

УДК 538.355, 537.622

МАГНИТНЫЕ СВОЙСТВА АНТИФЕРРОМАГНЕТИКА С ОДНООСНОЙ АНИЗОТРОПИЕЙ И ТРЕУГОЛЬНОЙ РЕШЕТКОЙ

С. С. Аплеснин

Методом Монте-Карло в классической модели Гейзенберга вычисляются фазовые диаграммы антиферромагнетика с треугольной решеткой и одноосной анизотропией типа «легкая ось» и анизотропным обменом $\mathcal{J}^z = \mathcal{J}^y = 2\mathcal{J}^x$ на плоскости константа анизотропии—температура. Для трех констант анизотропии $D=0.07\mathcal{J}$, $D=0.5\mathcal{J}$, $D=2\mathcal{J}$ построены фазовые диаграммы в магнитном поле в переменных поле—температура. Определены магнитная структура и диаграмма состояний одноосного антиферромагнетика с антиферромагнитным $K=0.2\mathcal{J}$ и ферромагнитным $K=-0.2\mathcal{J}$ взаимодействием по второй координационной сфере для произвольных констант анизотропии.

Антиферромагнетики с треугольной решеткой имеют фрустрированные связи, что приводит к вырождению в магнитной системе и необычным магнитным свойствам. Использование самосогласованного приближения молекулярного поля (МП) [1, 2] или разложение по параметру порядка [3] для небольших констант анизотропий дает два перехода, вызванных очередным разрушением порядка по поперечным и продольным компонентам спина. С ростом анизотропии остается один переход по продольной компоненте спина, включая предельный случай модели Изинга. Однако для двумерной модели Изинга [4] известно точное решение об отсутствии фазового перехода для температур, отличных от нуля. В приближении МП пренебрегается спин-спиновыми корреляциями и вырождением в системе, что приводит к неверным результатам. Естественно возникает вопрос о справедливости полученного решения МП для небольших величин анизотропий.

С учетом корреляций фрустрированный АФМ решался численным методом в ХУ-модели [5, 6] и в изотропной модели Гейзенберга [7]. В модели Изинга определялись температуры перехода АФМ с ферромагнитным обменным взаимодействием во второй координационной сфере [8, 9].

Цель данной работы состоит в определении магнитной структуры АФМ с фрустрированными связями и температуры фазовых переходов между ними в зависимости от радиуса обменного взаимодействия и величины анизотропии, обнаружении характерных закономерностей процессов намагничивания во внешнем поле с учетом существующих спин-спиновых корреляций. Данная задача решается методом численного моделирования с использованием процедуры Монте-Карло.

1. Модель

Рассмотрим АФМ с двумя типами анизотропий: с анизотропными обменными взаимодействиями, снимающими вырождение в базисной плоскости, и одноосной анизотропией

$$H = - \sum_{ij} [\mathcal{J}_{ij} (S_i^z S_j^z + S_i^y S_j^y) + \mathcal{J}_{ij}^x S_i^x S_j^x] - \sum_i D_i (S_i^z)^2 \quad (1a)$$

и с изотропным обменом в 1-й и 2-й координационных сферах и одноосной анизотропией

$$H = - \sum_{i,j} \mathcal{J}_{i,j} S_i S_j - \sum K_{i,j} S_i S_j - \sum_i D_i (S_i^z)^2 - \sum_i H_i^z (S_i^z), \quad (16)$$

где $\mathcal{J}_{i,j} < 0$ — АФМ взаимодействие между ближайшими соседями ($\mathcal{J}^x/\mathcal{J}^y = 2$); $K = \pm 0.2$ — обменное взаимодействие во второй сфере; $D > 0$ ($D = d |\mathcal{J}|$) — константа одноосной анизотропии типа «легкая ось»; $H = |\mathcal{J}| H^z$ — магнитное поле вдоль оси анизотропии; $S = S_0/\sqrt{S_0(S_0+1)}$. Все используемые величины: энергия $\epsilon = E/N\mathcal{J}S_0(1+S_0)$, теплоемкость $C = \tilde{C}\mathcal{J}/N$, температура $T = \tilde{T}/k_B\mathcal{J}S_0(S_0+1)$, расстояние $r = \tilde{r}/a$ (a — постоянная решетки), намагниченность m даны в безразмерных единицах. В вычислениях используем метод Монте-Карло с периодическими граничными условиями на решетке 30×30 и 48×48 .

Для определения магнитной структуры и температуры перехода между ними вычислим среднее абсолютное значение спина на узле $q^2 = 1/N \times \sum_{i=1}^N \langle S_i^z \rangle^2$, спин-спиновые корреляционные функции продольных и поперечных компонент спина $R^\alpha(r) = \langle S^\alpha(0) S^\alpha(r) \rangle$ ($\alpha = x, y, z$) в направлении OX и OY , теплоемкость, топологическую картину проекций спинов на осях OZ , OX и OY , суммарный магнитный момент вдоль оси OZ m и в плоскости $m^x = 1/N \cdot \sum_i (\langle S_i^x \rangle + \langle S_i^y \rangle)$.

2. Одноосный АФМ с анизотропным взаимодействием

Магнитный момент АФМ, описываемого гамильтонианом (1а), в основном состоянии расположен в плоскости ZX . Слабая величина одноосной анизотропии приводит к угловой конфигурации спиновых моментов; так, для $d=0.1$ угол наклона к оси OZ составляет около 75° . При повышении температуры дальний порядок по продольным спиновым компонентам исчезает, но сохраняется порядок по поперечным компонентам, который исчезает при более высокой температуре. Для $d < 1$ существует область солитонных спиновых состояний (CX), спин-спиновая корреляционная функция имеет осциллирующий затухающий вид. Дальний порядок в этой фазе отсутствует. С ростом анизотропии температуры двух фазовых переходов сближаются и для $d=1.7$ $T_{N1} = T_{N2}$. Для $d > 1.7$ при температуре T_{N1} исчезает порядок по поперечным компонентам, а при T_{N2} — по продольным. При $d \geq 3$ поперечные компоненты спинов исчезают, гамильтониан имеет изингоподобный вид с новой симметрией параметра порядка Z_6 . В этой фазе дальний порядок отсутствует. Продольные компоненты спинов образуют одномерные микродомены размером 16—32 постоянных решетки, внутри которых существует развитый ближний порядок. Можно выделить три характерных типа солитонов, направленных вдоль OY и с медленно меняющейся точкой пересечения смены знака спина вдоль OX . Схематическое изображение проекций спинов на OZ дано на рис. 1. Между микродоменами существует ближний порядок. Спин-спиновая корреляционная функция по продольным компонентам имеет осциллирующий затухающий вид от расстояния. Период осцилляции много больше постоянной решетки. Микродомены имеют динамическую природу, так как использование в процедуре МК разных исходных конфигураций спинов приводит к их образованию в разных областях плоской треугольной решетки, хотя энергии полученных спиновых конфигураций совпадают. Увеличение числа МК шагов на порядок не приводит к перемещению солитонов и микродоменов из одной области решетки в другую, т. е. они имеют малую скорость движения. Модуль термодинамического среднего спина в этой фазе $q^z > 0$ и его величина растет с ростом константы анизотропии; так, для $d=5$ $q^z=0.3$. Разрушение развитого ближнего порядка

в микродоменах приводит к образованию широкого максимума теплоемкости и $q^z \rightarrow 0$. Корреляционный радиус также имеет максимум при этой температуре. Магнитное состояние определим как солитонный парамагнетик (СПМ), который по температуре переходит в парамагнитное состояние (ПМ).

Рассмотрим АФМ в модели (16) с обменным взаимодействием в 1-й координационной сфере и в нулевом внешнем поле. Непрерывное вырождение по продольному параметру порядка снимается в основном состоянии в интервале $0 < d \leq 1.5$, зеркальная симметрия Z_6 нарушается. Магнитное упорядочение по продольным компонентам спина отличается от структуры сильноанизотропного АФМ с $d > 1.5$. Например, одна из возможных структур для АФМ с $d > 1.5$ изображена на рис. 1, б. Из нее можно получить другую спиновую конфигурацию, поворачивая

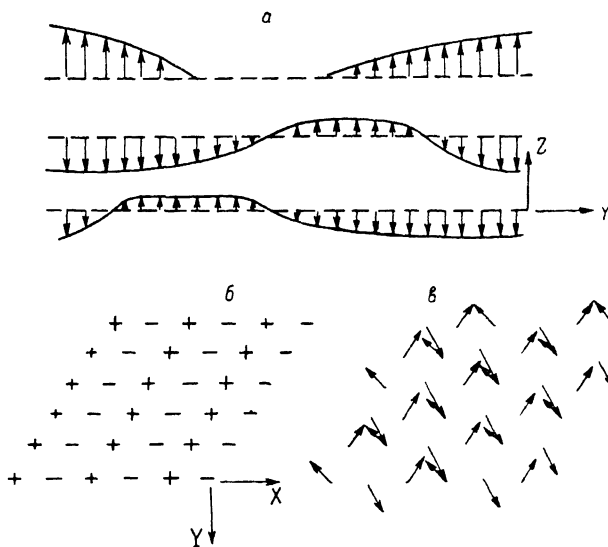


Рис. 1. Три характерных типа микродоменов и солитонов в СПМ вдоль оси OY (а), направление изинговских спинов $S^z=1$ (+), $S^z=-1$ (-) (б), гейзенберговских на треугольной решетке (в).

всю цепочку вдоль осей OX , OY или по диагонали. Энергия при этом не меняется. Для АФМ с $d < 1.5$ (рис. 1, в) такие преобразования отсутствуют. В слабоанизотропном АФМ можно выделить три подрешетки, в одной спины направлены вдоль оси анизотропии, в двух других наклонены под некоторым углом, зависящим от величины анизотропии. Поперечные компоненты спина образуют сотовую ячейку. Отклонение магнитного момента от оси анизотропии приводит к случайным фрустрированным связям и к дестабилизации порядка по поперечным компонентам спина. Рост анизотропии уменьшает величину фрустрированных связей и соответственно эффективную константу взаимодействия между поперечными спиновыми компонентами. Эти процессы по-разному действуют на разрушение порядка. В первом случае температура фазового перехода увеличивается, а во втором уменьшается. В зависимости от того, какой механизм преобладает, T_{N1} может расти с ростом анизотропии, затем уменьшаться. Температуру перехода T_{N1} определяем из острого максимума теплоемкости (рис. 2), обращению в нуль поперечной спин-спиновой корреляционной функции на расстоянии $r=14$, максимуму производной по температуре от q^z и $R^z(r)$. В новой фазе сохраняется ближний порядок по поперечным спиновым компонентам и изменяется тип решетки с магнитным порядком по S^z от гексагональной к сотовой, через центр которой проходят цепочки солитонов.

С ростом температуры продольная спин-спиновая корреляционная функция на расстоянии $r=14$ обращается в нуль, появляется резкий

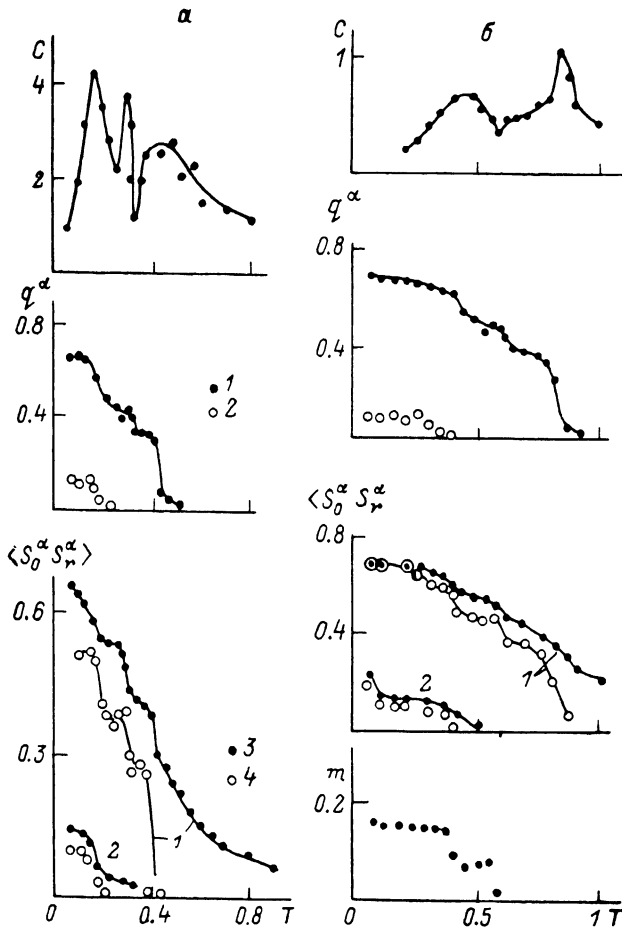


Рис. 2. Зависимость теплоемкости $C=dE/dT$; параметра Эдвардса—Андерсона q^α ($\alpha=z$ (1), x (2)); спин-спиновых корреляционных функций вдоль OY $\langle S^\alpha(0)S^\alpha(r) \rangle$ ($\alpha=z$ (1), x (2)) на расстоянии $r=1$ (3), 14 (4); намагниченности m от температуры в АФМ с $d=1$, $K=0$ (а) и 0.2 (б).

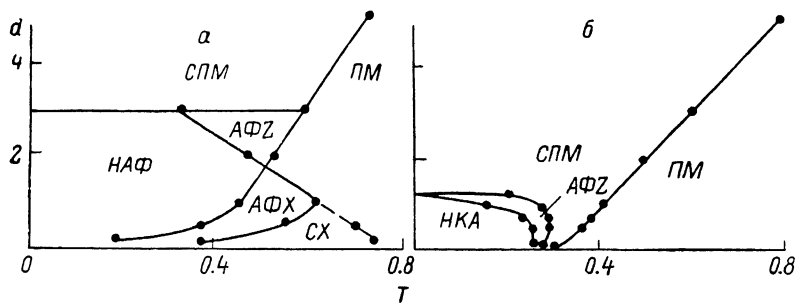


Рис. 3. Магнитные состояния анизотропного АФМ с треугольной решеткой на плоскости константа одноионной анизотропии—температура: неколлинеарный антиферромагнетик (НАФ); смешанная фаза, состоящая из солитонов и дальнего порядка по продольным (АФZ) и поперечным (АФX) компонентам спина; солитонный парамагнетик по продольным (СПМ) и поперечным (СХ) компонентам спина; неколлинеарный АФМ (НКА); парамагнетик (ПМ) с параметрами $2J^z = J^y = J^x$ (а), $J^z = J^y = J^x$ (б).

максимум в теплоемкости при $T = T_{N_2}$. С уменьшением анизотропии область перехода от некопланарного АФМ к ПМ уменьшается и при $d \leq 0.05$ переходит в критическую область фазового перехода. При $d > 1.5$ магнетик состоит из солитонов и микродоменов (описанных выше в (1а)), разрушение ближнего порядка в которых вызывает широкий максимум в температурном поведении теплоемкости. Полученные фазовые диаграммы изображены на плоскости константа анизотропии—температура (рис. 3).

3. Антиферромагнетик с изотропным взаимодействием во 2-й координационной сфере

Наличие обменного взаимодействия во 2-й координационной сфере снимает вырождение основного состояния. В случае АФМ обмена $K < 0$ стабилизируется двухподрешеточная коллинеарная спиновая структура. ХУ фаза не возникает в одноосном АФМ с $d \geq 0.05$. Дальний порядок резко разрушается при повышении температуры. Наблюдается гистерезис по подрешеточной намагниченности, но энергии полученных спиновых конфигураций не совпадают. По-видимому, система находится в метастабильном состоянии и о типе фазового перехода АФМ—ПМ трудно сказать, используя процедуру МК. Возможно, это переход 1-го рода.

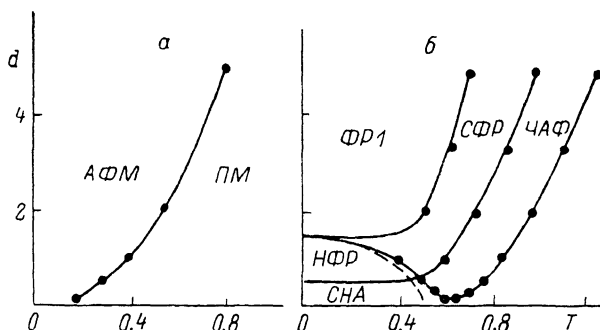


Рис. 4. Фазовая диаграмма АФМ с обменным взаимодействием в 1-й и 2-й координационных сферах на плоскости константа анизотропии—температура с $K = -0.2$ (а); ферримагнетик (ФР1), смесь солитонов и ферримагнитного упорядочения (СФР), частично-разупорядоченный АФМ (ЧАФ), некопланарный ферримагнетик (НФР), смесь солитонов и некопланарного антиферромагнитного упорядочения (СНА) с $K = 0.2$ (б).

АФМ с положительным обменным взаимодействием во 2-й сфере $K > 0$ и с большой величиной анизотропии $d > 1.5$ имеет три последовательных фазовых перехода, так же как и в модели Изинга [8], но с меньшими величинами температур. При $T \rightarrow 0$ реализуется ферримагнитная конфигурация (ФР₁), две подрешетки идентичны и расположенные здесь спины антипараллельны спином третьей подрешетки. При $T > T_{N_1}$ в первой подрешетке образуются солитоны, модуль спина в которых меняется в интервале $0 \leq \langle S^z \rangle \leq 0.8$. В области фазового перехода T_{N_1} теплоемкость имеет максимум, R^z ($r=1$) $>$ R^z ($r=14$) на 15%. В интервале $T_{N_1} < T < T_{N_2}$ теплоемкость, q^z и R^z (r) плавно уменьшаются. При $T = T_{N_2}$ спонтанный момент исчезает, первая подрешетка становится парамагнитной, $q^z \approx 0.4$, теплоемкость слабо зависит от температуры для $T > T_{N_2}$ и при $T = T_{N_3}$ снова имеет максимум. Дальний порядок исчезает R^z ($r=14$) = 0 (рис. 2, б).

При $d < 1.5$ в магнетике образуются некопланарные спиновые структуры. Спины трех подрешеток под разными углами направлены к оси OZ, например для $d=0.5$ $\theta_1 = 76^\circ$, $\theta_2 = 46^\circ$, $\theta_3 = 18^\circ$. Спонтанный момент уменьшается в два раза для $d \approx 1.5$, плавно продолжает уменьшаться с уменьшением поля анизотропии и практически исчезает при $d < 0.5$. Величина спонтанного момента в базисной плоскости сравнима с погрешностью

вычислений $m^x = 0.01 \div 0.03$. Поперечные компоненты спинов в одной подрешетке образуют субтонную структуру с неравномерным изменением спинового момента вдоль осей $O\bar{X}$ и OY , что приводит к анизотропии спин-спиновых корреляционных функций, которые отличаются в 3—5 раз на расстоянии $r=14$, а на $r=1$ $R^x (r=1)/R^y (r=1) = 1.5 \div 2$. С повышением

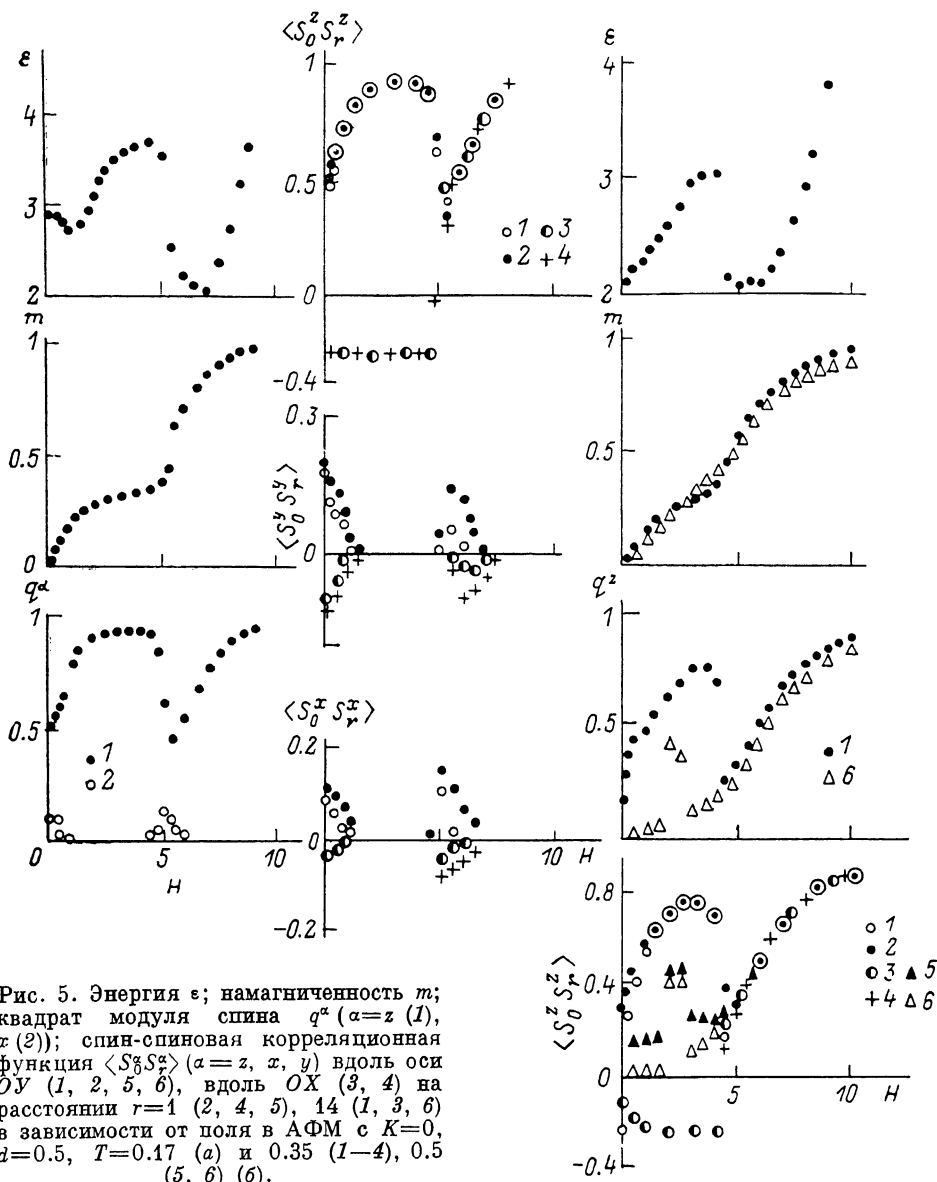


Рис. 5. Энергия ϵ ; намагниченность m ; квадрат модуля спина q^α ($\alpha = z$ (1), x (2)); спин-спиновая корреляционная функция $\langle S_0^\alpha S_r^\alpha \rangle$ ($\alpha = z, x, y$) вдоль оси OY (1, 2, 5, 6), вдоль $O\bar{X}$ (3, 4) на расстояниях $r=1$ (2, 4, 5), 14 (1, 3, 6) в зависимости от поля в АФМ с $K=0$, $d=0.5$, $T=0.17$ (а) и 0.35 (1—4), 0.5 (5, 6) (б).

температуры в некопланарном ферримагнетике (НФР) порядок по перпендикулярным компонентам исчезает поэтапно — сначала на компоненте X (Y), потом по Y (X) (на рис. 4 переход изображен штриховой линией), при этом уменьшается спонтанный момент. Магнитная структура при $d < 0.5$ состоит из двух подрешеток с ферромагнитным упорядочением вдоль оси OY и АФМ вдоль $O\bar{X}$ и солитонов по перпендикулярным компонентам спина в третьей подрешетке; спонтанный момент в этой фазе отсутствует. Переходная область АФМ от некопланарного АФМ (СНА) в парамагнитное при $d \leq 0.01$ смещается в критическую область фазового перехода и проявляется в виде кроссовера критических индексов. Вычисленные фазовые диаграммы приведены на рис. 4.

Чтобы получить общее представление о поведении АФМ с одноосной анизотропией во внешнем магнитном поле, исследуем подробно три случая, включающих переход СПМ—ПМ, НКА—АФЗ—СПМ—ПМ и НКА—АФЗ—ПМ для следующих констант анизотропии: $d=0.07, 0.5$ и 2 . В некопланарном АФМ внешнее магнитное поле подавляет порядок по поперечным компонентам спина и при критическом значении поля H_1 он исчезает, $R^{x(y)}(r=14)=0, q^{x(y)}=0, R^z(r=1)=R^z(r=14)$. На зависимости намагниченности от поля появляется точка перегиба. С ростом поля намагниченности подрешеток растут и при $H=H_2$ достигают насыщения, две из них направлены по полю, а третья против поля. Общая намагниченность равна $m=1/3$ и практически от поля не зависит до некоторого значения H_3 , при котором все подрешетки направлены по полю, причем две из них

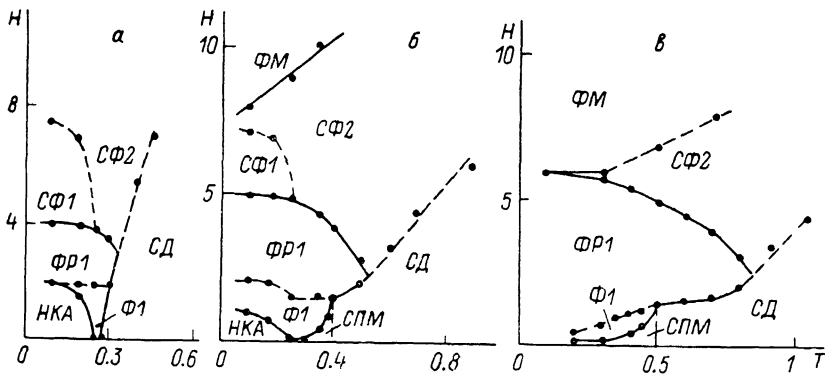


Рис. 6. Фазовые диаграммы АФМ с треугольной решеткой и взаимодействием между ближайшими соседями во внешнем магнитном поле в переменных поле—температура для разных констант анизотропии: некопланарный антиферромагнетик (НКА); ненасыщенный ферримагнетик (Ф1); ферримагнетик (ФР1); спин-флоп фаза с упорядочением по продольным и поперечным компонентам спина (СФ1); только по продольному (СФ2); солитонный парамагнетик (СПМ), индуцированный ферромагнетик (ФМ); фаза с наведенным слабым порядком (СД).

d : а — 0.07 , б — 0.5 , в — 2 .

под углом. При $d < 1.5$ в некопланарном АФМ полем индуцируется топологическая фаза по поперечным компонентам спина, некопланарный ферромагнетик (СФ1).

В окрестности температуры T_{N1} и выше переход по полю из ФР1—СФ1 или в ферромагнитную спин-флоп фазу (СФ2) с упорядочением только по продольным компонентам характеризуется несовпадением векторов дальнего и ближнего порядков выше точки перехода. В поле H_4 все подрешетки коллинеарны, индуцируется ферромагнитная фаза (ФМ). Типичные полевые зависимости термодинамических характеристик даны на рис. 5, а.

В случае высоких температур $T < T^{слм}$ зависимость $m(H)$ в слабых полях имеет небольшой излом при H_1 , в котором поле подавляет солитоны, микродомены сливаются и образуется дальний порядок, характеризующийся корреляционной функцией, не зависящей от расстояния $R^z(r=1)=R^z(r=14)$. Дальнейший процесс намагничивания и возникающие магнитные структуры аналогичны предыдущему случаю. В парамагнитной фазе магнитное поле индуцирует слабый дальний порядок (СД), т. е. $R^z(r=1) \gg R^z(r=14) \neq 0$. Зависимость $m(H)$ линейна в широком интервале полей до $H=H_1$, где образуется ферримагнитная фаза, q^z и $R^z(r=14)$ скачком увеличиваются (рис. 5, б). Для высоких температур линия перехода СД—СФ2 строилась по точке перегиба $m(H)$, $q^z(H)$ и $R^z(H)$. Вычисленные фазовые диаграммы в магнитном поле даны на рис. 6.

На основе исследованных моделей с последовательными фазовыми переходами, обусловленными упорядочением каждой компоненты спинов, объясним магнитные свойства в квазидвумерных АФМ VCl_2 , VBr_2 и VI_2 [10, 11] с нормированной температурой Нееля соответственно $T_N/k_B\mathcal{J} = \approx 1.56, 1.84$ и 2.72 . Так как межплоскостные связи слабо меняются, то увеличение температуры Нееля происходит из-за увеличения одноосной анизотропии (g -фактор изотропен). Для всех этих соединений выше температуры Нееля наблюдается магнитное брэгговское рассеяние порядка 10–25 %, которое сливается с некогерентным рассеянием при более высокой температуре; для VBr_2 появляется дополнительный слабый сателлитный пик выше T_{N1} и исчезает при $\tau = |T_{N1}/T - 1| = 0.05$; для VI_2 острый пик выше T_{N1} при $\tau = 0.15$. Магнитная теплоемкость в окрестности T_{N2} также испытывает дополнительные аномалии, которые сильно выражены для VI_2 , и имеет слабые размытые максимумы теплоемкости для VCl_2 , VBr_2 и VI_2 соответственно при $\tau = 0.07, 0.34$ и 2 . В интервале температур $T_{N1} < T < T_{N2}$ нейтронографические измерения [12] дают коллинеарную спиновую структуру; ниже T_{N1} однозначной трактовки эксперимента нет [12]. Критический индекс для теплоемкости в VBr_2 при $0.008 \leq \tau \leq 0.03$ равен нулю, что характерно для двумерной модели Изинга. Все эти свойства прекрасно объясняются в модели (16) с $K=0, d \approx 0.8, \approx 0.2, \approx 0.1$.

В ы в о д ы

Антиферромагнетик с одноосной анизотропией и треугольной решеткой при $D < 1.5\mathcal{J}$ имеет два фазовых перехода: 1) топологический переход по поперечным компонентам спина совместно с перестройкой магнитной решетки из гексагональной в сотовую; 2) вызван разрушением порядка по продольной спиновой компоненте в новой решетке. Для $D > 1.5\mathcal{J}$ существует динамическая магнитная структура с развитым ближним порядком, состоящая из солитонов; дальнего магнитного порядка нет.

Для $D > 1.5\mathcal{J}$ зависимость магнитного момента от поля имеет выпуклый вид и становится вогнутой для $D/J < 1.5$. Антиферромагнитная область с упорядочением по продольным компонентам в интервале температур $T_{N1} < T < T_{N2}$ увеличивается в магнитном поле. Причем когда существует фаза солитонный парамагнетик, то зависимость температуры фазового перехода от поля асимметрична $dT_{N1}(H)/dH > dT_{N2}(H)/dH$. В сильных полях в АФМ с $d < 1.5$ и $T < T_{N1}$ снова образуется топологическая фаза по поперечным компонентам спина.

Антиферромагнитное обменное взаимодействие во второй координационной сфере стабилизирует коллинеарную спиновую структуру для всех констант анизотропий $d \geq 0.05$. Ферромагнитное взаимодействие формирует ферромагнитную структуру с тремя последовательными переходами для $d > 0.5$ и антиферромагнитную трехподрешеточную структуру с солитонами по поперечным компонентам спина в одной из подрешеток и с двумя переходами для $d \leq 0.5$.

Автор выражает благодарность Г. А. Петраковскому и А. Ф. Садреву за ценные замечания, возникшие при обсуждении результатов.

С п и с о к л и т е р а т у р ы

- [1] Kikuchi R., Kokubun H., Katsura S. // J. Phys. Soc. Jap. 1986. V. 55. N 6. P. 1836—1845.
- [2] Uezu T., Kawasaki K. // J. Phys. Soc. Jap. 1987. V. 56. N 3. P. 918—932.
- [3] Xiaodong Zhu, Walker M. B. // Phys. Rev. B, 1987. V. 36. N 7. P. 3830—3832.
- [4] Wannier G. H. // Phys. Rev. B. 1976. V. 7. N 11. P. 5017—5026.
- [5] Kawamura H. // J. Phys. Soc. Jap. 1986. V. 55. N 7. P. 2095—2098.
- [6] Teitel S., Jayaprakash C. // Phys. Rev. B. 1983. V. 27. N 2. P. 598—608.
- [7] Kawamura H., Miyashita S. // J. Phys. Soc. Jap. 1984. V. 53. N 1. P. 9—19.
- [8] Mekata M., Adachi K. // J. Phys. Soc. Jap. 1977. V. 42. N 1. P. 76—91.
- [9] Fujiki S., Shuton K., Abe Y., Katsura S. // J. Phys. Soc. Jap. 1983. V. 52. N 5. P. 1531—1540.

- [10] Takeda K., Uryo N., Ubukoshi K., Hirakawa K. // J. Phys. Soc. Jap. 1986. V. 55. N 3. P. 727—730.
- [11] Hirakawa K., Kadowaki H., Ubukoshi K. // J. Phys. Soc. Jap. 1983. V. 52. N 5. P. 1814—1824.
- [12] Kuindersma S. K., Haas C., Sanches J. P., Al R. // Sol. St. Comm. 1979. V. 30. N 3. P. 403—408.

Институт физики им. Л. В. Киренского
СО АН СССР
Красноярск

Поступило в Редакцию
1 июня 1988 г.
В окончательной редакции
11 апреля 1989 г.

