Физика низких температур, 2002, т. 28, № 6, с. 667–670

Краткие сообщения

Особенности намагничивания антиферромагнетика с одноионной анизотропией типа «легкая плоскость» и со спинами ионов $S = 1$

В. М. Калита[1], И. М. Иванова[2], В. М. Локтев[3]

[1] *Институт физики НАН Украины, пр. Науки, 46, г. Киев, 03028, Украина*

[2] *Национальный университет им. Тараса Шевченко, пр. Глушкова, 6, г. Киев, 03022, Украина*

[3] *Институт теоретической физики им. Н. Н. Боголюбова НАН Украины*
ул. Метрологическая, 14,б, г. Киев, 03143, Украина
E-mail: vloktev@bitp.kiev.ua

Статья поступила в редакцию 18 января 2002 г.

Предложена теория двухступенчатого фазового перехода из синглетного в ферромагнитное состояние в системах типа ABX_3. Показано, что переход определяется существенной перестройкой одноионного спектра. Рассчитаны критические поля и магнитная восприимчивость.

Запропоновано теорію двоступеневого фазового перетворення з синглетного в феромагнітний стан в системах типу ABX_3. Показано, що перехід визначається суттєвою перебудовою одноіонного спектра. Розраховано критичні поля та магнітну сприйнятливість.

PACS: **75.10.–b**

Введение

В последнее время наблюдается значительный интерес к многоподрешеточным гексагональным антиферромагнетикам (АФМ) типа ABX_3 с решеткой $CsNiCl_3$, в которых спины магнитных ионов B^{2+} формируют, с одной стороны, АФМ цепочки вдоль оси C_6, а с другой — треугольные структуры в базисной плоскости (см. обзоры [1,2]). Треугольная легкоплоскостная структура Локтева в криокристалле β-O_2 [3] достаточно хорошо изучена, но в этой системе константа внутримолекулярной анизотропии существенно меньше обменной, что не позволяет причислить его к квантовым магнетикам. Последние имеют анизотропию одночастичного происхождения, величина которой сравнима или превосходит величины обменных взаимодействий [4]. Необходимые соотношения выполняются для АФМ $CsFeBr_3$, в котором при величине псевдоспина иона Fe^{2+} S=1 константа одноионной анизотропии $D \approx (20–30)$ К, а обменные взаимодействия $J_{\rm ch}$ для ближайших ионов, относящихся к двум соседним плоскостям, равны (3–5) К и для таких же ионов в базисных плоскостях $J_{\rm pl} \approx (0{,}3–0{,}4)$К [5–8]. При таких значениях параметров в АФМ реализуется синглетное спиновое состояние. Другими словами, из трех возможных одноионных спиновых состояний с проекциями на ось C_6 и $S_z = \pm 1$ и 0 нижайшим является последнее, превращая этот кристалл в фактически немагнитный.

При помещении такого АФМ во внешнее магнитное поле **H** происходит взаимное изменение последовательности уровней и нижайшим (основным) становится одно из состояний триплета с не равной нулю проекцией спина. При этом действие магнитного поля вызывает переход из немагнитной фазы в магнитную.

Сведения о роде такого перехода, который для $\mathbf{H} \parallel C_6$ обсуждался в [5], противоречивы. В работах [9,10] он отнесен ко II роду, а в [11–13] — к I роду. Эксперимент, проведенный в [5], не дает возможности сделать однозначный вывод, тем не менее цель этого сообщения состоит в последовательном изучении поведения кристалла $CsFeBr_3$ в продольном магнитном поле. Кривые намагничивания, приведенные в [5], указывают на последовательность двух фазовых переходов (ФП) II рода: из синглетного состояния в угловую фазу (УФ) и из нее в ферромагнитную (ФМ). В настоящей работе рассмотрена теоретическая модель описания таких ФП и определены условия их протекания. В отличие от [5] развиваемая нами теория содержит вариационные параметры, к которым относятся физические наблюдаемые величины спинов подрешеток и углы их ориентаций.

Модель

Ограничимся рассмотрением билинейных изотропных обменных взаимодействий, одноионной анизотропии и зеемановского вклада. В этом случае гамильтониан может быть записан в виде

$$H = \frac{1}{2}\sum_{\mathbf{n}\alpha,\mathbf{m}\beta} J_{\alpha\beta}\mathbf{S}_{\mathbf{n}\alpha}\mathbf{S}_{\mathbf{m}\beta} + D\sum_{\mathbf{n}\alpha}(S^z_{\mathbf{n}\alpha})^2 - h\sum_{\mathbf{n}\alpha} S^z_{\mathbf{n}\alpha}\,, \quad (1)$$

где α, β — номера магнитных подрешеток, количество которых равно шести, причем $\alpha \neq \beta$; $\mathbf{n}$, $\mathbf{m}$ — векторы, задающие позиции спинов в подрешетках; константа D положительна, что отвечает анизотропии типа «легкая плоскость». Поле $h = \mu_\beta g H$ определено в энергетических единицах и направлено перпендикулярно легкой плоскости вдоль оси $Z \parallel C_6$. При такой ориентации поля спины разных по отношению к оси Z подрешеток будут одинаковым образом скашиваться к нему. В кристалле $CsFeBr_3$ обменное взаимодействие анизотропно в пространстве, т.е. зависит от положения спинов в решетке. Так, $J_{\rm pl}$ в легкой плоскости отличается по величине от обменного взаимодействия $J_{\rm ch}$ в направлении трудной оси (направлении цепочек). С учетом особенностей структуры обменный параметр $J_{\rm ch}$ в направлении трудной оси стремится установить антипараллельную ориентацию ближайших спинов в соседних плоскостях, а $J_{\rm pl}$ ориентирует ближайшие в легкой плоскости спины под углом, равным $2\pi/3$.

Анализ гамильтониана (1) проведем, используя приближение самосогласованного поля, когда пренебрегают действием межспиновых флуктуаций и среднее от произведения операторов спинов равно произведению средних. В этом случае энергия основного состояния $E_{\rm gr}$ в расчете на одну ячейку (для спинов, относящихся к разным подрешеткам, — трех в одной плоскости и трех в соседней) будет равна

$$E_{\rm gr} = \frac{1}{2}\sum_{\alpha\beta} J_{\alpha\beta}\, z_{\alpha\beta}\, \mathbf{s}_\alpha \mathbf{s}_\beta + D\sum_\alpha Q_\alpha - h\sum_\alpha s^z_\alpha\,, \quad (2)$$

где $\mathbf{s}_\alpha$ — средние значения спинов ионов подрешеток; $z_{\alpha\beta}$ — число ближайших соседей, которое для спинов одной плоскости равно трем, а для спинов из двух соседних плоскостей — двум, а также введены средние значения от квадратов Z-х проекций операторов спинов, которые в литературе принято называть компонентами квадрупольного спинового момента Q_α.

Введем для спинов каждой подрешетки собственные системы координат ξ_α, η_α, ζ_α, такие, чтобы направление среднего спина α-й подрешетки было ориентировано вдоль оси ζ_α, а ось ξ_α лежала в плоскости $Z\zeta_\alpha$. Тогда в собственной системе координат волновая функция основного спинового состояния подрешетки с номером α будет иметь вид [4]

$$\Psi = \cos\phi_\alpha\,|1\rangle + \sin\phi_\alpha|-1\rangle\,, \quad (3)$$

где $|\pm 1\rangle$, $|0\rangle$ — собственные функции оператора $S^\zeta_{\mathbf{n}\alpha}$. С учетом (3) рассчитаем средние значения спина и компонент квадрупольного спинового момента

$$s = \cos 2\phi\,,\quad Q^{\zeta\zeta} = 1\,,\quad Q^{\xi\xi} = \frac{1}{2}(1 + \sin 2\phi)\,. \quad (4)$$

В выражениях для средних (4) опущены индексы номеров подрешетки, поскольку в выбранном подходе приведенные величины не зависят от α. Энергия (2) с использованием (4) приобретает вид

$$E_{\rm gr} = 9J_{\rm pl}\cos^2 2\phi\,(3\cos^2\theta - 1) + 6J_{\rm ch}\cos^2 2\phi\,(2\cos^2\theta - 1) + 6D\left(\cos^2\theta + \frac{\sin^2\theta}{2}(1 + \sin 2\phi)\right) - 6h\cos 2\phi\cos\theta\,, \quad (5)$$

где θ — угол между спинами подрешетки и магнитным полем $\mathbf{H}$, равный углу между кристаллографической и собственными осями ζ_α. Заметим, что в работе [5] также найдена и минимизирована энергия основного состояния кристалла. Однако выбранные волновые функции в [5] записаны в отличие от (3) в общем виде, относящемся к кристаллографической, а не собственной системе координат, и тем самым содержат параметры вращения векторов $|\pm 1\rangle$ и $|0\rangle$ в гильбертовом пространстве, что приводит к сложно интерпретируемой связи между наблюдаемыми и рассчитываемыми (вариационными) параметрами.

Уравнения состояний и их анализ

Спиновые конфигурации, определяющие основное состояние в разных возможных фазах и их взаимное превращение в магнитном поле, определим из уравнений, которые получим, минимизируя энергию (5) по ϕ и θ:

$$-\cos 2\phi \sin 2\phi \,[6J_{\rm pl}(3\cos^2\theta - 1) + 4J_{\rm ch}(2\cos^2\theta - 1)] +$$

$$+ D\sin^2\theta\cos 2\phi + 2h\sin 2\phi\cos\theta = 0, \quad (6)$$

$$-\cos\theta\sin\theta\,[(9J_{\rm pl} + 4J_{\rm ch})\cos^2 2\phi + D(1 - \sin 2\phi)] +$$

$$+ h\cos 2\phi\sin\theta = 0\,. \quad (7)$$

Полученные уравнения могут быть сведены к уравнениям для определения основного состояния, полученным Островским и одним из авторов [4], используя искусственную процедуру самосогласования. Уравнения (6), (7) дают те же решения, тем не менее они более предпочтительны, так как позволяют определить устойчивость фаз.

Проанализируем решения системы уравнений (6), (7). Первое из них отвечает ФМ состоянию и реализуется, когда выполняются равенства $\sin\theta = 0$, $\sin 2\phi = 0$. В этом случае спины подрешеток направлены вдоль поля, их величины максимальны и равны $s = S = 1$. Это так называемая парафаза, в ней продольная магнитная восприимчивость χ_{zz} равна нулю.

Второе решение отвечает трехподрешеточному в плоскости АФМ состоянию со структурой Локтева [3]. Оно выполняется, когда $\cos\theta = 0$, а $\sin 2\phi = -D/(6J_{\rm pl} + 4J_{\rm ch})$. Это решение возможно только при отсутствии магнитного поля.

В соответствующей 120°-й структуре величины спинов одинаковы и сокращены, так что $s = \sqrt{1 - D^2/(6J_{\rm pl} + 4J_{\rm ch})^2}$.

Третье решение относится к УФ, в которой также величина $s \le 1$. Из уравнения (7) непосредственно получаем, что угол между спином подрешетки и **H** нелинейно зависит от величины поля:

$$\cos\theta = \frac{h\cos 2\phi}{(9J_{\rm pl} + 4J_{\rm ch})\cos^2 2\phi + D(1 - \sin 2\phi)}\,. \quad (8)$$

По мере возрастания поля скос спинов к полю возрастает и соответственно растет величина s.

Поле перехода от УФ к состоянию, когда все спины схлопнуты и ориентированы перпендикулярно легкой плоскости, определим, подставляя равенства $\cos\theta = 1$ и $\cos 2\phi = 1$ в выражение (8) для угла скоса. Получим $h_{\rm flip} = 9J_{\rm pl} + 4J_{\rm ch} + D$, что согласуется с выражением для поля схлопывания, приведенным в [5]. Видно, что величина поля схлопывания аддитивна по величинам анизотропии и обменов, хотя физические механизмы их действия различны.

С учетом выражений (4) для спинов подрешеток в собственных системах координат найдем магнитную восприимчивость в УФ:

$$\chi_{zz} = -2\sin 2\phi\cos\theta\,\frac{\partial\phi}{\partial h} - \cos 2\phi\sin\theta\,\frac{\partial\theta}{\partial h}\,. \quad (9)$$

При этом производные по полю в (9) можно рассчитать, используя уравнения (6) и (7).

В начале процесса скоса спинов при введении малых магнитных полей $h \to 0$, когда основным является второе решение, величина χ_{zz} в УФ будет определяться выражением

$$\chi_{zz}\big|_{h=0} =$$

$$= \frac{(6J_{\rm pl} + 4J_{\rm ch})^2 - D^2}{(9J_{\rm pl} + 4J_{\rm ch})(6J_{\rm pl} + 4J_{\rm ch})^2 - 3J_{\rm pl}D^2 + D(6J_{\rm pl} + 4J_{\rm ch})^2}. \quad (10)$$

Из (10) видно, что в случае большой величины D при выполнении неравенства $D > 6J_{\rm pl} + 4J_{\rm ch}$ величина χ_{zz} становится отрицательной. Следовательно, при таком соотношении констант гамильтониана АФМ 120°-я фаза теряет устойчивость.

Наконец, возможно еще одно, четвертое, решение, которое определяется равенствами $\cos\theta = 0$ и $\cos 2\phi = 0$. Оно может реализоваться как при ненулевых магнитных полях, так и при $h = 0$. Сокращение величин спинов в этом состоянии максимально ($s = 0$), при этом $\sin 2\phi \approx -1$. Это так называемое синглетное состояние [14], в котором магнитный порядок характеризуется спиновым квадрупольным моментом. В синглетном состоянии средние значения спинового квадрупольного момента одинаковы для всех направлений в легкой плоскости, а из-за обращения в нуль величины s направления осей квантования становятся неопределенными в плоскости. Поскольку энергия этого состояния не зависит от величины h, магнитная восприимчивость в нем, определенная вдоль поля, также будет равна нулю.

Действительно, рассчитаем вторые производные от энергии (5) для синглетного состояния. Получим,что $\partial^2 E_{\mathrm{gr}}/\partial\phi^2 = -12(6J_{\mathrm{pl}} + 4J_{\mathrm{ch}}) + 12D$, $\partial^2 E_{\mathrm{gr}}/\partial\theta^2 = 12D$, $\partial^2 E_{\mathrm{gr}}/\partial\phi\,\partial\theta = 12h$, при этом граница области его устойчивости определяется из условия обращения в нуль выражения для $\partial^2 E_{\mathrm{gr}}/\partial\phi^2$ и якобиана:

$$\frac{\partial^2 E_{\mathrm{gr}}}{\partial\phi^2}\frac{\partial^2 E_{\mathrm{gr}}}{\partial\theta^2} - \left(\frac{\partial^2 E_{\mathrm{gr}}}{\partial\phi\partial\theta}\right)^2 =$$

$$= 144(D^2 - D(6J_{\mathrm{pl}} + 4J_{\mathrm{ch}}) - h^2) = 0\ . \qquad (11)$$

В итоге приходим к тому, что устойчивость синглетного состояния сохраняется, когда $D > 6J_{\mathrm{pl}} + 4J_{\mathrm{ch}}$ и поле h меньше критического h_{QP}, где

$$h_{QP} = \sqrt{D^2 - D\,(6J_{\mathrm{pl}} + 4J_{\mathrm{ch}})}\ . \qquad (12)$$

Восприимчивость (9) в УФ, определенная в нулевом поле при $D \ge 6J_{\mathrm{pl}} + 4J_{\mathrm{ch}}$, изменяет знак, что указывает на потерю устойчивости. Можно показать, что при $D > 6J_{\mathrm{pl}} + 4J_{\mathrm{ch}}$ и малой величине разности $D - (6J_{\mathrm{pl}} + 4J_{\mathrm{ch}})$ в поле, равном h_{QP}, происходит ФП II рода из квадрупольного спинового состояния в УФ. При этом величина поля h_{QP} меньше величины поля схлопывания h_{flip}, а намагниченность системы при $h = h_{QP}$ изменяется непрерывно. В полях $h \ge h_{QP}$ намагниченность, начиная с нулевого значения, непрерывно увеличивается по мере возрастания поля. В области полей $h \ge h_{\mathrm{flip}}$ она достигает максимально возможного значения и ее рост прекращается. Таким образом, в полях $h \le h_{QP}$ и $h \ge h_{\mathrm{flip}}$ восприимчивость будет равной нулю в УФ и иметь ненулевое значение в интервале полей $h_{QP} \le h \le h_{\mathrm{flip}}$. В точках ФП II рода из квадрупольного спинового состояния в УФ и из УФ и ФМ состояние χ_{zz} изменяется, испытывая скачок. Именно такое поведение намагничивания и восприимчивости обнаружно экспериментально в [5]. Если величина $D - (6J_{\mathrm{pl}} + 4J_{\mathrm{ch}})$ положительна и не мала, то теоретическое рассмотрение усложняется и требует численного анализа. При этом нельзя исключать возможности переходов I рода из синглетной фазы в УФ или непосредственно в ФМ фазу. Соответствующие примеры будут рассмотрены отдельно.

Работа выполнена при частичной поддержке Фондом фундаментальных исследований Украины (проект Ф7/514–2001).

1. M. F. Collins and O. A. Petrenko, *Can. J. Phys.* **75**, 605 (1997).
2. Б. С. Думеш, *УФН* **170**, 403 (2000).
3. В. М. Локтев, *ФНТ* **5**, 295 (1979).
4. В. М. Локтев, В. С. Островский, *ФНТ* **20,** 983 (1994).
5. Y. Tanaka, Y. Tanaka, and T. Ono, *Preprint cond-mat/0104287* (2001).
6. B. Dorner, D. Visser, U. Stiegenberger, K. Kakurai, and N. Steiner, *Z. Phys.* **B72**, 487 (1988).
7. D. Visser and A. Harrison, *J. Phys.* (*Paris*) **49,** C8, 1467 (1988).
8. A. Harrison and D. Visser, *J. Phys.*: *Condens. Matter* **4**, 6977 (1992).
9. Y. Kawamura, *J. Phys. Soc. Jpn.* **61**, 1299 (1992).
10. Y. Kawamura, *J. Phys.*: *Condens. Matter* **10,** 4707 (1998).
11. Y. Kadowaki, S. M. Shapiro, T. Inami, and Y. Ajiro, *J. Phys. Soc. Jpn.* **57**, 2640 (1998).
12. Y. Ajiro, T. Nakashima, Y. Uno, Y. Kadowaki, M. Mekata, and N. Achiwa, *J. Phys. Soc. Jpn.* **57**, 2648 (1988).
13. T. E. Mason, B. D. Gaulin, and M. F. Collins, *Phys. Rev.* **B39**, 586 (1989).
14. А. К. Звездин, В. М. Матвеев, А. А. Мухин, А. И. Попов, *Редкоземельные ионы в магнитоупорядоченных кристаллах*, Наука, Москва (1985).

Peculiarities of magnetization of an antiferromagnet with single-ion anisotropy of the «easy plane» type and ion spins $S = 1$

V. M. Kalita, I. M. Ivanova, and V. M. Loktev

A theory of two-step phase transition from the singlet state to a ferromagnetic one for systems of the ABX_3 type is proposed. It is shown that the transition is defined by a fundamental rearrangement of the single-ion spectrum. The critical fields and magnetic susceptibility are calculated.