic Physics in Condensed Matter* (Beijing: Science Press) pp173–182 (in Chinese) [姜寿亭, 李卫 2003 凝聚态磁性物理 (北京: 科学出版社) 第173—182页]
- [45] Stanley H E 1971 *Introduction to Phase Transitions and Critical Phenomena* (London: Oxford University Press)
- [46] Ghosh K, Lobb C J, Greene R L, Karabashev S G, Shulyatev D A, Arsenov A A, Mukovskii Y 1998 *Phys. Rev. Lett.* **81** 4740
- [47] Arrott A 1957 *Phys. Rev.* **108** 1394
- [48] Yeung I, Roshko R, Williams G 1986 *Phys. Rev. B* **34** 3456
- [49] Levy L 2000 *Magnetism and Superconductivity* (Berlin: Springer)
- [50] Banerjee S 1964 *Phys. Lett.* **12** 16
- [51] Phan M H, Franco V, Bingham N S, Srikanth H, Hur N H, Yu S C 2010 *J. Alloys Compd.* **508** 238
- [52] Arrott A, Noakes J 1967 *Phys. Rev. Lett.* **19** 786
- [53] Zhang L, Wang B S, Sun Y P, Tong P, Fan J Y, Zhang C J, Pi L, Zhang Y H 2012 *Phys. Rev. B* **85** 104419
- [54] Fisher M 1967 *Rep. Prog. Phys.* **30** 615
- [55] Fan J Y, Ling L S, Hong B, Zhang L, Pi L, Zhang H Y 2010 *Phys. Rev. B* **81** 144426
- [56] Kouvel J, Fisher M 1964 *Phys. Rev. A* **136** 1626
- [57] Pecharsky V, Gschneidner K 1999 *J. Magn. Magn. Mater.* **200** 44
- [58] Franco V, Blazquez J, Conde A 2006 *Appl. Phys. Lett.* **89** 222512
- [59] Franco V, Conde A 2010 *Inter. J. Ref.* **33** 465
- [60] Fan J Y, Pi L, Zhang L, Tong W, Ling L S, Hong B, Shi Y G, Zhang W C, Lu D, Zhang Y H 2011 *Appl. Phys. Lett.* **98** 072508
- [61] Han H, Zhang L, Zhu X D, Du H F, Ge M, Ling L S, Pi L, Zhang C J, Zhang Y H 2017 *J. Alloys Compd.* **693** 389

- [62] Zhang L, Fan J Y, Tong W, Ling L S, Pi L, Zhang Y H 2012 *Physica B* **407** 3543
- [63] Samatham S S, Ganesan V 2017 *Phys. Rev. B* **95** 115118
- [64] Manyala N, Sidis Y, DiTusa J, Aeppli G, Young D, Fisk Z 2000 *Nature* **404** 581
- [65] Pfeleiderer C, Julian S R, Lonzarich G G 2001 *Nature* **414** 427
- [66] Watanabe H, Parameswaran S A, Raghu S, Vishwanath A 2014 *Phys. Rev. B* **90** 045145
- [67] Pfeleiderer C, McMullan G J, Julian S R, Lonzarich G G 1997 *Phys. Rev. B* **55** 8330
- [68] Janoschek M, Garst M, Bauer A, Krautscheid P, Georgii R, Boni P, Pfeleiderer C 2013 *Phys. Rev. B* **87** 134407
- [69] Buhrandt S, Fritz L 2013 *Phys. Rev. B* **88** 195137
- [70] Huang K 1987 *Statistical Mechanics* (2nd Ed.) (New York: Wiley)
- [71] Bauer A, Garst M, Pfeleiderer C 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 177207
- [72] Brazovskii S A, Eksp Z, Fiz T 1975 *Sov. Phys. JETP* **41** 85
- [73] Zhang L, Menzel D, Jin C, Du H F, Ge M, Zhang C J, Pi L, Tian M L, Zhang Y H 2015 *Phys. Rev. B* **91** 024403
- [74] Chattopadhyay M, Arora P, Roy S 2009 *J. Phys.: Condens. Matter* **21** 296003
- [75] Fisher M E, Ma S K, Nickel B G 1972 *Phys. Rev. Lett.* **29** 917
- [76] Fischer S F, Kaul S N, Kronmuller H 2002 *Phys. Rev. B* **65** 064443
- [77] Pramanik A K, Banerjee A 2009 *Phys. Rev. B* **79** 214426
- [78] Grigoriev S V, Maleyev S V, Okorokov A I, Chetverikov Y O, Georgii R, Boni P, Lamago D, Eckerlebe H, Pranzas K 2005 *Phys. Rev. B* **72** 134420
- [79] Wilhelm H, Baenitz M, Schmidt M, Rößler U K, Leonov A A, Bogdanov A N 2011 *Phys. Rev. Lett.* **107** 127203
- [80] Lebech B, Bernhard J, Freltoft T 1989 *J. Phys.: Condens. Matter* **1** 6105
- [81] Shibata K, Iwasaki J, Kanazawa N, Aizawa S, Tanigaki T, Shirai M, Nakajima T, Kubota M, Kawasaki M, Park H S, Shindo D, Nagaosa N, Tokura Y 2015 *Nat. Nanotechnol.* **10** 589
- [82] Koretsune T, Nagaosa N, Arita R 2015 *Sci. Rep.* **5** 13302
- [83] Barla A, Wilhelm H, Forthaus M K, Strohm C, Ruffer R, Schmidt M, Koepf K, Rößler U K, Abd-Elmeguid M M 2015 *Phys. Rev. Lett.* **114** 016803
- [84] Zhang L, Han H, Ge M, Du H, Jin C, Wei W, Fan J, Zhang C, Pi L, Zhang Y 2016 *Sci. Rep.* **6** 22397
- [85] Wilhelm H, Leonov A O, Rößler U K, Burger P, Hardy F, Meingast C, Gruner M E, Schnelle W, Schmidt M, Baenitz M 2016 *Phys. Rev. B* **94** 144424
- [86] Xu L S, Fan J Y, Sun W F, Zhu Y, Hu D Z, Liu J D, Ji Y D, Shi D N, Yang H 2017 *Appl. Phys. Lett.* **111** 052406
- [87] Hamann A, Lamago D, Wolf T, Löhneysen H V, Reznik D 2011 *Phys. Rev. Lett.* **107** 037207
- [88] Yang J H, Li Z L, Lu X Z, Whangbo M H, Wei S H, Gong X G, Xiang H J 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 107203
- [89] Seki S, Ishiwata S, Tokura Y 2012 *Phys. Rev. B* **86** 060403
- [90] White J S, Levatić I, Omrani A A, Egetenmeyer N, Prša K, Živković I, Gavilano J L, Kohlbrecher J, Bartkowiak M, Berger H, Rønnow H M 2012 *J. Phys.: Condens. Matter* **24** 432201
- [91] Živković I, White J S, Rønnow H M, Prša K, Berger H 2014 *Phys. Rev. B* **89** 060401
- [92] Chattopadhyay M K, Roy S B, Chaudhary S 2002 *Phys. Rev. B* **65** 132409
- [93] Jiang W J, Zhou X Z, Williams G 2010 *Phys. Rev. B* **82** 144424
- [94] Zhang L, Menzel D, Han H, Jin C M, Du H F, Fan J Y, Ge M, Ling L S, Zhang C J, Pi L, Zhang Y H 2016 *EPL* **115** 67006
- [95] Han H, Menzel D, Liu W, Ling L S, Du H F, Pi L, Zhang C J, Zhang L, Zhang Y H 2017 *Mater. Res. Bull.* **94** 500
- [96] Li W, Jin C M, Che R C, Wei W S, Lin L S, Zhang L, Du H F, Tian M L, Zang J D 2016 *Phys. Rev. B* **93** 060409
- [97] Dzyaloshinsky I 1958 *J. Phys. Chem. Solids* **4** 241
- [98] Moriya T 1960 *Phys. Rev.* **120** 91
- [99] Battle P D, Grandjean F, Longe G J, Oldhama S E 2007 *J. Mater. Chem.* **17** 4785
- [100] Han H, Wei W S, Liu W, Dai Y H, Du H F, Pi L, Zhang C J, Zhang L, Zhang Y H 2018 *J. Alloys Compd.* **739** 85
- [101] Togawa Y, Koyama T, Takayanagi K, Mori S, Kousaka Y, Akimitsu J, Nishihara S, Inoue K, Ovchinnikov A S, Kishine J 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 107202
- [102] Togawa Y, Kousaka Y, Inoue K, Kishine J 2016 *J. Phys. Soc. Jpn.* **85** 112001
- [103] Masaki Y, Stamps R L 2017 *Phys. Rev. B* **95** 024418
- [104] Han H, Zhang L, Sapkota D, Hao N, Ling L S, Du H F, Pi L, Zhang C J, Mandrus D G, Zhang Y H 2017 *Phys. Rev. B* **96** 094439
- [105] Kaul S N 1985 *J. Magn. Magn. Mater.* **3** 5

SPECIAL TOPIC — Magnetic skyrmions

Critical behaviors of helimagnetic ordering systems relating to skyrmion*

Zhang Lei[†]

(Anhui Key Laboratory of Condensed Matter Physics at Extreme Conditions, High Magnetic Field Laboratory, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China)

(Received 19 January 2018; revised manuscript received 12 March 2018)

Abstract

Study of critical phenomena plays a key role in developing the theory of phase transition. In this article, we mainly review some new experimental results about the critical phenomena reported recently in the helimagnetic ordering materials. These materials exhibit a kind of a vortex-like spin texture so-called skyrmion phase. The skyrmion phase has great potential applications in the new spin-based storage due to the topologically protected stability, nanometric size, and current-driven motion. Generally, the skyrmion state exists in a helimagnetic system due to the Dzyaloshinskii-Moriya (DM) interaction which forms in the crystal structure without inversion symmetry. It usually emerges just below the helimagnetic phase transition temperature T_C under a certain temperature and magnetic field. In this review article, firstly, we introduce some basic concepts about the phase transition, such as critical phenomenon, critical exponents, scaling law, and universality. Secondly, we discuss two different methods which can help us to obtain the critical exponents, i.e., the iteration method based on the isothermal dc-magnetization and the fitting technique based on the magnetic entropy change. Both methods are extensively used in the current study of critical phenomena. Thirdly, we analyze and outline some latest studies of critical behaviors and critical exponents for several typical helimagnetic systems with skyrmion state, such as MnSi, FeGe, Cu_2OSeO_3 , $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$, and $\text{Fe}_{1.5-x}\text{Co}_x\text{Rh}_{0.5}\text{MoN}$. The B20 compound MnSi is a typical skyrmion material, which undergoes a paramagnetic-to-helimagnetic phase transition at ~ 30.5 K and the skyrmion phase appears just below T_C as an appropriate external magnetic field is applied. Investigations show that critical exponents of MnSi belong in the universality class of a tricritical mean-field model, implying the existence of a long-range magnetic interaction in this system. The critical behavior of MnSi reveals that its first-order phase transition can be driven into a second-order phase transition by the action of external magnetic field, where a field-induced tricritical point is found among the helimagnetic, conical, and paramagnetic phases in MnSi system. Unlike MnSi, the critical exponent of the near-room-temperature skyrmion system FeGe, which undergoes a helimagnetic phase transition at ~ 278 K, belong to the three-dimensional Heisenberg model. The critical behavior of Cu_2OSeO_3 is similar to that of FeGe, which indicates that the magnetic interactions in these two systems are dominated by the short-range nearest-neighbor isotropic magnetic coupling. In addition, studies revealed that magnetic interaction and critical behavior of the skyrmion system can be effectively modulated by doping. The critical exponents of $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ and the newly founded skyrmion system of $\text{Fe}_{1.5-x}\text{Co}_x\text{Rh}_{0.5}\text{MoN}$ indicated that the doping concentration of Co can change and affect their critical behaviors. In addition, it was demonstrated that the doping of Co enhanced the anisotropic magnetic coupling in $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ while it suppressed that in $\text{Fe}_{1.5-x}\text{Co}_x\text{Rh}_{0.5}\text{MoN}$. Fourthly, according to the universality and

* Project supported by the National Key R&D Program of China (Grant No. 2017YFA0303201) and the National Natural Science Foundation of China (Grants Nos. 11574322, U1732276).

† Corresponding author. E-mail: zhagnlei@hmfl.ac.cn

the scaling equations, we proposed a method to construct the detailed H - T phase diagram around the phase transition temperature in the system exhibiting field-induced phase transition. Finally, we make a brief summary and suggest our perspectives of the study of critical phenomena in helimagnetic system. The results of critical behaviors indicate that although all these helimagnetic systems exhibit a similar skyrmion phase, their essential magnetic interactions belong in different universality classes, indicating different types of magnetic coupling in these systems. Furthermore, the results also suggest that magnetic coupling can also be effectively tuned by the external modulation.

Keywords: skyrmion, helimagnetism, critical exponent, universality

PACS: 75.10.-b, 05.70.Jk, 76.50.+g, 85.75.-d

DOI: [10.7498/aps.67.20180137](https://doi.org/10.7498/aps.67.20180137)