

САНКТ-ПЕТЕРБУРГСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ  
УНИВЕРСИТЕТ

На правах рукописи

ИВАНОВ АЛЕКСЕЙ ВЛАДИМИРОВИЧ

**ЭЛЕКТРОННАЯ СТРУКТУРА И УСТОЙЧИВОСТЬ  
МАГНИТНЫХ НАНОСИСТЕМ**

Специальность 01.04.02 – теоретическая физика

Диссертация на соискание ученой степени  
кандидата физико-математических наук

Научный руководитель:

доктор физико-математических наук, профессор

Уздин В.М.

Санкт-Петербург – 2020

# Оглавление

<b>Введение</b>	<b>4</b>
<b>1 Методы расчета магнитной структуры на разных пространственных масштабах</b>	<b>9</b>
1.1 Обобщенная модель Гейзенберга и микромагнитное моделирование. . . . .	12
1.2 Неколлинеарное обобщение модели Александра-Андерсона. . . . .	17
1.3 Метод функционала плотности. . . . .	35
<b>2 Эффективные алгоритмы поиска экстремумов и путей с минимальным перепадом энергии на многомерных энергетических поверхностях спиновых систем</b>	<b>38</b>
2.1 Метод оптимизации спиновых состояний ортогональными матрицами для поиска минимумов энергии магнитных систем. . . . .	42
2.2 Пример расчетов энергетических минимумов. . . . .	47
2.3 Поиск путей с минимальным перепадом энергии. Геодезический метод подталкивания упругой лентой. . . . .	50
2.4 Скорость сходимости алгоритмов для задач поиска путей с минимальным перепадом энергии. . . . .	54
2.5 Применение развитых методов к жидкокристаллическим системам. . . . .	61
<b>3 Скирмионы в системах с коллективизированными электронами</b>	<b>67</b>
3.1 Скирмионные состояния в ультратонких пленках в неколлинеарной модели Алекснадра-Андерсона . . . . .	71
<b>4 Термоиндуцированные магнитные переходы в экспериментах с магнитно-обменным силовым микроскопом</b>	<b>78</b>
4.1 Расчет времен жизни магнитных кластеров . . . . .	80

Заключение	91
Литература	92
Благодарности	106

# Введение

Физика магнитных наноструктур представляет собой быстро развивающуюся область науки и современных технологий, важную, как с точки зрения фундаментального магнетизма, так и приложений в электронике и спинтронике. При переходе к наномасштабу меняются многие законы поведения магнитных систем, проявляются новые взаимодействия, приводящие к формированию структур, не существующих или не проявляющихся на макроскопическом уровне. Примером здесь может служить физика топологических магнитных систем, которые рассматриваются сейчас, как одни из наиболее перспективных кандидатов для создания нового поколения сверхплотной и быстрой магнитной памяти. Открытые в киральных магнетиках неколлинеарные устойчивые магнитные структуры – двумерные и трехмерные скирмионы, антискирмионы – могут служить основой новых технологий магнитной памяти, сенсоров, нейроморфных устройств [1, 2]. Для создания искусственных топологических систем с заданными свойствами необходимо понимать, как особенности электронной структуры определяют их размер, подвижность, взаимодействие между отдельными элементами внутри системы. Хотя размер таких магнитных объектов составляет всего несколько десятков нанометров, расчет их электронной и магнитной структур на атомном масштабе представляет собой очень сложную задачу, поскольку число неэквивалентных атомов при самосогласованных расчетах составляет десятки-сотни тысяч. Поэтому разработка моделей и алгоритмов, позволяющих проводить такие расчеты, является очень актуальной задачей, требующей сочетания разных теоретических подходов. При этом компьютерное моделирование, выполняемое на разных пространственных масштабах для одних и тех же систем, может привести к синергетическому эффекту, помогая получить адекватное описание физики изучаемых процессов и явлений. Так расчеты методом функционала плотности могут быть использованы для определения феноменологических параметров, входящих в модельные гамильтонианы, а с другой стороны, эти же параметры могут быть оценены путем сравнения с результатами микромагнитных расчетов, проводимых на микронном масштабе, и с результатами эксперимента.

Другой важной проблемой, возникающей при исследовании и практическом использовании магнитных нано- и микроструктур, является их устойчивость относительно тепловых флуктуаций и случайных внешних воздействий. При уменьшении характерных размеров системы до нанометрового диапазона, взаимодействие с тепловым резервуаром необходимо принимать во внимание не только при комнатной, но и гораздо более низких температурах. При этом оценка устойчивости магнитных состояний становится принципиальным вопросом и для их экспериментального исследования, и для любых приложений в электронике. Теоретическое описание устойчивости таких систем связано с фундаментальной проблемой «редких событий». Оказывается, что время жизни магнитных состояний более, чем на десять порядков больше, чем период осцилляций отдельных магнитных моментов, составляющих систему. Поэтому стохастическое моделирование уравнений движения магнитных моментов не представляется возможным на временах, представляющих практический интерес для оценки частот спонтанных магнитных переходов между состояниями. Однако, именно такая иерархия времен позволяет использовать статистический подход – теорию переходного состояния для магнитных степеней свободы [3]. Для этого рассматривается многомерная энергетическая поверхность системы, как функция параметров, однозначно задающих магнитное состояние системы, например, углов, определяющих направления всех магнитных моментов в модели гейзенберговского типа. Минимумы на этой поверхности соответствуют локально устойчивым магнитным состояниям, а переходам между состояниями отвечают пути, соединяющие точки минимумов. Путь с минимальным перепадом энергии (ПМПЭ) задает переход с максимальным статистическим весом среди близких путей, причем максимальное значение энергии вдоль пути отсчитанное от энергии начального состояния определяет энергию активации или энергетический барьер соответствующего магнитного перехода. Таким образом, для определения энергетических барьеров между магнитными состояниями необходимо уметь рассчитывать энергию «переходного состояния», представляющего собой окрестность седловой точки на многомерной энергетической поверхности магнитной системы. Если магнитная структура содержит несколько тысяч магнитных моментов, то и размерность энергетической поверхности будет составлять несколько тысяч. Поиск ПМПЭ в этом случае представляет собой очень сложную вычислительную задачу, которая предполагает необходимость расчета электронной и магнитной структуры системы в неравновесных состояниях, реализующихся в процессе перехода. Здесь очень важны эффективные алгоритмы, которые позволяют проводить расчеты магнитной структуры систем, представляющих практический интерес. Именно решению этих задач на разных пространственных масштабах

посвящена настоящая диссертация.

Целью работы является развитие вычислительных методов и алгоритмов для проведения самосогласованных расчетов магнитной и электронной структуры систем с коллективизированными электронами, поиск неколлинеарных магнитных структур, соответствующих локальным минимумам энергии, и сценариев переходов между ними путем анализа структуры энергетической поверхности системы. Разработанные методы используются для исследования конкретных магнитных структур – магнитных скирмионов и антискирмионов в тонких магнитных пленках, перемагничивания магнитных кластеров на игле туннельного микроскопа, а также переходов между упорядоченными состояниями в жидкокристаллических системах.

### **Положения, выносимые на защиту:**

1. Разработанные для моделей магнетизма коллективизированных электронов методы и алгоритмы вычислений качественно расширяют область применимости теории и увеличивают скорость самосогласованных расчетов, позволяя находить сложные неколлинеарные магнитные структуры, отвечающие локальным минимумам энергии. Решения с нетривиальным топологическим зарядом скирмионного типа получены в рамках моделей с коллективизированными электронами уже без учета взаимодействия Дзялошинского-Мории, анизотропии и взаимодействия со внешним магнитным полем.
2. Программно реализованные алгоритмы соответствия локализованных моделей гейзенберговского типа магнитным системам с коллективизированными электронами, воспроизводящие одинаковые неколлинеарные спиральные структуры, позволяют определить параметры локализованных моделей с помощью самосогласованных микроскопических расчетов электронной структуры и рассчитать энергетические барьеры для магнитных переходов.
3. Процессы перемагничивания кластеров железа на игле атомно-силового микроскопа, наблюдаемые экспериментально, описаны в рамках модели переходного состояния для магнетизма коллективизированных электронов, что позволило найти микроскопические параметры кластеров атомного масштаба, которые не могут быть прямо определены из эксперимента.
4. Методы, разработанные для магнитных систем, могут быть использованы для анализа возможных сценариев переходов в других упорядоченных средах. Для жидкокристаллических структур исследование путей с минимальным перепадом энергии

между локально устойчивыми состояниями на энергетической поверхности дало возможность определить различные механизмы переходов, в зависимости от характеристик системы и внешних воздействий.

### **Достоверность результатов**

Развитые теоретические подходы и алгоритмы основаны на хорошо апробированных методах, используемых при расчетах магнитной и электронной структуры. Расчеты на основе разработанных компьютерных программ воспроизводят результаты исследований имеющихся в научной литературе. Предложенные быстрые алгоритмы были реализованы автором и вошли составным блоком в программу для моделирования молекулярных систем и твердых тел LAMMPS [4] и программу Spirit для моделирования магнитных систем [5]. Основные результаты работы опубликованы в ведущих рецензируемых журналах, докладывались и обсуждались на научных семинарах в Санкт-Петербургском Государственном Университете, в Университете Аалто, Эспо, Финляндия, и в Университете Исландии, Рейкьявик, Исландия. Результаты также были представлены на следующих научных мероприятиях:

- Конференция "4th Ultrafast Magnetisation Conference." 14-19 Окт. 2019, Университет Йорка, Йорк, Великобритания. Устный доклад: "Orthogonal Spin Optimisation For Finding Energy Minima and Minimum Energy Paths of Transitions."
- Симпозиум "The 9th International Symposium on Metallic Multilayers (MML 2016) 19-23 Июня 2016 Уппсула, Швеция. Постер: "Formulation of Constraints on Non-stable Magnetic States for Calculations of Dynamics and Minimum Energy Path".
- Международная летняя школа "Introduction to atomistic spin dynamics". 16-17 Июня 2016 КТН, Киста, Стокгольм, Швеция.
- Международная школа и конференция "Saint Petersburg OPEN 2016" 28-30 Марта, 2016, Санкт-Петербург, Россия. Постер: "Tip-Sample Interaction and Rates of Magnetic Transitions".
- Международная студенческая конференция "Science and Progress 2015". Санкт-Петербург, 9-13 Ноября 2015. Устный доклад: "Rates of Magnetic Transitions Controlled by the Exchange Interaction on Atomic Scale".
- Международанный семинар-конференция "International Workshop of Nanomagnetism". Рейкьявик, Исландия, 7-8 Апреля 2015. Устный доклад: "Simulation of Magnetisation Reversal Induced by Exchange Interaction at Atomic Scale".

### Список публикаций по теме диссертации.

1. Ivanov, A. V. Efficient optimization method for finding minimum energy paths of magnetic transitions / A.V. Ivanov, D. Dagbartsson, J. Tranchida, V.M. Uzdin and H. Jónsson // Journal of Physics: Condensed Matter. – 2020 – Vol. 32, no 34. – P 345901.
2. Ivanov, A. V. Fully self-consistent calculations of magnetic structure within non-collinear Alexander-Anderson model / A.V. Ivanov, P.F. Bessarab, H. Jónsson and V.M. Uzdin // Nanosystems: Physics, Chemistry, Mathematics – 2020. – Vol. 11, no. 1. – P. 65–77
3. Ivanov A. V. Multiple minimum-energy paths and scenarios of unwinding transitions in chiral nematic liquid crystals / S. S. Tenishchev, A. D. Kiselev, A. V. Ivanov, and V. M. Uzdin // Physical Review E. – 2019. – Vol. 100, no. 6. – P. 062704.
4. Ivanov, A. V. Magnetic exchange force microscopy: Theoretical analysis of induced magnetization reversal / A. Ivanov, P.F. Bessarab, V.M. Uzdin, and H. Jónsson // Nanoscale. – 2017. – Vol. 9, no. 35 – P. 13320-13325.
5. Ivanov, A. V. Tip-surface interaction and rate of magnetic transitions / A. V. Ivanov, P. F. Bessarab, V. M. Uzdin, H. Jónsson // Journal of Physics: Conference Series. – 2016. – Vol. 741, no. 1. – P. 012184
6. Ivanov, A. V. Energy surface and minimum energy paths for Fréedericksz transitions in bistable cholesteric liquid crystals / A.V. Ivanov, P.F. Bessarab, E.V. Aksenova, V.P. Romanov, V.M. Uzdin // Physical Review E. – 2016. – Vol. 93, no. 6. – P. 042708

# Глава 1

## Методы расчета магнитной структуры на разных пространственных масштабах

Методы моделирования неколлинеарных магнитных структур можно разделить по точности расчета и их вычислительной сложности. Сложность метода, в первую очередь, зависит от пространственного и временного масштаба моделирования. Если исследуемая система состоит из небольшого числа атомов, и интерес представляют именно свойства основного состояния, то удобным методом расчета является метод функционала плотности (ФП) [6, 7]. Этот метод имеет асимптотическую сложность расчета  $\mathcal{O}(N^3)$ , где  $N$  – число электронов в системе. Он позволяет моделировать свойства основного состояния структур, число атомов в которых не превосходит 100-500. После теоретического обобщения классического метода ФП на расчет плотности намагниченности [8, 9], было реализовано несколько программ, которые сейчас широко используются для расчета систем с неколлинеарной магнитной структурой [10–12]. Расчет неравновесных состояний требует введения дополнительных условий связи на направление магнитного момента, усредненного внутри некоторой области, окружающей магнитный атом. Если такие условия связи выполнены не будут, то рассчитанный средний магнитный момент не будет согласован с его изначально выбранным направлением [13]. Полная процедура самосогласования требует введения множителей Лагранжа [14] для поиска условного экстремума. Однако, без них, в типичных расчетах, магнитный момент отклоняется от заданного направления только на величину порядка одного градуса. Поэтому необходимостью введения множителей Лагранжа часто пренебрегают. Так, без них можно получить достаточно точное описание спектра магнонов [15]. В то же время, для расче-

та функции отклика и температуры Кюри введение множителей Лагранжа приводит к гораздо лучшему согласию с экспериментальными данными [15,16]. Несмотря на успех в развитии численных методов расчета неколлинеарных структур, метод ФП оказывается неприменимым для описания большого класса систем, представляющих практический интерес. Дело в том, что характерный размер магнитных структур, устойчивых при комнатной температуре составляет порядка 10-100 нм и больше. Прямое моделирование таких систем методом ФП пока не представляется возможным.

Описание магнитных состояний на основе квазиклассических модельных гамильтонианов, таких как модель Гейзенберга, возможно на разных пространственных масштабах. Для систем с короткодействующим взаимодействием сложность расчётов энергии растёт как  $\mathcal{O}(N)$ , где  $N$  – число спинов. Из-за относительно простой организации параллельных вычислений на основе метода доменной декомпозиции, сейчас удается моделировать динамику систем, содержащих сотни миллионов атомов [17]. Однако, моделирование на таких масштабах требует больших вычислительных ресурсов.

Для описания магнитных систем бóльшего размера используется микромагнитное моделирование, при котором энергия определяется феноменологически и задается, как функционал поля намагниченности. Точность расчета этого метода, также, как и в методе атомистического моделирования, зависит от того, какие взаимодействия были включены в модель и от параметризации выбранных взаимодействий. Выбор значений параметров, например, констант обменного взаимодействия Гейзенберга, величины вектора Дзялошинского-Мории и др. зависит от того, какие свойства системы рассматриваются. Так, например, подгонкой параметров обобщенной модели Гейзенберга можно довольно точно воспроизвести спектр спиновых спиралей вдоль прямых, соединяющих высокосимметричные точки первой зоны Брюллиена. Этот способ является одним из основных методов определения констант обменного взаимодействия. Однако, когда речь идёт об оценке стабильности магнитных структур относительно тепловых флуктуаций, такой выбор констант обменного взаимодействия, в лучшем случае, может дать только правильный порядок величины энергетического барьера. Этот вопрос будет более подробно обсуждаться в главе 3.

Помимо пространственного масштаба при моделирование магнитных систем, необходимо заботиться о правильном выборе временных масштабов моделирования. Характерный шаг по времени при динамическом моделировании в рамках атомистической модели должен быть существенно меньше периода осцилляций отдельных магнитных моментов, который может составлять  $10^{-12}$  с. Для практического использования магнитных структур в системах магнитной памяти время жизни магнитных состояний

должно составлять годы. Поэтому оценка, например, времен жизни магнитных состояний на основе динамического моделирования для таких систем не возможна, независимо от модели, которая используется для расчета энергии системы. Здесь, однако, можно использовать статистический подход, основанный на теории переходного состояния. В гармоническом приближении, когда зависимость энергии от всех величин, однозначно задающих магнитную конфигурацию системы, аппроксимируется в локальных минимумах и седловых точках квадратичной функцией, для времен жизни удастся получить аналитическое выражение [3]. Такая теория использовалась при описании влияния тепловых флуктуаций на процессы перемагничивания спиновых пружин [18] и устойчивости скирмионных состояний при конечных температурах [19, 20]

Теория переходного состояния предполагает поиск седловых точек на энергетической поверхности системы большой размерности. Это требует расчетов энергии системы не только в локальных минимумах, но и для неравновесных состояний, которые могут реализовываться в процессе магнитного перехода. Для больших систем, включающих тысячи и более атомов расчет энергии методом ФП оказывается невозможен и используются атомистические модели с феноменологическими параметрами. Такие модели, однако, не всегда описывают поведение реальной системы с достаточной точностью. В частности, многие системы с топологически стабилизированными магнитными состояниями содержат магнитные атомы переходных металлов группы железа. Магнетизм в этих материалах в металлическом состоянии определяется коллективизированными электронами  $3d$ -зоны, и модель Гейзенберга, постулирующая локализацию магнитных моментов на узлах, позволяет рассчитать свойства системы лишь приближенно, даже при учете большого количества обменных интегралов, описывающих взаимодействие между удаленными магнитными моментами.

К моделям, позволяющим более адекватно описывать магнитные материалы с коллективизированными электронами относятся модели Хаббарда [21] и Андерсона [22]. В следующем разделе будут рассмотрены методы, позволяющие искать локально устойчивые состояния на энергетической поверхности и пути переходов между ними, описывающие механизмы переходов, в рамках нелинейного обобщения модели Андерсона. Краткий обзор метода ФП, обобщенной модели Гейзенберга и метода микромагнитного моделирования будет также изложен ниже.

## 1.1 Обобщенная модель Гейзенберга и микромагнитное моделирование.

### 1.1.1 Обобщенная модель Гейзенберга.

В обобщенной модели Гейзенберга, предполагается, что величина магнитного момента не зависит от его направления и что магнитные моменты локализованы на узлах решетки. Энергия изотропного магнетика может быть записана в следующем виде:

$$E = \sum_{n=1}^N H^{(2n)}, \quad (1.1)$$

где  $H^{(2n)}$  описывает  $2n$ -спиновое взаимодействие.

Первое слагаемое  $H^{(2)}$  – это энергия обменного взаимодействия Гейзенберга, учитывающая только парные спиновые взаимодействия:

$$H^{(2)} = - \sum_{j=1}^X J_j \sum_{\langle i,k \rangle_j} (\mathbf{e}_i, \mathbf{e}_k) \quad (1.2)$$

здесь  $X$  число учитываемых взаимодействующих соседей, сумма  $\sum_{\langle i,k \rangle_j}$  берется по всем парам магнитных моментов  $i$  и  $k$ , являющимися  $j$ -ми соседями, при это каждая пара учитывается только один раз,  $J_j$  константа обменного взаимодействия между  $j$ -ми соседями. Единичный вектор  $\mathbf{e}_i$  задает направление  $i$ -го магнитного момента.

Следующий вклад описывает четырех-спиновое взаимодействие. Обычно, он разделяется на три слагаемых: биквадратичное, трех-узловое четырех-спиновое [23], и четырех-узловое четырех-спиновое взаимодействие [24], которые записываются в следующем виде:

$$\begin{aligned} H^{(4)} = & - I_{24} \sum_{\langle i,k \rangle} (\mathbf{e}_i, \mathbf{e}_k)^2 \\ & - I_{34} \sum_{\langle i_1 i_2 i_3 \rangle'} [(\mathbf{e}_{i_1}, \mathbf{e}_{i_2})(\mathbf{e}_{i_2}, \mathbf{e}_{i_3}) + (\mathbf{e}_{i_2}, \mathbf{e}_{i_3})(\mathbf{e}_{i_3}, \mathbf{e}_{i_1}) + (\mathbf{e}_{i_3}, \mathbf{e}_{i_1})(\mathbf{e}_{i_1}, \mathbf{e}_{i_2})] \\ & - \sum_{\langle i_1 i_2 i_3 i_4 \rangle'} [I_{44}(\mathbf{e}_{i_1}, \mathbf{e}_{i_2})(\mathbf{e}_{i_3}, \mathbf{e}_{i_4}) + I_{44}(\mathbf{e}_{i_1}, \mathbf{e}_{i_4})(\mathbf{e}_{i_2}, \mathbf{e}_{i_3}) - (I_{44} - K_{44})(\mathbf{e}_{i_1}, \mathbf{e}_{i_3})(\mathbf{e}_{i_2}, \mathbf{e}_{i_4})] \end{aligned} \quad (1.3)$$

где первая сумма с индексом  $\langle i, k \rangle$  учитывает только ближайшие соседи и каждая пара считается только один раз.  $\langle i_1 i_2 i_3 \rangle'$  - наикратчайший замкнутый путь, соединяющий три узла, и каждый такой путь учитывается только один раз.  $\langle i_1 i_2 i_3 i_4 \rangle'$  наикратчайший замкнутый путь, соединяющий четыре узла, и каждый такой путь учитывается только

один раз. В модели Хаббарда константа  $K_{44}$  определяется параметром перескока между вторыми соседями [23], поэтому ей часто пренебрегают.

Наряду с приведенными вкладами, к энергии можно добавить и члены старшего порядка, например, бикубическое слагаемое:

$$H^{(6)} = -B_3 \sum_{i,k} (\mathbf{e}_i, \mathbf{e}_k)^3 \quad (1.4)$$

Остальными вкладами в энергию (1.1) пренебрегают, считая их малыми.

Если в кристалле нарушена симметрия при пространственной инверсии, то к энергии (1.1) может добавиться, так называемое, взаимодействие Дзялошинского-Мории (ВДМ) [25–27]:

$$E^{DMI} = \sum_{\langle i>k \rangle} (\mathbf{D}, [\mathbf{e}_i, \mathbf{e}_k]), \quad (1.5)$$

где  $\mathbf{D}$  - вектор Дзялошинского-Мории. Также в полную энергию системы входят вклады, описывающие взаимодействие магнитных моментов с магнитным полем  $E^B$  и с полем одноосной анизотропии  $E^K$ . Последнее, как и ВДМ, возникает за счет учета спин-орбитального взаимодействия:

$$E^B = - \sum_i M_i (\mathbf{e}_i, \mathbf{B}), \quad (1.6)$$

$$E^K = - \sum_i K (\mathbf{e}_i, \mathbf{k})^2 \quad (1.7)$$

где  $M_i$  – величина магнитного момента на  $i$ -м узле,  $K$  – параметр анизотропии. При моделировании микромагнитных структур, наряду с описанными выше короткодействующими взаимодействиями, в полную энергию добавляют вклад от магнитного диполь-дипольного взаимодействия, убывающего с расстоянием по степенному закону:

$$E^{DD} = \frac{\mu_0}{4\pi} \sum_{\langle i,k \rangle} \frac{M_i M_k (\mathbf{e}_i, \mathbf{e}_i)}{R_{ik}^3} - \frac{3M_i M_k (\mathbf{e}_i, \mathbf{R}_{ik})(\mathbf{e}_k, \mathbf{R}_{ik})}{R_{ik}^5}, \quad (1.8)$$

где  $\mathbf{R}_{ik}$  – вектор, соединяющий  $i$  и  $k$  узлы решетки. Из-за того, что взаимодействие дальнедействующее, необходимо учитывать вклады от большого количества пар магнитных моментов, что делает расчет диполь-дипольного взаимодействия вычислительно трудоемким. Поэтому им часто пренебрегают в расчетах или сводят к другим эффективным взаимодействиям. Например, при описании тепловой устойчивости скирмионов в тонких пленках, диполь-дипольное взаимодействие эффективно может быть учтено через перенормировку величины константы одноосной анизотропии [28].

При расчетах конкретных магнитных систем обычно учитывают до 5 констант обменного взаимодействия, 3 константы четырех-спинового взаимодействия  $I_{24}, I_{34}, I_{44}$ ,

ВДМ,  $\mathbf{D}$ , и одноосную анизотропию  $K$ . Константы обменного взаимодействия часто определяют посредством сравнения энергетических поверхностей обобщенной модели Гейзенберга и той, которая получена из первопринципных расчетов. Ясно, что такое сопоставление может быть точным только тогда, когда учитываются все взаимодействия, присутствующие в первопринципном гамильтониане, что часто не выполнимо.

На практике используются два метода расчета параметров обобщенной модели Гейзенберга. В первом методе используется соответствие спектра спиновых спиралей, который рассчитывается вдоль прямых, соединяющие высоко симметричные точки первой зоны Бриллюэна [29–32], – метод подгонки спектра спиновых спиралей в приближении двухспиновых взаимодействий (ПССС). Пример такого спектра, рассчитанного в рамках неколлинеарного обобщения гамильтониана Александра-Андерсона в приближении среднего поля, представлен на Рис. 1.1.

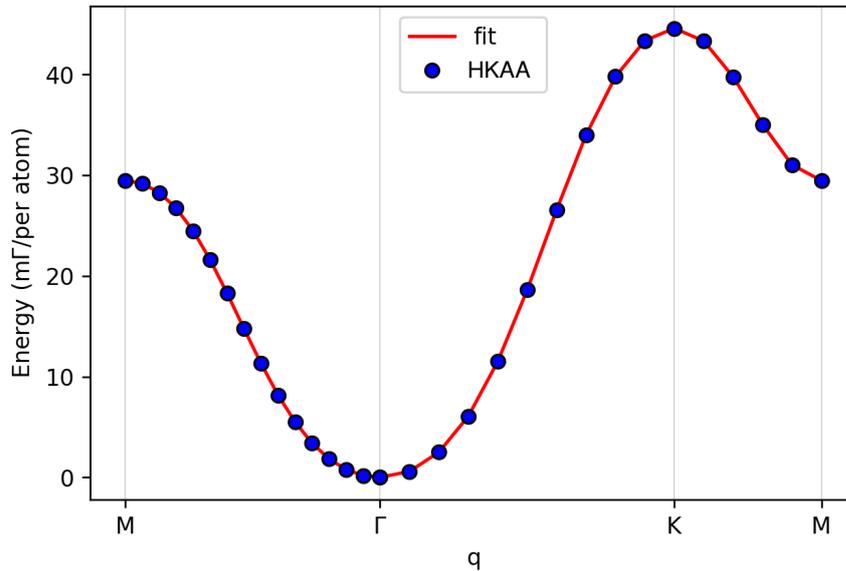


Рис. 1.1: Спектр спиновых спиралей, рассчитанный для двумерной гексагональной решетки вдоль путей, соединяющих высокосимметричные точки Бриллюэна М, Г, К. Параметры модели Гейзенберга были определены так, чтобы спектр совпадал с моделью НКАА.

Вообще говоря, модель Гейзенберга может быть применима только для малых отклонений магнитных моментов от равновесия вблизи энергетического минимума, так как является разложением Тейлора второго порядка энергии, рассчитанной из первых принципов [33]. Поэтому другой метод расчетов параметров обменного взаимодействия основан на сопоставлении кривизны энергетической поверхности одной модели относительно другой вблизи минимума. В ферромагнитном состоянии, когда все спины

направлены вдоль оси  $z$ , и предполагая, что энергия содержит только парные взаимодействия, интегралы обменного взаимодействия, могут быть рассчитаны с помощью следующей формулы:

$$J_\delta = \frac{\partial^2 E}{\partial \theta_i \partial \theta_{i+\delta}}, \quad (1.9)$$

где  $\delta$  нумерует порядок соседа по отношению к магнитному моменту, локализованному на узле  $i$ ,  $\theta_i$  – полярный угол задающий направление магнитного момента. В литературе этот метод носит название метода инфинитезимальных вращений (ИВ).

Для расчета констант старшего порядка используются спиральные состояния, которые задаются более чем одной точкой в пространстве обратной решетки. Пример таких состояний представлен на Рис. 1.2 Можно показать, что разница энергий состояний по-

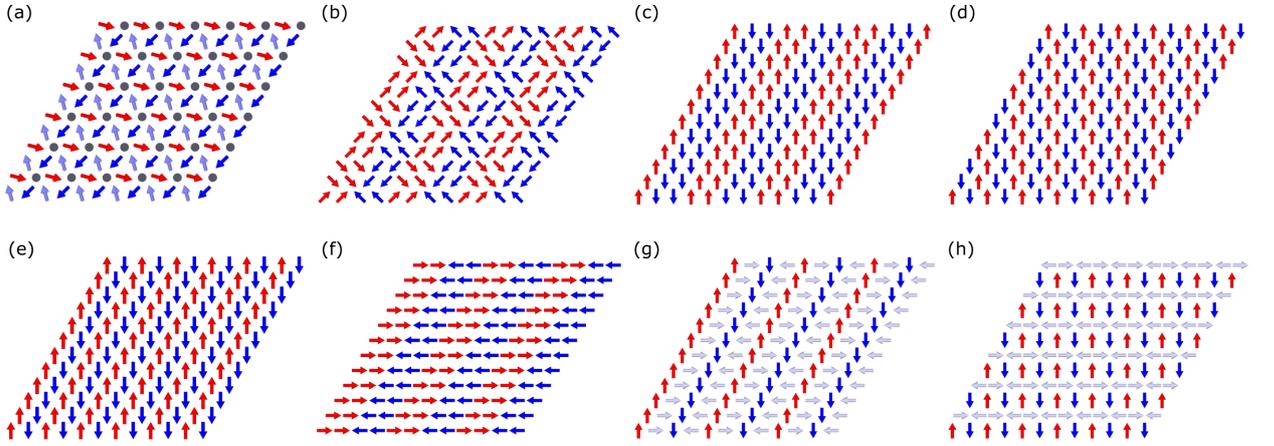


Рис. 1.2: Спиновые спирали, используемые для расчета констант спиновых взаимодействий старшего порядка за пределами модели Гейзенберга. (a)  $3Q(M)$  конфигурация [34], (b)  $2Q uudd$  конфигурация [35], (c)  $1Q uudd(M/2)$  конфигурация, (d)  $1Q uudd(K/4)$  конфигурация, (e)  $1Q(M)$  конфигурация, (f)  $1Q uudd$  конфигурация, (g)  $1Q(M/2)$  конфигурация, (h)  $1Q(K/4)$  конфигурация.

казанных на рисунке 1.2 не содержит парных взаимодействий, в результате чего можно получить следующие выражения для констант четырех-спинового взаимодействия:

$$E_{3Q(M)} - E_{1Q(M)} = \frac{8}{3} (I_{44} - I_{34} + I_{24} + K_{44}) \quad (1.10)$$

$$E_{1Q uudd(M/2)} - E_{1Q(M/2)} = 2 (I_{44} - I_{34} - I_{24} - K_{44}) \quad (1.11)$$

$$E_{1Q uudd(K/4)} - E_{1Q(K/4)} = 2 (I_{44} + I_{34} - I_{24} - K_{44}) \quad (1.12)$$

$$E_{2Q uudd} - E_{1Q uudd} = \frac{1}{2} (I_{44} + I_{34} + 3I_{24} + K_{44}) \quad (1.13)$$

Расчет энергии состояний указанных в левой части уравнений (1.10)- (1.13) производится с помощью первопринципных методов. После того, как четырех-спиновые взаимодей-

ствия были рассчитаны необходимо пересчитать интегралы обменного взаимодействия для того, чтобы воспроизвести спектр спиновых спиралей или кривизну энергетической поверхности:

$$J_1^{\text{ИБ}} \leftarrow J_1^{\text{ИБ}} - 2I_{24} - 4I_{34} - 3I_{44} - K_{44} \quad (1.14)$$

$$J_2^{\text{ИБ}} \leftarrow J_2^{\text{ИБ}} + I_{44} - K_{44} \quad (1.15)$$

и

$$J_1^{\text{ПССС}} \leftarrow J_1^{\text{ПССС}} - I_{34} \quad (1.16)$$

$$J_2^{\text{ПССС}} \leftarrow J_2^{\text{ПССС}} - I_{34} \quad (1.17)$$

$$J_3^{\text{ПССС}} \leftarrow J_3^{\text{ПССС}} - I_{24}/2 - K_{44}/2 \quad (1.18)$$

### 1.1.2 Микромагнитная модель

При микромагнитном моделировании, энергия задается, как функционал поля намагниченности в следующем виде:

$$E[\mathbf{M}(\mathbf{r})] = \int d\mathbf{r} A (\text{div } \mathbf{M})^2 + D \mathbf{M} \cdot \text{rot } \mathbf{M} - K \mathbf{M}_z^2 - \frac{1}{2} \mathbf{M} \mathbf{H}_m \quad (1.19)$$

Здесь первый вклад – обменная энергия ( $A$  – параметр обменной жесткости), второй – соответствует ВДМ [36], третий – энергия магнитной анизотропии. Последний вклад – энергия размагничивающих полей, в котором сами размагничивающие поля  $\mathbf{H}_m$  определяются уравнениями Максвелла:

$$\nabla (\mathbf{H}_m + 4\pi \mathbf{M}) = 0 \quad (1.20)$$

$$\nabla \times \mathbf{H}_m = 0 \quad (1.21)$$

Параметры микромагнитной модели можно связать с параметрами модели Гейзенберга. Для кубической решетки с постоянной решеткой  $a$  имеют место следующие соотношения:

$$A^{MM} = \frac{J_1^{\text{Heis}}}{2a}, \quad (1.22)$$

$$D^{MM} = \frac{D^{\text{Heis}}}{a^2}, \quad (1.23)$$

$$K^{MM} = \frac{K^{\text{Heis}}}{a^3}, \quad (1.24)$$

$$M^{MM} = \frac{M}{a^3}, \quad (1.25)$$

Таким образом, рассчитав параметры модели Гейзенберга, можно найти эффективные параметры микромагнитной модели.

## 1.2 Неколлинеарное обобщение модели Александера-Андерсона.

Модель Андерсона первоначально была предложена для описания процесса формирования локальных магнитных моментов на примесях  $3d$ -элементов в немагнитном металле [22]. В дальнейшем она была обобщена на случай двух магнитных примесей Александером и Андерсоном [37]. В рамках этой модели можно было исследовать вопрос о ферро или антиферромагнитном взаимодействии между магнитными моментами на примесях в зависимости от параметров модели. Позже были разработаны неколлинеарные обобщения, которые давали возможность рассматривать произвольно направленные магнитные моменты. Если магнитные атомы расположить во всех узлах кристаллической решетки, такая модель может описывать массивные образцы металлов и сплавов переходных элементов группы железа. В рамках этого подхода удалось описать процессы перемагничивания в пленках железа на поверхности жесткого магнетика, волны спиновой плотности в хrome, данные мессбауэровской спектроскопии в мультислойных системах, магнитные переходы в островках железа на поверхности вольфрама и др. [38–46]. В модели предполагается существование двух энергетических зон, соответствующих полностью коллективизированным  $4s(p)$  и квазилокализованным  $3d$ -электронам. Гамильтониан в приближении одной  $d$ -орбитали на атом записывается в следующем виде:

$$\begin{aligned} \hat{H} = & \sum_{i\alpha} \epsilon_i^0 \hat{n}_{i\alpha} + \sum_{i \neq j, \alpha} v_{ij} \hat{d}_{i\alpha}^\dagger \hat{d}_{j\alpha} + \frac{1}{2} \sum_{i, \alpha \neq \beta} U_i \hat{n}_{i\alpha} \hat{n}_{i\beta} + \\ & \sum_{\mathbf{k}\alpha} \epsilon_{\mathbf{k}} \hat{n}_{\mathbf{k}\alpha} + \sum_{\mathbf{k}, i, \alpha} \left( v_{i\mathbf{k}} \hat{d}_{j\alpha}^\dagger \hat{c}_{\mathbf{k}\alpha} + v_{\mathbf{k}i} \hat{c}_{\mathbf{k}\alpha}^\dagger \hat{d}_{j\alpha} \right), \end{aligned} \quad (1.26)$$

где  $\hat{d}_{i\alpha}$ ,  $\hat{d}_{i\alpha}^\dagger$  – операторы уничтожения и рождения  $d$  электронов со спином  $\alpha$  на узле  $i$ ,  $\hat{c}_{\mathbf{k}\alpha}$ ,  $\hat{c}_{\mathbf{k}\alpha}^\dagger$  – операторы уничтожения и рождения  $s(p)$  электронов со спином  $\alpha$  и квазиимпульсом  $\mathbf{k}$ ,  $\hat{n}_{i\alpha} = \hat{d}_{i\alpha}^\dagger \hat{d}_{i\alpha}$ ,  $\hat{n}_{\mathbf{k}\alpha} = \hat{c}_{\mathbf{k}\alpha}^\dagger \hat{c}_{\mathbf{k}\alpha}$  – операторы числа частиц,  $\epsilon_i^0$  – энергия локализованного  $d$ -уровня,  $\epsilon_{\mathbf{k}}$  – энергия состояния  $s(p)$  электронов с квазиимпульсом  $\mathbf{k}$ ,  $v_{ij}$  – параметр перескока между локализованными  $d$ -уровнями,  $v_{i\mathbf{k}}$  – параметр перехода между состоянием, локализованным на узле  $i$  и состоянием из зоны проводимости с квазиимпульсом  $\mathbf{k}$ ,  $U_i$  – кулоновское отталкивание на узле  $i$ .

Первые три слагаемых описывают  $d$ -электронную подсистему. Четвертое –  $s(p)$ -зону, последнее – гибридизацию  $d$  и  $s(p)$  зон. Широкий класс магнитных состояний может быть описан в рамках приближения среднего поля. При этом для введения неколлинеарных состояний, аппроксимация двухчастичного кулоновского взаимодействия средним полем осуществляется на каждом узле в локальной системе координат, в которой ось квантования  $z$  направлена вдоль магнитного момента. Схематично такая процедура

изображена на Рис. 1.3. В результате этой процедуры, соответствующей приближению локального среднего поля, имеем [47]:

$$U_i \hat{n}_{i\alpha} \hat{n}_{i\beta} \rightarrow \frac{U_i N_i}{2} (\hat{n}_{i\alpha} + \hat{n}_{i\beta}) - \frac{U_i M_i}{2} \hat{\mathbf{M}}_i \cdot \mathbf{e}_i - \frac{1}{4} U_i (N_i^2 - M_i^2), \quad (1.27)$$

где  $N_i$ ,  $M_i$  – среднее число  $d$ -электронов и магнитного момента на узле  $i$ . Вектор  $\mathbf{e}_i = (\sin \theta_i \cos \phi_i, \cos \theta_i \sin \phi_i, \cos \theta_i)$  – задает направление среднего значения магнитного момента на узле  $i$ :

$$\hat{\mathbf{M}}_i = \left( \hat{M}_{ix}, \hat{M}_{iy}, \hat{M}_{iz} \right)^T, \quad (1.28)$$

$$\hat{M}_{iq} = \sum_{\alpha\beta} \hat{d}_{i\alpha}^\dagger \sigma_{\alpha\beta}^q \hat{d}_{i\beta}, \quad q = x, y, z \quad (1.29)$$

$\sigma^q$  – матрицы Паули.

Для расчета средних значений числа  $d$ -электронов, магнитного момента, и энергии удобно использовать формализм функций Грина. Так как гамильтониан  $\hat{H}^{MF}$  в приближении среднего поля квадратичен по операторам рождения-уничтожения, то функция Грина является его резольвентой:

$$(\omega - \hat{H}^{MF})G = I \quad (1.30)$$

В дальнейшем нас будут интересовать магнитные свойства системы, которые определяются, в основном,  $d$ -электронами. Используя формализм функций Грина, можно перейти к эффективному гамильтониану  $d$ -подсистемы в котором  $s(p)$ -электроны учтены через перенормировку параметров и гибридизацию  $d$ -зоны [22]. Такой гамильтониан имеет вид [48]:

$$\begin{aligned} \hat{H}^{NCAA} = & \sum_{i\alpha} \left( E_i^0 + \frac{U_i N_i}{2} + i\Gamma \right) \hat{n}_{i\alpha} + \sum_i -\frac{U_i M_i}{2} \hat{\mathbf{M}}_i \cdot \mathbf{e}_i + \\ & \sum_i -\frac{1}{4} U_i (N_i^2 - M_i^2) + \sum_{i \neq j, \alpha} V_{ij} \hat{d}_{i\alpha}^\dagger \hat{d}_{j\alpha}, \end{aligned} \quad (1.31)$$

где

$$E_i^0 = \epsilon_i^0 + \text{Re} \sum_{\mathbf{k}} \frac{v_{i\mathbf{k}} v_{\mathbf{k}i}}{\omega - \epsilon_{\mathbf{k}}}, \quad (1.32)$$

$$\Gamma = \text{Im} \sum_{\mathbf{k}} \frac{v_{i\mathbf{k}} v_{\mathbf{k}i}}{\omega - \epsilon_{\mathbf{k}}}, \quad (1.33)$$

$$V_{ij} = v_{ij} + \sum_{\mathbf{k}} \frac{v_{i\mathbf{k}} v_{\mathbf{k}j}}{\omega - \epsilon_{\mathbf{k}}}. \quad (1.34)$$

Мнимая добавка,  $i\Gamma$  приводит к тому, что полюса функции Грина смещены в комплексную плоскость, а плотность состояний имеет лоренцевскую форму. Эта модель представляет собой неколлинеарное обобщение модели Алекснадера-Андерсона (НКАА).

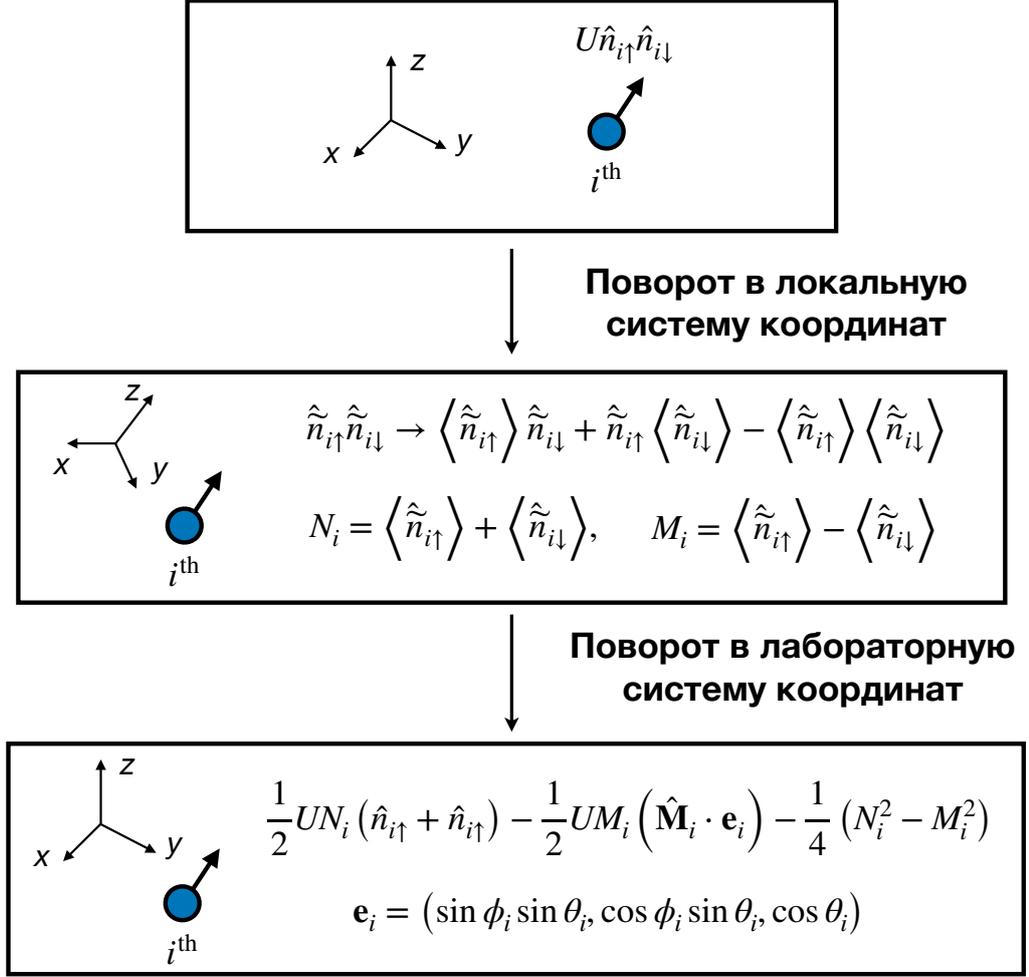


Рис. 1.3: Неколлинеарность в приближении среднего поля. Кружками отмечены атомы, а стрелки показывают усредненные направления магнитных моментов. Приближение среднего поля осуществляется в два этапа. Сначала совершается переход в систему координат, в которой ось  $z$  направлена вдоль магнитного момента  $i$ -го атома. Двухчастичное взаимодействие инвариантно относительно такого перехода. Далее, в локальной системе координат осуществляется приближение среднего поля  $\hat{n}_{i\alpha}\hat{n}_{i\beta} \rightarrow \langle \hat{n}_{i\alpha} \rangle \hat{n}_{i\beta} + \hat{n}_{i\alpha} \langle \hat{n}_{i\beta} \rangle - \langle \hat{n}_{i\alpha} \rangle \langle \hat{n}_{i\beta} \rangle$ , и вводится среднее число частиц и магнитного момента:  $N_i = \langle \hat{n}_{i\alpha} \rangle + \langle \hat{n}_{i\beta} \rangle$  и  $M_i = \langle \hat{n}_{i\alpha} \rangle - \langle \hat{n}_{i\beta} \rangle$ . Далее происходит переход обратно в лабораторную систему координат, в результате чего выражение для кулоновского взаимодействия на  $i$ -м атоме приобретает вид, представленный на рисунке и в тексте (см. ур.(1.27)). Такая процедура повторяется для всех атомов в системе.

Физический смысл параметров модели НККА проиллюстрирован на Рис. 1.4, где показана плотность состояний  $d$ -электронов с разной проекцией спина в коллинеарном

случае. Параметр  $E_i^0$  определяет положение квазилокализованного  $d$ -уровня, а параметр  $\Gamma$  – его ширину за счет  $s(p)$ - $d$  гибридизации (Рис. 1.4(a)). Параметр  $U$  – кулоновское взаимодействие электронов, локализованных на одном узле. Для достаточного большого значения  $U$  в системе появляется магнитное решение. Уровни с разной проекцией спина отталкиваются друг от друга, в результате чего один из уровней пересекает уровень Ферми выше по энергии, чем другой и число электронов на этом уровне становится меньше, чем на втором (рис. 1.4(b)).

Параметр перескока  $V_{ij}$  определяет взаимодействие между электронами, локализованными на разных атомах. Отметим, что  $V_{ij}$  включает как прямые перескоки между магнитными атомами, так и переходы через  $s(p)$ -зону (см. ур. (1.34)) При ферромагнитном упорядочении, происходит формирование связывающего и антисвязывающего состояний (рис. 1.4(c)), и во втором порядке теории возмущения, изменение энергии равно:

$$\Delta E_F = -V^2 \rho_F, \quad (1.35)$$

где  $\rho_F$  – плотность состояний на уровне Ферми. Такое взаимодействие было названо двойным обменом [37].

В антиферромагнитном состоянии, происходит отталкивание заполненных уровней одного атома от частично заполненных уровней другого атома (рис. 1.4(d)). Изменение энергии для достаточно малого значения  $V$  равно:

$$\Delta E_A = -\frac{V^2}{2U}. \quad (1.36)$$

Такой механизм формирования антиферромагнитного состояния называют кинетическим обменом [37].

Энергия ферромагнитного состояния будет ниже, если выполнено условие:

$$U \rho_F > 2 \quad (1.37)$$

Таким образом, если на уровне Ферми нет достаточного числа локализованных электронов, то в системе реализуется антиферромагнитное состояние.

Положение  $d$ -уровня и значение плотности состояний легко контролируется параметром  $E_0$ , что в свою очередь ведёт к изменению среднего числа квазилокализованных электронов на узле. Это показано на основании расчетов основного состояния димера, представленных на Рис. 1.5. Как видно из рисунка 1.5 (а) для малых значений  $V$ , знак обменного взаимодействия определяется средним числом  $d$ -электронов. При  $4.5 < N < 6.5$ , антиферромагнитное состояние ниже по энергии, чем ферромагнитное, а для  $4.5 > N$  и  $N > 6.5$  основным состоянием является ферромагнитное. Среднее

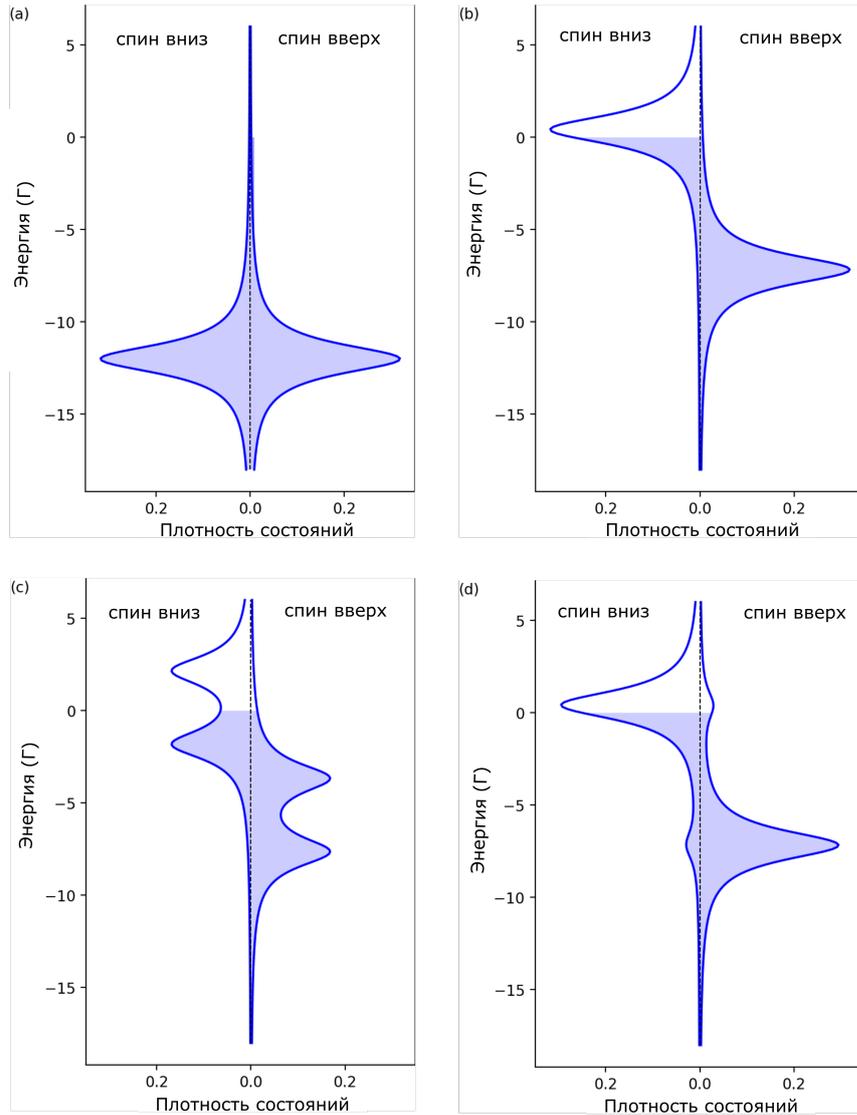


Рис. 1.4: Локальные плотности состояний электронов, локализованных на узле, полученные в рамках модели НККАА. Синим цветом показаны заполненные состояния до уровня Ферми. (а) Немагнитное решение, полученное с параметрами  $E^0 = -12\Gamma$ ,  $U = 0$ ,  $V = 0$ , что соответствует первому слагаемому в модели НККАА. Число электронов со спином вверх и вниз одинаково. Положение максимума спиновой плотности определено параметром  $E^0 = -12\Gamma$ , а ширина – параметром  $\Gamma$ . (б) Магнитное решение при  $E^0 = -12\Gamma$ ,  $U = 13\Gamma$ ,  $V = 0$ . Кулонвское взаимодействие приводит к отталкиванию электронов с разной проекцией спина, в результате чего в одной из спиновых подзон оказывается больше электронов, чем в другой – появляется магнитный момент. (в) Ферромагнитное решение димера с параметрами  $E^0 = -12\Gamma$ ,  $U = 13\Gamma$ ,  $V = 2\Gamma$ . Происходит формирование связывающего и антисвязывающего состояний. (г) Антиферромагнитное состояние димера с такими же параметрами, как и на рис.(в). Происходит отталкивание заполненной зоны одного атома от незаполненной зоны другого атома.

число электронов сильнее зависит от  $E_0$ , чем от  $U$ . Наискорейшее изменение  $N$  в области  $0 < N < 4.5$  происходит вдоль  $E_0$  и практически не зависит от  $U$ , как видно из рис. 1.5(b). Более того, изменение параметра  $E_0$ , для заданного  $U$ , ведет к изменению величины магнитного момента в максимально широком диапазоне (от 0 до  $5\mu_B$ ).

Отметим, что в рассматриваемой системе существуют два разных обменных механизма – кинетический и двойной обмены. Если эти два обмена близки по величине, то модель Гейзенберговского типа может потребовать введения дополнительных вкладов в энергию, которые получаются из модели коллективизированных электронов в более высоких порядках теории возмущений. Отсюда возникают биквадратичные и четырехспиновые добавки при описании, например, скирмионных состояний [49]. Необходимость введения таких дополнительных членов в энергию можно ожидать при среднем числе  $d$ -электронов в области  $N \approx 6.5$  или  $N \approx 3.5$  (см. рис. 1.5(a)).

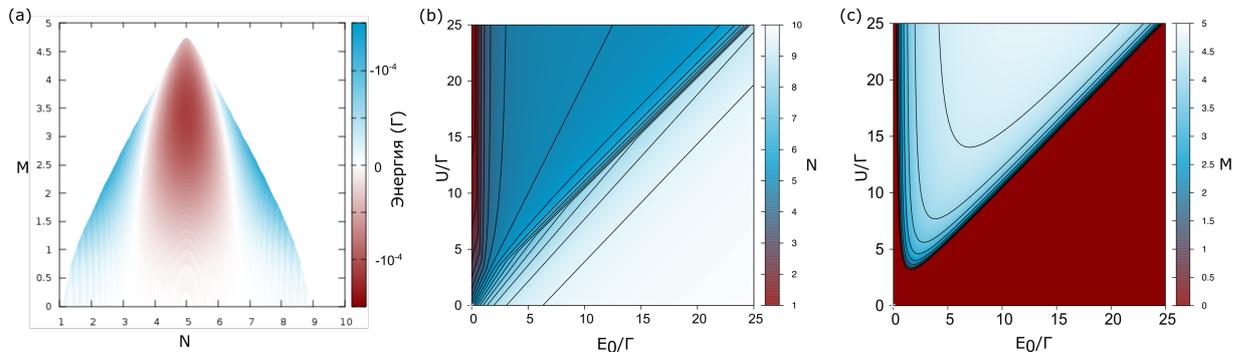


Рис. 1.5: (a) Контурный график разности энергий димера в антиферромагнитном и ферромагнитном состояниях  $\Delta E = E_A - E_F$  в зависимости от числа  $d$ -электронов  $N$  и магнитного момента  $M$  ( $N_1 = N_2 = N$ ,  $M_1 = M_2 = M$ ) при фиксированном параметре перескока (b) Контурный график зависимости  $N$  от  $U$  и  $E_0$ . (c) Контурный график зависимости  $M$  от  $U$  и  $E_0$ .

При расчетах неколлинеарных состояний с большим числом неэквивалентных атомов, возникает необходимость использования эффективных процедур самосогласования. В следующем разделе будут получены уравнения самосогласования и представлены эффективные алгоритмы для расчетов равновесных и неравновесных состояний систем, состоящих из произвольного числа атомов.

### 1.2.1 Расчет средних значений методом функций Грина.

Для расчета среднего числа частиц, магнитного момента и энергии электронов, локализованных на атомах решетки, будем пользоваться методом функций Грина. Как уже обсуждалось выше, функция Грина является резольвентой гамильтониана в приближе-

нии среднего поля:

$$(\omega - \hat{H}^{NCAA}) \hat{G} = I \quad (1.38)$$

В случае неколлинеарного упорядочения магнитных моментов стационарным состояниям можно сопоставить матрицу плотности:

$$\rho_{ij}(\epsilon) = \begin{pmatrix} \rho_{ij}^{\alpha\alpha} & \rho_{ij}^{\alpha\beta} \\ \rho_{ij}^{\alpha\beta*} & \rho_{ij}^{\beta\beta} \end{pmatrix}, \quad (1.39)$$

которая может быть выражена, через мнимую часть функции Грина:

$$\rho_{ij}^{\alpha\beta}(\epsilon) = \frac{1}{\pi} \lim_{s \rightarrow 0} \text{Im} G_{ij}^{\alpha\beta}(\epsilon - is) \quad (1.40)$$

Средние значения записываются через матрицу плотности следующим образом:

$$\langle \hat{n}_i \rangle = \int_{-\infty}^{\epsilon_f} d\epsilon \text{Tr}_s \rho_{ii}(\epsilon) \quad (1.41)$$

$$\langle \hat{\mathbf{M}}_i \rangle = \int_{-\infty}^{\epsilon_f} d\epsilon \text{Tr}_s \sigma \rho_{ii}(\epsilon), \quad (1.42)$$

где след берется только по спиновым компонентам и  $\sigma = (\sigma_x, \sigma_y, \sigma_z)^T$  – матрицы Паули. Для расчета матричных элементов функции Грина, воспользуемся спектральным разложением Гамильтониана в матричном представлении. Пусть  $\{\epsilon_i\}$ ,  $\{\vec{y}_i\}$  – собственные числа и собственные вектора оператора Гамильтона. В представлении собственных векторов функция Грина имеет диагональный вид:

$$G_{km} = \frac{\delta_{km}}{\omega - \epsilon_k}, \quad k, m = 1 \dots 2P \quad (1.43)$$

Тогда функция Грина в базисе, связанном с лабораторной системой координат, может быть рассчитана с помощью преобразования подобия:

$$G_{ij}^{\alpha\beta} = \sum_{k=1}^{2P} \langle x_i^\alpha | y_k \rangle G_{kk}^d \langle y_k | x_j^\beta \rangle \quad i, j = 1..P \quad (1.44)$$

Используя это равенство, выразим средние значения в терминах собственных значений и векторов оператора Гамильтона:

$$\langle \hat{n}_i \rangle = \sum_{k=1}^{2P} (|\langle x_i^+ | y_k \rangle|^2 + |\langle x_i^- | y_k \rangle|^2) R_{kk} \quad (1.45)$$

$$\langle \hat{\mathbf{M}}_i \rangle_x = \sum_{k=1}^{2P} 2\text{Re} \left( \langle x_i^+ | y_k \rangle \overline{\langle x_i^- | y_k \rangle} \right) R_{kk} \quad (1.46)$$

$$\langle \hat{\mathbf{M}}_i \rangle_y = \sum_{k=1}^{2P} -2\text{Im} \left( \langle x_i^+ | y_k \rangle \overline{\langle x_i^- | y_k \rangle} \right) R_{kk} \quad (1.47)$$

$$\langle \hat{\mathbf{M}}_i \rangle_z = \sum_{k=1}^{2P} (|\langle x_i^+ | y_k \rangle|^2 - |\langle x_i^- | y_k \rangle|^2) R_{kk}, \quad (1.48)$$

где

$$R_{kk} = \frac{1}{\pi} \lim_{s \rightarrow 0} \text{Im} G_{kk} = \frac{1}{\pi} \text{arccot} \frac{\epsilon_k}{\Gamma}. \quad (1.49)$$

Энергия магнитной системы, выраженная через собственные значения оператора Гамильтона имеет вид:

$$E = \frac{1}{\pi} \sum_i \epsilon_i \text{arccot} \left( \frac{\epsilon_i}{\Gamma} \right) + \frac{\Gamma}{2} \ln \left( 1 + \frac{\epsilon_i^2}{\Gamma^2} \right) - \frac{U_i}{4} (N_i^2 - M_i^2) \quad (1.50)$$

Таким образом, зная собственные значения и вектора гамильтониана НККА можно рассчитать все средние значения величин, необходимые для самосогласованного расчета стационарных состояний.

### 1.2.2 Расчет стационарных состояний.

Выведем уравнения самосогласования из вариационного принципа. Для удобства введем обозначение  $\mathbf{b}_{\text{eff}}(\mathbf{i}) = (U_i M_i / 2) \mathbf{e}_i$  - эффективное обменное поле, и  $v_{\text{eff}}(i) = E_0^i + U_i N_i / 2$  - эффективный скалярный потенциал. Тогда модель НККА (1.31) записывается в следующем виде [47]:

$$\hat{H}^{NCAA} = \sum_{i\alpha} (v_{\text{eff}}(i) + i\Gamma) \hat{n}_\alpha^i - \sum_i \hat{\mathbf{M}}_i \cdot \mathbf{b}_{\text{eff}}(\mathbf{i}) - \frac{1}{4} U_i (N_i^2 - M_i^2) + \sum_{i \neq j, \alpha} V_{ij} \hat{d}_{i\alpha}^\dagger \hat{d}_{j\alpha} \quad (1.51)$$

Первое слагаемое в (1.51) описывает взаимодействие локализованных на  $i$ -м узле электронов со средним эффективным полем  $v_{\text{eff}}(i)$ , зависящим от заполненности d-уровня,  $\Gamma$  ответственна за s(p)-d-гибридизацию d-уровня. Второе слагаемое - взаимодействие магнитного момента на узле с некоторым эффективным магнитным полем, создаваемым другими электронами. Третий член возникает вследствие исключения самодействия в приближении среднего поля (1.27). Последнее слагаемое, описывает взаимодействие электронов на d-уровнях разных атомов.

В модели локализованных магнитных моментов, одноэлектронная плотность и плотность намагниченности рассчитываются как:

$$n(\mathbf{r}) = \sum_i \langle \hat{n}_i \rangle \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i) \quad (1.52)$$

$$\mathbf{M}(\mathbf{r}) = \sum_i \langle \hat{\mathbf{M}}_i \rangle \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i) \quad (1.53)$$

Энергия основного состояния является функционалом электронной плотности и плотности намагниченности,  $E = E[n(\mathbf{r}), \mathbf{M}(\mathbf{r})]$ . Чтобы найти стационарное состояние системы, необходимо найти локальный минимум энергии по отношению к  $n(\mathbf{r}), \mathbf{M}(\mathbf{r})$ . Поскольку между плотностью и эффективным потенциалом существует однозначное соответствие, то вместо поиска минимума по плотности, можно решить вариационную задачу на поиск эффективных потенциалов [6, 12].

$$\frac{\partial E}{\partial v_{\text{eff}}(i)} = 0 \quad (1.54)$$

$$\frac{\partial E}{\partial \mathbf{b}_{\text{eff}}(\mathbf{i})} = 0, \quad \forall i = 1 \dots P \quad (1.55)$$

Учитывая определения эффективных потенциалов и переходя в сферическую систему координат  $\mathbf{e}_i = (\cos \phi_i \sin \theta_i, \sin \phi_i \sin \theta_i, \cos \theta_i)^T$ , получаем:

$$\frac{\partial E}{\partial N_i} = 0, \quad (1.56)$$

$$\frac{\partial E}{\partial M_i} = 0, \quad (1.57)$$

$$\frac{\partial E}{\partial \theta_i} = 0, \quad (1.58)$$

$$\frac{\partial E}{\partial \phi_i} = 0, \quad \forall i = 1 \dots P \quad (1.59)$$

Частные производные могут быть вычислены аналитически [47]:

$$\frac{\partial E}{\partial N_i} = \frac{U_i}{2} [\langle \hat{n}_i \rangle - N_i], \quad (1.60)$$

$$\frac{\partial E}{\partial M_i} = \frac{U_i}{2} [M_i - \langle \hat{\mathbf{M}}_i \rangle \cdot \mathbf{e}_i], \quad (1.61)$$

$$\frac{\partial E}{\partial \theta_i} = -\frac{1}{2} U_i M_i \langle \hat{\mathbf{M}}_i \rangle \cdot \mathbf{e}_{\theta_i} \quad (1.62)$$

$$\frac{1}{\sin \theta_i} \frac{\partial E}{\partial \phi_i} = -\frac{1}{2} U_i M_i \langle \hat{\mathbf{M}}_i \rangle \cdot \mathbf{e}_{\phi_i}, \quad \forall i = 1 \dots P \quad (1.63)$$

где вектора  $\mathbf{e}_{\phi_i} = (-\sin \phi_i, \cos \phi_i, 0)^T$ ,  $\mathbf{e}_{\theta_i} = (\cos \theta_i \cos \phi_i, \cos \theta_i \sin \phi_i, -\sin \theta_i)^T$  образуют ортонормированный базис в касательном пространстве к магнитному моменту. Приравняв производные к нулю, получаем уравнения самосогласования. Первое уравнение определяет самосогласованное число d-электронов. Второе – продольную компоненту

магнитного момента. Последние два уравнения – уравнения самосогласования на поперечную компоненту магнитного момента, т.е. на углы  $\theta, \phi$ . Если последние два уравнения, не будут удовлетворены, тогда среднее значение оператора магнитного момента не будет сонаправлено с исходным направлением, т.е.  $\langle \hat{\mathbf{M}}_i \rangle \nparallel \mathbf{e}_i$ . В точке экстремума производные энергии по углам, задающим направления магнитных моментов, обращаются в ноль автоматически, и достаточно использовать только первые два уравнения самосогласования.

Часто решение уравнений самосогласования проводится методом простых итераций:

$$M^{(k)} = \alpha \langle \hat{\mathbf{M}}^{(k-1)} \rangle \cdot \mathbf{e} + (1 - \alpha)M^{(k-1)}, \quad (1.64)$$

$$N^{(k)} = \alpha \langle \hat{n}^{(k-1)} \rangle + (1 - \alpha)N^{(k-1)}, \quad (1.65)$$

где  $\alpha$  – параметр, контролирующий сходимость решения уравнений. Однако, формулировка уравнений самосогласования в терминах частных производных позволяет использовать вариационный подход и, в частности, квазиньютоновские методы, которые сходятся гораздо быстрее, чем метод простой итерации. Действительно, можно заметить, что метод простой итерации (1.64) аналогичен методу градиентного спуска:

$$M^{(k)} = M^{(k-1)} + \alpha \left[ \langle \hat{\mathbf{M}}^{(k-1)} \rangle \cdot \mathbf{e} - M^{(k-1)} \right] = M^{(k-1)} - \alpha \frac{2}{U} \left( \frac{\partial E}{\partial M} \right)^{(k-1)} \quad (1.66)$$

$$N^{(k)} = N^{(k-1)} + \alpha \left[ \langle \hat{n}^{(k-1)} \rangle - N^{(k-1)} \right] = N^{(k-1)} + \alpha \frac{2}{U} \left( \frac{\partial E}{\partial N} \right)^{(k-1)} \quad (1.67)$$

Отметим, что решение уравнений самосогласования не соответствует минимуму энергии магнитной подсистемы. Стационарная точка в пространстве решений соответствует седловой точке, и поэтому в уравнении (1.67) среднее число квазилокализованных электронов "смещается" вдоль градиентного подъема. Отметим, что и другие оптимизационные методы часто сходятся к седловой точке, по крайней мере, тогда, когда начальное приближение достаточно близко к решению.

### **Пример. Локализация скирмиона в модели НККА.**

Скирмионные решения в моделях с коллективизированными электронами будут рассмотрены в Главе 3. Здесь мы акцентируем внимание на сами процедуры самосогласования величин магнитных моментов и среднего числа квазилокализованных  $d$ -электронов. Рассмотрим квадратную решетку состоящую из  $31 \times 31$  узлов (961 спин). Зададим на-

чальное распределение спинов, показанное на рис. 1.6(a) согласно уравнению:

$$\mathbf{e}_i = (\sin(\theta_i) \cos(\phi_i), \sin(\theta_i) \sin(\phi_i), \cos(\theta_i))^T, \quad (1.68)$$

$$\phi_i = \arctan\left(\frac{y_i - y_0}{x_i - x_0}\right), \quad (1.69)$$

$$\rho_i = \sqrt{(x_i - x_0)^2 + (y_i - y_0)^2} \quad (1.70)$$

$$\theta_i = \pi \left(1 - \frac{\rho_i}{a}\right), \quad \rho_i < a, \quad (1.71)$$

$$\theta_i = 0, \quad \rho_i \geq a, \quad (1.72)$$

где  $x_0, y_0$  – координаты центра ячейки.

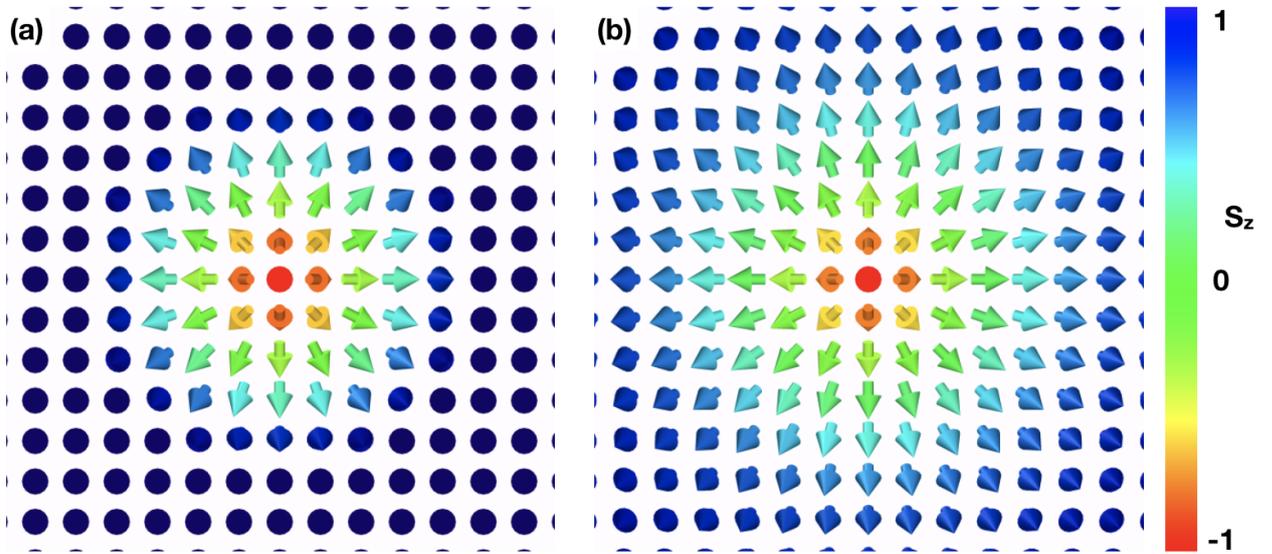


Рис. 1.6: (a) Начальная конфигурация спинов, использованная для минимизации энергии в модели НККА. (b) Спинновая конфигурация, соответствующая минимуму энергии в модели НККА. Решетка состоит из  $31 \times 31$  спинов, но только часть конфигурации с неколлинеарным упорядочением показана на рисунках (a) и (b).

Начиная с такой затравки, найдем минимум энергии в модели НККА по отношению к направлениям магнитных моментов с помощью алгоритма с вложенным циклом: на каждом  $k$ -ом шаге алгоритма рассчитаем самосогласовано значения  $N_i$  и  $M_i$ , которые удовлетворяют уравнениям (1.60),(1.61). Для самосогласованных значений  $N_i$  и  $M_i$ , найдем моменты сил, используя формулы (1.62), (1.63), и изменим направление магнитных моментов так, чтобы энергия уменьшилась. Такая процедура выполняется до тех пор, пока все уравнения (1.60-1.63) не будут выполнены. Для изменения направлений магнитных моментов будем использовать метод оптимизации спинов ортогональными матрицами (ОСО), который более подробно будет обсуждаться в Главе 2. Для внутреннего цикла – процедуры самосогласования, будем использовать метод гра-

диентного спуска (ГС), метод сопряженных градиентов (СГ) (метод Флетчера-Ривса) и квазиньютоновский метод (КН) (алгоритм Бroyдена-Флетчера-Гольдфарба-Шанно с ограниченной памятью) [50].

На каждом шаге самоогласования рассчитывается спектр гамильтониана НККА. Для этого используется процедура диагонализации матрицы, сложность которой растет, как  $\mathcal{O}(N^3)$ , где  $N$  – число спинов в системе. Поэтому производительность разных алгоритмов самоогласования может быть оценена количеством вызовов функции диагонализации матрицы, так как сложность всех других операций оптимизационных методов растет, как  $\mathcal{O}(N)$ .

Будем считать, что минимум энергии НККА найден, когда модуль максимального момента сил, действующего на магнитный момент, меньше заданного  $\delta$ :

$$\max_i |\mathbf{T}_i| = \max_i \left| \mathbf{e}_i \times \frac{\partial E}{\partial \mathbf{e}_i} \right| < \delta. \quad (1.73)$$

Процедура самоогласования будет считаться выполненной, если удовлетворено неравенство:

$$\max_i \left\{ \left| M_i^{(k)} - M_i^{(k-1)} \right|, \left| n_i^{(k)} - n_i^{(k-1)} \right| \right\} < \epsilon. \quad (1.74)$$

Производительность разных оптимизационных методов процедуры самоогласования для  $\delta = 10^{-8}$  Г и  $\epsilon = 10^{-7}$  приведены в таблице 1.1, а конечное состояние – на рисунке 1.6(b). Все алгоритмы сходятся практически к одному и тому же значению энергии относительно ферромагнитного состояния, 53.259 (мГ). Метод КН является наиболее эффективным – почти в 2 раза быстрее метода ГС, и в 1.5 раза быстрее метода СГ. Отметим, что разные процедуры самоогласования также влияют на число итераций в методе ОСО. Это связано с тем, что градиент энергии не рассчитан на каждом состоянии с машиной точностью, и, поэтому, траектории сходимости в разных процедурах самоогласования могут отличаться.

При увеличении точности решений уравнений самоогласования  $\epsilon = 10^{-10}$ , увеличивается и число итераций. Теперь КН сходится в 2.4 раза быстрее, чем метод ГС. Это может быть связано с тем, что метод КН, теоретически, сходится сверхлинейно. Однако, метод СГ теперь сходится медленнее, чем метод ГС.

В качестве следующего примера рассмотрим расчет неравновесных состояний с учетом уравнений связи на направление магнитного момента.

### 1.2.3 Расчет неравновесных состояний.

Для заданных значений углов, не соответствующих минимуму энергии, можно найти самоогласованное решение только для проекции среднего значения магнитного момен-

Таблица 1.1: Производительность разных процедур самосогласования величины магнитного момента и среднего числа  $d$ -электронов для  $\delta = 10^{-8}\Gamma$ ,  $\epsilon = 10^{-7}$  (в скобках указаны значения для  $\epsilon = 10^{-10}$ ). ГС – метод градиентного спуска, СГ – метод сопряженных градиентов, КН – квазиньютоновский метод.  $N_{inner}$  – количество вызовов функции диагонализации гамильтониана НККАА для расчета скирмионного состояния, соответствующего локальному минимуму энергии.  $N_{outer}$  – количество итераций для метода ОСО.  $E$  (мГ) – энергия скирмиона относительно ферромагнитного состояния. Начальные значения  $N_i = 1.4$ ,  $M_i = 0.45$ .

Метод	$N_{inner}$	$N_{outer}$	$E$ (мГ)
ГС	2332 (7161)	278 (287)	53.258907 (53.259063)
СГ	1838 (7643)	269 (281)	53.259074 (53.259063)
КН	1208 (2993)	236 (312)	53.259069 (53.259063)

та на ось квантования, в результате чего, его направление не сонаправлено с заданным. Для полного согласования магнитного момента, необходимо потребовать, чтобы проекция магнитного момента на касательное пространство, ортогональное к оси квантования была равна нулю:

$$\langle \hat{\mathbf{M}}_i \rangle \cdot \mathbf{e}_{\theta_i} = 0 \quad (1.75)$$

$$\langle \hat{\mathbf{M}}_i \rangle \cdot \mathbf{e}_{\phi_i} = 0 \quad (1.76)$$

Эти условия связи можно удовлетворить в рамках метода множителей Лагранжа (МЛ):

$$\hat{H} = \hat{H}^{NCAA} - \sum_{i=1..P} \lambda_1^i \hat{\mathbf{M}}_i \cdot \mathbf{e}_{\theta_i} - \sum_{i=1..P} \lambda_2^i \hat{\mathbf{M}}_i \cdot \mathbf{e}_{\phi_i} = \hat{H}^{NCAA} - \sum_{i=1..P} \hat{\mathbf{M}}_i \cdot \mathbf{h}_i^c \quad (1.77)$$

Последнее слагаемое описывает взаимодействие с локальными магнитными полями, действующими перпендикулярно магнитному моменту. Далее, дополнительно к уравнениям самосогласования на число частиц и продольную составляющую магнитного момента, необходимо найти экстремум по отношению к локальным магнитным полям:

$$\frac{\partial E}{\partial \lambda_1^i} = - \langle \hat{\mathbf{M}}_i \rangle \cdot \mathbf{e}_{\theta_i}, \quad (1.78)$$

$$\frac{\partial E}{\partial \lambda_2^i} = - \langle \hat{\mathbf{M}}_i \rangle \cdot \mathbf{e}_{\phi_i}. \quad (1.79)$$

После определения экстремума энергии по величине магнитного момента и числу частиц для заданной конфигурации углов, эффективное магнитное поле действующее на магнитный момент, можно получить как:

$$\mathbf{H}_i^{\text{eff}} = - \frac{\partial E}{\partial \mathbf{M}_i} = - \mathbf{h}_i^c \quad (1.80)$$

Приведем алгоритм расчета для самосогласования всех степеней свободы.

**Алгоритм:**

1. Пусть

$$\vec{x} = (N_1 \dots N_P, M_1 \dots M_P, \lambda_1^1 \dots \lambda_P^1, \lambda_1^2 \dots \lambda_P^2)^T \quad (1.81)$$

вектор состоящий из переменных, которые необходимо найти для расчета стационарного состояния и

$$\vec{g} = \alpha \left( -\frac{2}{U} \frac{\partial E}{\partial N_1} \dots, \frac{2}{U} \frac{\partial E}{\partial M_1}, -\frac{\partial E}{\partial \lambda_1^1} \dots, -\frac{\partial E}{\partial \lambda_P^1} \dots - \frac{\partial E}{\partial \lambda_P^2} \right)^T \quad (1.82)$$

– вектор, состоящий из градиентов энергии,  $\alpha$  – заданный параметр контролирующей устойчивости алгоритма.

2. Пусть  $\Theta = \max_i \left\{ \left| \frac{2}{U} \frac{\partial E}{\partial N_i} \right|, \left| \frac{2}{U} \frac{\partial E}{\partial M_i} \right| \right\}$ ,  $\Delta = \max_i \left| \mathbf{e}_i \times \langle \hat{\mathbf{M}}_i \rangle \frac{UM_i}{2} \right|$ ;  $\epsilon, \delta, l$  – малые числа.  $k = 0$  – обозначает номер итерации.

3. Рассчитаем направление движения согласно заданному алгоритму минимизации. Например, для градиентного спуска  $\vec{p}^{(k)} = -\vec{g}^{(k)}$ .

4. Пока  $\Theta > \epsilon$  и  $\Delta > \delta$ :

(a)  $d = \|\vec{p}^{(k)}\|_{\text{inf}}$ . Если  $d > l$ , тогда  $\vec{p}^{(k)} \leftarrow \vec{p}^{(k)} l/d$ .

(b)  $\vec{x}^{(k+1)} = \vec{x}^{(k)} + \vec{p}^{(k)}$

(c) Рассчитываем новый градиент  $\vec{g}^{(k+1)}$  и новое направление движения  $\vec{p}^{(k)}$ .

(d)  $k \leftarrow k + 1$ .

5. Алгоритм закончен.

Характерные параметры для расчета:  $\alpha = 1.0, \epsilon = 10^{-10}, \delta = 10^{-8}(\Gamma), l = 0.1$ . Если алгоритм не сходится, то рекомендуется уменьшить параметр  $\alpha$  или параметр  $l$ .

Введение дополнительных переменных в процедуру самосогласования увеличивает сложность расчета. Для поиска минимума и седловых точек использование множителей Лагранжа не требуется. При расчете кривизны энергетической поверхности в окрестности минимума и седловой точки МЛ, строго говоря, пренебрегать нельзя. Однако, их эффект может быть мал (порядка нескольких процентов). Рассмотрим в качестве примера магнитный момент атома Fe в объемноцентрированной кубической (ОЦК) решетке и рассчитаем константы его обменного взаимодействия. Их можно определить, если рассмотреть бесконечно малые вращения магнитных моментов в окрестности ферромагнитного состояния:

$$J_{ij} = \frac{\partial^2 E}{\partial \theta_i \partial \theta_j} \quad (1.83)$$

Расчет констант обменного взаимодействия с учетом и без учета МЛ представлен на рисунке 1.7 и в таблице 1.2. Как видно из рис. 1.7, наблюдается довольно хорошее согласие результатов модели НККАА с данными расчетов метода ФП [51–53]: для ближайших соседей константа обменного взаимодействия равна 16.5 meV (16.3 meV в методе ФП [53]), а для вторых соседей – 8.7 meV (8.7 meV в методе ФП [53]). При учете множителей Лагранжа, величина констант обменного взаимодействия увеличивается, что свидетельствует об изменении кривизны энергетической поверхности в окрестности минимума, хотя значение энергии в минимуме остается прежним. Изменение параметров  $J_{ij}$  является небольшим, порядка 5% ( $J_{01} = 17.2$  meV,  $J_{02} = 9.0$  meV). Такое изменение слабо влияет на свойства системы. В приближении среднего поля, температура Кюри может быть рассчитана через обменные константы по следующей формуле [52]:

$$k_B T_c^{MFA} = \frac{2}{3} \sum_j J_{0j} \quad (1.84)$$

где сумма считается по всем соседям, учитывая их кратность. Оценка температуры Кюри в приближении среднего поля составляет 1136 К и 1147 К, для моделей без МЛ и с их учетом, соответственно. Таким образом, введение МЛ слабо влияет на значение температуры Кюри в ОЦК Fe в рамках модели НККАА.

Когда величина параметра перескока увеличивается, ошибка в расчетах, связанная с пренебрежением ограничениями на направление магнитных моментов, учитываемое МЛ, может стать более существенным. В качестве примера рассмотрим антиферромагнитное состояние хрома, имеющего, как и железо, ОЦК решетку.

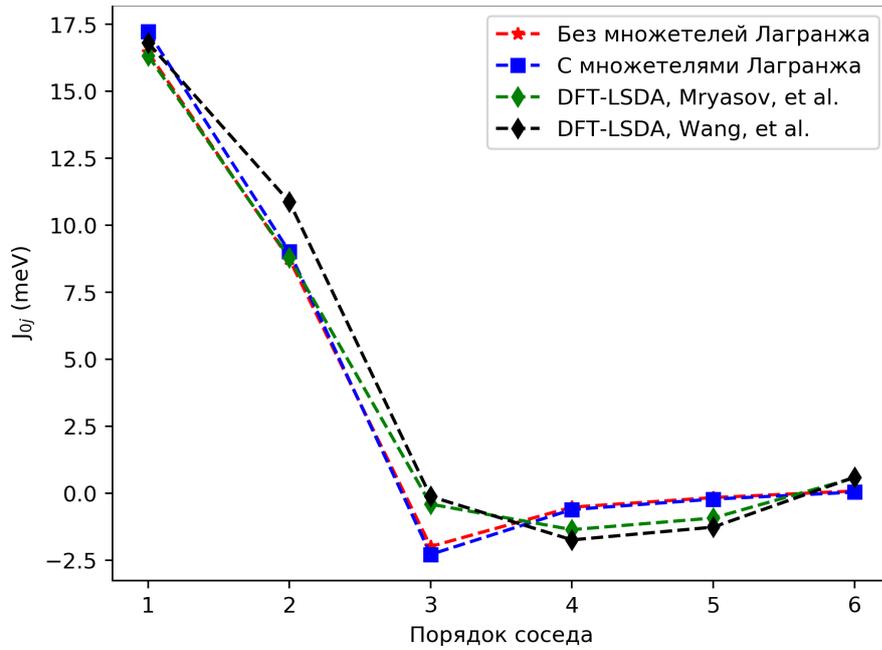


Рис. 1.7: Результаты расчета констант обменного взаимодействия для ферромагнитного ОЦК Fe в модели НККА и их сравнение с результатами метода ФП. Результаты ФП взяты из статей [51] и [53]. Параметры модели НККА:  $\Gamma = 1.0$  eV,  $E_0 = -15.9(\Gamma)$ ,  $U = 16.7(\Gamma)$ ,  $V_1 = 0.3(\Gamma)$ ,  $V_2 = V_1/1.25(\Gamma)$ . Рассчитанный магнитный момент  $2.17 \mu_B$ , и среднее число  $d$ -электронов – 7.38. Моделируемая ячейка состоит из 1024 атомов.

Таблица 1.2: Константы обменного взаимодействия  $J_{0j}$  (в meV), рассчитанные в рамках модели НККА с МЛ и без МЛ В последней колонке приведена относительная разница между НККА и НККА-МЛ выраженная в процентах. Для первых двух соседей разница констант обменного взаимодействия составляет порядка 5 %. Далее эта разница увеличивается вплоть до 50 % для следующих соседей. Однако, для них сами константы обменного взаимодействия уже малы.

Номер соседнего атома	Число соседних атомов	НККА	НККА-МЛ	Разница
1	8	16.45	17.224	+4.7 %
2	6	8.733	9.009	+3.2 %
3	12	-1.99	-2.285	+14.8 %
4	24	-0.521	-0.609	+16.9 %
5	8	-0.164	-0.221	+34.8 %
6	6	0.084	0.039	-53.6 %

Моделируемая ячейка состоит из 2-х атомов. Параметры модели НККА ( $E_0 = -3.37\Gamma$ ,  $U = 6.745\Gamma$ ,  $V = 0.9\sqrt{8}\Gamma$ ) соответствуют антиферромагнитному Cr с магнитным мо-

ментом  $0.6\mu_B$  и со средним числом d-электронов 5.0 [39, 44]. Магнитное решение существует только в небольшом диапазоне углов между направлениями моментов двух подрешеток, т.е. при вращении моментов одной ферромагнитной подрешётки относительно другой величина магнитного момента убывает до нуля при некотором угле  $\theta_0$ . Рассмотрим, к какому эффекту приводит введение МЛ для рассчитываемых свойств такой системы. Введем угол  $\phi = \pi - \theta$ , где  $\theta$  – угол между магнитными моментами двух подрешеток, и угол  $\alpha$ , определяющий отклонения магнитного момента от изначально заданного направления, показанные на рис. 1.8.

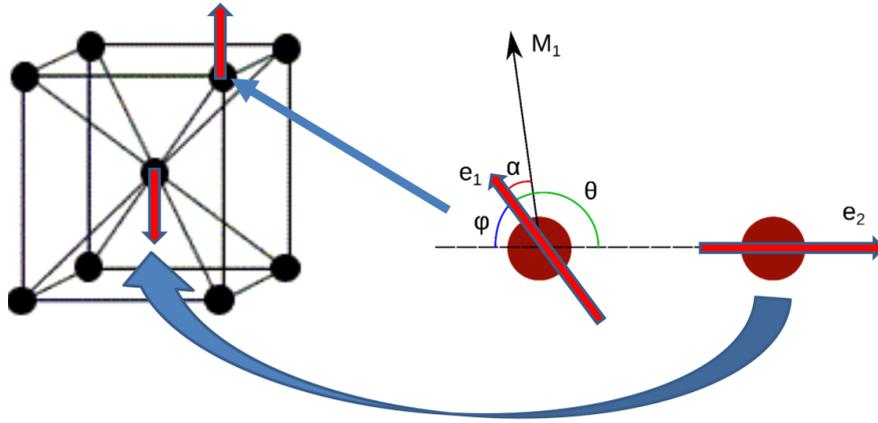


Рис. 1.8: Схематическое изображение антиферромагнитного упорядочения в ОЦК решетке Sr. Угол  $\alpha$  показывает отклонение магнитного момента от заданного изначально направления, если не используется метод МЛ.

На рис. 1.9 представлена зависимость величины магнитного момента от угла  $\phi$ . При  $\phi = 0$ , решение с и без МЛ совпадают ( $0.6\mu_B$ ), т.к. в точке, соответствующей минимуму энергии МЛ обращаются в ноль. С ростом угла  $\phi$  величина магнитного момента уменьшается до 0 при  $\phi \approx 7^\circ$  при учете МЛ. Однако, без МЛ магнитный момент уменьшается до 0 при угле  $\phi \approx 13^\circ$ , что почти в два раза больше.

Для расчетов динамики магнитных моментов необходимо точно рассчитывать моменты сил. Момент сил рассчитывается согласно уравнениям (1.80) или (1.62), (1.63) в зависимости от того, используется ли метод МЛ или нет. Зависимость моментов сил от угла  $\phi$  показана на Рис. 1.10. Момент сил в двух разных схемах расчета может отличаться в несколько раз. Это в свою очередь ведет к разным частотам осцилляции магнитного момента. Уравнение спиновой динамики при отсутствии диссипации энергии имеет вид:

$$\frac{d\mathbf{e}_i}{dt} = -\gamma \mathbf{e}_i \times \mathbf{H}_i^{\text{eff}} \quad (1.85)$$

Интегрирование уравнения (1.85) выполнено полуявным алгоритмом описанным в ста-

тье [54]. Как видно из рисунка 1.10(b), отличие моментов сил ведет к разным периодам осцилляций магнитных моментов, которые отличаются друг от друга в три раза, если угол между подрешетками выбран  $\phi \approx 4^\circ$ .

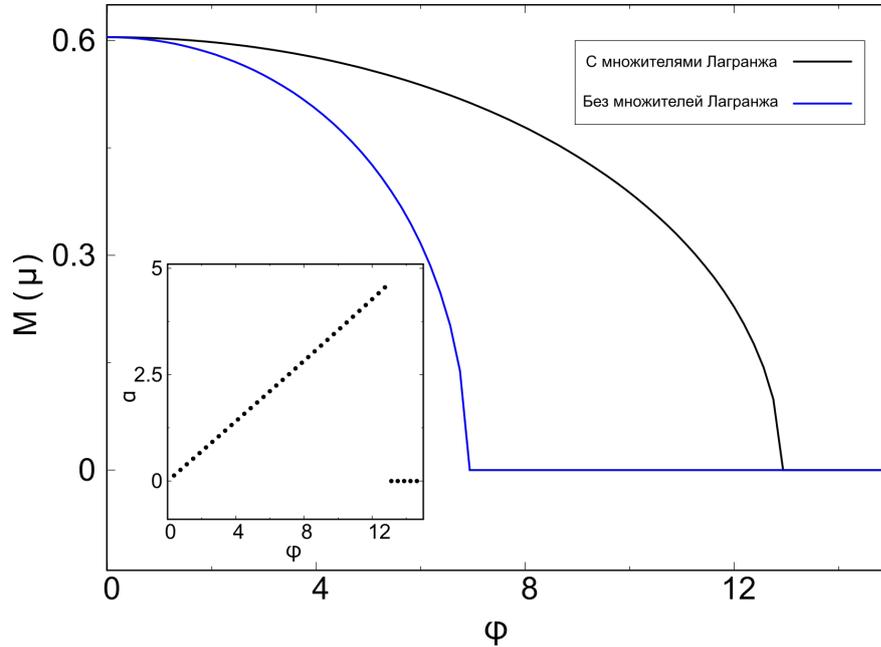


Рис. 1.9: Зависимость величины магнитного момента от угла  $\phi = \pi - \theta$ , где  $\theta$  - угол между двумя подрешетками, определенный, как показано на рисунке 1.8. На вставке показана, зависимость угла отклонения магнитного момента от исходного направления.

Подведем некоторые итоги. В ряде систем отклонение магнитного момента от заданного изначально направления мало и, как следствие, пренебрежение МЛ для таких систем является обоснованным. Даже если точность расчет будет отличаться на 5% для констант обменного взаимодействия, ввиду феноменологического характера такой модели, такой ошибкой, как правило, можно пренебречь. Однако, существуют системы в которых учет МЛ является принципиально важным. Это было продемонстрировано на примере расчета периода осцилляций магнитных моментов в ОЦК хроме. Для поиска минимумов энергии и седловых точек нет необходимости введения МЛ, т.к. в этих точках на энергетических поверхностях МЛ равны нулю.

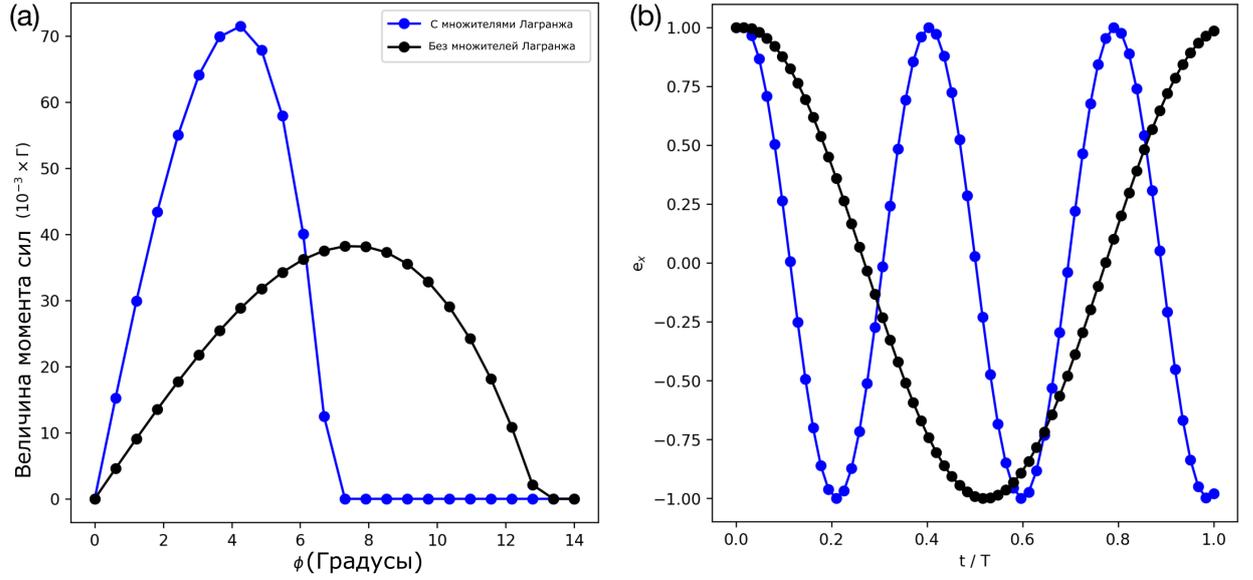


Рис. 1.10: (a) Зависимость момента сил от угла  $\phi = \pi - \theta$ , где  $\theta$  - угол между двумя под-решетками, как определено на рисунке 1.8. (b) Решение уравнения Ландау-Лифшица без диссипации при угле  $\phi = 4$ . Время по оси  $x$  в единицах периода осцилляций системы без множителей Лагранжа.

### 1.3 Метод функционала плотности.

В рамках метода функционала плотности Гамильтониан электроно-ядерной системы задается в следующем виде:

$$\hat{H} = \sum_{i=1..N} \hat{V}(\mathbf{r}_i) + \hat{T} + \hat{V}_{ee} \quad (1.86)$$

$$\hat{T} = \sum_{i=1}^N -\frac{1}{2} \nabla_i^2 \quad \hat{V}_{ee} = \frac{1}{2} \sum_{i,j=1;i \neq j}^N \frac{1}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|} \quad (1.87)$$

Предполагается выполприближение Борна-Оппенгеймера, когда волновая функция электронной подсистемы,  $\Psi(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \dots, \mathbf{r}_N)$ , рассчитывается при заданном положении ядер. Энергия основного состояние может быть найдена на основе вариационного принципа:

$$\hat{E}_{GS} = \min_{\Psi} \langle \Psi | \hat{H} | \Psi \rangle, \quad (1.88)$$

где минимум энергии ищется среди всех антисимметричных функций,  $\Psi$ , нормированных на единицу. Поиск минимума среди всех антисимметричных волновых функций, зависящих от  $3N$  переменных, является сложной задачей уже для небольшого числа атомов, даже на основе численных методов, использующих современные суперкомпьютеры [55].

В 1964 году, Хоэнберг и Кон доказали, что энергия основного состояния является функционалом одноэлектронной плотности [6], а позже Кон и Шэм [7] предложили одночастичные уравнения среднего поля, которые учитывают электронные корреляции. В теории Кона-Шэма энергия электронной системы имеет вид:

$$E[n(\mathbf{r})] = \sum_{i=1}^N \int d^3\mathbf{r} \frac{|\nabla\phi_i(\mathbf{r})|^2}{2} + \int d^3\mathbf{r} n(\mathbf{r})v_{ext}(\mathbf{r}) + \frac{1}{2} \iint d^3\mathbf{r} d^3\mathbf{r}' \frac{n(\mathbf{r})n(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|} + E_{xc}[n(\mathbf{r})] \quad (1.89)$$

где  $n(\mathbf{r})$  – одноэлектронная плотность,  $v_{ext}(\mathbf{r})$  – внешний потенциал,  $E_{xc}[n(\mathbf{r})]$  – обменно-корреляционный функционал. Орбитали,  $\{\phi_i(\mathbf{r})\}$ , удовлетворяют одночастичным уравнением Кона-Шэма

$$\left\{ -\frac{1}{2}\Delta + v_{ext}(\mathbf{r}) + \int d^3\mathbf{r}' \frac{n(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|} + v_{xc}(\mathbf{r}) \right\} \phi_i(\mathbf{r}) = \epsilon_i \phi_i(\mathbf{r}) \quad (1.90)$$

и соответствуют одноэлектронной плотности основного состояния системы взаимодействующих электронов:

$$n(\mathbf{r}) = \sum_{i=1}^N |\phi_i(\mathbf{r})|^2 \quad (1.91)$$

При обобщении теории на спин-поляризованные плотности [8] считается, что обменно-корреляционный функционал зависит от плотности электронов с разными проекциями спинов  $E_{xc} = E_{xc}[n_{\uparrow}(\mathbf{r}), n_{\downarrow}(\mathbf{r})]$ , а уравнения Кона-Шэма решаются для спин-орбиталей.

При обобщении теории на неколлинеарные состояния функционал энергии зависит от матриц плотности размерности 2 на 2:

$$n_{\alpha\beta}(\mathbf{r}) = \frac{1}{2} \left( \rho(\mathbf{r})\delta_{\alpha\beta} + \sum_{q=x,y,z} \sigma_{\alpha\beta}^q M_q(\mathbf{r}) \right) \quad (1.92)$$

Введем унитарное преобразование, которое диагонализует матрицу плотности в каждой точке пространства:

$$\tilde{n}_{\alpha\beta}(\mathbf{r}) = \left( U(\mathbf{r})n(\mathbf{r})U^\dagger(\mathbf{r}) \right)_{\alpha\beta} = \frac{1}{2} \left( \rho(\mathbf{r})\delta_{\alpha\beta} + \sigma_{\alpha\beta}^z |\mathbf{M}(\mathbf{r})| \right) \quad (1.93)$$

В таком представлении эффективный потенциал Кона-Шэма диагонален:

$$\tilde{H}_{\alpha\beta}(\mathbf{r}) = \frac{1}{2} \left( V(\mathbf{r})\delta_{\alpha\beta} + \sigma_{\alpha\beta}^z B(\mathbf{r}) \right), \quad (1.94)$$

где

$$V = \frac{\delta E}{\delta n_1} + \frac{\delta E}{\delta n_2}, \quad B = \frac{\delta E}{\delta n_1} - \frac{\delta E}{\delta n_2} \quad (1.95)$$

и

$$n_1 = (\rho + |\mathbf{M}|)/2, \quad n_2 = (\rho - |\mathbf{M}|)/2. \quad (1.96)$$

используя обратное унитарное преобразование, потенциал Кона-Шэма можно привести к виду:

$$H_{\alpha\beta}(\mathbf{r}) = \frac{1}{2} \left( V(\mathbf{r})\delta_{\alpha\beta} + B(\mathbf{r}) \sum_{q=x,y,z} \sigma_{\alpha\beta}^q e_q(\mathbf{r}) \right), \quad (1.97)$$

где  $e_q(\mathbf{r}) = M_q(\mathbf{r})/|\mathbf{M}(\mathbf{r})|$ . Таким образом, на практике для расчета неколлинеарных состояний используется спин-поляризованное приближение для обменно-корреляционного потенциала,  $E_{xc}[n_{\uparrow}, n_{\downarrow}]$ . Спин-орбитали находятся из уравнения:

$$\sum_{\beta} H_{\alpha\beta} \phi_{i\beta}(\mathbf{r}) = \epsilon_i \phi_{i\alpha}(\mathbf{r}) \quad (1.98)$$

Далее, используя обобщенную теорему Блоха и выражение для спиновых спиралей:

$$\mathbf{e}(\mathbf{r}) = \begin{pmatrix} \cos(\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}) \\ \sin(\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}) \\ 0 \end{pmatrix} \quad (1.99)$$

можно рассчитать их спектр вдоль прямых, соединяющих высоко-симметричные точки первой зоны Бриллюэна. Этот спектр используется для расчета обменных интегралов модели Гейзенберга [29–32], как уже и обсуждалось в разделе 1.1.

Сформулируем **выводы** к первой главе. Представлены новые процедуры самосогласования для расчета стационарных и нестационарных магнитных состояний в рамках модели НККАА с использованием метода множителей Лагранжа и вариационного принципа на определение продольной и перпендикулярной составляющей магнитного момента. Это позволяет провести самосогласованные расчеты и построить энергетическую поверхность, которая соответствует энергии модели НККАА. Используя методы соответствия локализованных моделей гейзенберговского типа магнитным системам с коллективизированными электронами можно определить параметры локализованных моделей на основе самосогласованных микроскопических расчетов электронной структуры в рамках модели НККАА. Показано, что существуют системы, в которых самосогласование перпендикулярной составляющей магнитных моментов является принципиально важным. Это продемонстрировано на примере расчета периода осцилляций магнитных моментов в ОЦК хрома.

## Глава 2

# Эффективные алгоритмы поиска экстремумов и путей с минимальным перепадом энергии на многомерных энергетических поверхностях СПИНОВЫХ СИСТЕМ

При теоретическом исследовании магнитных структур часто представляют интерес спиновые конфигурации основного и метастабильных состояний системы. Если рассмотреть энергию системы, как функцию параметров, однозначно определяющих магнитную конфигурацию, то на такой многомерной энергетической поверхности метастабильным состояниям будут соответствовать локальные минимумы. При низких температурах система будет находиться вблизи одного из таких локальных минимумов.

При повышении температуры система может уйти из минимума на энергетической поверхности, а равновесному состоянию должен соответствовать минимум свободной энергии. Тем не менее, если барьеры, отделяющие данное состояние от других локальных минимумов достаточно велики по сравнению с тепловой энергией  $k_B T$ , система может оставаться вблизи того же энергетического минимума в течение практически неограниченного времени и магнитная конфигурация будет близка к начальной. В пределе высоких температур вклад в свободную энергию, связанный с энтропией, станет играть определяющую роль, и будет реализовываться состояние с максимальной энтропией, независимо от начального состояния системы. Если теперь быстро понизить температуру системы, она может перейти в новое магнитное состояние, не соответству-

ющее глобальному минимуму энергии, но представляющее собой метастабильную конфигурацию, устойчивую в определенном интервале температур. Это состояние может сильно отличаться от того, в котором находилась система до повышения температуры. Например, в системе, где основным состоянием является однородное ферромагнитное, локальный нагрев образца ультракороткими лазерными импульсами переводит его в парамагнитное состояние и, после быстрого охлаждения, могут формироваться метастабильные скирмионы. Такой способ рождения топологических структур был описан в рамках обобщенной модели Гейзенберга [56], и в дальнейшем был подтвержден экспериментально [57].

Высокотемпературные конфигурации спиновых систем можно связать с состояниями, соответствующими ближайшим к нему энергетическим минимумам на энергетической поверхности, т.е. минимумам, которые могут быть получены из высокотемпературной конфигурации путем минимизации энергии. Процедура минимизации устанавливает связь между любой спиновой конфигурацией и локальным минимумом, к которому она приводит систему по пути, не содержащим энергетического барьера. Такие локальные минимумы на энергетической поверхности называют наследственными структурами по отношению к состоянию при высоких температурах. Это сопоставление часто используется для характеристики атомистических состояний жидкостей [58, 59].

Для эффективного поиска локальных минимумов на энергетической поверхности важно использовать алгоритмы с высокой скоростью сходимости. При этом реализация алгоритмов поиска минимумов для магнитных систем является более сложной задачей, чем для атомных, так как энергия магнитных моментов задана на римановом многообразии. Действительно, энергия системы, состоящей из  $N$  спинов, эффективно является функцией их направлений:

$$E = E(\mathbf{e}_1, \mathbf{e}_2, \dots, \mathbf{e}_N), \quad (2.1)$$

так как в большинстве случаев величина магнитных моментов либо предполагается постоянной, как в модели Гейзенберга, либо считается быстрой переменной и находится самосогласованно для заданных направлений моментов [60]. Последнее аналогично адиабатическому приближению, и используется в методе функционала плотности и при самосогласованных расчетах в методе модельных гамильтонианов, например, в неколлинеарной модели НККА [46]. Известные методы минимизации, которые используются для расчетов атомных систем, не могут быть применены к спиновым системам без существенной модификации.

Рассмотрим случай, когда величина магнитных моментов в модели фиксирована. Один из способов минимизации заключается в использовании декартовой системы ко-

ординат,  $\mathbf{e}_i = (e_x, e_y, e_z)^T$ , с проекцией сил на касательное подпространство:

$$\vec{F}_{\tau i} = \hat{\mathcal{P}}_{\tau} \vec{F}_i \quad (2.2)$$

После каждой итерации с проекцией силы величина момента изменяется и, поэтому, необходимо делать перенормировку моментов для того, чтобы вернуть их обратно на сферу:

$$\mathbf{e}_i \leftarrow \frac{|\mathbf{e}_i|}{\mathbf{e}_i}. \quad (2.3)$$

Такой подход изначально был развит для жидкокристаллических систем [61] и позже был использован в микромагнитном моделировании для поиска минимумов [62]. Однако, этот метод постоянно вводит ошибку в расчет, хотя потом ее частично корректирует. Из-за этого, например, может наблюдаться неустойчивое поведение алгоритма при его использовании в моделировании динамики магнитных моментов [54, 63]. Учет постоянства величины магнитного момента в декартовых координатах можно также учесть, используя метод Лагранжа для поиска условных экстремумов. Другой подход основан на использовании криволинейных координат – сферических либо стереографических [64, 65]. Однако, такие методы требуют введения дополнительного параметра, который определяет насколько близки направления магнитных моментов к полюсам и осуществления перехода к другой системе координат в случае приближения к полюсу. При смене координат, необходимо перезапускать минимизатор или пересчитывать предыдущие шаги, когда используются квази-ньютоновские алгоритмы.

Альтернативой к вышеуказанным методам является геометрический подход [66], основанный на использовании ортогональных матриц [67, 68]. Такой метод широко используется в расчетах электронной структуры [69–71]. Он учитывает кривизну многообразия на котором задана энергия. Поиск оптимальных шагов происходит вдоль геодезических линий и тем самым, сохраняет величину магнитных моментов на каждой итерации. Метод не требует введения новых переменных и работает в декартовом пространстве. Далее в этой главе мы изложим адаптацию геометрического метода к спиновым системам – метод оптимизации спинов ортогональными матрицами (ОСО).

Как и другие методы, ОСО может быть объединен с любыми алгоритмами минимизации, разработанными для поиска экстремумов функций, заданных на линейных пространствах. Выбор метода основан, прежде всего, на следующих соображениях:

(а) В ряде задач, расчет энергии является наиболее вычислительно затратной процедурой. Например, в модели НККА для одного подсчета энергии для заданных ориентаций спинов необходимо производить процедуру самосогласования, на каждом шаге которой диагонализуется матрица размера  $2N \times 2N$ , где  $N$  – число магнитных момен-

тов в системе. В этом случае вычислительная сложность расчета энергии растет, как  $\mathcal{O}(N^3)$ . Поэтому в первую очередь метод минимизации должен сходиться с наименьшим возможным вызовом функции энергии. Отметим, что метод сопряженных градиентов и квазиньютоновские методы имеют асимптотическую сложность  $\mathcal{O}(N)$ , существенно меньшую по сравнению с расчетом энергии. Похожая ситуация наблюдается в методе функционала плотности, причем префактор в расчетах может быть раз в 20-100 больше, чем при самосогласовании в методе модельных гамильтонианов.

(b) Для больших систем расчет матрицы вторых производных является чрезвычайно трудоемкой задачей. И здесь примером может служить метод модельных гамильтонианов и метод функционала плотности. Принимая это во внимание, далее будет использован метод линейного поиска, который не требует вычисления гессиана.

Другой ряд задач, которые требуют развития или адаптации быстрых методов оптимизации для магнитных конфигураций, относится к изучению устойчивости магнитных систем относительно тепловых флуктуаций. Как уже было отмечено локальные минимумы на энергетической поверхности соответствуют (мета)стабильным состояниям, которые разделены между собой энергетическими барьерами. Тепловые флуктуации могут индуцировать магнитные переходы системы из одного состояния в другое. Время жизни таких состояний может быть рассчитано, в рамках гармонической теории переходного состояния (ГТПС) [3]. Для этого, кроме энергетических минимумов, необходимо знать седловые точки первого порядка на энергетической поверхности высокой размерности. Седловые точки первого порядка могут быть найдены с помощью геодезического метода подталкивания упругой лентой (ГПУЛ) [64], который позволяет построить путь с минимальным перепадом энергии (ПМПЭ), соединяющий два (мета)стабильных состояния, максимум вдоль которого соответствует седловой точке первого порядка. В методе ГПУЛ путь на энергетической поверхности представлен набором дискретных реплик – конфигураций системы на энергетической поверхности, которые взаимодействуют друг с другом посредством искусственно введенных упругих сил, действующих в многомерном пространстве между репликами. После релаксации такой "упругой ленты" набор реплик будет давать аппроксимацию для ПМПЭ.

Большинство существующих реализаций метода ГПУЛ были основаны на моделировании диссипативной динамики магнитных моментов (метод градиентного спуска) с использованием сферической системы координат [18, 64, 72–74]. Расчет энергии может требовать значительных вычислительных ресурсов, особенно если учитывается дальнедействующее диполь-дипольное взаимодействие или определение величин магнитных моментов требует самосогласованных расчетов. При этом, поиск ПМПЭ является зада-

чей более сложной, чем поиск обычных минимумов. В первую очередь это обусловлено тем, что для нее не известна целевая функция, которую необходимо оптимизировать для поиска ПМПЭ, а второе – то, что метод ГПУЛ требует расчета энергии и сил для целого набора реплик, в результате чего нужно больше вычислительных ресурсов. В то время, как для атомных систем создание быстрых алгоритмов оптимизации хорошо разработаны [75], для магнитных систем эта область развита гораздо меньше.

Предлагаемый алгоритм ОСО для поиска минимумов в системах с магнитными степенями свободы, может быть применен для расчетов ПМПЭ методом ГПУЛ, без использования методов линейного поиска. Вычислительное время поиска минимумов и путей при этом удалось уменьшить на один-два порядка, что сделало возможным расчет минимумов и ПМПЭ аннигиляции скирмионов в рамках метода модельных гамильтонианов для систем состоящих из  $10^3$ - $10^4$  атомов, т.е. примерно на порядок больше, чем в существующих расчетах [46]. Результаты таких расчетов будут представлены в Главе 3. В этой главе далее, будут изложен метод ОСО для минимизации и его применения к задачам поиска ПМПЭ.

## 2.1 Метод оптимизации спиновых состояний ортогональными матрицами для поиска минимумов энергии магнитных систем.

Пусть система состоит из  $N$  взаимодействующих спинов, и  $\{\mathbf{e}'_i\}_{i=1}^N$  – набор единичных векторов, задающих их начальные направления. Тогда любая другая спиновая конфигурация магнитной системы,  $\{\mathbf{e}_i\}_{i=1}^N$ , может быть получена из начальной с помощью некоторого ортогонального преобразования:

$$\mathbf{e}_i = \mathbf{e}'_i O^i. \quad (2.4)$$

Для решения задачи на поиск минимума необходимо найти набор ортогональных матриц, которые бы перевели начальную конфигурацию спинов в ту конфигурацию, которая соответствует минимуму энергии. Из-за того, что ортогональные матрицы должны удовлетворять соотношению  $O^T O = I$ , их удобно параметризовать через экспоненты кососимметричных матриц,  $A_i$ :

$$O^i = e^{A_i}, \quad (2.5)$$

где

$$A_i = \begin{pmatrix} 0 & a_{12}^i & a_{13}^i \\ -a_{12}^i & 0 & a_{23}^i \\ -a_{13}^i & -a_{23}^i & 0 \end{pmatrix}. \quad (2.6)$$

Так как начальный набор векторов нормирован на единицу,  $|\mathbf{e}'_i|^2 = 1$ , то и конечный набор векторов тоже будет удовлетворять данному равенству для любого набора кососимметричных матриц,  $\{A_i\}_{i=1}^N$ .

Множество матриц  $A$  образует линейное пространство, и минимум энергии может быть найден, как

$$E_{min} = \min_{\vec{a} \in \mathbb{R}^{3N}} F(\vec{a}), \quad (2.7)$$

где  $\vec{a}$  – вектор размерности  $3N$ :

$$\vec{a} = (a_{12}^1, a_{13}^1, a_{23}^1, \dots, a_{12}^i, a_{13}^i, a_{23}^i, \dots, a_{12}^N, a_{13}^N, a_{23}^N), \quad (2.8)$$

индекс  $i$  относится к номеру спина и

$$F(\vec{a}) = E(\mathbf{e}'_1 e^{A_1}, \mathbf{e}'_2 e^{A_2} \dots, \mathbf{e}'_N e^{A_N}). \quad (2.9)$$

В такой формулировке, энергия задана над векторами  $\vec{a}$ , и условия связи на длину магнитного момента удовлетворены автоматически. На практике, начальная конфигурация спинов  $\{\mathbf{e}'_i\}_{i=1}^N$  может быть выбрана так, чтобы она представляла наиболее близкое решение к минимуму энергии – это делается для уменьшения количества итераций алгоритма расчета, или может быть выбрана согласно случайному распределению спинов на сфере для того, чтобы найти возможные другие локальные минимумы энергии.

Для эффективной минимизации энергии необходимо знание её градиентов. В рамках ОСО, градиент энергии равен:

$$g_{\alpha\beta}^i := \frac{\partial F}{\partial a_{\alpha\beta}^i} = \left( \int_0^1 e^{tA^i} T^i e^{-tA^i} dt \right)_{\alpha\beta}, \quad (2.10)$$

где матрица  $T^i$  определена как

$$T^i = \begin{pmatrix} 0 & t_{iz} & -t_{iy} \\ -t_{iz} & 0 & t_{ix} \\ t_{iy} & -t_{ix} & 0 \end{pmatrix}, \quad \mathbf{t}_i \equiv \mathbf{T}_i = \mathbf{e}_i \times \frac{\partial E}{\partial \mathbf{e}_i}. \quad (2.11)$$

Это выражение получено с помощью правила дифференцирования сложной функции и определения производной от матричной экспоненты [76]. На первый взгляд может показаться, что (а) необходимо вводить набор дополнительных переменных  $\vec{a}$ , (б) расчет интегралов (2.10) представляет из себя трудоемкую задачу.

Однако, в практической реализации метода итерационный процесс выглядит следующим образом:

$$\mathbf{e}_i^{(k+1)} = \mathbf{e}'_i e^{A_i^{(0)}} e^{A_i^{(1)}} \dots e^{A_i^{(k)}}, \forall i \in 1, 2, \dots, N \quad (2.12)$$

В этом случае, спиновая конфигурация обновляется на каждой итерации:

$$\mathbf{e}_i^{(k+1)} = \mathbf{e}_i^{(k)} e^{A_i^{(k)}}, \forall i \in 1, 2, \dots, N. \quad (2.13)$$

и вращение происходит начиная с  $A = 0$ . Тогда градиент энергии в точности равен:

$$g_{\alpha\beta}^i = T_{\alpha\beta}^i \quad (2.14)$$

Таким образом, ни введения дополнительных переменных, ни расчета интегралов (2.12) не требуется, а градиенты энергии могут быть найдены с помощью уравнения (2.14).

Кососимметричные матрицы, используемые в выражении для экспоненты, имеют следующий физический смысл. Величина

$$\theta_i = \frac{1}{\sqrt{2}} \|A^i\|_2 = \sqrt{(a_{12}^i)^2 + (a_{13}^i)^2 + (a_{23}^i)^2} \quad (2.15)$$

определяет угол вращения  $i$ -го спина вокруг оси  $\omega_i$ :

$$\omega_i = \frac{1}{\theta_i} (-a_{23}^i, a_{13}^i, -a_{12}^i)^T. \quad (2.16)$$

Вращение в 3-х мерном пространстве вокруг оси  $\omega_i$  на угол  $\theta_i$  может быть выполнено с помощью формулы Родригеса [77]:

$$e^{A^i} = e^{\theta A'^i} = I + \sin(\theta) A'^i + (1 - \cos(\theta)) (A'^i)^2, \quad (2.17)$$

где  $A'^i = A^i/\theta$ . Следующее упрощение может быть сделано, если экспоненциальное отображение заменено на преобразование Кэли [63]. Преобразование Кэли не требует вычисления тригонометрических функций и совпадает с экспоненциальным преобразованием до 3-го порядка

$$e^A - \frac{I - A/2}{I + A/2} = -\frac{1}{12} A^3 + \mathcal{O}(A). \quad (2.18)$$

Из-за того, что в некоторых задачах невозможно выполнять линейный поиск вдоль заданного направления (например, в задачах по поиску ПМПЭ), удобно ввести параметр обрезания, если шаг вдоль спуска слишком большой: если среднеквадратичная величина вращения всех спинов,  $\theta_{rms} = \sqrt{\sum_{i=1}^N \theta_i^2 / N}$  оказывается больше некоторого  $\theta_{max}$ , то выполняется перенормировка

$$\theta_i \leftarrow \theta_i \frac{\theta_{max}}{\theta_{rms}}, \quad \text{если } \frac{\theta_{max}}{\theta_{rms}} < 1, \quad (2.19)$$

при этом оси вращения остаются теми же самыми. При таком алгоритме увеличивается стабильность метода в начале оптимизации, если не выполняется линейный поиск. Это особенно важно при использовании квази-ньютоновских алгоритмов при поиске ПМПЭ, что будет обсуждаться ниже.

Алгоритм ОСО, может быть объединен с оптимизационными методами, которые были разработаны для минимизации функций без дополнительных условий связи. В частности, метод молекулярной динамики с проекцией скорости на направление силы (далее этот метод будет обозначен, как МД) [78], метод сопряженных градиентов Флетчера-Риверса (СГ), и квазиньютоновский метод Бройдена-Флетчера-Гольдфарба-Шанно с ограниченной памятью (БФГШ-П, далее этот метод будет просто обозначен, как КН) [50].

Другие методы оптимизации, которые аналогичны методу молекулярной динамики, основаны на решении уравнения Ландау-Лифшица (ЛЛ) при нулевой температуре [79]:

$$\frac{d\mathbf{e}_i}{dt} = -\frac{\gamma}{M_i} \mathbf{e}_i \times \mathbf{B}_i^{\text{eff}} - \alpha \frac{\gamma}{M_i} \mathbf{e}_i \times \mathbf{e}_i \times \mathbf{B}_i^{\text{eff}}, \quad (2.20)$$

где  $\gamma$  – гиромагнитное отношение,  $M_i$  – величина магнитного момента,  $\alpha$  – параметр затухания,  $\mathbf{B}_i^{\text{eff}}$  – эффективное поле:

$$\mathbf{B}_i^{\text{eff}} = -\frac{\partial E}{\partial \mathbf{e}_i}$$

Из-за диссипационного члена, энергия уменьшается и система постепенно сходится к состоянию с минимальной энергией. Пример траектории, соответствующей решению уравнения (2.20), представлен на Рисунке 2.1. Эта траектория представляет собой скручивающуюся "спираль" и, очевидно, не является наискорейшим спуском к минимуму энергии.

Более быстрая сходимость, чем в методе ЛЛ, может быть достигнута, если исключить первый член, который приводит к осцилляциям, из уравнения (2.20),

$$\frac{d\mathbf{e}_i}{dt} = -\alpha \frac{\gamma}{M_i} \mathbf{e}_i \times \mathbf{e}_i \times \mathbf{B}_i^{\text{eff}}. \quad (2.21)$$

Этот метод (диссипационное уравнение Ландау-Лифшица, ДЛЛ) соответствует методу наискорейшего спуска. Из теории оптимизации известно, что метод наискорейшего спуска является неэффективным методом, особенно когда расчет энергии является сложной в вычислительном плане операцией. При приближении к минимуму алгоритм замедляется и требуется большое число итераций для того, чтобы достигнуть сходимости.

Метод МД, объединенный с ОСО, генерирует траекторию, которая также следует наискорейшему спуску (рис. 2.1). Однако, в этом методе шаг по времени увеличивается, если вектор скорости сонаправлен с антиградиентом энергии. В противном случае,

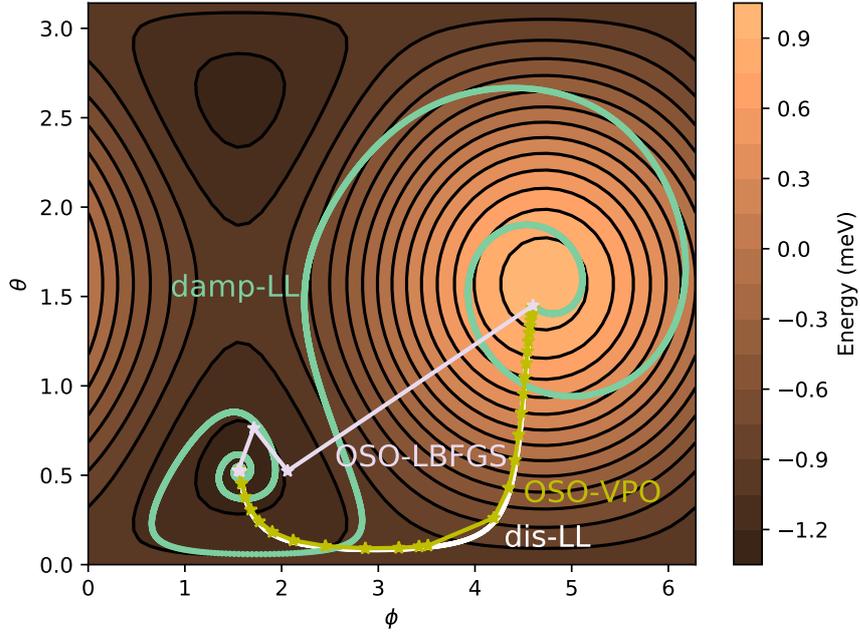


Рис. 2.1: Энергетическая поверхность для магнитного момента, находящегося в поле анизотропии типа "легкая ось" и во внешнем магнитном поле.  $E = -MB \sin(\phi) \sin(\theta) - K \cos^2(\theta)$ ,  $MB = K = 1$  meV. Углы  $\theta$  и  $\phi$  задают направление спина. На рисунке представлены несколько кривых, соединяющих начальное состояние вблизи максимума и минимума, найденных разными методами минимизации. Траектория "damp-LL" получена решением уравнения Ландау-Лифшица (ЛЛ) (2.20). Кривая "dis-LL" получена из уравнения ЛЛ, в котором учитывается только диссипационный член. Параметр затухания,  $\alpha$ , был выбран 0.19. Пути "OSO-LBFGS" and "OSO-VPO" соответствуют методу ОСО (Ур. (2.4)) в комбинации с КН и в комбинации с методом МД. Звездочками на путях отмечены итерационные шаги алгоритма ОСО.

система затормаживается, и вектор скорости зануляется, в результате чего, система продолжает двигаться в направлении наискорейшего спуска.

Другие методы, например, СГ или КН сходятся намного быстрее. Пример траектории сгенерированный методом ОСО-КН показан на рисунке 2.1. Как видно, такая траектория наиболее эффективна среди показанных на рисунке, и требует всего несколько итераций.

Отметим связь ОСО, объединенного с методом градиентного спуска, и уравнения ДЛЛ (2.21). При вращении спинов вдоль градиентного спуска на величину  $\lambda$ , получим:

$$\mathbf{e}_i = e^{\lambda T^i} \mathbf{e}'_i \approx (I + \lambda T^i) \mathbf{e}'_i = \mathbf{e}'_i + \lambda \mathbf{e}'_i \times \mathbf{e}'_i \times \frac{\partial E}{\partial \mathbf{e}'_i}. \quad (2.22)$$

Если теперь выбрать  $\lambda = \gamma\alpha\Delta t/M_i$  и  $\Delta t \rightarrow 0$ , то уравнение (2.22) перейдет:

$$\frac{d\mathbf{e}'_i}{dt} = \alpha \frac{\gamma}{M_i} \mathbf{e}'_i \times \mathbf{e}'_i \times \frac{\partial E}{\partial \mathbf{e}'_i}$$

что в точности совпадает с уравнением (2.21). Таким образом, для достаточно малого шага вдоль градиентного спуска, траектории, полученные методами ОСО-ГС и ДЛЛ, должны совпадать. Более того, если определить вектор  $\mathbf{T}_i$ , как  $\alpha \mathbf{e}_i \times \frac{\partial E}{\partial \mathbf{e}_i} - \frac{\partial E}{\partial \mathbf{e}_i} + \mathbf{f}_i$ , где  $\mathbf{f}_i$  случайное поле, то вращения методом ОСО будут генерировать траекторию, которая получилась бы при решении стохастического уравнения ЛЛ. Использование экспоненциального отображения для решения уравнений движения дано в работе [63]. Позже, точные вращения использовались Депонтом и Мертенсем [80]. Применение преобразования Кели к стохастическому уравнению ЛЛ представлено в работе [54].

Изложенные методы были реализованы автором данной работы в двух программах моделирования спиновых систем (Spirit [5] и LAMMPS [4,81]), находящихся в открытом доступе.

## 2.2 Пример расчетов энергетических минимумов.

В качестве примера, рассмотрим обобщенный гамильтониан Гейзенберга:

$$E = - \sum_{\langle ij \rangle} [J \mathbf{e}_i \cdot \mathbf{e}_j + \mathbf{D}_{ij} \cdot \mathbf{e}_i \times \mathbf{e}_j] - \sum_i \mu_i \mathbf{e}_i \cdot \mathbf{B} - K \sum_i (\mathbf{e}_i \cdot \mathbf{k})^2. \quad (2.23)$$

Первый член в квадратных скобках описывает обменное взаимодействие Гейзенберга. Второй – взаимодействие Дзялошинского-Мории [25, 27]. Вектор Дзялошинского-Мории,  $\mathbf{D}_{ij}$ , направлен от узла  $i$  к узлу  $j$ .  $\langle ij \rangle$  обозначает сумму по ближайшим соседям, причем каждое парное взаимодействие учитывается только один раз. Третье слагаемое описывает взаимодействие с магнитным полем, а четвертое – вклад одноосной анизотропии. Магнитные моменты расположены в узлах квадратной решетки с периодическими граничными условиями. Моделируемые ячейки состоят из 20x20 и 40x40 узлов. Параметры в модели Гейзенберга были выбраны следующими:  $J = 10$  мэВ,  $|\mathbf{D}_{ij}| = D = J/2$ ,  $K = 0$ , магнитное поле направлено перпендикулярно плоскости и  $\mu|\mathbf{B}| = J/5$ . С таким набором параметров, система имеет в качестве метастабильных состояний несколько скирмионных решений с разной плотностью. Скирмионные состояния, для которых производился расчет, имеют энергию -21.94 мэВ/спин для решетки 20x20, и -21.98 мэВ/спин для решетки 40x40 (см. Рис. 2.2).

Будем считать, что система достигла минимума, если максимальный момент сил действующий на спин меньше  $10^{-5}$  мэВ, т.е.

$$\max_i |\mathbf{T}_i| < 10^{-5} \text{ мэВ} \quad (2.24)$$

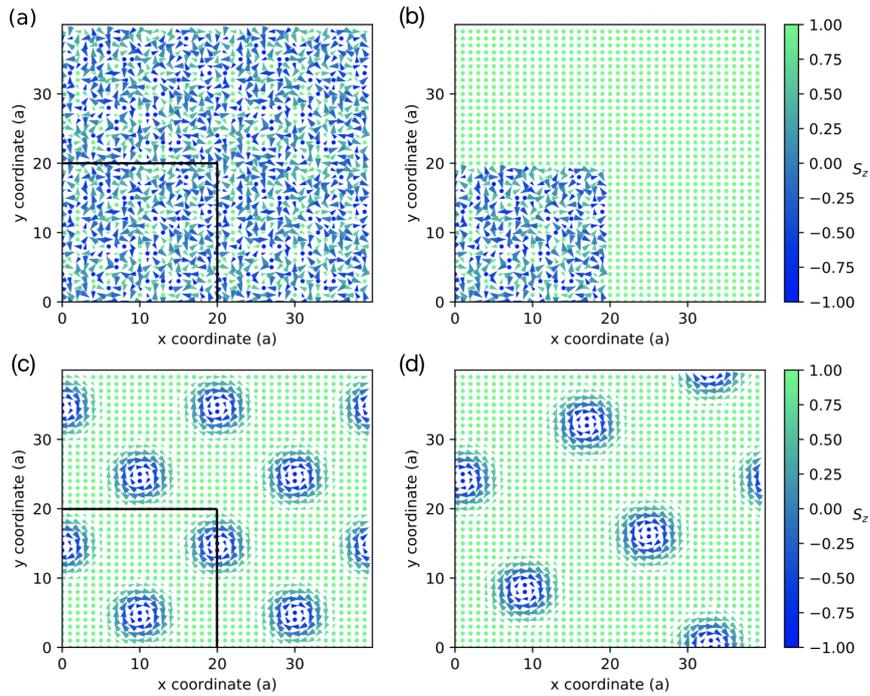


Рис. 2.2: Начальные и конечные спиновые конфигурации моделируемых систем. Координаты узлов решетки даны в единицах постоянной решетки. (a), (b) – начальные состояния для решеток 20x20 и 40x40 соответственно, в которых направления магнитных моментов распределены равномерно на сфере. Черным квадратом на рисунке (a) отмечена моделируемая ячейка. (c), (d) – конечные состояния полученные из состояний (a) и (b) методом минимизации для решеток 20x20 и 40x40 соответственно.

Для интегрирования уравнения (2.21) был использован полунявный метод (SIB) предложенный Ментик и соавторами [54]. Параметр затухания в методе ДЛЛ был выбран равным 0.1, а шаг по времени  $7 \times 10^{-13}$ с. При бóльшем шаге по времени, алгоритм SIB расходится. Начальные магнитные конфигурации были выбраны случайным образом, согласно равномерному распределению направлений моментов на единичной сфере. Число итераций, необходимых для сходимости энергии к минимальному значению, представлены на рисунке 2.3. ОСО-КН показывает наилучшую сходимость – 220 вызовов функции энергии и ее градиента. Метод сопряженных градиентов (ОСО-СГ) выполняет примерно на 50% больше итераций. Методы ОСО-МД намного медленнее и требуют примерно 3000 итераций для сходимости. Метод ЛЛ показывает наихудшую сходимость – 4000 итераций. Одна итерация в методе SIB требует 2 вызовов градиента энергии. Проведенный расчет показывает, что когда вызов функции энергии и её градиентов является наиболее вычислительно-затратной операцией, метод ОСО-КН сходится гораздо лучше других, и именно он будет использоваться для исследования скирмион-

ных состояний при самосогласованных расчетах в методе модельных гамильтонианов в главе 3. Отметим, что в общем случае, в теории оптимизации, метод СГ может оказаться быстрее метода КН, например, когда алгебра метода минимизации требует больше операций, чем расчет объектной функции [82].

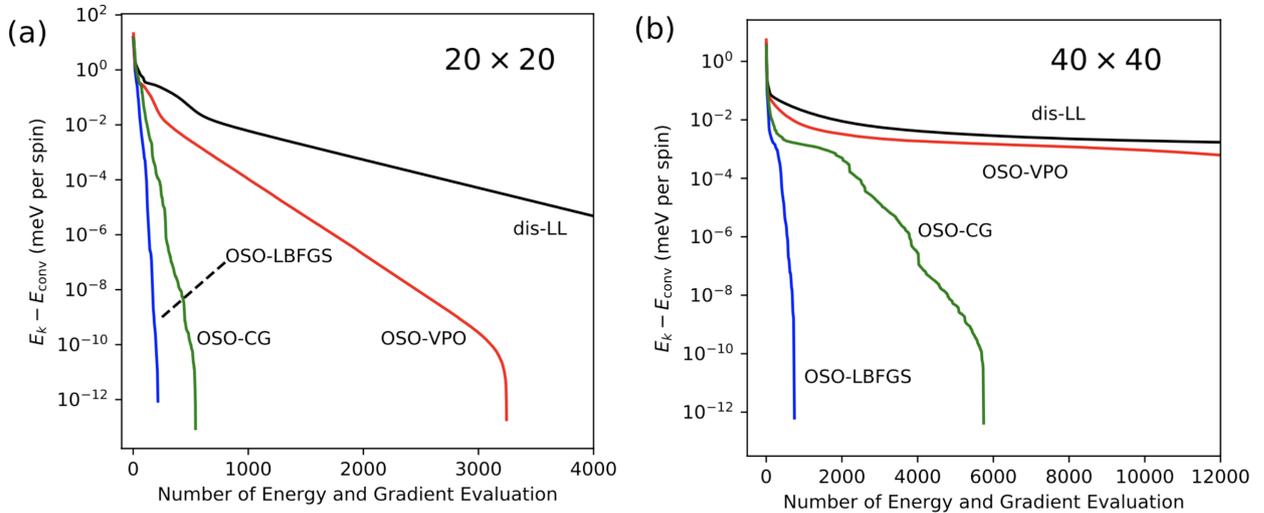


Рис. 2.3: Точность расчета, как функция количества вызовов функции энергии и её градиентов для разных методов минимизации. Критерий сходимости  $\max_i |\mathbf{e}_i \times \partial E / \partial \mathbf{e}_i| < 10^{-5}$  meV. (a): Расчет для решетки состоящей из  $20 \times 20$  узлов (см. Рис.2.2.(a,c)) (b): Расчет для решетки состоящей из  $40 \times 40$  узлов (см. Рис.2.2.(b,d)).

С ростом числа степеней свободы, увеличивается число итераций, необходимых для сходимости энергии к минимуму с заданной точностью. Это может быть связано с увеличением времен релаксации, при возбуждении большего числа степеней свободы. Такой эффект проиллюстрирован на решетке состоящей из  $40 \times 40$  узлов (в 4 раза больше, чем в предыдущем примере). Начальное состояние выбрано так, чтобы число случайно распределенных магнитных моментов было таким же, как и на решетке  $20 \times 20$ , а остальная часть монослоя находилась в ферромагнитном состоянии (Рис. 2.2(b,d)). Для такой системы, ОСО-КН выполняет 750 итераций, в то время как метод ОСО-СГ и ОСО-МД – 5700 и 45000 итераций, а метод ДЛЛ – 60 000 итераций. Как видно, с увеличением числа степеней свободы метод ОСО-КН сходится на порядок-два быстрее, чем остальные алгоритмы. Отметим, что все алгоритмы сходятся к одному и тому же минимуму, хотя в системе существуют и другие локальные минимумы. Таблица 2.1 показывает, как число итераций зависит от точности критерия сходимости. Как видно, число итераций в методе КН увеличивается незначительно при увеличении точности сходимости. В то же время для других алгоритмов увеличение точности на порядок, может привести к

20-30 % росту числа итераций. Это связано с тем, что метод КН обладает сверхлинейной сходимостью [50].

Таблица 2.1: Число итераций, необходимых для сходимости разных алгоритмов для системы, состоящей из 40x40 спинов, в зависимости от точности расчета минимума. Точность расчета определена через максимальный момент сил, действующий на один спин. Одна итерация в методе ДЛЛ требует два вызова градиента энергии, если используется алгоритм SIB.

Точность (meV)	ДЛЛ	МД	СГ	КН
$10^{-4}$	45300	34300	4560	715
$5 \cdot 10^{-5}$	49600	37600	4850	740
$10^{-5}$	59750	45200	5750	750

### 2.3 Поиск путей с минимальным перепадом энергии. Геодезический метод подталкивания упругой лентой.

Геодезический метод подталкивания упругой лентой (ПУЛ) является обобщением метода ПУЛ, используемого в теории химической реакции и при расчетах диффузионных процессов [78, 83]. С помощью этого метода можно построить путь с минимальным изменением энергии, соединяющий два минимума на многомерной энергетической поверхности системы. Путь аппроксимируется дискретным набором копий – реплик или образов системы, расположенных на энергетической поверхности. В качестве начального приближения для пути можно взять линейную интерполяцию начального и конечного состояний. Могут использоваться и более сложные и усовершенствованные методы интерполяции [84], более близко представляющие настоящий ПМПЭ.

Образы соединяются "пружинками", которые не позволяют им свободно спуститься в один или второй минимум. Далее, система релаксирует под действием проекции сил упругости на направление касательной к пути и проекции антиградиента энергии на направление ортогональное касательной к пути. В равновесном состоянии удлинение всех пружин одинаково, и, следовательно, образы находятся на одинаковом расстоянии друг от друга. В то же время в подпространстве ортогональном касательной к пути, они находятся в минимуме и, следовательно, имеют максимальный статистический вес среди близких состояний. ПМПЭ, таким образом, соответствует пути перехода с максимальным статистическим весом и, поэтому, определяет сценарий перехода. Максимум

энергии вдоль пути по отношению к энергии в минимуме дает активационный барьер перехода. Введение искусственных упругих пружин, подталкивающих образы к ПМПЭ дало название методу ПУЛ. Алгоритм ГПУЛ также учитывает то, что энергия является функцией переменных, определяющих ориентации магнитных моментов, и касательные вектора к пути проецируются на касательное подпространство к магнитным моментам.

Эффективные градиенты упругой ленты, действующие на  $i$ -ый магнитный момент  $\nu$ -го образа, равны:

$$\vec{h}_{i\nu} = \vec{h}_{i\nu}^{\perp} + \vec{h}_{i\nu}^{\parallel}, \quad (2.25)$$

$$\text{где } \vec{h}_{i\nu}^{\perp} = \frac{\partial E}{\partial \mathbf{e}_{i\nu}} - \left( \sum_j \frac{\partial E}{\partial \mathbf{e}_{j\nu}} \cdot \hat{\mathcal{P}}\tau_{j\nu} \right) \hat{\mathcal{P}}\tau_{i\nu} \quad (2.26)$$

$$\text{и } \vec{h}_{i\nu}^{\parallel} = [k_{\nu}D_{\nu} - k_{\nu-1}D_{\nu-1}] \hat{\mathcal{P}}\tau_{i\nu}. \quad (2.27)$$

В этом выражении  $\mathcal{P}$  – проектирующий оператор и  $\hat{\mathcal{P}}[\cdot] = \mathcal{P}[\cdot]/|\mathcal{P}[\cdot]|$ .  $D_{\nu}$  геодезическое расстояние между  $\nu + 1$  и  $\nu$  образами,  $k_{\nu}$  – коэффициенты упругости искусственных пружин и  $\tau$  – касательный единичный вектор к пути [85]. Для классического метода ПУЛ,  $\mathcal{P} = I$  – единичный оператор.

В большинстве существующих реализаций ГПУЛ, коэффициенты упругости  $k_{\nu}$  считаются одинаковыми для всех образов системы. Однако, как показали выполненные расчеты, увеличение жесткости пружин для образов, находящихся вблизи максимума вдоль пути, увеличивает стабильность алгоритмов, особенно квазиньютоновского типа. Это связано с тем, что образ с наибольшей энергией "подтягивает" к себе остальные образы системы, обеспечивая лучшее разрешение окрестности седловой точки. Именно седловая точка представляет основной интерес для расчета устойчивости системы относительно тепловых флуктуаций.

Коэффициенты упругости вводимых пружин рассчитывались следующим образом [86]:

$$k_{\nu} = \begin{cases} k_{max} - \Delta k \left( \frac{E_{max} - X_{\nu}}{E_{max} - E_{ref}} \right), & \text{если } X_{\nu} > E_{ref}, \\ k_{max} - \Delta k, & \text{если } X_{\nu} \leq E_{ref}. \end{cases} \quad (2.28)$$

где  $X_{\nu} = \max(E_{\nu}, E_{\nu+1})$  и  $E_{ref}$  наибольшая энергия образа, находящегося в начале или в конце пути. Величина коэффициентов упругости растет линейно по мере приближения к максимуму энергии вдоль пути. Если используются одинаковые коэффициенты упругости для всех пружин, то потребуется большее количество образов, для достижения сходимости алгоритма. Силы упругости должны быть сопоставимы по величине с градиентами энергии, чтобы сходимость была достаточно плавной. Для наименьшего значения  $k$ , разумным выбором является одна десятая максимального значения пара-

метров обменного взаимодействия,  $J$ . Далее, величина  $k$  растет линейно и увеличивается до максимального значения, равного  $2k_{min}$ , согласно (2.28).

Для того, чтобы использовать метод ОСО для поиска ПМПЭ, необходимо заменить градиенты энергии в уравнении (2.11) на эффективные градиенты "упругой ленты" из уравнения (2.25):

$$\frac{\partial E}{\partial \mathbf{e}_{iv}} \leftarrow \vec{h}_{iv} \quad (2.29)$$

все скалярные произведения в алгоритмах оптимизации включают суммирование по всем индексам – спиновым и индексам образов. В этом случае оптимизационный алгоритм применяется "глобально" ко всему дискретизированному пути.

Для того, чтобы точно определить максимум вдоль пути, используется метод "карабкающегося образа" (climbing image) [85]. В этом случае, эффективные силы упругости не действуют на образ с наибольшей энергией вдоль пути, а используется только градиент спроектированный на направление вдоль пути:

$$\vec{h}_{iv}^{ci} = \frac{\partial E}{\partial \mathbf{e}_{iv}} - 2 \left( \sum_j \frac{\partial E}{\partial \mathbf{e}_{j\nu}} \cdot \hat{P} \hat{\tau}_{j\nu} \right) \hat{P} \hat{\tau}_{iv} \quad (2.30)$$

Такой алгоритм подталкивает образ с самой большой энергией к точке максимума энергии вдоль пути. После того, как максимум вдоль пути найден, плотность образов по разные стороны от седловой точки могут быть различными. В некоторых случаях во время итерационной процедуры, образ с максимальной энергией может поменяться. Тогда алгоритм КН перезапускается, т.к. используемые ранее шаги должны быть согласованы с выражением для эффективных градиентов всех образов системы. Это также увеличивает стабильность алгоритма. На практике, в расчетах, забирающийся образ должен быть активирован с первой же итерации без предварительной релаксации пути. Такой подход также позволяет сократить число итераций при поиске ПМПЭ.

Начальный путь между двумя локальными образами генерируется методом линейной интерполяции с помощью формулы Родригеса [64]. Итерационная процедура, сдвигает такой начальный путь к наиболее близкому ПМПЭ. В некоторых случаях существует несколько путей, соединяющих локальные минимумы, формально удовлетворяющим критерию ПМПЭ. Тогда путь сгенерированный линейной интерполяцией, может сойтись к пути с не наименьшим энергетическим барьером. В таких случаях могут быть использованы генетические алгоритмы для поиска оптимальных путей на сложных энергетических поверхностях [87].

Иногда, начальное приближение для пути может уже оказаться стационарным. Так происходит, например, в задаче о переманчивании наноостровков Fe на поверхности

W (соответствующие пути будут приведены ниже), где равномерному вращению всех магнитных моментов соответствует стационарный путь. Однако, порядок седловой точки зависит от размера островка. Для достаточно больших размеров появляется другой оптимальный путь с распространением доменной стенки вдоль островка. Для того, чтобы начальное приближение к пути не сходилось к равномерному вращению магнитных моментов, можно добавить шум к линейной интерполяции пути. Интерполяция выполняется с помощью формулы Родригеса, в которой  $\nu$ -ый образ рассчитывается по формуле [64]:

$$\mathbf{e}_{i\nu} = \mathbf{e}_{iI} \cos \omega_i^\nu + \left[ \vec{k}_i \times \mathbf{e}_{iI} \right] \sin \omega_i^\nu, \quad (2.31)$$

где  $\mathbf{e}_{iI}$  – спины первого образа (минимума) и  $\omega_i^\nu = \omega_i(\nu - 1)/(Q - 1)$  – угол вращения ( $Q$  – число образов и  $\omega_i$  – угол между спинами первого и последнего образа). Ось вращения определена через векторное произведение спинов первого и последнего образа:

$$\vec{k}_i = \frac{\mathbf{e}_{iI} \times \mathbf{e}_{iF}}{|\mathbf{e}_{iI} \times \mathbf{e}_{iF}|} \quad (2.32)$$

Чтобы добавить шум в линейную интерполяцию, ось вращения рассчитывается следующим образом:

$$\vec{k}_i \leftarrow \frac{\hat{k}_i + \vec{\xi}_i}{|\hat{k}_i + \vec{\xi}_i|}, \quad (2.33)$$

где  $\vec{\xi}_i$  – трехмерный вектор, компоненты которого составлены из случайных чисел распределенных равномерно на отрезке  $(-\epsilon, \epsilon)$ .

Расчеты путей были произведены программой LAMMPS, в которой изложенные выше алгоритмы были реализованы автором данной работы. Нужно отметить, что при поиске ПМПЭ методом ГПУЛ нет целевой функции, и поэтому оптимизация должна использовать только эффективные градиенты упругой ленты. В LAMMPS реализован метод ДЛЛ с переменным шагом по времени. На каждой итерации происходит интегрирование уравнения (2.20) с шагом:

$$\Delta t = \frac{2\pi}{\kappa |\vec{\omega}_{\max}|}, \quad (2.34)$$

где  $\kappa$  – некоторый параметр, а

$$|\vec{\omega}_{\max}| = \max_{i\nu} \left| \frac{1}{\hbar} \vec{h}_{i\nu} \right| \quad (2.35)$$

– максимальная частота осцилляций среди всех образов. Для того, чтобы метод СГ работал без линейного поиска, происходит обезразмеривание эффективного градиента упругой ленты:

$$\vec{h}_i \leftarrow \vec{h}_i \frac{\Delta t}{\hbar}. \quad (2.36)$$

Аналогичная процедура выполняется и для алгоритма МД. Для метода КН этого не делается, т.к. шаг равный единице, является естественным шагом подобных методов. Контролируется только максимальное вращение спинов согласно формуле (2.19), когда шаг вдоль направления эффективных моментов сил получается слишком большим.

## 2.4 Скорость сходимости алгоритмов для задач поиска путей с минимальным перепадом энергии.

Будем считать, что энергия системы описывается обобщенной моделью Гейзенберга. В качестве примеров рассмотрим 5 задач, в которых окрестности седловых точек имеют разную кривизну.

### Задача А: Перемагничивание наностроек Fe/W(110).

В этой задаче, для островков достаточно большого размера, перемагничивание идет через формирование и движение доменной стенки. Седловая точка первого порядка здесь не определена и часть ПМПЭ представляет из себя квазиуловую моду, движение вдоль которой не меняет энергии системы (задача А, Рис.2.4). Для выполненных расчетов островок железа состоял из 30x10 атомов. Параметры системы были взяты из статьи [88]:  $J = 25.6 \text{ meV}$  (ближайшие соседи только),  $K_{\parallel} = 1.2 \text{ meV}$ ,  $\hat{k}_{\parallel} = (0, 1, 0)^T$ ,  $K_{\perp} = -0.5 \text{ meV}$ ,  $\mathbf{k}_{\perp} = (0, 0, 1)^T$ ,  $|\mathbf{D}_{ij}|=|\mathbf{V}|=0$ . Расчет ПМПЭ для такой системы требует большого числа итераций из-за наличия квазиуловой моды вдоль пути.

### Задача В и С: Аннигиляция скирмиона в Co/Pt(111) и в Pd/Fe/Ir(111)

Моделируемые системы состоят из 200 x 200 узлов расположенных на треугольной решетке с периодическими граничными условиями в плоскости слоя. Параметры для Co/Pt(111) имеют следующие значения (задача В):  $J = 29 \text{ meV}$  (ближайшие соседи только),  $D = 1.5 \text{ meV}$ ,  $B = 0$ ,  $K = 0.293 \text{ meV}$ , and  $\mathbf{k} = (0, 0, 1)^T$ . Выбор направления вектора Дзялошинского-Мори соответствует скирмиону Неелевского типа. Этот набор параметров был использован в статьях [28] и [89]. В данной задаче барьер для аннигиляции скирмиона существенно меньше, чем барьер для его нуклеации,  $E_{b\rightarrow} \ll E_{b\leftarrow}$ .

В задаче С также рассматривается аннигиляция скирмиона, но с параметрами, соответствующими Pd/Fe/Ir(111):  $J = 7.36 \text{ meV}$  (ближайшие соседи),  $D = -2.78 \text{ meV}$ ,  $B = 1.5 \text{ T}$ ,  $\mu_i = 3$ ,  $K = 0.7 \text{ meV}$ ,  $\mathbf{k} = (0, 0, 1)^T$  [90]. В этой задаче, в отличие от системы Co/Pt(111), путь является почти симметричным,  $E_{b\rightarrow} \approx E_{b\leftarrow}$ . Поэтому можно ожидать, что такая задача окажется "легкой" для алгоритмов оптимизации.

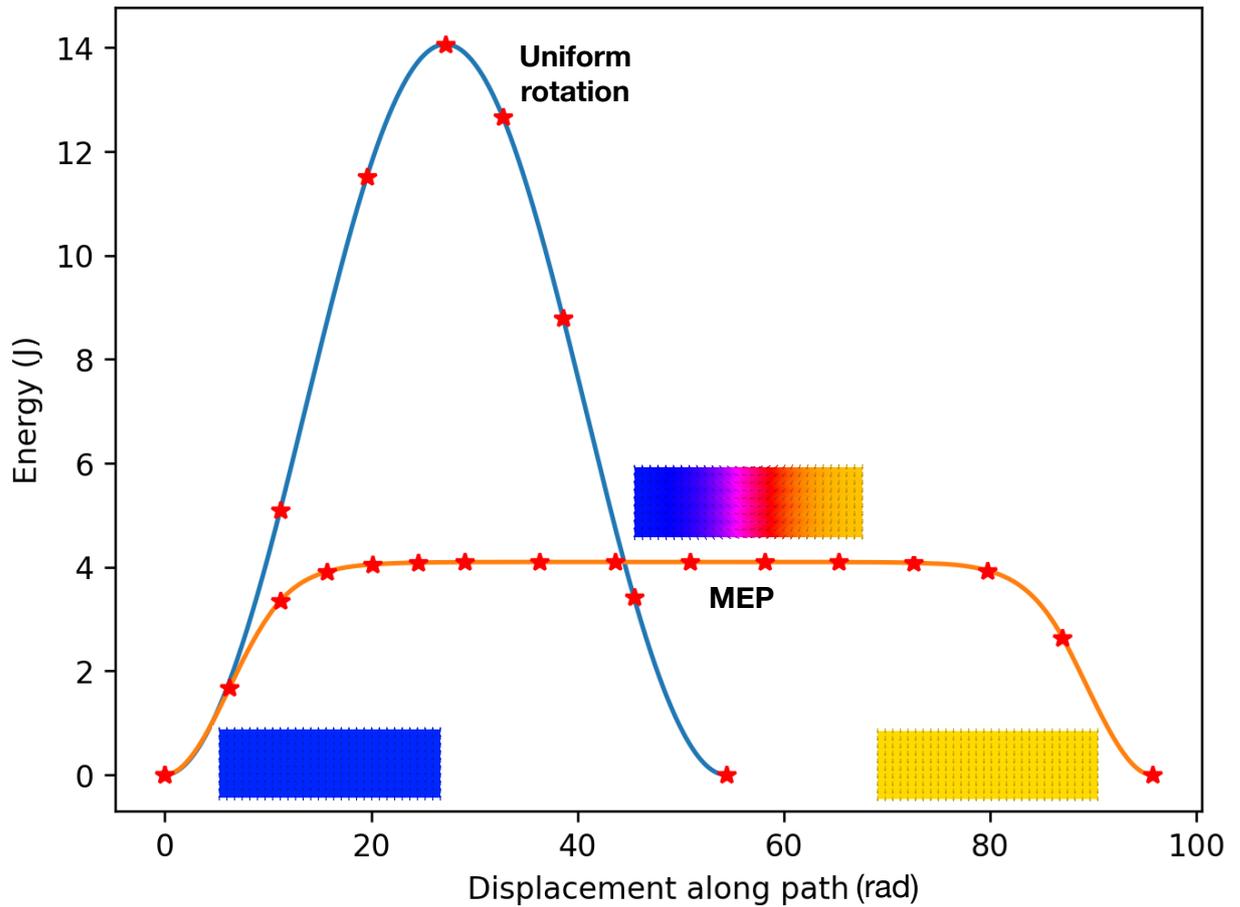


Рис. 2.4: Перемагничивание островка железа, состоящего из  $30 \times 10$  атомов Fe на вольфрамовой подложке W(110). Кривая синего цвета соответствует однородному вращению магнитных моментов. Гессиан в седловой точке имеет 5 отрицательных собственных значений и поэтому такой путь не является оптимальным. Кривая оранжевого цвета обозначает путь с минимальным перепадом энергии, который был получен, когда достаточно большой шум был добавлен к начальной интерполяции. Красные звездочки соответствуют образам системы, используемые в методе ГПУЛ. Вставки показывают спиновые конфигурации вдоль ПМПЭ. Магнитные моменты лежат в плоскости островка. Цвет показывает проекцию спина вдоль меньшей стороны островка (синий цвет: +1, красный цвет: 0, желтый цвет: -1).

#### Задача D: Аннигиляция скирмиона в системе с фрустрациями.

Рассмотрим систему, в которой учитываются 5 обменных параметров, описывающих взаимодействие вплоть до пятого ближайшего соседа [90]:  $J_1 = 28.81$  meV,  $J_2 = -5.05$  meV,  $J_3 = -5.21$  meV,  $J_4 = 0.91$  meV,  $J_5 = 1.59$  meV. Направление вектора Дзялошинского-Мори, здесь выбрано так, чтобы в седловой точке оказалось Блоховское состояние, при котором 4 спина направлены к центру.  $|D_{ij}| = 3.0$  meV,  $B = 0.5$  T. Такая система ока-

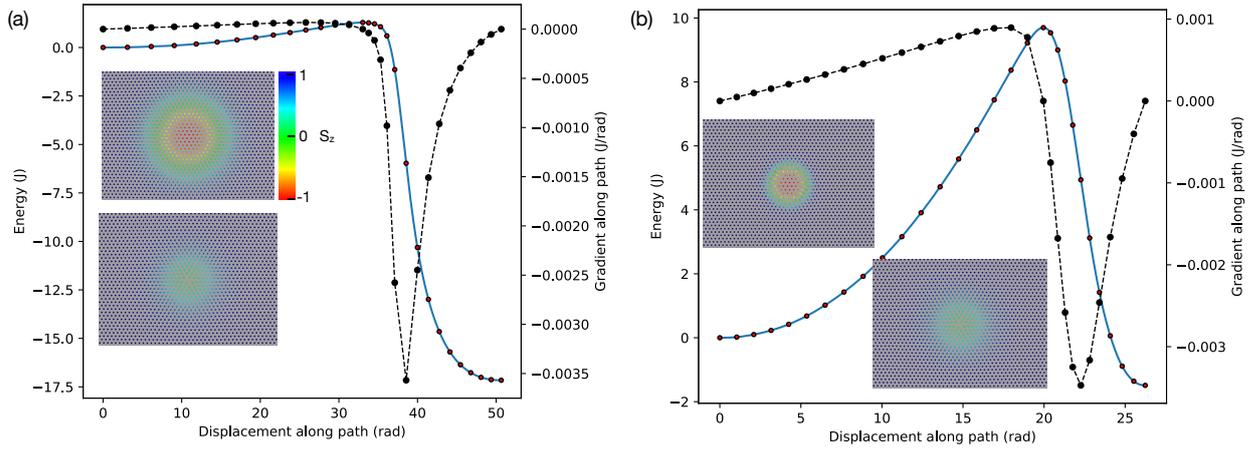


Рис. 2.5: Пути с минимальными перепадами энергии и градиент энергии вдоль пути. Путь обозначен синим цветом, а образы красными кружками. Градиент энергии обозначен черным цветом. Как видно градиент вдоль пути меняется непрерывно. Вставки показывают начальное состояние и седловую точку, отмеченные цифрами 1 и 2. (a) Co/Pt(111). (b) Pd/Fe/Ir(111).

задачу сложнее остальных задач, благодаря тому, что градиент энергии в окрестности переходного состояния резко меняет свое значение, при переходе через седловую точку (рис.(2.6)). Это в свою очередь введет к осцилляциям забирающегося образа около седловой точки, если число образов слишком мало для того, чтобы получить хорошее разрешение окрестности седловой точки. Сильные изменения градиентов энергии в окрестности седловой точки введут к тому, что квазиньютоновский алгоритм не может построить адекватное приближение к обратной матрице Гессе.

### Задача Е: Аннигиляция кирального поплавка вблизи поверхность магнитного образца.

Моделируемая система состоит из  $30 \times 30 \times 30$  магнитных моментов, расположенных в узлах простой кубической решетки с периодическими граничными условиями в плоскости  $xy$  (Рис.2.7). Конечное состояние – коническая фаза. Параметры имеют значения  $J = 1 \text{ meV}$  (ближайшие соседи),  $D = 0.45 \text{ meV}$ ,  $B = 2.8 \text{ T}$ ,  $M_i = 1$ ,  $K=0$ . Направление вектора Дзялошинского-Мории соответствует киральности Блоховского типа. Параметры близки к приведенным в статьях [5, 65]

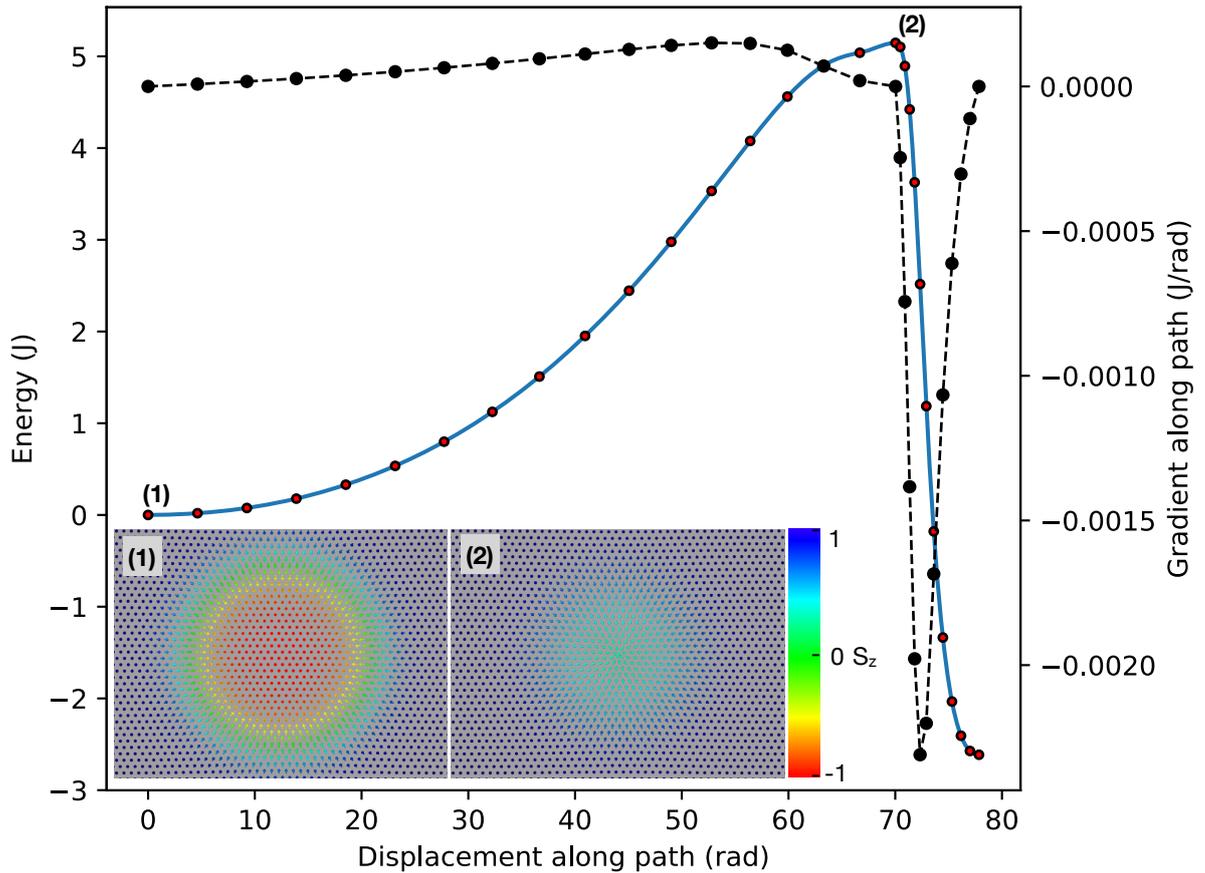


Рис. 2.6: Путь с минимальным перепадом энергии и градиент энергии вдоль пути. Путь обозначен синим цветом, а образы красными кружками. Градиент энергии обозначен черным цветом. Градиент энергии в окрестности седловой точки резко меняет свое значение (в отличие от Рис. 2.5), хотя оба соседних образа находятся близко к седловой точке. Это ведет к осцилляциям забирающегося образа вокруг седловой точки. Если используется недостаточное количество образов, получается плохое разрешение окрестности седловой точки. Вставки показывают начальное состояние и седловую точку, отмеченные цифрами 1 и 2.

### Результаты расчетов.

Результаты сходимости разных оптимизационных алгоритмов представлены в таблице 2.2. В тестовых расчетах использовалось 8 образов системы, 2 из которых закреплены на концах пути. Для алгоритмов оптимизации требуется один расчет энергии и градиента энергии на один образ. Метод КН сходится быстрее, чем остальные методы для задач В-Е, особенно, по сравнению с методами ДЛЛ и МД. В некоторых примерах, сходимость в 8 раз быстрее, чем в метод ДЛЛ, который часто используется, для поиска ГПУЛ. Однако, для задачи А, метод СГ сходится быстрее, чем метод КН в 2 раза.

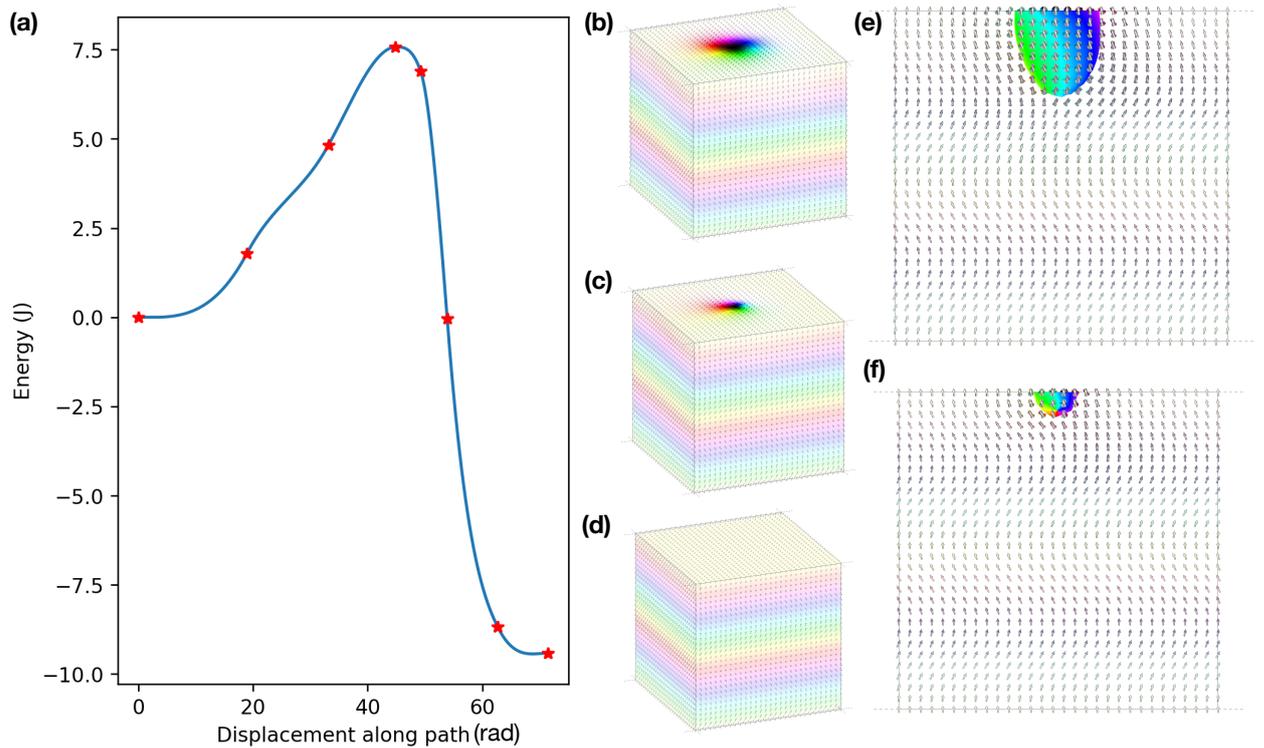


Рис. 2.7: Аннигиляция кирального поплавка (chiral bobber) на поверхности трехмерной структуры. (a) Путь с минимальным перепадом энергии. (b), (c), (d): Начальное состояние, седловая точка, и конечное состояния. Цвет распределен согласно цветовой модели HSV ('hue, saturation, value' model). Цветовой тон определен азимтульным углом, насыщенность и яркость определены полярный углом (e) и (f): Начальное состояния и седловая точка показаны со стороны. Изоповерхность соответствует спинам с полярным углом  $\pi/2$ , цветовой тон определен азимутальным углом. Картинки сгенерированы с помощью программы Spirit [5].

Это связано с тем, что метод КН строит приближение к обратному гессиану, основываясь на нескольких предыдущих шагах. Так как в задаче А переход происходит через формирование доменной стенки, которая потом движется почти без изменений энергии (квазиулеванная мода), то и предыдущие шаги содержат информацию об этой же моде. Поэтому построение обратного Гессиана затруднительно, и строго говоря, без специальной регуляризации он бы не существовал. В таких задачах, с плоскими участками вдоль пути метод СГ оказывается предпочтительнее.

Как видно из расчетов, параметр  $\kappa$  в выражении для адаптивного шага по времени сильно влияет на сходимость методов СГ и ДЛЛ. Если  $\kappa$  увеличивается в два раза, с 10 до 20, то и шаг по времени уменьшается в два раза, что повлияет на число итераций. Однако, значение  $\kappa$  меньше влияет на алгоритм МД, как видно на примерах В-Е, т.к.

Таблица 2.2: Число итераций необходимых для сходимости начального пути, полученного линейной интерполяцией, к ПМПЭ. Для возможности сравнения, во всех расчетах было использовано одинаковое число образов - 8, два из которых закреплены в начальном и конечном состояниях. Считается, что алгоритм сошелся к ПМПЭ, если эффективный момент сил упругой ленты для каждого спина в каждом образе меньше, чем  $1 \cdot 10^{-6} J$ , кроме задачи D, в которой критерий сходимости был увеличен до  $5 \cdot 10^{-6} J$ , так как ни один из алгоритмов не сходится с более высокой точностью с 8 образами. Это связано с тем, что градиент энергии резко изменяется в окрестности переходного состояния, в результате чего забирающийся образ осциллирует вокруг седловой точки. Результаты для СГ, МД и ДЛЛ получены с  $\kappa = 10$  из ур. 2.34 В скобках указаны результаты полученные с  $\kappa = 20$ . Методы КН, СГ и МД используются в комбинации с ОСО.

Задача	КН	СГ	МД	ДЛЛ
A	814	505 (976)	2425 (1629)	1408 (2813)
B	102	313 (623)	590 (685)	888 (1776)
C	101	164 (323)	610 (643)	455 (911)
D	89	253 (518)	676 (747)	725 (1448)
E	180	455 (893)	968 (1086)	1299 (2610)

в нем уже присутствует ускорение за счет увеличения внутреннего шага по времени. В этом методе, система ускоряется, когда скорость сонаправлена с силой, действующей на магнитный момент, что происходит более часто, если шаг по времени не велик. Для задачи A, число итерации в МД увеличивается, с ростом шага по времени.

Коэффициенты упругости, зависящие от энергии образа согласно уравнению (2.28), улучшают сходимость КН алгоритма, т.к. плотность образов увеличивается в окрестности седловой точки. Например, в расчетах в задаче C, метод КН не сходится с 8 образами, если не используется уравнение (2.28). Однако, сходимость может быть получена, если число образов увеличивается до 12, что говорит о том, что для хорошей сходимости алгоритма нужна определенная плотность образов. С 12 образами и постоянными коэффициентами упругости пружин число итераций увеличивается до 267 на один образ (вместо предыдущих 101). Поэтому, использование уравнения (2.28) значительно уменьшает необходимые вычислительные ресурсы (в данном примере в 4 раза). Задача A является наиболее трудной для всех алгоритмов расчетов. Начальная линейная интерполяция пути соответствует однородному вращению магнитных моментов.

Сгенерированный таким образом набор реплик представляет из себя дискретный путь, удовлетворяющий условиям сходимости для метода ГПУЛ, т.е. силы действующие ортогонально касательной к пути равны нулю, а образы распределены равномерно вдоль пути. Требуется выполнить еще несколько итераций для того, чтобы забирающийся образ поднялся до точки с максимальной энергией (см. таблицу 2.3). Однако, максимум вдоль такого пути для островка состоящего из  $30 \times 10$  атомов не является седловой точкой первого порядка, и настоящий ПМПЭ соответствует распространению доменной стенки вдоль островка. Для того, чтобы нарушить симметрию в начальной интерполяции можно добавить случайный шум, как обсуждалось выше. Если шум недостаточно велик, то путь все равно сходится к когерентному вращению из-за забирающегося образа. Только после добавления достаточно большого шума, начальная интерполяция сходится к ПМПЭ, как показано в таблице 2.3. Энергетический барьер для такого пути намного ниже того, который был бы рассчитан из пути с вращением магнитных моментов ( $4.097 \text{ J}$  против  $14.062 \text{ J}$ ). Число итераций получается различным для разных сгенерированных случайных чисел, что ожидаемо, т.к. начальные пути тоже различны.

Таблица 2.3: Число итераций необходимых для сходимости начального пути, полученного линейной интерполяцией, к ПМПЭ в задаче по перемагничиванию  $30 \times 10$  островка Fe на подложке W(110). Критерий сходимости  $1 \cdot 10^{-6} \text{ J}$ . Результаты представлены для разных значений величины случайного шума в начальной интерполяции (ур. (2.33)). Для больших значений,  $\epsilon=0.1$ , представлено два результата для двух разных выборок случайного шума. Для  $\epsilon=0.1$ , начальная интерполяция сходится к ПМПЭ с энергетическим барьером равным  $4.097 \text{ J}$ , в то время как для  $\epsilon=0$  или  $0.01$  расчеты сходятся к пути с равномерным вращением магнитных моментов, с максимумом вдоль пути  $4.097 \text{ J}$ . Результаты для СГ, МД и ДЛЛ получены с  $\kappa = 10$  из ур. (2.34). В скобках указаны результаты полученные с  $\kappa = 20$ . Методы КН, СГ и МД используются в комбинации с ОСО.

$\epsilon$	КН	СГ	МД	ДЛЛ
0	90	84 (160)	278 (426)	233 (466)
0.01	76	92 (173)	274 (402)	235 (470)
0.1	1044	436 (850)	1847 (1697)	1230 (2459)
0.1	814	505 (976)	2425 (1629)	1408 (2813)

Проведенные тесты показали, что алгоритм КН с комбинацией ОСО является наиболее эффективным и показывает наилучшую производительность в большинстве задач.

Поэтому при расчетах скирмионных состояний в рамках метода модельных гамильтонианов в главе 3, будет использоваться именно этот метод. Однако метод СГ также показывает неплохую производительность. Для некоторых задач он может быть в три раза медленнее, чем метод КН, однако является более устойчивым алгоритмом, т.к. величина вращений может легко контролироваться шагом по времени из уравнения (2.34).

## 2.5 Применение развитых методов к жидкокристаллическим системам.

Изложенные выше методы применимы к описанию не только магнитных твердотельных систем, но и любых других, в которых энергия зависит от параметра порядка, зависящего от пространственного направления в конфигурационном пространстве. Примерами таких систем могут служить жидкие кристаллы (ЖК), молекулы которых не имеют сферической формы. В ЖК отсутствует дальний порядок центра масс молекул, но присутствует ориентационный порядок. Поэтому конфигурация системы задается полем направлений  $\mathbf{n}(\mathbf{r})$ , которое описывает усредненную ориентацию молекул в точке  $\mathbf{r}$ . Направления  $\mathbf{n}(\mathbf{r})$  и  $-\mathbf{n}(\mathbf{r})$  эквивалентны; параметр порядка  $\mathbf{n}(\mathbf{r})$  носит название "директор". ЖК могут состоять из хиральных молекул, т.е. из молекул у которых отсутствует зеркальная симметрия. Это может привести к хиральному порядку директора во всем объеме кристалла. К таким ЖК относятся, так называемые, холестерические жидкие кристаллы (ХЖК).

Рассмотрим ХЖК, заключенный в ячейку с плоскопараллельными границами. Будем считать, что ось  $z$  направлена перпендикулярно этим границам и система однородна в плоскости  $x-y$ . Свободная энергия ЖК задается следующим функционалом:

$$F[\mathbf{n}] = F_{el} + F_f + F_s, \quad (2.37)$$

Первый вклад – свободная энергия Озеена-Франка [91]:

$$F_{el}[\mathbf{n}] = \frac{S_{\perp}}{2} \int_{l_1}^{l_2} dz [K_1(\text{div } \mathbf{n})^2 + K_2(\mathbf{n} \cdot \text{rot } \mathbf{n} + q_0)^2 + K_3(\mathbf{n} \times \text{rot } \mathbf{n})^2], \quad (2.38)$$

где  $K_1, K_2, K_3$  – так называемые, модули Франка,  $q_0$  – волновой вектор спирали в отсутствие границ. В одноконстантном приближении, когда  $K_1 = K_2 = K_3$  выражению для энергии ЖК можно сопоставить энергию магнитной системы. Первое слагаемое в (2.38) пропорционально квадрату дивергенции директора, что соответствует обменной энергии магнетика при замене гда  $K_1$  на  $2AM_3^2$  После раскрытия квадрата второго выражения в энергии появляется вклад пропорциональный  $\mathbf{n} \cdot \text{rot } \mathbf{n}$ , что имеет

вид ВДМ в микромагнитной модели. Однако, в свободной энергии ХЖК существуют вклады и старшего порядка,  $(\mathbf{n} \cdot \text{rot } \mathbf{n})^2$ ,  $(\mathbf{n} \times \text{rot } \mathbf{n})^2$ , которые обычно не учитываются при описании ориентационных переходов в магнетиках.

Второй вклад в свободную энергию – энергия взаимодействия внешнего электрического или магнитного полей и ХЖК:

$$F_f = -\frac{1}{2} \int_V \mathbf{E} \cdot \mathbf{D} \, d\mathbf{r}, \quad (2.39)$$

или

$$F_f = -\frac{1}{2} \int_V \mathbf{B} \cdot \mathbf{H} \, d\mathbf{r}, \quad (2.40)$$

где  $\mathbf{E}$  – напряженность электрического поля и  $\mathbf{D}$  – электрическая индукция.  $\mathbf{B}$  – магнитная индукция и  $\mathbf{H}$  – напряженность магнитного поля. Для плоскопараллельной ячейки ХЖК, уравнения (2.39) и (2.40) могут быть записаны через напряжение на обкладках ячейки  $U$  и величину напряженности магнитного поля  $H$  [92]:

$$F_f = \frac{S_{\perp}}{8\pi} U^2 \left( \int_{l_1}^{l_2} \mathcal{E}(\mathbf{n}_z) \, dz \right)^{-1}, \quad \mathcal{E} = \frac{1}{\epsilon_{\perp} + \epsilon_a \mathbf{n}_z^2} \quad (2.41)$$

и

$$F_f = -\frac{S_{\perp}}{2} \chi_a H^2 \int_{l_1}^{l_2} \mathbf{n}_z^2 \, dz \quad (2.42)$$

где  $\chi_a = \chi_{\parallel} - \chi_{\perp}$ ;  $\chi_{\parallel}$ ,  $\chi_{\perp}$  – магнитные восприимчивости вдоль и перпендикулярно оси  $z$ , а  $\epsilon_a = \epsilon_{\parallel} - \epsilon_{\perp}$ ;  $\epsilon_{\parallel}$ ,  $\epsilon_{\perp}$  – диэлектрические восприимчивости вдоль и перпендикулярно оси  $z$ . Отметим, что вклад от напряженности магнитного поля пропорционален квадрату  $z$ -компоненты директора, поэтому он аналогичен вкладу одноосной анизотропии при описании твердотельных магнетиков. Вклад от внешнего электрического поля – нелокальный.

Последнее слагаемое в выражении (2.37) – потенциал Рапини-Папьюлера [93], который описывает взаимодействие жидкого кристалла с границами ячейки. Это взаимодействие имеет вид одноосной анизотропии типа легкая ось и легкая плоскость на границах:

$$F_s[\mathbf{n}] = \frac{S_{\perp}}{2} \sum_{\nu=\pm 1} \left[ W_{\phi} (1 - (\mathbf{n} \cdot \mathbf{e}_{\nu})^2) + (W_{\theta} - W_{\phi}) (\mathbf{n} \cdot \mathbf{z})^2 \right] \Big|_{z=\nu L/2}, \quad (2.43)$$

где  $W_{\theta}$ ,  $W_{\phi}$  – коэффициенты сцепления и  $L$  – толщина ХЖК ячейки.

Для построения энергетической поверхности [94] ячейка ХЖК разбивается на  $N$  слоёв одинаковой толщины  $\Delta z$ . В каждом слое директор считается постоянным, а все производные аппроксимируются конечными разностям, и, поэтому, свободная энергия задается функцией, зависящей от  $N$  векторов  $\{\mathbf{n}_i\}_{i=1}^N$ :

$$F = F(\mathbf{n}_1, \mathbf{n}_2, \dots, \mathbf{n}_N) \quad (2.44)$$

В ХЖК могут быть реализованы несколько метастабильных киральных состояний [92]. Одно из них – плоская спираль. Предполагая, что ось спирали направлена вдоль оси  $z$ , директор задается следующим выражением:

$$\mathbf{n}(\mathbf{r}) = \begin{pmatrix} \cos(\phi) \\ \sin(\phi) \\ 0 \end{pmatrix}, \quad \phi = \pm qz + \phi_0, \quad (2.45)$$

где  $q$  – волновое число и  $\phi_0$  фаза на нижней границе ячейки. Под воздействием электрического поля в системе может быть реализовано другое метастабильное состояние – искаженная спираль, которая отделена конечным энергетическим барьером от идеальной спирали. При некотором значении внешнего поля  $U_{th}$ , при котором энергетический барьер перехода плоской спирали в искаженную становится нулевым, происходит переход Фредерикса. Пример путей с минимальным перепадом энергии такого сценария в зависимости от напряжения на обкладках ХЖК ячейки представлен на рис. 2.8.

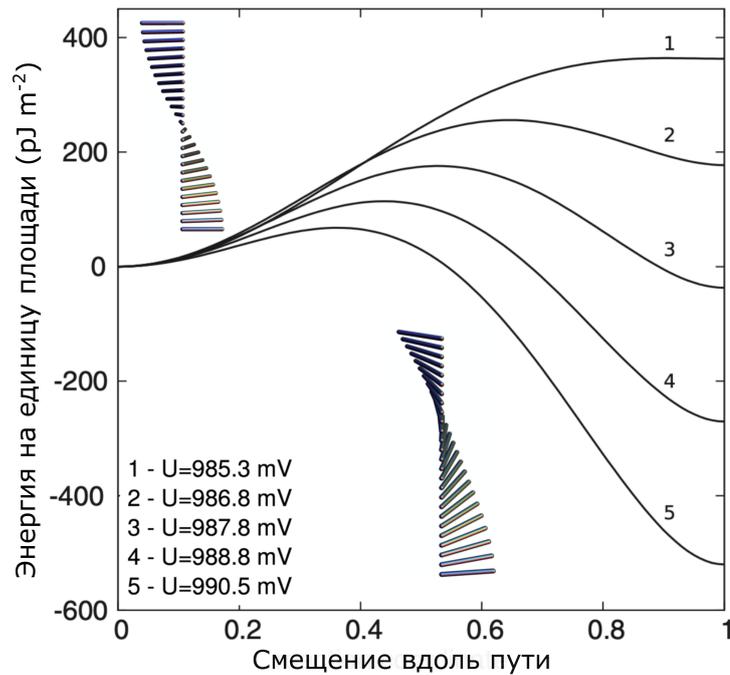


Рис. 2.8: Пути с минимальным перепадом энергии между начальным состоянием – плоской спиралью, и конечным состоянием – искаженной спиралью, при разных значениях напряжения на обкладках ячейки. При напряжении больше, чем 991 мВ происходит переход Фредерикса.

В ХЖК помимо кирального состояния также может существовать топологически тривиальное состояние – нематическая фаза, в которой распределение директора соответствует коллинеарному упорядочиванию (аналог ферромагнитного состояния). В ме-

тоде ГПУЛ начальное приближение пути перехода из одного устойчивого состояния в другое сходится к ближайшему ПМПЭ. Поэтому разные начальные приближения могут сходиться к разным механизмам перехода. Так было найдено, что переход между нематической и киральной фазами может осуществляться согласно двум разным сценариям. В первом сценарии происходит раскрутка спирали через одну из границ ХЖК ячейки, при котором направление директора остается практически параллельно границе при любых значениях поля, которые меньше  $U_{th}$ . При достаточно больших значениях электрического поля, выше некоторого критического поля  $U_c$ , но ещё меньше  $U_{th}$ , в системе реализуется второй сценарий перехода, в котором директор направлен практически перпендикулярно к одной из границ ХЖК ячейки, что соответствует локализованному состоянию [95]. Примеры путей с минимальным перепадом энергии, которые соответствуют двум механизмам перехода, показаны на рис 2.9.

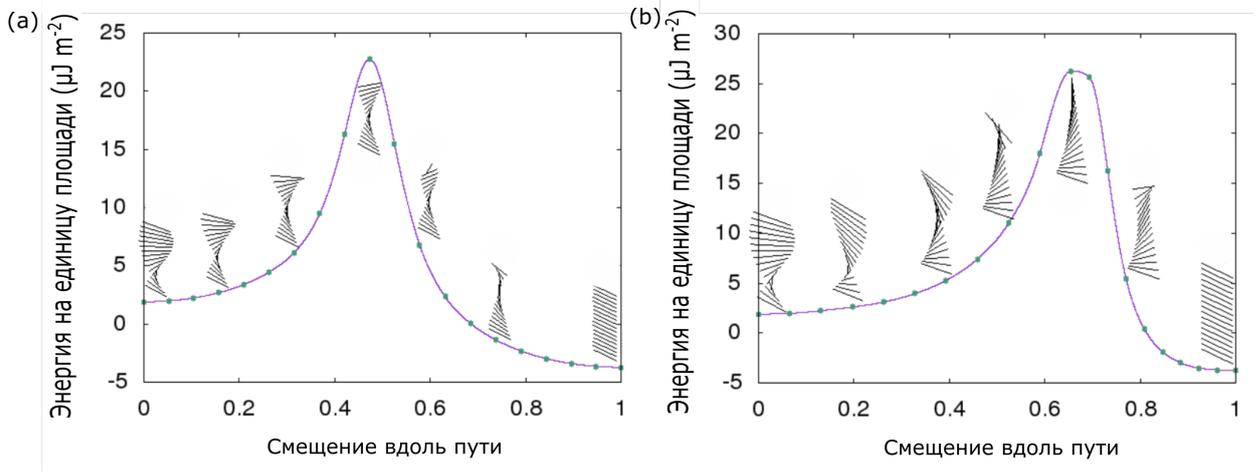


Рис. 2.9: Два механизма перехода между киральным и нематическим состояниями. Оба перехода осуществляются через верхнюю границу ячейки. (a) Переход при котором директор остается параллелен границе ячейки. (b) Переход при котором директор становится перпендикулярно границе ячейки. Переход на рисунке (b) имеет больший энергетический барьер, чем переход на рисунке (a).

Второй сценарий перехода осуществляется при определенном отношении величины напряжения на обкладках ХЖК ячейки и значения коэффициентов сцепления, как показано на рис. 2.10. Как видно, энергетический барьер второго сценария перехода всегда больше первого. Поэтому такой переход из кирального состояния в нематическое имеет меньшую вероятность. Также видно, что даже для значений напряжения выше того, при котором происходит переход Фредерикса, также возможна реализация двух сценариев перехода, хотя и в более узком интервале напряжений.

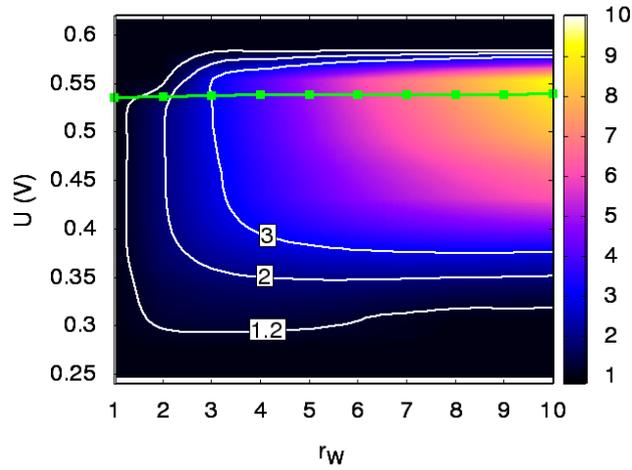


Рис. 2.10: Отношение энергетических барьеров  $E_u/E_l$  в зависимости от величины напряжения и коэффициентов сцепления на одной из границ ячейки.  $E_u$  – энергетический барьер перехода, при котором директор остается параллелен границе ячейки.  $E_l$  – энергетический барьер перехода, при котором появляется локализованное решение у границы ячейки. Зеленой кривой указано напряжение перехода Фредерикса.

Подведем итоги данной части. Была проведена аналогия между жидкокристаллическими и магнитными твердотельными системами. Показано, что выражение для свободной энергии при микромагнитном моделировании соответствует выражению для свободной энергии ЖК в одноконстантном приближении для модулей Франка. Показано, что развитые эффективные алгоритмы оптимизации энергии и поиска путей с минимальным перепадом энергии могут быть применены без каких либо изменений к исследованию жидкокристаллических систем, в которых реализуется несколько метастабильных состояний, т.к. энергетическая поверхность строится аналогичным образом. Были рассчитаны пути перехода в эффекте Фредерикса, оценены энергетические барьеры в зависимости от внешнего поля. Так же был проведен расчет устойчивости киральных и нематических состояний. При использовании разных начальных приближений были найдены разные пути с минимальными перепадом энергии и механизмы переходов из кирального состояния в нематическое, в зависимости от внешнего электрического поля и коэффициентов сцепления на границах ячейки ХЖК.

Сформулируем **выводы** ко второй главе. Предложен новый алгоритм оптимизации спиновых систем ортогональными матрицами. Алгоритм основан на геометрическом подходе, в котором учитывается кривизна энергетической поверхности и, как следствие, величина магнитного момента сохраняется на каждой итерации. В приближении

малых вращений пути оптимизации совпадают с путями, полученными методом решения диссипативного уравнения Ландау-Лифшица. Показано, что скорость сходимости может существенно увеличена за счет алгоритмов квазиньютоновского типа. Метод был применен к минимизации энергии и к поискам путей с минимальным перепадом энергии. Показано, что разработанные методы могут быть использованы и для анализа возможных сценариев переходов в других упорядоченных средах. Для жидкокристаллических структур исследование путей с минимальным перепадом энергии между локально устойчивыми состояниями на энергетической поверхности дало возможность определить различные механизмы переходов, в зависимости от характеристик системы и внешних воздействий.

## Глава 3

# Скирмионы в системах с коллективизированными электронами

Для магнетиков с определенной симметрией решетки могут существовать вклады в энергию, пропорциональные первой пространственной производной от намагниченности [25–27]). Нарушение симметрии пространственной инверсии на интерфейсе между магнитным образцом и подложкой и учет спин-орбитального взаимодействия, также введут к возникновению анизотропии и ВДМ. Последнее может приводить к формированию киральных магнитных структур с топологическим зарядом [36, 96]. Вместе с тем скирмионы, антискирмионы и другие двухмерные и трехмерные топологические системы могут стабилизироваться дипольным взаимодействием или за счет нескольких обменных взаимодействий в рамках модели Гейзенберга. В этом случае, однако, отсутствует киральная структура, которая наблюдалась экспериментально для ряда магнитных структур.

Одиночные скирмионны и скирмионные кристаллы были обнаружены экспериментально в гелимагнетиках  $\text{MnSi}$ ,  $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Si}$ ,  $\text{FeGe}$  [97–100], в которых переход в скирмионное состояние наблюдался из конической фазы под воздействием магнитного поля. Скирмионы размером 50 нм и больше, стабильные при комнатной температуре, были реализованы в многослойных структурах магнитный металл-тяжелый металл [101–105]. Такие системы представляют интерес для приложений в качестве носителей информации в системах магнитной памяти. Скирмионы размером 10–20 нм при комнатной температуре были получены в ферримагнитных материалах [105]. Устойчивые при комнатной температуре антискирмионы микронного масштаба были обнаружены в сплавах Гейслера [106]. Помимо реализации скирмионов в проводниках, топологически нетривиальные киральные состояния также наблюдались и в полупроводниках [107] и изо-

ляторах [108, 109].

С точки зрения возможности микроскопических расчетов на атомном масштабе большой интерес представляют скирмионы в ультратонких пленках переходных металлов на поверхности тяжелых металлов с большим спин-орбитальным взаимодействием. Такие структуры могут иметь размер порядка 10 нм, но существуют они лишь при очень низких температурах в несколько кельвин. Экспериментально эти системы можно наблюдать с атомным разрешением, используя спин-поляризованный сканирующий туннельный микроскоп (СП-СТМ) или атомный силовой микроскоп, работающий на измерении сил магнитного обменного взаимодействия (магнитно-обменный силовой микроскоп МОСМ [110]).

Так в работе [111] с помощью СП-СТМ изучали зависимость от магнитного поля размера и формы скирмионов в системе Pd/Fe/Ir(111) и, используя данные расчета намагниченности методом функционала плотности, определяли параметры микромагнитной модели, позволяющей описать скирмионное состояние. С помощью СП-СТМ, однако, сложно одновременно определить атомную структуру вместе с магнитной, и, часто положение атомов отождествляется с положением магнитных моментов [112]. Более точное разрешение всех степеней свободы можно получить с помощью МОСМ. Было показано, что магнитная структура скирмионного кристалла в Fe/Ir(111) несоизмерима с кристаллической решеткой [112]. Кроме того, МОСМ технология может быть использована для изучения изоляторов, поскольку не требуется наличия тока между иглой микроскопа и образцом [110]. Экспериментальный метод позволяет управлять магнитными состояниями и проводить прямые измерения обменного взаимодействия между атомами [110, 113–118]. Такая экспериментальная методика была разработана сравнительно недавно и теоретическое исследование взаимодействия магнитных атомов на игле микроскопа и поверхности при конечных температурах представляет особый интерес. Некоторые результаты, полученные в этой области, будут представлены в главе 4.

Типичный размер скирмионов, наблюдаемых при комнатной температуре, изменяется от десятков нм до нескольких микронов. Моделирование таких систем первопринципными методами не представляется возможным. Однако, при очень низких температурах порядка нескольких кельвинов, в моноатомных магнитных пленках на поверхности тяжелых металлов размер скирмионов может составлять 1-2 нм. Хотя и для таких систем моделирование динамики первопринципными методами не удастся, но возможно рассчитать параметры обменного взаимодействия, величину вектора Дзялошинского-Мории, и величину анизотропии. После того, как расчет этих констант произведен,

можно изучать устойчивость скирмионов относительно тепловых флуктуаций и их динамики, используя феноменологические модели, например, обобщенный гамильтониан Гейзенберга.

В настоящее время считается, что даже если скирмионы и стабилизируются за счет взаимодействия ДМ, существуют и другие вклады негейзенберговского типа в полную энергию системы, которые также могут способствовать устойчивости скирмионных состояний. Как уже и обсуждалось в главе 1, практические расчеты могут включать обменные взаимодействия вплоть до 9 координационных сфер рассматриваемого магнитного момента [90], а также расчет нескольких констант взаимодействия старших спиновых порядков. Таким образом, если определять параметры модели на основе расчетов методом функционала плотности, приходится рассчитывать порядка восьми и более констант обобщенной модели Гейзенберга. В последнее время появились работы, в которых дополнительно включаются четырехспиновые киральные взаимодействия [119–121], что дополнительно увеличивает пространство параметров и часто затрудняет понимание механизмов ответственных за стабилизацию топологических структур. Более того, возникает общий вопрос возможности адекватного описания магнитных проводящих систем на основе феноменологической модели, предполагающей существование локализованных магнитных моментов [122].

Отметим, что за магнетизм большинства материалов, которые обсуждались выше, и в которых наблюдаются неколлинеарные структуры, отвечают коллективизированные электроны. Для их описания существуют модельные гамильтонианы, которые учитывают возможность переходов электронов между узлами кристаллической решетки, кулоновское отталкивание электронов на узле и взаимодействие электронов проводимости с магнитными моментами, формируемыми квази-локализованными d-состояниями. В качестве примера, наряду с моделью НККА, обсуждаемой в первой главе, можно привести гамильтониан, описывающий взаимодействие делокализованных электронов с магнитными моментами, помещенными на некоторые атомы:

$$H^K = - \sum_{ij,\sigma} t_{ij} c_{i\sigma}^\dagger c_{j\sigma}^\dagger + J \sum_{i,\sigma,\sigma'} \left( c_{i\sigma}^\dagger \sigma_{\sigma\sigma'} c_{j\sigma'}^\dagger, \mathbf{S}_i \right) \quad (3.1)$$

Первое слагаемое описывает квазисвободные электроны проводимости, где  $t_{ij}$  – параметры перескока между разными атомами и  $c_{i\sigma}^\dagger, c_{i\sigma}$  – операторы уничтожения и рождения электронов на узле  $i$ . Второе слагаемое задает взаимодействие этих электронов с локализованными магнитными моментами. В рамках среднего поля вектор  $S_i$  – классический вектор с фиксированной длиной. Отметим, что в модели нет прямого взаи-

модействия между локализованными магнитными моментами, но есть косвенное, через коллективизированные электроны.

Другая модель, которая часто используется для описание систем в которых именно коллективизированные электроны отвечают за формирование магнитного момента, – модель Хаббарда. Соответствующий гамильтониан в однозонном случае имеет вид:

$$H^H = - \sum_{ij,\sigma} t_{ij} c_{i\sigma}^\dagger c_{j\sigma}^\dagger + U \sum n_{i\uparrow} n_{i\downarrow} \quad (3.2)$$

Здесь, как и в НККАА, параметр  $U$  отвечает кулоновскому отталкиванию электронов на узле.

В рамках моделей (3.1) и (3.2) было показано существование устойчивых состояний с отличным от нуля топологическим зарядом [123–126]: 3- $q$  спиральные структуры и скирмионные кристаллы с топологическим зарядом 1 и 2. Отметим, что гамильтонианы (3.1) и (3.2) не содержат членов, связанных со спин-орбитальным взаимодействием. Существование топологически нетривиальных структур здесь аналогично их формированию в моделях с локализованными моментами при учете магнитных фрустраций и четырехспиновых взаимодействий. [127]. Действительно, было установлено, что в рамках обобщенной модели Гейзенберга скирмионные состояния могут быть стабилизированы и в отсутствие ВДМ [128–132]. Так было показано, что за счет фрустраций могут быть сформированы (анти)скирмионные кристаллы [129] и другие топологические состояния, которые описываются, линейной комбинацией нескольких спиновых спиралей [130] (multiple- $q$  states). Учет четырех-спинового взаимодействия также ведет к формированию одиночных скирмионов [133]. Однако, самосогласованных расчетов одиночных скирмионных состояний в рамках модельных гамильтонианов для коллективизированных электронов в литературе пока не было.

Хотя метод самосогласованных модельных гамильтонианов требует существенно меньше вычислительных ресурсов, чем метод функционала плотности, для систем, состоящих из  $10^3 - 10^5$  атомов, самосогласованные расчеты представляют сложную задачу, требующую развития быстрых алгоритмов. Разработанные в 1 и 2 главах оптимизационные методы позволяют рассчитывать пути аннигиляции скирмионов для достаточно больших систем. Это, в свою очередь, дает возможность анализировать применимость обобщенного гамильтониана Гейзенберга для описания систем с коллективизированными электронами и делать оценки входящих в нее феноменологических параметров.

Как уже и обсуждалось в главе 1, существует два подхода к расчетам параметров обменного взаимодействия в приближении двухспинного взаимодействия за пределами ближайших соседей. Первый метод основан на совпадении поведения энергии при бес-

конечно малых вращениях магнитных моментов вблизи минимума энергии [33]. Вторая производная энергии по углам дает параметры обменного взаимодействия и для неколлинеарной модели Александра-Андерсона имеет вид:

$$J_{ij} = \frac{5}{\pi} \int_{-\infty}^0 d\epsilon \text{Im Tr} \left[ G \frac{\partial H^{NCAA}}{\partial \theta_i} G \frac{\partial H^{NCAA}}{\partial \theta_j} \right], \quad (3.3)$$

где предполагается, что расчет вводится в ферромагнитном состоянии.  $G$  – функция Грина НКАА модели с гамильтонианом  $H^{NCAA}$ ,  $\theta_i$  – полярный угол для  $i$ -момента. Метод по-существу, требует совпадения гессианов обобщенной модели Гейзенберга и НКАА вблизи минимума энергии. Поэтому такое приближение описывает корректно состояния с малым волновым вектором (большие длины волн).

Другой подход основан на требовании совпадения спектра спиновых спиралей одной и другой модели [29, 30] – метод подгонки спектра спиновых спиралей в приближении двухспиновых взаимодействий (ПССС). Спиновые спирали задаются уравнением:

$$\mathbf{e}_i = \begin{pmatrix} \cos(\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_i) \\ \sin(\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_i) \\ 0 \end{pmatrix} \quad (3.4)$$

где  $\mathbf{e}_i$  – направление магнитного момента,  $\mathbf{q}$  – вектор обратной решетки. Далее выполняется расчет энергии вдоль прямых, соединяющих точки высокой симметрии в зоне Бриллюэна. Вдоль таких путей строится вектор конечной длины

$$Y_0 = (E(q_1), E(q_2), \dots, E(q_M))^T,$$

рассчитанный, например, методелью НКАА. После этого ищется минимум по параметрам обобщенной модели Гейзенберга следующей функции:

$$S(\{J_{ij}\}) = \|Y_0 - Y^{Hess}\|, \quad (3.5)$$

где  $Y^{Hess}$  – вектор, рассчитанный в рамках обобщенной модели Гейзенберга с параметрами  $\{J_{ij}\}$  в тех же точках зоны Бриллюэна, что и вектор  $Y_0$ . Такой метод позволяет довольно точно описать спектр спиновых спиралей и найти оптимальные значения  $\{J_{ij}\}$ .

### 3.1 Скирмионные состояния в ультратонких пленках в неколлинеарной модели Александра-Андерсона

Рассмотрим гексагональную двумерную решетку, которая соответствует кристаллическим поверхностям hcp(0001) или fcc(111). В НКАА модели были выбраны следующие

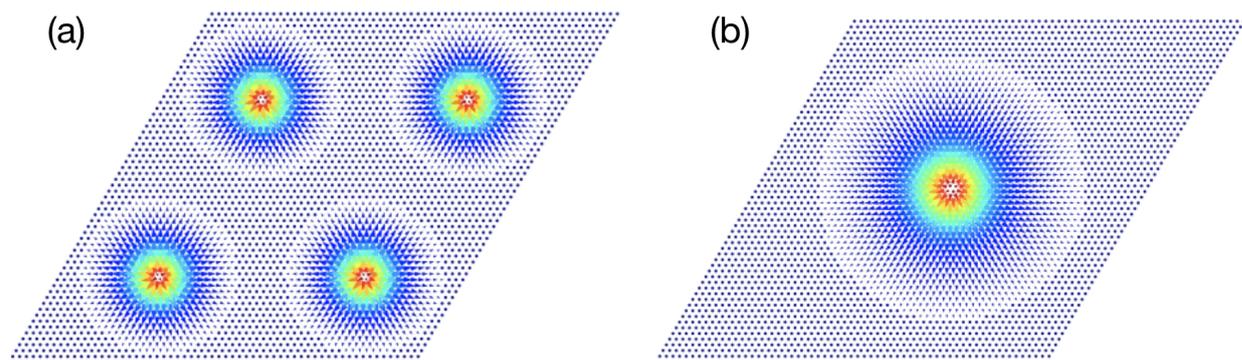


Рис. 3.1: Скирмионные решения полученные в рамках модели НККА с параметрами  $E_0 = -12\Gamma$ ,  $U = 13\Gamma$ ,  $V = 0.5\Gamma$ . (a) Скирмионное решение рассчитанное на гексагональной ячейке, состоящей из 900 атомов. Ячейка повторена четыре раза для сравнения размера скирмиона с тем, который представлен на Рис. 3.1(b). Энергия скирмионного состояния относительно ферромагнитного равна 109.73 мГ. (b) Скирмионное решение, полученное на решетке состоящей из 3600 атомов. Энергия относительно ферромагнитного состояния равна 105.24 мГ.

параметры:  $E_0 = -12\Gamma$ ,  $U = 13\Gamma$ ,  $V = 0.5\Gamma$ . В этом случае существует скирмионное решение, представленное на Рис. 3.1. Из-за отсутствия киральных взаимодействий в модели НККА, энергии скирмионов Блоха и Нееля совпадают. Скирмион и антискирмион также обладают одинаковой энергией и их энергетические поверхности совпадают.

В НККА модели магнитные моменты находятся в результате процедуры самосогласования, и их величина на разных атомах может оказаться различной и зависеть от направлений моментов. Действительно, расчеты показали, что в центре скирмиона величины магнитных моментов увеличиваются. Однако, для выбранных параметров это изменение составляет всего величину порядка  $10^{-3}\mu_B$ , как показано на Рис. 3.2. Аналогичное изменение получается и для среднего числа d-электронов: оно незначительно уменьшается в центра скирмиона по сравнению со значением при ферромагнитным упорядочении. Таким образом, система может быть описана в рамках простого приближения: величина магнитного момента не зависит от спиновой конфигурации системы, что соответствует приближению постулируемому в обобщенной модели Гейзенберга.

Плотность состояний квазилокализованных d-электронов с разными проекциями спинов показана на Рис. 3.3. В скирмионном решении, плотность состояний с проекцией спина "вверх" увеличилось в окрестности уровня ферми, а со спином "вниз" уменьшилось, по сравнению с ферромагнитным решением. Это связано с тем, что спиновые состояния на узлах в центре скирмиона соответствуют упорядочению моментов, направленных ан-

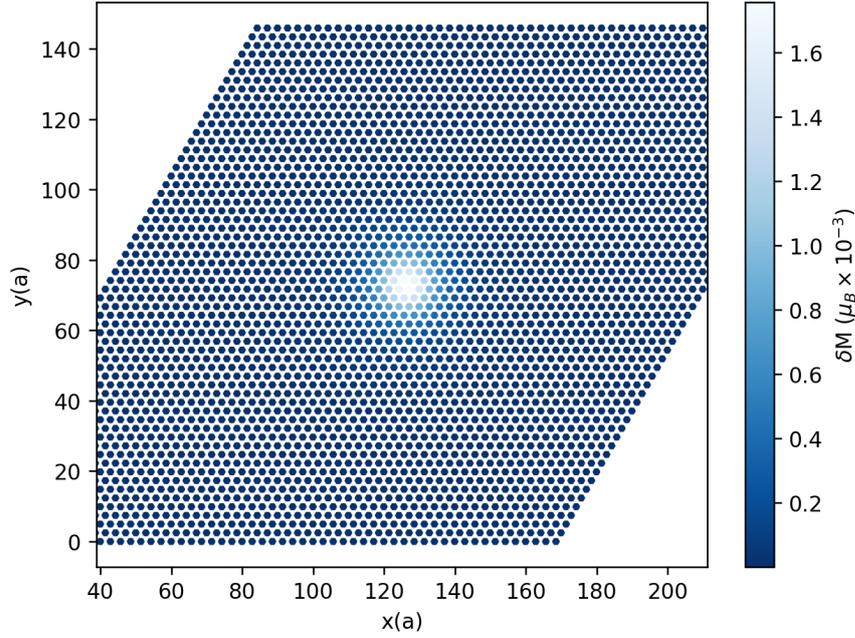


Рис. 3.2: Изменение величины магнитного момента относительно ферромагнитного состояния. Светло голубой цвет соответствует росту магнитного момента. Однако, его величина изменяется довольно слабо. Кружочками отмечены положения атомов, по осям  $x$  и  $y$  – координаты в единицах постоянной решётки.

типараллельно к моментам ферромагнитного окружения. В этом случае виртуальные состояния центральных атомов взаимодействует с заполненными состояниями других атомов, что приводит к кинетическому обмену [37].

Предположим, что энергетическая поверхность модели НККА может быть аппроксимирована билинейными взаимодействиями за пределами ближайших соседей:

$$E^{NCAA} \approx \sum_{j=1}^X J_{0j} \sum_{i>k}^{(j)} (\mathbf{e}_i, \mathbf{e}_i), \quad (3.6)$$

где  $X$  – число координационных сфер включенных в расчет.  $J_{0j}$  – константа обменного взаимодействия между спинами 0-ой и  $j$ -ой координационных сфер.  $\sum_{i>k}^{(j)}$  – сумма между  $j$ -тыми соседями центрального атома. Теперь необходимо рассчитать параметры  $X$  и  $J_{0j}$ ,  $j = 1..X$ .

Результат расчета констант обменного взаимодействия методом ИВ представлен в таблице 3.1. Число координационных сфер в расчете оказалось равно пяти. Константа обменного взаимодействия первых соседей положительна и дает наибольший вклад в полную энергию. Вторые и третьи соседи имеют константу взаимодействия другого знака, соответствующую антиферромагнитному упорядочению. Для четвертых соседей она положительна, а для пятых – отрицательна. Модуль рассчитанных констант обменного

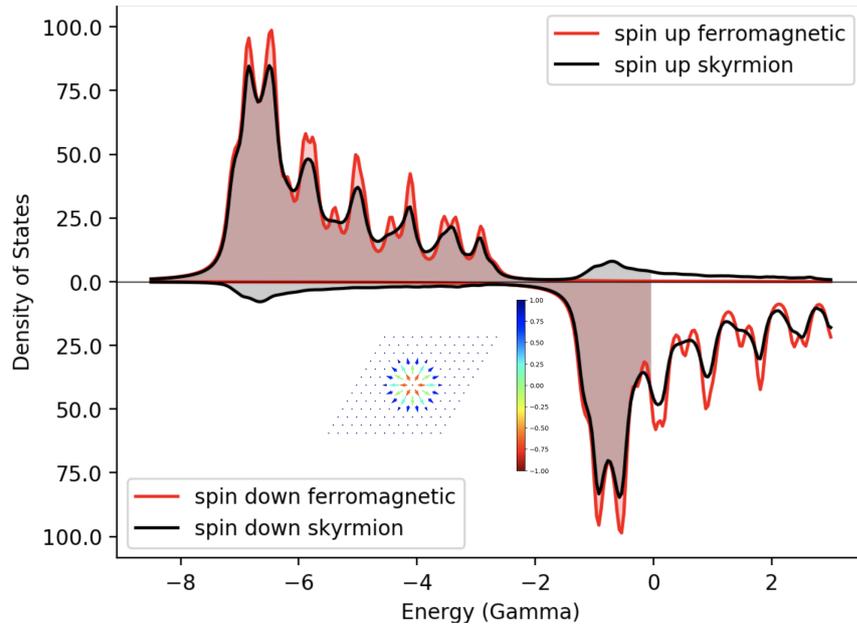


Рис. 3.3: Спиновая плотность состояний квазилокализованных d-электронов для ферромагнитного и скирмионного состояний, рассчитанных на решетке, состоящей из 13x13 атомов. Такая система показана на вставке к рисунку. Пики плотности состояний соответствуют собственным значениям модели НККАА.

взаимодействия монотонно убывает и практически равен нулю для соседей далее 5-го порядка. Отметим, что существующие вклады от 4-х спинового и других взаимодействий теперь эффективно включены в билинейные взаимодействия. Профиль скирмиона в приближении с найденными константами обменных взаимодействий достаточно точно совпадает с профилем скирмиона полученного в модели НККАА для ячейки, состоящий из 30x30 атомов, как видно на Рис. 3.5(a). При этом энергия скирмионного состояния относительно энергии ферромагнитного состояния имеет завышенную оценку на 10 мГ (порядка 10 meV) по сравнению с энергией скирмиона рассчитанной в модели НККАА. Длина пути с минимальным перепадом энергии, соединяющего скирмионное и ферромагнитное состояния, имеет примерно такую же величину, как и длина пути в модели НККАА (см. Рис. 3.5(b)). Однако, величина энергетического барьера оказалось выше более, чем полтора раза (35 мГ вместо 21 мГ).

Таблица 3.1: Параметры обменного взаимодействия, рассчитанные по формуле ИВ (3.3).

j	1	2	3	4	5	6
$J_{0j}$ (мГ)	27.68	-7.01	-1.81	0.31	0.11	0.00

Теперь рассмотрим метод ПССС. Энергия спиновых спиралей была рассчитана вдоль путей ГМ и ГКМ. Зависимость энергии от модуля волнового вектора представлена на рисунке 3.4. Закон дисперсии, полученный в модели НККАА, описывается довольно точно в приближении нескольких обменов, как показано в таблице 3.2. Наименьшая ошибка рассчитанного спектра с подгоночными параметрами получается при учете 7 координационных сфер (0.06 мГ на атом.). При этом величины констант обменного взаимодействия сильно отличаются от полученных первым методом, как по величине, так и по знаку: обмен между первыми соседями, почти в 3 раза меньше, а знак обмена между третьими соседями, рассчитанный двумя различными методами – разный. Как видно из Рис. 3.5(а), профиль полученного скирмиона уже, чем тот который был получен в модели НККАА. Тем не менее, его энергия относительно ферромагнитного состояния дает хорошее согласие с моделью НККАА: отличие только в 3 мГ. Однако, длина пути аннигиляции скирмиона в ферромагнитное состояние укорочена, и энергетический барьер оказывается в 20 раз меньше, чем в НККАА.

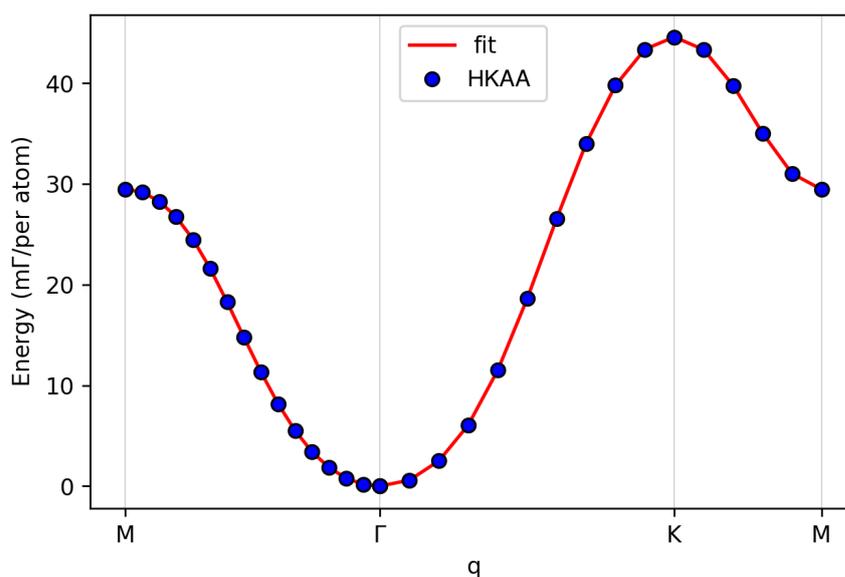


Рис. 3.4: Дисперсия энергии плоских спиновых спиралей для гексагональной двумерной решетки. Синими кружками отмечены результаты полученные в рамках модели НККАА. Красной линией показан расчет спектра в рамках модели Гейзенберга с подгоночными параметрами констант обменного взаимодействия в приближении нескольких координационных сфер. Параметры указаны в таблице 3.2.

Таблица 3.2: Параметры обменного взаимодействия полученные с помощью подгонки дисперсии плоских спиралей, полученной из модели НККА.  $X$  – число координационных сфер. Единицы измерения  $J_{ij}$  мГ. Ошибка измеряется в мГ на атом. Приближение 7 координационных сфер дает наименьшую ошибку.

$X$	$J_{01}$	$J_{02}$	$J_{03}$	$J_{04}$	$J_{05}$	$J_{06}$	$J_{07}$	$J_{08}$	$J_{09}$	Ошибка
1	8.97	-	-	-	-	-	-	-	-	6.646
2	9.69	-1.94	-	-	-	-	-	-	-	2.087
3	9.51	-1.95	0.61	-	-	-	-	-	-	1.157
4	9.66	-1.84	0.7	-0.22	-	-	-	-	-	0.269
5	9.66	-1.84	0.7	-0.22	-0.01	-	-	-	-	0.26
6	9.68	-1.86	0.68	-0.23	-0.01	0.06	-	-	-	0.153
7	9.68	-1.86	0.67	-0.24	-0.01	0.06	0.02	-	-	0.06
8	9.68	-1.87	0.68	-0.24	-0.01	0.06	0.02	-0.01	-	0.035
9	9.68	-1.87	0.68	-0.24	-0.01	0.06	0.02	-0.01	-0.01	0.015

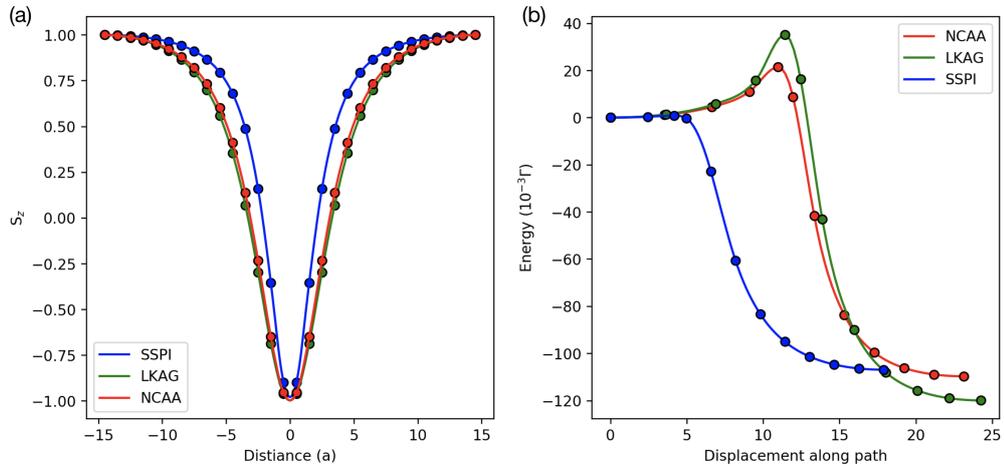


Рис. 3.5: (а) Профили скирмионов полученные разными моделями. Профиль скирмиона полученного методом ИВ совпадает с профилем НККА намного лучше, чем профиль, полученный методом ПССС. Модели ПССС и ИВ учитывают билинейные взаимодействия в приближении нескольких координационных сфер. (б) Пути с минимальным перепадом энергии рассчитанные в рамках разных моделей. Энергетический барьеры аннигиляции скирмионов равны 21.37, 0.81, 35.06 мГ для моделей НККА, ПССС, ИВ соответственно. Энергия скирмиона относительно ферромагнитного состояния в моделях НККА, ПССС, И равны 109.73, 106.93, 119.95 мГ соответственно.

Таким образом, магнитные фрустрации могут стабилизировать скирмионное состояние, и учет взаимодействия спинов за пределами нескольких ближайших может дать неплохую оценку профиля скирмиона и относительную величину его энергии. Однако, такой подход не может быть использован для оценки времен жизни скирмионных состояний из-за того, что модель и методы расчет констант обменных взаимодействий не дают адекватное описание окрестности седловой точки и величины энергетического барьера.

На следующем шаге моделирования систем с коллективизированными электронами, интерес представляет учет спин-орбитального взаимодействия и анализ того, насколько аккуратны оценки четырехспиновых киральных взаимодействий, которые были предложены совсем недавно [119–121]. Интересно отметить, что модель НККАА имеющая всего 4-х параметра способна описать неколлинеарные структуры для которых необходима подгонка намного большего числа параметров обобщенной модели Гейзенберга. Поэтому развитие численных методов расчета в рамках модельных гамильтонианов, сложность которых растет линейно с размером системы, может открыть новый путь к изучению топологически нетривиальных структур даже для систем большого размера.

Сформулируем **выводы** по третьей главе. Показано существование скирмионного состояния в ультратонких пленках с коллективизированными электронами в рамках модели НККАА. Рассчитаны параметры обменного взаимодействия модели Гейзенберга из микроскопических расчетов. Показано, что алгоритмы расчетов обменных интегралов дают хорошее описание энергетической поверхности модели НККАА вблизи энергетического минимума. Однако, такой подход не может быть использован для описания процессов аннигиляции скирмионов, что указывает на существенные ограничения при использовании модели Гейзенберговского типа.

## Глава 4

# Термоиндуцированные магнитные переходы в экспериментах с магнитно-обменным силовым микроскопом

Атомно-силовые микроскопы с магнитным зондом используются для изучения атомной структуры магнитных состояний на поверхности твердого тела и монослойных магнитных пленок. Сам процесс зондирования работает либо благодаря наличию далекодействующих магнитостатических полей (Magnetic Stray Fields) либо за счет близкодействующих магнитных сил обменного взаимодействия между иглой микроскопа (зонда) и сканируемым образцом – магнитно-обменная силовая микроскопия (Magnetic Exchange Force Microscopy, MExFM, далее МОСМ) [110, 113–115]. Магнитные силы, обусловленные обменным взаимодействием, действуют на малых расстояниях (порядка нескольких ангстрем), в то время как магнитостатические силы работают на гораздо больших масштабах. Техника МОСМ оказывается более чувствительной для определения магнитных и атомных степеней свободы, чем стандартные методы сканирующей туннельной микроскопии. Так было показано, что магнитная структура скирмионного кристалла в Fe/Ir(111) несоизмерима с положением атомов [112]. Помимо этого, с помощью МОСМ можно управлять магнитными состояниями образца за счет контроля обменного взаимодействия между магнитными атомами [116–118, 134, 135].

Шмидт и др. провели МОСМ эксперимент на антиферромагнитом монослое Fe на подложке W(001) [115, 136]. В этом эксперименте [136], иголка, покрытая хромом, изначально находится в контакте с исследуемой поверхностью из-за чего небольшие кла-

стеры железа попадают на кончик иглы. Далее, магнитный момент атома, находящегося непосредственно под иглой, изменяет свое направление от антипараллельного к параллельному состоянию по отношению к магнитному моменту кластера железа, находящегося на иглке, во время сканирования поверхности. Неожиданные резкие изменения МОСМ сигнала с разными временными интервалами были обнаружены во время сканирования, что означало переориентацию намагниченности кластера железа на иглке в другое устойчивое состояние. Из-за того, что временной масштаб эксперимента ограничен, наблюдались переходы только при определенных условиях и для некоторых игловок. Такие переходы на временном масштабе эксперимента происходят из менее устойчивого состояния в более устойчивое, однако в данном эксперименте нельзя определить какое именно из состояний является менее устойчивым: антипараллельное упорядочивание магнитных моментов атомов иглки по отношению к атому поверхности (А состояние) или параллельное (Р состояние). Соответствующий эксперимент схематично изображен на Рис. 4.1. При температуре 8.1 К были экспериментально определены два разных значения времен жизни магнитных состояний,  $17 \pm 3$  с и  $27 \pm 5$  с, что свидетельствует об асимметрии энергетических состояний кластера на иглке. Оценка числа атомов в кластере была принята между 10 и 20 атомов [136]. Однако, эта оценка основана на предположенном значении предэкспоненциального фактора в законе Аррениуса и величине анизотропии, которые не могли быть точно найдены из экспериментальных данных.

Абсолютное значение расстояния между иглой и поверхностью не может быть измерено в эксперименте. Моделирование взаимодействия игловок Fe и Fe/Cr с антиферромагнитным слоем Fe на подложке W(001) было выполнено методом функционала плотности, с обобщенным градиентным приближением для обменно-корреляционного функционала [137, 138]. Из рассчитанной разности энергий между двумя ориентациями магнитных моментов иглки, как функции расстояния, можно оценить абсолютное значение расстояния между иглой и поверхностью в эксперименте. Однако, для расчетов времен жизни магнитных состояний необходимы оценки энергетического барьера и предэкспоненциального фактора в законе Аррениуса. Такой расчет не удалось провести в рамках метода функционала плотности из-за его вычислительной сложности [136]. Альтернативным подходом для описания коллективизированного магнетизма являются самосогласованные расчеты в рамках метода модельных гамильтонианов, в частности модель НККА, которая обсуждалась в главе 1. В рамках этой модели возможно произвести моделирование термоиндуцированных переходов и определить характеристики закона Аррениуса, как функции расстояния между иглой и поверхностью и числа

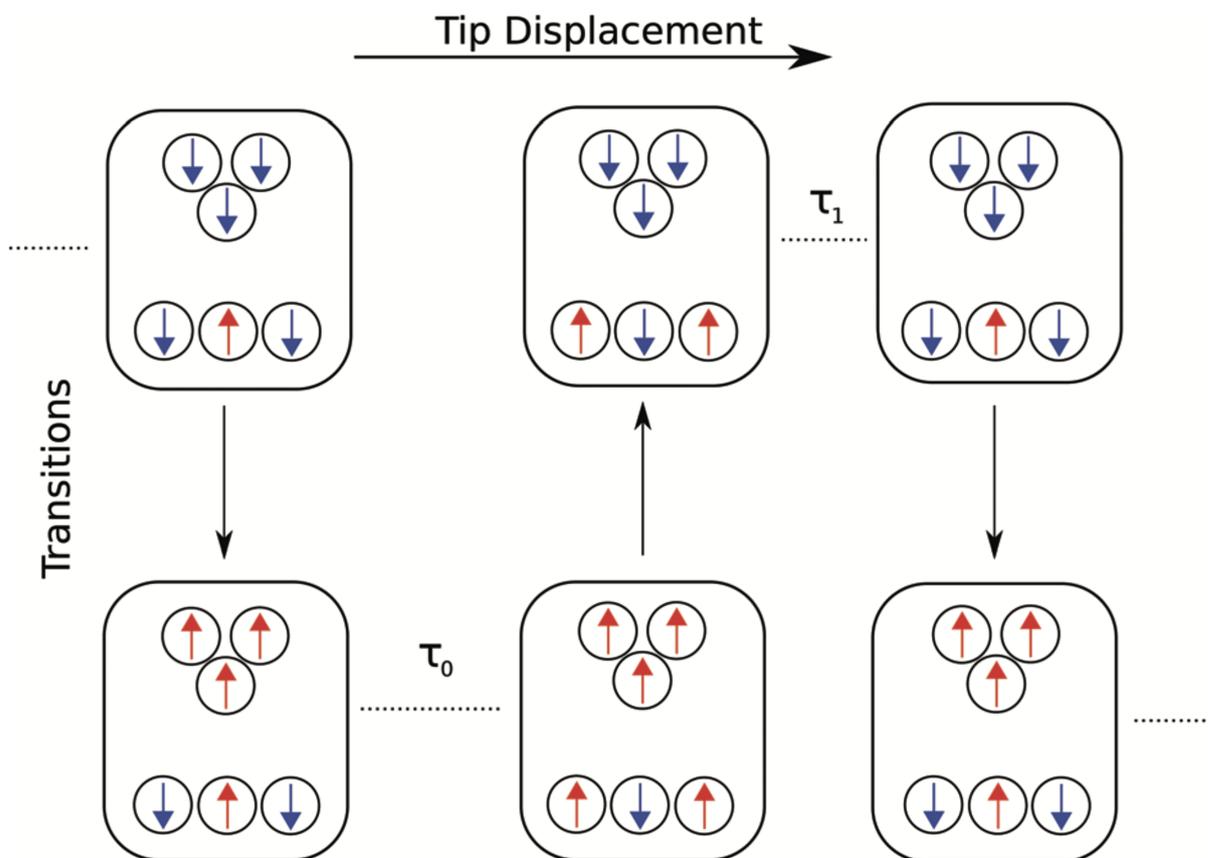


Рис. 4.1: Иллюстрация МОСМ эксперимента, в котором магнитные моменты кластера на иголке микроскопа, изменяют свою ориентацию по отношению к магнитному моменту атома, находящегося непосредственно под иголкой, если исходное состояние является метастабильным. Более устойчивым состоянием здесь показано параллельное упорядочение магнитных моментов кластера и атома поверхности (Р состояние), согласно результатам полученным в рамках модели НККАА. Из-за локального магнитного поля нарушена симметрия между двумя направлениями намагниченности кластера и, поэтому, наблюдается два разных времени жизни:  $\tau_0$  и  $\tau_1$ .

атомов в магнитном кластере [139, 140].

#### 4.1 Расчет времен жизни магнитных кластеров

Расчет был выполнен для магнитного кластера, который представляет кончик иголки в форме пирамиды с квадратным основанием, взаимодействующего с монослоем Fe на подложке W(001). Пример такой системы представлен на Рис. 4.2. Число атомов иголки варьировалось от 5 до 90. Монослой железа состоял из 50 атомов с периодическими граничными условиями в плоскости слоя. Гамильтониан системы включает четыре слагаемых, которые описывают кластер, антиферромагнитный монослой, взаимодействие

между кластером и монослоем и взаимодействие с внешним магнитным полем:

$$H = H_t + H_s + H_{int} + H_z \quad (4.1)$$

Гамильтонианы для кластера и монослоя имеют вид:

$$H_t = H_t^{NCAA} - K_t \sum_{i_t} (\mathbf{e}_{i_t}, \mathbf{k}_z)^2 \quad (4.2)$$

$$H_s = H_s^{NCAA} - K_s \sum_{i_s} (\mathbf{e}_{i_s}, \mathbf{k}_z)^2 \quad (4.3)$$

где индексы  $t$  и  $s$  обозначают кластер и поверхность.  $K$  – параметр анизотропии типа "легкая ось", индекс  $i$  обозначает номер атома, и  $\mathbf{k}_z$  – направление анизотропии легкой оси. Взаимодействие между кластером и иголкой моделируется через параметр перескока между атомом находящимся на острие кластера и атомом поверхности, находящимся непосредственно под иголкой:

$$H^{int} = \sum_{\alpha} V_{ts} \left( \hat{d}_{t\alpha}^{\dagger} \hat{d}_{s\alpha} + \hat{d}_{s\alpha} \hat{d}_{t\alpha} \right), \quad (4.4)$$

где  $V_{ts}$  – параметр перескока между  $d$ -электронами атомов иголки и монослоя,  $\hat{d}_{t\alpha}^{\dagger}$ ,  $\hat{d}_{t\alpha}$ ,  $\hat{d}_{s\alpha}^{\dagger}$ ,  $\hat{d}_{s\alpha}$  – операторы рождения и уничтожения  $d$ -электронов с проекцией спина  $\alpha$ . Взаимодействие со внешним магнитным полем направленным перпендикулярно монослою имеет вид:

$$H_z = -B^z \sum_{i,\alpha,\beta} \hat{d}_{i\alpha}^{\dagger} \sigma_{\alpha\beta}^z \hat{d}_{i\beta}. \quad (4.5)$$

$B^z$  – величина магнитного поля. Суммирование идет по всем атомам в системе.

Для параметров модели НККАА были выбраны следующие значения:  $E_0 = -11.8 \text{ Г}$ ,  $U = 13 \text{ Г}$ , где  $\Gamma$  – ширина  $d$ -уровня. Эти значения отличаются только на 2.5% от тех параметров, которые были использованы для моделирования  $\alpha$ -Fe в работах [42, 44]. Монослой Fe нанесен на поверхность W(001), и каждый атом железа имеет четыре ближайших атома вольфрама. Ближайшие атомы железа являются вторыми соседями и поэтому перескок электронов между ними в первом приближении происходит через зону проводимости подложки. В расчет включены первые и вторые ближайшие магнитные атомы, как показано на Рис. 4.2. Из-за того, что существует в два раза больше путей к первым магнитным соседям, чем ко вторым, эффективный параметр перескока между вторыми магнитными соседями в  $\sqrt{2}$  раз меньше, чем для первых, т.е.  $V^{(2)} = V^{(1)}/\sqrt{2}$ . Параметр  $V^{(1)} = 0.45 \text{ Г}$ , т.к. для этого значения модель НККАА воспроизводит антиферромагнитное упорядочивание атомов железа с числом  $d$ -электронов 6.62 и магнитным моментом  $2.81 \mu_B/\text{атом}$ , что дает близкое значение к результату, полученным методом

функционала плотности,  $2.67 \mu_B/\text{атом}$  [141]. Для кластера были использованы такие же параметры  $E_0$  и  $U$ . Параметр перескока  $V_{\text{tip}} = 0.6 \text{ Г}$  воспроизводит ферромагнитное состояние со средним числом  $d$ -электронов 6.62 и величиной магнитного момента  $2.91 \mu_B/\text{атом}$  для иголки состоящей из 14 атомов. Похожий результат был получен методом функционала плотности:  $2.85 \mu_B/\text{атом}$  [138]. Характерные значения параметра гибридизации  $d$ -уровня лежат в диапазоне между 0.1 и 1 eV [22,44,142]. В данной задаче значение этого параметра было выбрано 0.5 eV,  $\Gamma = 0.5 \text{ eV}$ . Значения анизотропий были взяты в соответствии с работами [141] и [137],  $K_s = 6.24 \times 10^{-4} \text{ Г}$ ,  $K_t = 2.6 \times 10^{-4} \text{ Г}$ .

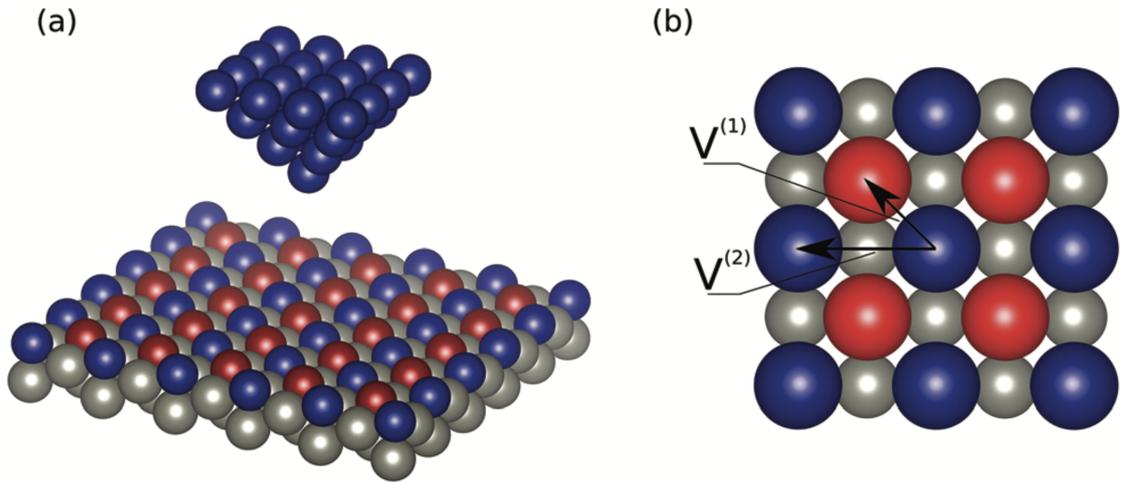


Рис. 4.2: (a) Моделируемая система. Ферромагнитный кластер состоит из 30 атомов железа. Атомы антиферромагнитного монослоя железа обозначены красным и синим цветом, в зависимости от направления магнитного момента относительно намагниченности иголки. Атомы вольфрама обозначены серым цветом.

(b) В рамках НККА модели атомы железа взаимодействуют через зону проводимости.

Стрелки указывает первых и вторых магнитных соседей для атомов железа. Из-за того что, путей Fe-W-Fe для первых соседей, в два раза больше, чем для вторых,

$$\text{параметр перескока для них тоже больше: } V^{(2)} = V^{(1)}/\sqrt{2}.$$

Обменная энергия может быть рассчитана в модели НККА, как разница между энергиями Р и А состояний. Ее значение является функцией параметра перескока  $V_{ts}$ , который, в свою очередь, зависит от расстояния между иголкой и поверхностью. Зависимость  $V_{ts}$  от расстояния была выбрана таким образом, чтобы модель НККА воспроизводила результаты эксперимента, как показано на Рис. 4.3 и 4.4. Отметим, однако, что абсолютное значение расстояния в эксперименте не может быть измерено, и поэтому использовались результаты расчета методом функционала плотности [114], чтобы оценить примерное значение расстояния, которое потом принималось как "эксперимен-

тальное" значение.

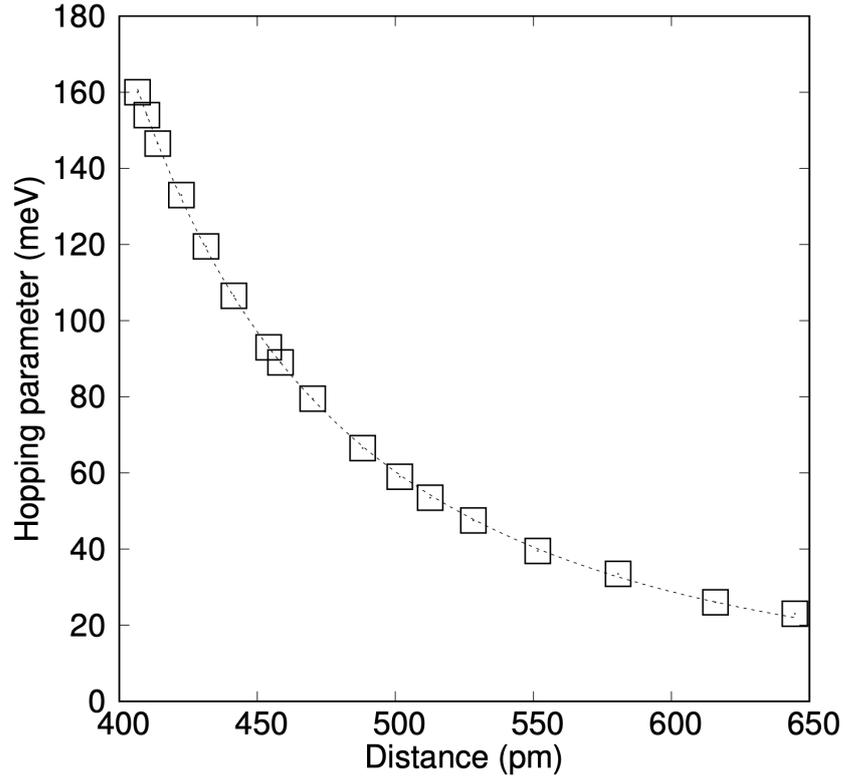


Рис. 4.3: Параметризация перескока между иглой и монослоем, как функции расстояния. Значения перескока выбирались так, чтобы обменная энергия в НККА модели совпадала с экспериментальными данными из работы [136].

После параметризации модели НККА, был произведен расчет времен жизни Р и А состояний. Пути с минимальным перепадом энергии были рассчитаны с помощью геодезического метода ПУЛ [64]. Разница между максимумом энергии вдоль пути (энергии седловой точки) и энергией начального (конечного) состояния дает значение активационного барьера,  $E_a$ . Предэкспоненциальный множитель в законе Аррениуса оказался зависящим от температуры из-за наличия нулевой моды в седловой точке, которая соответствует вращению всех магнитных моментов вокруг оси  $z$ . Выражение для константы скорости имеет следующий вид:

$$\kappa = \nu \sqrt{T} e^{-\frac{E_a}{k_B T}}, \quad (4.6)$$

где  $\nu$  множитель, не зависящий от температуры. Время жизни магнитных состояний может быть рассчитано после оценки предэкспоненциального фактора  $\nu$  и активационного барьера  $E_a$ , как обратное значение константы скорости:

$$\tau = \frac{1}{\kappa} \quad (4.7)$$

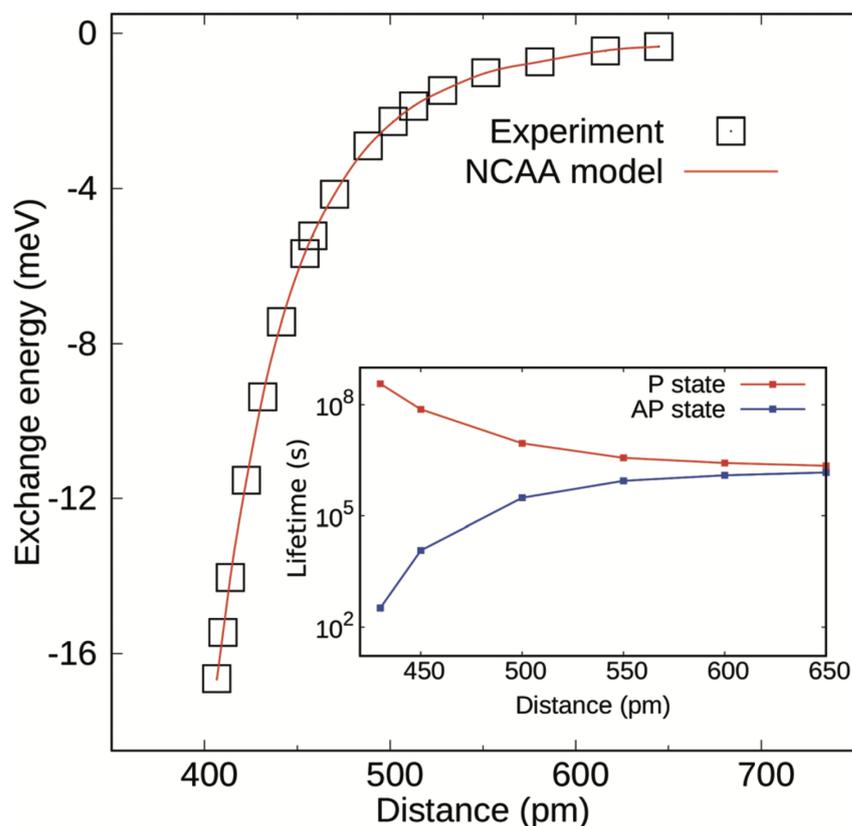


Рис. 4.4: Обменная энергия, как функция расстояния между иглой и монослоем. Расчеты методом функционала плотности использованы для определения зависимости параметра перескока от расстояния. Расчет сделан для кластера, состоящего из 30 атомов. На вставке показана зависимость времен жизни магнитных состояний кластера, как функции расстояния. P state - магнитный момент кластера параллелен магнитному моменту атома поверхности, A state - магнитный момент кластера антипараллелен магнитному моменту атома поверхности.

Результаты расчетов ПМПЭ для кластера состоящего из 30 атомов показаны на Рис. 4.5. В отсутствии взаимодействия с поверхностью, два магнитных состояния, которым соответствуют направления полного магнитного момента кластера вдоль и против оси  $z$ , имеют одинаковую энергию. Энергетический барьер для перехода из одного состояния в другое оказался равен 32 meV. При взаимодействии кластера с монослоем энергия P состояния уменьшается сильнее, чем энергия A состояния. Разница энергий двух состояний определяет обменную энергию. МОСМ эксперимент был проведен при значении обменной энергии 10 meV [136]. В расчетах это значение обменной энергии соответствует расстоянию 4.3 Å между кластером и поверхностью, при котором энергия P состояния уменьшилась на 33 meV и энергия A состояния уменьшилась на 23 meV. Энергетический барьер перехода из состояния A в состояние P стал 25 meV, что меньше,

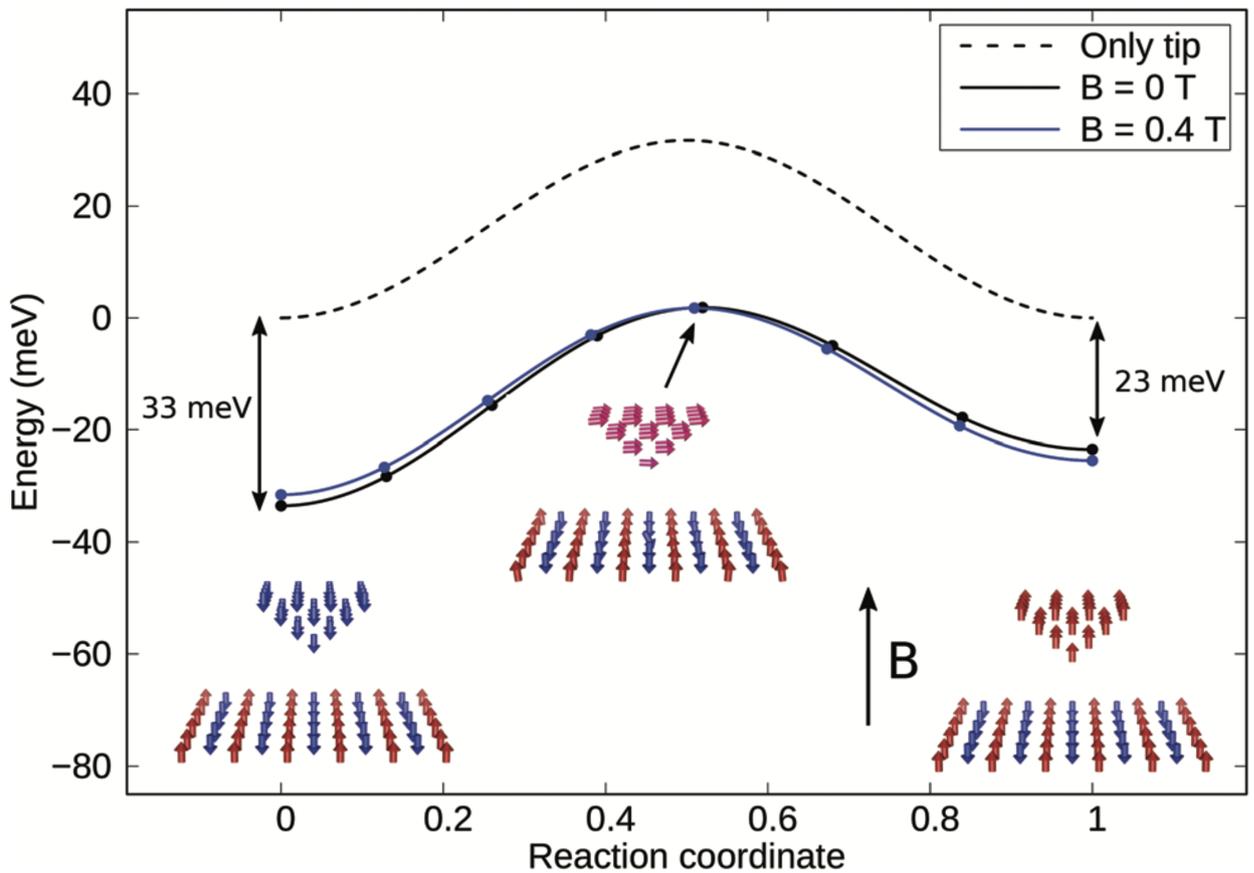


Рис. 4.5: ПМПЭ перемагничивания кластера на игле микроскопа. Пунктирной линией обозначен ПМПЭ для кластера не взаимодействующего с поверхностью. Сплошной кривой черного цвета обозначен ПМПЭ перемагничивания кластера, который находится на расстоянии  $4.3 \text{ \AA}$  от поверхности, что соответствует  $10 \text{ meV}$  обменной энергии, как видно из разницы энергий начального и конечного состояний. Сплошная кривая синего цвета соответствует пути перемагничивания кластера при внешнем магнитном поле  $0.4 \text{ T}$  и расстоянии  $4.3 \text{ \AA}$  от поверхности. Конфигурации магнитных моментов обозначены стрелочками, которые соответствуют двум минимумам, Р и А состояниям, и седловой точке.

чем барьер для не взаимодействующего кластера, в то время как барьер для обратного перехода из состояния Р в состояние А увеличился по сравнению с барьером свободного кластера до  $35 \text{ meV}$ . Поэтому Р состояние стало более стабильным, чем А состояние, и именно переходы из состояния А в состояние Р могут наблюдаться на временном масштабе эксперимента, как показано на Рис. 4.1. Проведенные расчеты показывают, что именно время жизни состояния А было измерено в эксперименте.

В эксперименте наблюдались два разных времени жизни, что указывает на то, что состояние А не является вырожденным, т.е. состояние с ориентацией магнитного момен-

та кластера вдоль оси  $z$  имеет энергию отличную от энергии состояния, с ориентацией магнитного момента кластера против оси  $z$ . Причиной этого может быть наличие локального магнитного поля. Эффект магнитного поля величиной 0.4 Т направленного вдоль оси  $z$  на ПМПЭ показан на Рис. 4.5. Энергетический барьер для перехода из состояния А в состояние Р увеличился, т.к. магнитный момент кластера направлен по полю, а энергия седловой точки почти не изменилась. Из-за этого увеличилось и время жизни состояния А. Возможно и другое состояние А, когда магнитный момент кластера направлен против поля. Время жизни такого состояния уменьшается. Это объясняет асимметрию на временах жизни наблюдаемых в эксперименте.

Для времен жизни магнитных состояний кластеров разных размеров был получен закон Аррениуса – рассчитан входящий в него предэкспоненциальный фактор и энергетический барьер. Для свободного кластера результаты такого расчета представлены на Рис. 4.6 и 4.7. Предэкспоненциальный фактор,  $\nu\sqrt{T}$ , растет экспоненциально с числом атомов в кластере. Для кластера состоящего из 14 атомов предэкспоненциальный фактор при температуре 8 К имеет значение  $10^{13} \text{ с}^{-1}$ , а для кластера состоящего из 90 атомов он равен  $10^{18} \text{ с}^{-1}$ . Энергетический барьер является практически линейной функцией от числа атомов. Время жизни магнитных состояний экспоненциально зависит от числа атомов в системе, как показано на вставке Рис. 4.6. Время жизни магнитного состояния кластера, состоящего примерно из 20 атомов, имеет значение порядка нескольких секунд при температуре 8 К.

Взаимодействие кластера с монослоем уменьшает время жизни состояния А и увеличивает время жизни состояния Р, как видно на Рис. 4.4 и 4.7. Теперь кластер, состоящий из 27 атомов, находящийся в состоянии А, имеет время жизни порядка секунд, в то время как время жизни состояния Р имеет значение  $10^6 \text{ с}$  (11 дней). Воздействие локального магнитного поля увеличивает время жизни одного из состояний А (магнитный момент кластера направлен по полю) и уменьшает время жизни другого состояния А (когда магнитный момент кластера направлен против поля). Для полей порядка 0.045 Т времена жизни в хорошем согласии с экспериментальными временами жизни, измеренными в МОСМ эксперименте [136],  $17 \pm 3 \text{ с}$  и  $27 \pm 5 \text{ с}$ , как видно из Рис. 4.7.

Времена жизни метастабильных состояний изменяются экспоненциально с размером кластера железа, как показано на Рис. 4.6 и 4.7. Наибольшая трудность в эксперименте – приготовление иглолок с кластерами, содержащими определенное количество атомов, которые имели бы времена жизни порядка секунд при заданной температуре. Добавление в систему всего нескольких атомов железа может изменить время жизни на несколько порядков. Действительно, в экспериментах было протестировано множество

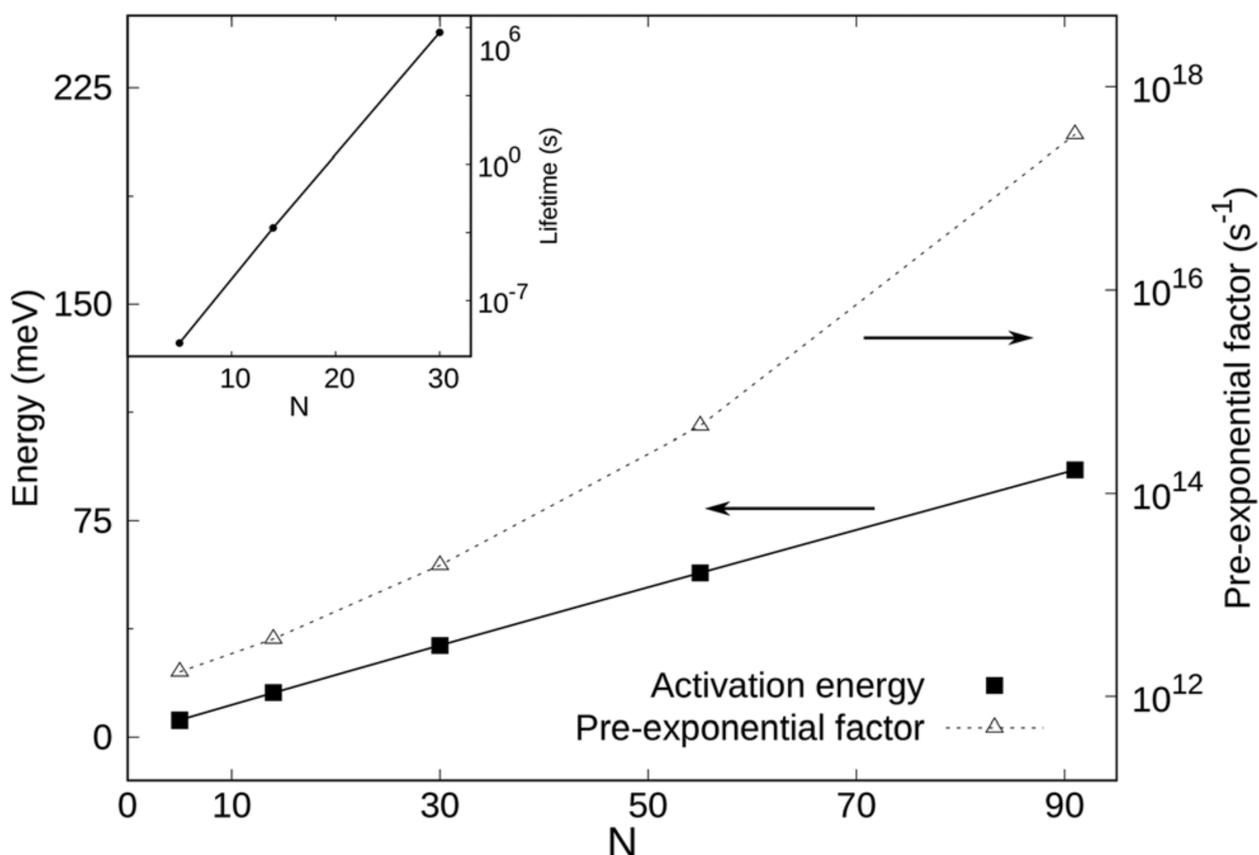


Рис. 4.6: Энергетический барьер (обозначен черными квадратами и сплошной линией) и предэкспоненциальный фактор (отмечен белыми треугольниками и пунктирной линией), как функции числа атомов кластера. Предэкспоненциальный фактор растет экспоненциально с увеличением числа атомов, а энергетический барьер практически линейно. Расчет произведен с помощью поиска ПМПЭ и оценки собственных значений гессиана в седловой точке для расчета предэкспоненциального фактора в рамках гармонического приближения ТПС. Вставка показывает среднее время жизни магнитного состояния изолированного кластера в отсутствии магнитного поля при температуре 8 К. Время жизни зависит экспоненциально от числа атомов в системе.

специально приготовленных иголок и только небольшая доля этих иголок имела кластеры с временами жизни магнитных состояний порядка нескольких секунд [115, 136]. Изменение расстояния между иголкой и поверхностью и, как следствие, изменение обменной энергии, тоже сильно влияет на времена жизни (Рис. 4.7). Изменение температуры может увеличить диапазон размеров кластеров с временами жизни наблюдаемых на временном масштабе эксперимента. Измерение времен жизни, как функции температуры, могло бы позволить построить график Аррениуса и получить прямые экспериментальные измерения величины энергетического барьера, а также предэкспоненциального фактора, что дало бы возможность прямого сравнения с атомистическим

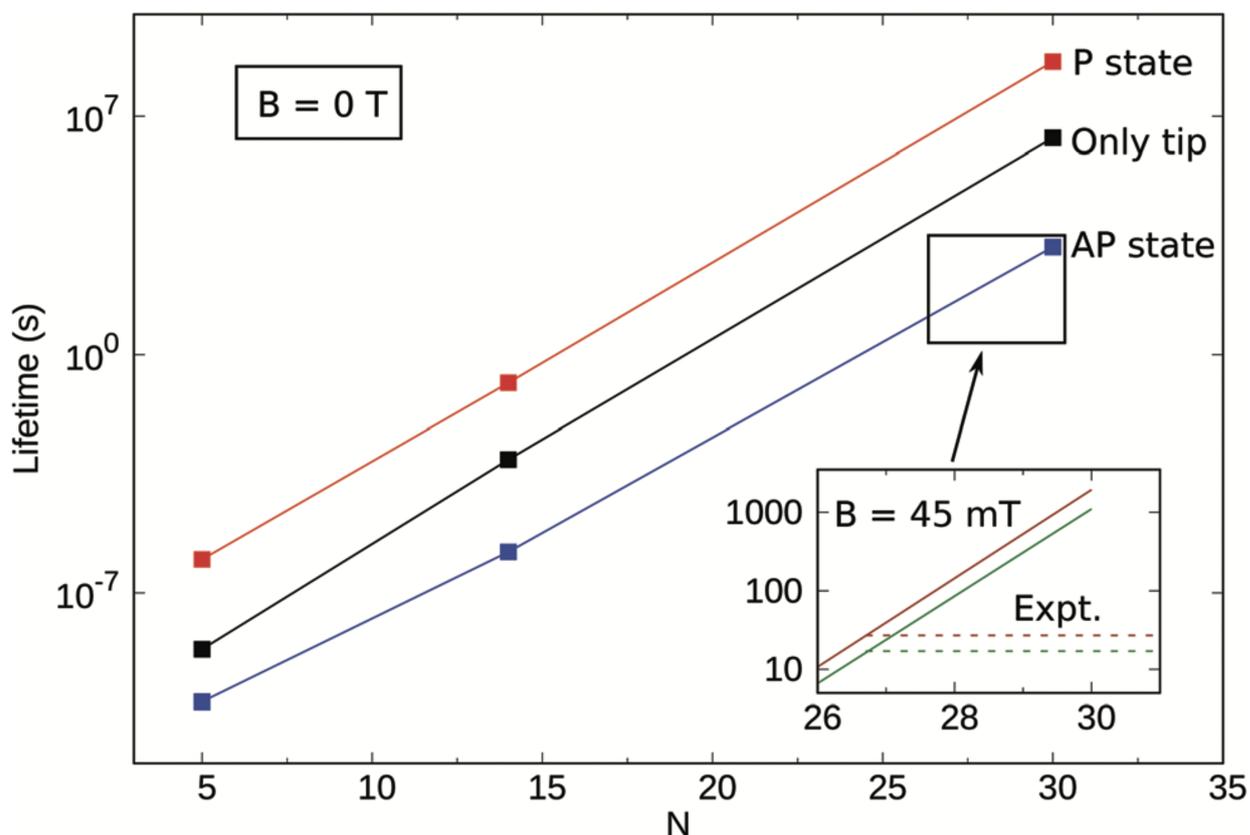


Рис. 4.7: Времена жизни магнитных состояний кластеров разных размеров при температуре 8 К. Сплошная линия черного цвета: кластер, не взаимодействующий с поверхностью. Красная линия: состояние с параллельным упорядочением магнитных моментов кластера и атома монослоя на расстоянии 4.3 Å. Синяя линия: состояние с антипараллельным упорядочиванием магнитных моментов кластера и атома монослоя на расстоянии 4.3 Å. На вставке: эффект локального магнитного поля 0.45 Т, направленного по нормали к поверхности. Локальное магнитное поле нарушает симметрию между двумя состояниями типа А: 1) магнитный момент кластера направлен по полю, а магнитный момент атома монослоя против поля 2) магнитный момент кластера направлен против поля, а магнитный момент атома монослоя направлен по полю. Из-за нарушения симметрии получено два разных значения времен жизни состояния А, которые находятся в хорошем согласии с экспериментальными данными. Два экспериментальных измерения времен жизни показаны пунктирной линией.

моделированием.

Рассчитанный предэкспоненциальный фактор и энергетический барьер сильно зависят от размера кластера. Заслуживает внимание тот факт, что предэкспонента имеет достаточно большие значения, что, однако согласуется с результатами, полученными для нанокластеров железа на поверхности вольфрама W(110) [88]. Рост предэкспонен-

ты с увеличением размера кластера может быть связан с увеличением числа низко-частотных мод для конфигурации спинов в седловой точке, что ведет к увеличению вклада энтропии переходного состояния. Похожий эффект наблюдался в атомных системах [143]. Энергетический барьер растет практически линейно с размером кластера и определяется, в первую очередь, вкладом от анизотропии. Барьер пропорционален числу атомов в кластере умноженному на величину анизотропии, которая была принята равной 1.0 meV, в соответствии с оценкой, сделанной в эксперименте [136]. Следующий шаг в моделировании данной системы должен включить в себя аккуратную оценку магнитной анизотропии кластера из первопринципных расчетов.

Кластер, состоящий из 27 атомов, в локальном магнитном поле 0.045 Т, взаимодействующий с поверхностью на расстоянии 4.3 Å, имеет времена жизни близкие к полученным в эксперименте,  $17 \pm 3$  с и  $27 \pm 5$  с. Оценка числа атомов полученная авторами эксперимента составляет 10-20 атомов [136]. Основная причина в различии полученного числа атомов заключается в том, что предэкспонента полученная в расчете из гармонической ТПС составляет примерно  $10^{13} \text{ s}^{-1}$  при температуре 8 К, в то время как в эксперименте значение предэкспоненты постулировалось равным  $10^9 \text{ s}^{-1}$ .

Проведенный расчет показывает, что система совершает магнитный переход из состояния А в состояние Р. Энергия состояния Р меньше энергии состояния А. Это противоположно результату, полученному из метода функционала плотности с обобщенным градиентным приближением для обменно-корреляционного функционала. Существует два конкурирующих механизма, которые влияют на знак обменного функционала, как уже и обсуждалось в главе 1. Энергия состояния Р меньше, чем энергия состояния А, если выполнено следующее неравенство:

$$U \rho_F > 2, \quad (4.8)$$

где  $U$  – величина Кулоновского взаимодействия, а  $\rho_F$  – плотность состояния на уровне Ферми. То, что метод функционала плотности предсказывает состояние А в качестве основного состояния, может быть связано с тем, что обобщенное градиентное приближение дает плохую оценку для кулоновского взаимодействия между локализованными  $d$ -состояниями, что связано с ошибкой на самодействие. [144, 145]. Другое обстоятельство, которое нужно учитывать при сравнении расчетов в модели НККА и в методе функционала плотности заключается в том, что в модели НККА система находится в контакте с металлическим проводником (в данном случае подложка вольфрама и хромовая иголка), которые определяют положение уровня Ферми в системе, в то время как в методе функционала плотности полное число частиц фиксировано. Заданный уровень

Ферми является лучшим приближением в данном случае, т.к. иголка и подложка являются макроскопическими объектами, содержащими большое число электронов проводимости.

Сформулируем **выводы** по четвертой главе. Показано применение теоретических методов, изложенных в главах 1 и 2, к описанию реального эксперимента. Определены размеры кластеров железа, участвующих в термоиндуцированных переходах в эксперименте с магнитно-обменной силовой микроскопией, и рассчитаны характеристики закона Аррениуса термоиндуцированных магнитных переходов в зависимости от внешнего магнитного поля, расстояния между иголкой и кластером и числа атомов железа.

# Заключение

Перечислим основные результаты исследования:

- Разработаны методы и алгоритмы самосогласованных расчетов для моделей магнетизма коллективизированных электронов, которые позволяют находить сложные неколлинеарные магнитные структуры, отвечающие локальным минимумам энергии. Решения с нетривиальным топологическим зарядом скирмионного типа могут быть получены в рамках моделей с коллективизированными электронами уже без учета спин-орбитального взаимодействия.
- Развита эффективные алгоритмы поисков минимумов и путей с минимальным перепадом энергии на энергетических поверхностях большой размерности, что позволило сократить время поиска седловых точек на порядок. Универсальность методов также продемонстрирована на жидкокристаллических системах, для которых были рассчитаны величины барьеров в переходе между киральным и нематическим состояниями во внешнем электрическом поле.
- Показано существование скирмионного состояния в ультратонких пленках с коллективизированными электронами в рамках модели НККА. Проведено прямое сравнение эффективной модели Гейзенберга с моделью НККА и указаны пределы применимости модели Гейзенберга для описания тепловой устойчивости скирмионов.
- Предложена новая интерпретация экспериментов по перематничиванию кластеров на иглке атомного микроскопа, даны качественные и количественные объяснения экспериментальным зависимостям, полученным методами магнитно-обменной силовой микроскопии.

# Литература

- [1] Nagaosa, N. Topological properties and dynamics of magnetic skyrmions / N Nagaosa, Y Tokura // Nat. Nanotechnol. — 2013. — Vol. 8, no. 12. — P. 899–911.
- [2] Fert, A. Magnetic skyrmions: advances in physics and potential applications / A Fert, N Reyren, V Cros // Nat. Rev. Mater. — 2017. — Vol. 2, no. 7. — P. 17031.
- [3] Bessarab, P. F. Harmonic transition-state theory of thermal spin transitions / P F Bessarab, V M Uzdin, H Jónsson // Phys. Rev. B. — 2012. — Vol. 85, no. 18. — P. 184409.
- [4] Plimpton, S. Fast parallel algorithms for short-range molecular dynamics / S Plimpton // J. Comp. Phys. — 1995. — Vol. 117, no. 1. — P. 1–19.
- [5] Gideon, P. M. Spirit: Multifunctional framework for atomistic spin simulations / Gideon P Müller, Markus Hoffmann, Constantin Disselkamp et al. // Phys. Rev. B. — 2019. — Vol. 99, no. 22. — P. 224414.
- [6] Hohenberg, P. Inhomogeneous electron gas / Pierre Hohenberg, Walter Kohn // Phys. Rev. — 1964. — Vol. 136, no. 3B. — P. B864.
- [7] Kohn, W. Self-Consistent Equations Including Exchange and Correlation Effects / W Kohn, L J Sham // Phys. Rev. — 1965. — Vol. 140, no. 4A. — P. 1133–1138.
- [8] von Barth, U. A local exchange-correlation potential for the spin polarized case. i / U von Barth, L Hedin // J. Phys. C Solid State Phys. — 1972. — Vol. 5, no. 13. — P. 1629.
- [9] Kubler, J. Density functional theory of non-collinear magnetism / J Kubler, K H Hock, J Sticht, A R Williams // J. Phys. F Met. Phys. — 1988. — Vol. 18, no. 3. — P. 469–483.
- [10] Hobbs, D. Fully unconstrained noncollinear magnetism within the projector augmented-wave method / D Hobbs, G Kresse, J Hafner // Phys. Rev. B. — 2000. — Vol. 62, no. 17. — P. 11556–11570.

- [11] Kurz, P. Ab initio treatment of noncollinear magnets with the full-potential linearized augmented plane wave method / P Kurz, F Forster, L Nordstrom et al. // *Phys. Rev. B.* — 2004. — Vol. 69, no. 2.
- [12] Sharma, S. First-Principles Approach to Noncollinear Magnetism: Towards Spin Dynamics / S Sharma, J K Dewhurst, C Ambrosch-Draxl et al. // *Phys. Rev. Lett.* — 2007. — Vol. 98, no. 19. — P. 196405.
- [13] Stocks, G. M. Towards a constrained local moment model for first principles spin dynamics / G M Stocks, B Ujfalussy, X Wang et al. // *Philos. Mag. B Phys. Condens. Matter; Stat. Mech. Electron. Opt. Magn. Prop.* — 1998. — Vol. 78, no. 5-6. — P. 665–673.
- [14] Dederichs, P. H. Ground states of constrained systems: Application to cerium impurities / P H Dederichs, S Blügel, R Zeller, H Akai // *Phys. Rev. Lett.* — 1984. — Vol. 53, no. 26. — P. 2512–2515.
- [15] Katsnelson, M. I. Magnetic susceptibility, exchange interactions and spin-wave spectra in the local spin density approximation / M I Katsnelson, A I Lichtenstein // *J. Phys. Condens. Matter.* — 2004. — Vol. 16, no. 41. — P. 7439–7446.
- [16] Bruno, P. Exchange Interaction Parameters and Adiabatic Spin-Wave Spectra of Ferromagnets: A “Renormalized Magnetic Force Theorem” / P Bruno // *Phys. Rev. Lett.* — 2003. — Vol. 90, no. 8. — P. 87205.
- [17] Luis, A. Z. R Probing the limits of metal plasticity with molecular dynamics simulations / Luis A Zepeda-Ruiz, Alexander Stukowski, Tomas Oppelstrup, Vasily V Bulatov // *Nature.* — 2017. — Vol. 550, no. 7677. — P. 492.
- [18] Moskalenko, M. Qualitative insight and quantitative analysis of the effect of temperature on the coercivity of a magnetic system / M Moskalenko, P F Bessarab, V M Uzdin, H Jónsson // *AIP Adv.* — 2016. — Vol. 6, no. 2. — P. 025213.
- [19] Uzdin, V. M. Energy surface and lifetime of magnetic skyrmions / V M Uzdin, M N Potkina, I S Lobanov et al. // *J. Magn. Magn. Mater.* — 2018. — Vol. 459. — P. 236–240.
- [20] Varentsova, A. S. Interplay between size and stability of magnetic skyrmions / A S Varentsova, M N Potkina, S von Malottki et al. // *Nanosyst. Phys. Chem. Math.* — 2018. — Vol. 9, no. 3. — P. 356–363.

- [21] Hubbard, J. Electron correlations in narrow energy bands / J Hubbard // Proc. R. Soc. London. Ser. A. Math. Phys. Sci. — 1963. — Vol. 276, no. 1365. — P. 238–257.
- [22] Anderson, P. W. Localized magnetic states in metals / P W Anderson // Phys. Rev. — 1961. — Vol. 124, no. 1. — P. 41–53.
- [23] Hoffmann, M. Systematic derivation of realistic spin models for beyond-Heisenberg solids / Markus Hoffmann, Stefan Blügel // Phys. Rev. B. — 2020. — Vol. 101, no. 2. — P. 24418.
- [24] Takahashi, M. Half-filled Hubbard model at low temperature / M Takahashi // J. Phys. C Solid State Phys. — 1977. — Vol. 10, no. 8. — P. 1289–7301.
- [25] Dzyaloshinskii, I. E. Thermodynamic theory of weak ferromagnetism in antiferromagnetic substances / I E Dzyaloshinskii // Sov. Phys. JETP. — 1957. — Vol. 5. — P. 1259–1272.
- [26] Dzyaloshinsky, I. A thermodynamic theory of “weak” ferromagnetism of antiferromagnetics / I Dzyaloshinsky // J. Phys. Chem. Solids. — 1958. — Vol. 4, no. 4. — P. 241–255.
- [27] Moriya, T. Anisotropic superexchange interaction and weak ferromagnetism / T Moriya // Phys. Rev. — 1960. — Vol. 120, no. 1. — P. 91–98.
- [28] Lobanov, I. S. Mechanism and activation energy of magnetic skyrmion annihilation obtained from minimum energy path calculations / I S Lobanov, H Jónsson, V M Uzdin // Phys. Rev. B. — 2016. — Vol. 94, no. 17. — P. 174418.
- [29] Al-Zubi, A. Modeling magnetism of hexagonal Fe monolayers on 4d substrates / A Al-Zubi, G Bihlmayer, S Blügel // Phys. Status Solidi B. — 2011. — Vol. 248, no. 10. — P. 2242–2247.
- [30] Jacobsson, A. Exchange parameters and adiabatic magnon energies from spin-spiral calculations / A Jacobsson, B Sanyal, M Lezaic, S Blügel // Phys. Rev. B. — 2013. — Vol. 88. — P. 134427.
- [31] Zimmermann, B. Comparison of first-principles methods to extract magnetic parameters in ultrathin films: Co/Pt(111) / B Zimmermann, G Bihlmayer, M Böttcher et al. // Phys. Rev. B. — 2019. — Vol. 99, no. 21. — P. 214426.
- [32] Grytsiuk, S. Ab initio analysis of magnetic properties of the prototype B20 chiral magnet FeGe / S Grytsiuk, M Hoffmann, J.-P. Hanke et al. // Phys. Rev. B. — 2019. — Vol. 100, no. 21. — P. 214406.

- [33] Small, L. M. A couple method for calculating interatomic interactions in itinerant electron magnetic systems / L M Small, V Heine // *J. Phys. F. Met. Phys.* — 1984. — Vol. 14. — P. 3041–3052.
- [34] Kurz, Ph. Three-Dimensional Spin Structure on a Two-Dimensional Lattice: Mn/Cu(111) / Ph. Kurz, G Bihlmayer, K Hirai, S Blügel // *Phys. Rev. Lett.* — 2001. — Vol. 86, no. 6. — P. 1106–1109.
- [35] Hayami, S. Engineering chiral density waves and topological band structures by multiple- Q superpositions of collinear up-up-down-down orders / S Hayami, R Ozawa, Y Motome // *Phys. Rev. B.* — 2016. — Vol. 94, no. 2. — P. 024424.
- [36] Rößler, U. K. Spontaneous skyrmion ground states in magnetic metals / U K Rößler, A N Bogdanov, C Pfleiderer // *Nature.* — 2006. — Vol. 442, no. 7104. — P. 797–801.
- [37] Alexander, S. Interaction between localized states in metals / S Alexander, P W Anderson // *Phys. Rev.* — 1964. — Vol. 133, no. 6A. — P. A1594–A1603.
- [38] Uzdin, V. M. Atomic-scale magnetic and chemical structure of Fe/V multilayers using Mossbauer spectroscopy / V M Uzdin, L Haggstrom // *Phys. Rev. B.* — 2005. — Vol. 72, no. 2. — P. 024407.
- [39] Uzdin, V. M. Spin-density wave in Cr without the nesting property of the Fermi surface / V M Uzdin, C Demangeat // *J. Phys. Condens. Matter.* — 2006. — Vol. 18, no. 9. — P. 2717–2728.
- [40] Yartseva, N. S. Magnetism of Cr surface defects / N S Yartseva, S V Yartsev, C Demangeat et al. // *J. Mol. Struct.* — 2006. — Vol. 777, no. 1-3. — P. 29–33.
- [41] Uzdin, V. M. The magnetization reversal process in spin spring magnets / V M Uzdin, A Vega // *Nanotechnology.* — 2008. — Vol. 19, no. 31. — P. 315401.
- [42] Uzdin, V. M. Transition from spin-density-wave to layered antiferromagnetic state induced by hydrogen as a test for the origin of spin-density waves in chromium / V M Uzdin, H Zabel, A Remhof, B Hjörvarsson // *Phys. Rev. B.* — 2009. — Vol. 80, no. 17. — P. 174418.
- [43] Uzdin, S. V. On the Calculation of the Magnetic Structure of Surfaces, Near-Surface Layers, and Interfaces of 3d Metals / S V Uzdin // *Phys. Solid State.* — 2009. — Vol. 51, no. 6. — P. 1260–1270.

- [44] Uzdin, V. M. Noncollinear Fe spin structure in (Sm-Co)/Fe exchange-spring bilayers: Layer-resolved  $^{57}\text{Fe}$  Mössbauer spectroscopy and electronic structure calculations / V M Uzdin, A Vega, A Khrenov et al. // *Phys. Rev. B.* — 2012. — Vol. 85, no. 2. — P. 024409.
- [45] Uzdin, V. M. Magnetization reversal process at atomic scale in systems with itinerant electrons / V M Uzdin, A Vega // *J. Phys. Condens. Matter.* — 2012. — Vol. 24, no. 17. — P. 176002.
- [46] Bessarab, P. F. Calculations of magnetic states and minimum energy paths of transitions using a noncollinear extension of the Alexander-Anderson model and a magnetic force theorem / P F Bessarab, V M Uzdin, H Jónsson // *Phys. Rev. B.* — 2014. — Vol. 89, no. 21. — P. 1–12.
- [47] Ivanov, A. V. Fully self-consistent calculations of magnetic structure within non-collinear Alexander-Anderson model / A V Ivanov, P F Bessarab, H Jonsson, V M Uzdin // *Nanosyst. Phys. Chem. Math.* — 2020. — Vol. 11, no. 1. — P. 65–77.
- [48] Bessarab, P. F. Navigation on the Energy Surface of the Noncollinear Alexander-Anderson model / P. F. Bessarab, A Skorodumov, V.M. Uzdin, H. Jónsson // *Nanosyst. Phys. Chem. Math.* — 2014. — Vol. 5, no. 6. — P. 757–781.
- [49] Heinze, S. Spontaneous atomic-scale magnetic skyrmion lattice in two dimensions / S Heinze, K Von Bergmann, M Menzel et al. // *Nat. Phys.* — 2011. — Vol. 7, no. 9. — P. 713–718.
- [50] Nocedal, J. *Numerical Optimization* / Jorge Nocedal, Stephen J Wright. — second edition. — New York, NY, USA: Springer, 2006.
- [51] Mryasov, O. N. Theory of non-Heisenberg exchange: Results for localized and itinerant magnets / O N Mryasov, A J Freeman, A I Liechtenstein // *J. Appl. Phys.* — 1996. — Vol. 79, no. 8 PART 2A. — P. 4805–4807.
- [52] Pajda, M. Ab initio calculations of exchange interactions, spin-wave stiffness constants, and Curie temperatures of Fe, Co, and Ni / M Pajda, J Kudrnovský, I Turek et al. // *Phys. Rev. B.* — 2001. — Vol. 64, no. 17. — P. 174402.
- [53] Wang, H. Exchange interaction function for spin-lattice coupling in bcc iron / Hai Wang, Pui-Wai Ma, C H Woo // *Phys. Rev. B.* — 2010. — Vol. 82, no. 14. — P. 144304.

- [54] Mentink, J. H. Stable and fast semi-implicit integration of the stochastic Landau–Lifshitz equation / J H Mentink, M V Tretyakov, A Fasolino et al. // J. Phys. Condens. Matter. — 2010. — Vol. 22, no. 17. — P. 176001.
- [55] Kohn, W. Nobel Lecture: Electronic structure of matter – wave functions and density functionals. / W. Kohn // Rev. Mod. Phys. — 1999. — Vol. 71. — P. 1253.
- [56] Koshibae, W. Creation of skyrmions and antiskyrmions by local heating / Wataru Koshibae, Naoto Nagaosa // Nat. Commun. — 2014. — Vol. 5, no. 1. — P. 5148.
- [57] Je, S. G. Creation of Magnetic Skyrmion Bubble Lattices by Ultrafast Laser in Ultrathin Films / Soong-Geun Je, Pierre Valloibra, Titiksha Srivastava et al. // Nano Lett. — 2018. — Vol. 18, no. 11. — P. 7362–7371.
- [58] Stillinger, F. H. Local order in quenched states of simple atomic substances / Frank H Stillinger, Randall A LaViolette // Phys. Rev. B. — 1986. — Vol. 34, no. 8. — P. 5136–5144.
- [59] Jónsson, H. Icosahedral Ordering in the Lennard-Jones Liquid and Glass / Hannes Jónsson, Hans C Andersen // Phys. Rev. Lett. — 1988. — Vol. 60, no. 22. — P. 2295–2298.
- [60] Antropov, V. Spin dynamics in magnets: Equation of motion and finite temperature effects / V Antropov, M Katsnelson, B Harmon, M van Schilfgaarde // Phys. Rev. B. — 1996. — Vol. 54, no. 2. — P. 1019–1035.
- [61] Cohen, R. Relaxation and gradient methods for molecular orientation in liquid crystals / R Cohen, S.-Y. Lin, M Luskin // Comput. Phys. Commun. — 1989. — Vol. 53, no. 1-3. — P. 455–465.
- [62] Fischbacher, J. Nonlinear conjugate gradient methods in micromagnetics / J Fischbacher, A Kovacs, H Oezelt et al. // AIP Adv. — 2017. — Vol. 7, no. 4. — P. 045310.
- [63] Lewis, D. Geometric integration on spheres and some interesting applications / D Lewis, N Nigam // J. Comput. Appl. Math. — 2003. — Vol. 151, no. 1. — P. 141–170.
- [64] Bessarab, P. F. Method for finding mechanism and activation energy of magnetic transitions, applied to skyrmion and antivortex annihilation / P F Bessarab, V M Uzdin, H Jónsson // Comput. Phys. Commun. — 2015. — Vol. 196. — P. 335–347.

- [65] Rybakov, F. N. New Type of Stable Particlelike States in Chiral Magnets / Filipp N Rybakov, Aleksandr B Borisov, Stefan Blügel, Nikolai S Kiselev // *Phys. Rev. Lett.* — 2015. — Vol. 115, no. 11. — P. 117201.
- [66] Edelman, A. The Geometry of Algorithms with Orthogonality Constraints / Alan Edelman, T. A. Arias, Steven T. Smith // *SIAM J. Matrix Anal. Appl.* — 1998. — Vol. 20, no. 2. — P. 303–353.
- [67] Ivanov, A. V. Fast and Robust Algorithm for the Energy Minimization of Spin Systems Applied in an Analysis of High Temperature Spin Configurations in Terms of Skyrmion Density / A V Ivanov, V M Uzdin, Hannes Jónsson // *arXiv:1904.02669v2 [physics.comp-ph]*. — 2019.
- [68] Ivanov, A. V. Efficient optimization method for finding minimum energy paths of magnetic transitions / A V Ivanov, D Dagbartsson, J Tranchida et al. // *J. Phys. Condens. Matter.* — 2020. — Vol. 32, no. 34. — P. 345901.
- [69] Hutter, J. Exponential transformation of molecular orbitals / Jürg Hutter, Michele Parrinello, Stefan Vogel // *J. Chem. Phys.* — 1994. — Vol. 101, no. 5. — P. 3862–3865.
- [70] Van Voorhis, T. A geometric approach to direct minimization / T Van Voorhis, M Head-Gordon // *Mol. Phys.* — 2002. — Vol. 100, no. 11. — P. 1713–1721.
- [71] Lehtola, S. Complex orbitals, multiple local minima, and symmetry breaking in perdw-zunger self-interaction corrected density functional theory calculations / Susi Lehtola, Martin Head-Gordon, Hannes Jónsson // *J. Chem. Theory Comput.* — 2016. — Vol. 12, no. 7. — P. 3195–3207.
- [72] Vlasov, S. Classical to quantum mechanical tunneling mechanism crossover in thermal transitions between magnetic states / S Vlasov, P F Bessarab, V M Uzdin, H Jónsson // *Faraday Discuss.* — 2016. — Vol. 195. — P. 93–109.
- [73] Liashko, S. Y. The effect of temperature and external field on transitions in elements of kagome spin ice / S Y Liashko, H Jónsson, V M Uzdin // *New J. Phys.* — 2017. — Vol. 19, no. 11. — P. 113008.
- [74] Ivanov, A. Magnetic exchange force microscopy: Theoretical analysis of induced magnetization reversals / A Ivanov, P F Bessarab, V M Uzdin, H Jónsson // *Nanoscale.* — 2017. — Vol. 9, no. 35. — P. 13320–13325.

- [75] Sheppard, D. Optimization methods for finding minimum energy paths / D Sheppard, R Terrell, G Henkelman // *J. Chem. Phys.* — 2008. — Vol. 128, no. 13. — P. 134106.
- [76] Najfeld, I. Derivatives of the matrix exponential and their computation / I Najfeld, T F Havel // *Adv. Appl. Math.* — 1995. — Vol. 16, no. 3. — P. 321–375.
- [77] Murray, R. M. *A Mathematical Introduction to Robotic Manipulation* / R M Murray, Z Li, S Shankar Sastry. — 1994.
- [78] Jónsson, H. Nudged elastic band method for finding minimum energy paths of transitions / H Jónsson, G Mills, K W Jacobsen // B.J. Berne, G. Ciccotti, D.F. Coker (Eds.), *Class. Quantum Dyn. Condens. Phase Simulations*, World Sci. — 1998. — P. 385–404.
- [79] Landau, L. D. On the Theory of the Dispersion of Magnetic permeability in Ferromagnetic Bodies. / L D Landau, E M Lifshitz // *Phys. Z. Sowjetunion.* — 1935. — Vol. 8. — P. 153–169.
- [80] Depondt, P. Spin dynamics simulations of two-dimensional clusters with Heisenberg and dipole-dipole interactions / P Depondt, F G Mertens // *J. Phys. Condens. Matter.* — 2009. — Vol. 21, no. 33. — P. 336005.
- [81] Tranchida, J. Massively parallel symplectic algorithm for coupled magnetic spin dynamics and molecular dynamics / J Tranchida, S J Plimpton, P Thibaudeau, A P Thompson // *J. Comp. Phys.* — 2018. — Vol. 372. — P. 406–425.
- [82] Hager, W. W. A new conjugate gradient method with guaranteed descent and an efficient line search / W W Hager, H Zhang // *SIAM J. Optim.* — 2006. — Vol. 16, no. 1. — P. 170–192.
- [83] Mills, G. Reversible work transition state theory: application to dissociative adsorption of hydrogen / G Mills, H Jónsson, G K Schenter // *Surf. Sci.* — 1995. — Vol. 324, no. 2-3. — P. 305–337.
- [84] Smidstrup, S. Improved initial guess for minimum energy path calculations / S Smidstrup, A Pedersen, K Stokbro, H Jónsson // *J. Chem. Phys.* — 2014. — Vol. 140, no. 21. — P. 214106.
- [85] Henkelman, G. Improved tangent estimate in the nudged elastic band method for finding minimum energy paths and saddle points / G Henkelman, H Jónsson // *J. Chem. Phys.* — 2000. — Vol. 113, no. 22. — P. 9978–9985.

- [86] Henkelman, G. Climbing image nudged elastic band method for finding saddle points and minimum energy paths / Graeme Henkelman, Blas P. Uberuaga, Hannes Jónsson // *J. Chem. Phys.* — 2000. — Vol. 113, no. 22. — P. 9901–9904.
- [87] Maras, E. Global transition path search for dislocation formation in Ge on Si(001) / E Maras, O Trushin, A Stukowski et al. // *Comput. Phys. Commun.* — 2016. — Vol. 205. — P. 13–21.
- [88] Bessarab, P. F. Size and shape dependence of thermal spin transitions in nanoislands / P F Bessarab, V M Uzdin, H Jónsson // *Phys. Rev. Lett.* — 2013. — Vol. 110, no. 2. — P. 020604.
- [89] Rohart, S. Path to collapse for an isolated Néel skyrmion / S Rohart, J Miltat, A Thiaville // *Phys. Rev. B.* — 2016. — Vol. 93, no. 21. — P. 214412.
- [90] von Malottki S. Enhanced skyrmion stability due to exchange frustration / S von Malottki, B Dupe, P F Bessarab et al. // *Sci. Rep.* — 2017. — Vol. 7. — P. 12299.
- [91] de Gennes, P. G. *The Physics of Liquid Crystals* / P G de Gennes, J Prost. — Oxford: Clarendon Press, 1993. — P. 596.
- [92] Val'kov, A. Y. First-order and continuous Fréedericksz transitions in cholesteric liquid crystals / A Yu. Val'kov, E V Aksenova, V P Romanov // *Phys. Rev. E.* — 2013. — Vol. 87. — P. 22508.
- [93] Rapini, A. Distortion d'une lamelle nématique sous champ magnétique. Conditions d'ancrage aux parois / A Rapini, M Papoular // *J. Phys. Colloq. C4.* — 1969. — Vol. 30. — P. 54–56.
- [94] Ivanov, A. V. Energy surface and minimum energy paths for Fréedericksz transitions in bistable cholesteric liquid crystals / A V Ivanov, P F Bessarab, E V Aksenova et al. // *Phys. Rev. E.* — 2016. — Vol. 93, no. 4. — P. 042708.
- [95] Tenishchev, S. S. Multiple minimum-energy paths and scenarios of unwinding transitions in chiral nematic liquid crystals / S S Tenishchev, A D Kiselev, A V Ivanov, V M Uzdin // *Phys. Rev. E.* — 2019. — Vol. 100, no. 6. — P. 062704.
- [96] Bogdanov, A. N. Thermodynamically stable 'vortices' in magnetically ordered crystals. The mixed state of magnets / A N Bogdanov, D A Yablonskii // *Sov. Phys. JETP.* — 1989. — Vol. 68. — P. 178–182.
- [97] Mühlbauer, S. Skyrmion Lattice in a Chiral Magnet / S Mühlbauer, B Binz, F Jonietz et al. // *Science.* — 2009. — Vol. 323, no. 5916. — P. 915–919.

- [98] Yu, X. Z. Real-space observation of a two-dimensional skyrmion crystal / X Z Yu, Y Onose, N Kanazawa et al. // *Nature*. — 2010. — Vol. 465, no. 7300. — P. 901–904.
- [99] Münzer, W. Skyrmion lattice in the doped semiconductor Fe<sub>1-x</sub>Co<sub>x</sub>Si / W Münzer, A Neubauer, T Adams et al. // *Phys. Rev. B*. — 2010. — Vol. 81, no. 4. — P. 41203.
- [100] Yu, X. Z. Near room-temperature formation of a skyrmion crystal in thin-films of the helimagnet FeGe / X Z Yu, N Kanazawa, Y Onose et al. // *Nat. Mater.* — 2011. — Vol. 10, no. 2. — P. 106–109.
- [101] Chen, G. Room temperature skyrmion ground state stabilized through interlayer exchange coupling / G Chen, A Mascaraque, A T N'Diaye, A K Schmid // *Appl. Phys. Lett.* — 2015. — Vol. 106, no. 24.
- [102] Jiang, W. Blowing magnetic skyrmion bubbles / W Jiang, P Upadhyaya, W Zhang et al. // *Science*. — 2015. — Vol. 349, no. 6245. — P. 283–286.
- [103] Soumyanarayanan, A. Tunable room-temperature magnetic skyrmions in Ir/Fe/Co/Pt multilayers / A Soumyanarayanan, M Raju, A L G Oyarce et al. // *Nat. Mater.* — 2017. — Vol. 16, no. 9. — P. 898–904.
- [104] Moreau-Luchaire, C. Additive interfacial chiral interaction in multilayers for stabilization of small individual skyrmions at room temperature / C Moreau-Luchaire, C Moutafis, N Reyren et al. // *Nat. Nanotechnol.* — 2016. — Vol. 11, no. 5. — P. 444–448.
- [105] Caretta, L. Fast current-driven domain walls and small skyrmions in a compensated ferrimagnet / L Caretta, M Mann, F Büttner et al. // *Nat. Nanotechnol.* — 2018. — Vol. 13, no. 12. — P. 1154–1160.
- [106] Nayak, A. K. Magnetic antiskyrmions above room temperature in tetragonal Heusler materials / A K Nayak, V Kumar, T Ma et al. // *Nature*. — 2017. — Vol. 548, no. 7669. — P. 561–566.
- [107] Kezsmarki, I. Neel-type skyrmion lattice with confined orientation in the polar magnetic semiconductor GaV<sub>4</sub>S<sub>8</sub> / I Kezsmarki, S Bordacs, P Milde et al. // *Nat. Mater.* — 2015. — Vol. 14, no. 11. — P. 1116–1122.
- [108] Adams, T. Long-Wavelength Helimagnetic Order and Skyrmion Lattice Phase in Cu<sub>2</sub>OSeO<sub>3</sub> / T Adams, A Chacon, M Wagner et al. // *Phys. Rev. Lett.* — 2012. — Vol. 108, no. 23. — P. 237204.

- [109] Seki, S. Observation of Skyrmions in a Multiferroic Material / S Seki, X Z Yu, S Ishiwata, Y Tokura // *Science*. — 2012. — Vol. 336, no. 6078. — P. 198–201.
- [110] Kaiser, U. Magnetic exchange force microscopy with atomic resolution / U Kaiser, A Schwarz, R Wiesendanger // *Nature*. — 2007. — Vol. 446, no. 7135. — P. 522–525.
- [111] Romming, N. Field-Dependent Size and Shape of Single Magnetic Skyrmions / Niklas Romming, André Kubetzka, Christian Hanneken et al. // *Phys. Rev. Lett.* — 2015. — Vol. 114, no. 17. — P. 177203.
- [112] Grenz, J. Probing the Nano-Skyrmion Lattice on Fe/Ir(111) with Magnetic Exchange Force Microscopy / Josef Grenz, Arne Köhler, Alexander Schwarz, Roland Wiesendanger // *Phys. Rev. Lett.* — 2017. — Vol. 119, no. 4. — P. 47205.
- [113] Schmidt, R. Probing the magnetic exchange forces of iron on the atomic scale / R Schmidt, C Lazo, H Holscher et al. // *Nano Lett.* — 2009. — Vol. 9, no. 1. — P. 200–204.
- [114] Schmidt, R. Quantitative measurement of the magnetic exchange interaction across a vacuum gap / R Schmidt, C Lazo, U Kaiser et al. // *Phys. Rev. Lett.* — 2011. — Vol. 106, no. 25. — P. 257202.
- [115] Schmidt, R. Characterizing tips suitable for atomic force microscopy and spectroscopy with atomic resolution and spin sensitivity / R Schmidt, A Schwarz, R Wiesendanger // *Appl. Phys. Lett.* — 2017. — Vol. 110, no. 6. — P. 061601.
- [116] Wieser, R. A theoretical study of the dynamical switching of a single spin by exchange forces / R Wieser, V Caciuc, C Lazo et al. // *New J. Phys.* — 2013. — Vol. 15. — P. 013011.
- [117] Oberg, J. C. Control of quantum magnets by atomic exchange bias / J C Oberg, M R Calvo, F Delgado et al. // *Nat. Nanotechnol.* — 2015. — Vol. 10. — P. 40.
- [118] Yan, S. Control of quantum magnets by atomic exchange bias / S Yan, D.-J. Choi, J A J Burgess et al. // *Nat. Nanotechnol.* — 2015. — Vol. 10, no. 1. — P. 40–45.
- [119] Lászlóffy A. Magnetic structure of monatomic Fe chains on Re(0001): Emergence of chiral multispin interactions / A Lászlóffy, L Rózsa, K Palotás et al. // *Phys. Rev. B*. — 2019. — Vol. 99, no. 18. — P. 184430.
- [120] Brinker, S. The chiral biquadratic pair interaction / S Brinker, M dos Santos Dias, S Lounis // *New J. Phys.* — 2019. — Vol. 21, no. 8. — P. 83015.

- [121] Mankovsky, S. Extension of the standard Heisenberg Hamiltonian to multispin exchange interactions / S Mankovsky, S Polesya, H Ebert // arXiv:1909.11361v2 [cond-mat.mtrl-sci]. — 2019.
- [122] Auslender, M. I. Effective spin Hamiltonian and phase separation in the almost half-filled Hubbard model and the narrow-band s-f model / M I Auslender, M I Katsnel'son // Theor. Math. Phys. — 1982. — Vol. 51, no. 3. — P. 601–607.
- [123] Martin, I. Itinerant Electron-Driven Chiral Magnetic Ordering and Spontaneous Quantum Hall Effect in Triangular Lattice Models / I Martin, C D Batista // Phys. Rev. Lett. — 2008. — Vol. 101, no. 15. — P. 156402.
- [124] Batista C. D. Frustration and chiral orderings in correlated electron systems / C D Batista, S Z Lin, S Hayami, Y Kamiya // Reports Prog. Phys. — 2016. — Vol. 79, no. 8. — P. 84504.
- [125] Hayami, S. Engineering chiral density waves and topological band structures by multiple- $Q$  superpositions of collinear up-up-down-down orders / S Hayami, R Ozawa, Y Motome // Phys. Rev. B. — 2016. — Vol. 94, no. 2. — P. 24424.
- [126] Ozawa, R. Zero-Field Skyrmions with a High Topological Number in Itinerant Magnets / R Ozawa, S Hayami, Y Motome // Phys. Rev. Lett. — 2017. — Vol. 118, no. 14. — P. 147205.
- [127] Hayami, S. Effective bilinear-biquadratic model for noncoplanar ordering in itinerant magnets / S Hayami, R Ozawa, Y Motome // Phys. Rev. B. — 2017. — Vol. 95, no. 22. — P. 224424.
- [128] Yu, X. Magnetic stripes and skyrmions with helicity reversals / X Yu, M Mostovoy, Y Tokunaga et al. // Proc. Natl. Acad. Sci. USA. — 2012. — Vol. 109, no. 23. — P. 8856–8860.
- [129] Okubo, T. Multiple- $q$  States and the Skyrmion Lattice of the Triangular-Lattice Heisenberg Antiferromagnet under Magnetic Fields / T Okubo, S Chung, H Kawamura // Phys. Rev. Lett. — 2012. — Vol. 108, no. 1. — P. 17206.
- [130] Leonov, A. O. Multiply periodic states and isolated skyrmions in an anisotropic frustrated magnet / A O Leonov, M Mostovoy // Nat. Commun. — 2015. — Vol. 6. — P. 8275.

- [131] Lin, S. Z. Ginzburg-Landau theory for skyrmions in inversion-symmetric magnets with competing interactions / S Z Lin, S Hayami // *Phys. Rev. B.* — 2016. — Vol. 93, no. 6. — P. 064430.
- [132] Hayami, S. Bubble and skyrmion crystals in frustrated magnets with easy-axis anisotropy / S Hayami, S Z Lin, C D Batista // *Phys. Rev. B.* — 2016. — Vol. 93, no. 18. — P. 184413.
- [133] Paul, S. Role of higher-order exchange interactions for skyrmion stability / Souvik Paul, Soumyajyoti Haldar, Stephan von Malottki, Stefan Heinze // *Nat. Commun.* — 2020. — Vol. 11, no. 1. — P. 4756.
- [134] Heinrich, A. J. Single-atom spin-flip spectroscopy / A J Heinrich, J A Gupta, C P Lutz, D M Eigler // *Science.* — 2004. — Vol. 306, no. 5695. — P. 466–469.
- [135] Tao, K. Switching a single spin on metal surfaces by a STM tip: Ab initio studies / K Tao, V S Stepanyuk, W Hergert et al. // *Phys. Rev. Lett.* — 2009. — Vol. 103, no. 5. — P. 057202.
- [136] Schmidt, R. Magnetization switching utilizing the magnetic exchange interaction / R Schmidt, A Schwarz, R Wiesendanger // *Phys. Rev. B.* — 2012. — Vol. 86, no. 17. — P. 174402.
- [137] Lazo, C. Role of tip size, orientation, and structural relaxations in first-principles studies of magnetic exchange force microscopy and spin-polarized scanning tunneling microscopy / C Lazo, V Caciuc, H Hölscher, S Heinze // *Phys. Rev. B.* — 2008. — Vol. 78, no. 21. — P. 214416.
- [138] Lazo, C. First-principles study of magnetic exchange force microscopy with ferromagnetic and antiferromagnetic tips / C Lazo, S Heinze // *Phys. Rev. B.* — 2011. — Vol. 84, no. 14. — P. 144428.
- [139] Ivanov, A. V. Tip-surface interaction and rate of magnetic transitions / A V Ivanov, P F Bessarab, V M Uzdin, H Jónsson // *J. Phys. Conf. Ser.* — 2016. — Vol. 741, no. 1. — P. 012184.
- [140] Ivanov, A. V. Magnetic exchange force microscopy: Theoretical analysis of induced magnetization reversals / Aleksei Ivanov, Pavel F. Bessarab, Valery M. Uzdin, Hannes Jónsson // *Nanoscale.* — 2017. — Vol. 9, no. 35. — P. 13320–13325.

- [141] Kubetzka, A. Revealing antiferromagnetic order of the Fe monolayer on W(001): Spin-polarized scanning tunneling microscopy and first-principles calculations / A Kubetzka, P Ferriani, M Bode et al. // *Phys. Rev. Lett.* — 2005. — Vol. 94, no. 8. — P. 087204.
- [142] Bessarab, P. F. Calculations of magnetic states and minimum energy paths of transitions using a noncollinear extension of the Alexander-Anderson model and a magnetic force theorem / Pavel F Bessarab, Valery M Uzdin, Hannes Jónsson // *Phys. Rev. B.* — 2014. — Vol. 89, no. 21. — P. 1–12.
- [143] Pedersen, A. Simulations of hydrogen diffusion at grain boundaries in aluminum / A Pedersen, H Jónsson // *Acta Mater.* — 2009. — Vol. 57, no. 14. — P. 4036–4045.
- [144] Perdew, J. P. Self-interaction correction to density-functional approximations for many-electron systems / J P Perdew, Alex Zunger // *Phys. Rev. B.* — 1981. — Vol. 23, no. 10. — P. 5048–5079.
- [145] Jónsson, H. Simulation of surface processes / H Jónsson // *Proc. Natl. Acad. Sci. USA.* — 2011. — Vol. 108, no. 3. — P. 944–949.

# Благодарности

Автор выражает искреннюю признательность и благодарность своему научному руководителю проф. Уздину В. М. за ценные советы, обучение, работу и поддержку. Автор также выражает благодарность Бессараб П. Ф. и проф. Йонссону Х. за плодотворное сотрудничество и обсуждения работы. Автор благодарит своих родителей Иванову З. Р. и Иванова В. Н., сестру Иванову В. В. и жену Иванову С. за терпение и поддержку.