ЖЭТФ, 1997, том 111, вып. 2, стр. 627–643

ТРЕУГОЛЬНЫЕ АНТИФЕРРОМАГНЕТИКИ СО СЛОИСТОЙ СТРУКТУРОЙ В ОДНОРОДНОМ ПОЛЕ

Р. С. Гехт, И. Н. Бондаренко

Институт физики им. Л. В. Киренского
Сибирского отделения Российской академии наук
660036, Красноярск, Россия

Поступила в редакцию 24 апреля 1996 г.

Исследуются магнитные состояния и фазовые переходы в слоистых треугольных антиферромагнетиках. Показано, что в соединениях типа VBr_2, VCl_2 квантовые эффекты меняют структуру основного состояния и вызывают при повышении магнитного поля последовательные переходы. Установлено, что планарные структуры с различной спиновой конфигурацией реализуются вдали от поля насыщения, а непланарная структура зонтичного типа — вблизи этого поля. Построена фазовая диаграмма основного состояния и указана конечная область полей, где коллинеарная фаза также возможна.

1. ВВЕДЕНИЕ

Спиновые системы на треугольных решетках широко исследуются в настоящее время [1–7]. Хорошо известно, что из-за эффектов фрустраций даже системы с чрезвычайно простым основным взаимодействием проявляют богатое разнообразие фаз и фазовых переходов. В галоидных соединениях $3d$-переходных металлов BX_2 с кристаллической структурой CdI_2 (пространственная группа $P\bar{3}m1$) магнитные ионы лежат в треугольных слоях, перпендикулярных оси c, а сами слои образуют гексагональную решетку в направлении c [8]. Согласно нейтронографическим данным [9, 10], в таких веществах как VX_2 (X = Br, Cl) взаимодействия внутри и между слоями антиферромагнитные. Ниже температуры перехода T_N меньшей 40 К спины в слое образуют 120-градусную структуру, которая не меняется вплоть до самых низких температур [11, 12, 6]. Системы VX_2 можно описывать гейзенберговскими спинами: g-фактор ионов ванадия в пределах точности резонансных измерений [13] изотропен.

Магнитное поле во фрустрированных системах вызывает много интересных эффектов (см., например, [14]). Часто эти эффекты можно объяснить с классических позиций. Однако в системах с нетривиальным непрерывным вырождением существенно влияние квантовых флуктуаций [5]. Последние могут не только снять имеющееся вырождение, но и могут в результате конкуренции с другими взаимодействиями изменить сам характер структуры.

Задача данной работы — исследование возможных структур в соединениях типа VBr_2, VCl_2. В обычных треугольных антиферромагнетиках квантовые флуктуации не меняют во внешнем магнитном поле состояние с непланарной спиновой конфигурацией. В соединениях же типа VX_2, где соседние слои V^{2+} разделены двумя слоями X^-, межплоскостной обмен J' на два порядка меньше внутриплоскостного J [9, 10] и потому энергия нулевых колебаний может превысить энергию взаимодействия между слоями. В результате непланарное состояние меняется на планарное, причем сама планарная конфигурация с возрастанием поля также меняется (возможны четыре планарные и одна коллинеарная фазы при фазовых переходах по полю). Рассматриваемая здесь задача описывается следующим гамильтонианом:

$$\mathscr{H} = 2J \sum_{\langle ij\rangle n} \mathbf{S}_{in}\mathbf{S}_{jn} + 2J' \sum_{in} \mathbf{S}_{in}\mathbf{S}_{in+1} - \mu\mathbf{H} \sum_{in} \mathbf{S}_{in}, \qquad (1)$$

где суммирование по $\langle i, j\rangle$ проводится по всем ближайшим парам в n-ом слое; ниже мы будем считать, что поле приложено вдоль оси c (ось z).

В чисто двумерных гейзенберговских системах ($J' = 0$) спиновые структуры с минимальной энергией удовлетворяют условию

$$\mathbf{S}_1 + \mathbf{S}_2 + \mathbf{S}_3 = \frac{\mu\mathbf{H}}{6J}, \qquad (2)$$

где $\mathbf{S}_i$ — спин i-ой подрешетки. В сферической системе координат ($S^{\pm} = S\sin\theta\exp(\pm i\varphi)$, $S^z = S\cos\theta$) решение для углов наклона в (2) можно выразить следующим образом:

$$\cos\theta_3 = 3h - \cos\theta_2 - \cos\theta_1,$$

$$\operatorname{tg}\varphi_3 = \frac{\sin\theta_1\sin\varphi_1 + \sin\theta_2\sin\varphi_2}{\sin\theta_1\cos\varphi_1 + \sin\theta_2\cos\varphi_2}, \qquad (3)$$

$$\cos\theta_2 = \frac{(3h - \cos\theta_1)/2 + R\sin\theta_1\cos(\varphi_1 - \varphi_2)}{1 - u},$$

где

$$h = \frac{\mu H}{18JS}, \quad R = \left[\Delta(1-u) - \frac{1}{4}\right]^{1/2},$$

$$\Delta = (9h^2 - 6h\cos\theta_1 + 1)^{-1}, \quad u = \Delta\sin^2\theta_1\sin^2(\varphi_1 - \varphi_2).$$

Очевидно, что система с планарной или непланарной конфигурацией спинов имеет нетривиальное вырождение: при $h < 1/3$ угол θ_1 (наряду с φ_1 и φ_2) произволен, а углы θ_2 и θ_3 изменяются неэквивалентным образом. При $h > 1/3$ произвольные значения θ_1 ограничены определенным интервалом: значения θ_1 вокруг π запрещены, причем запрещенная область с ростом h увеличивается до тех пор, пока все спины не будут ориентированы вдоль поля при $h = 1$.

Межплоскостное взаимодействие и квантовые флуктуации снимают непрерывное вырождение структур. Так, при конечных J' из всех возможных ранее планарных (например, когда в (3) $\varphi_a = \pm\pi/2$) и непланарных структур наименьшей энергией обладают те, у которых поперечные к полю спиновые компоненты образуют 120-градусную структуру. В то же время известно [15], что в чисто двумерных треугольных антиферромагнетиках квантовые флуктуации, наоборот, из всех возможных вырожденных состояний отбирают состояния с планарной конфигурацией спинов. Ниже мы покажем, что при малых J' разность в энергии между различными состояниями также мала и может быть скомпенсирована за счет квантовых эффектов.

2. СПИНОВЫЕ КОНФИГУРАЦИИ

В треугольных магнетиках с антиферромагнитным взаимодействием между слоями основное состояние состоит из шести подрешеток. Энергия шестиподрешеточных структур с N спинами на узлах записывается при больших S в виде

$$\frac{E_0}{N} = J\sum_{\alpha>\beta}\mathbf{S}_\alpha\mathbf{S}_\beta + \frac{2}{3}J'\sum_\alpha \mathbf{S}_\alpha\mathbf{S}_{\alpha+3} - \frac{1}{6}\mu H\sum_\alpha S_\alpha^z. \tag{4}$$

Уравнения для равновесного состояния

$$\frac{\partial E_0}{\partial\theta_\alpha} = 0, \quad \frac{\partial E_0}{\partial\varphi_\alpha} = 0 \tag{5}$$

имеют решения с планарной и непланарной конфигурацией спинов. Рассмотрим в качестве основного состояния девять возможных структур: одну с непланарной конфигурацией, семь с планарной и одно коллинеарное состояние (рис. 1).

1. Непланарная структура зонтичного типа (конфигурация a на рис. 1). Углы наклона подрешеток и ее энергия даются соответственно в виде

$$\theta_\alpha = \theta, \quad \varphi_\alpha = \begin{cases} 2(\alpha-1)\pi/3, & \alpha = 1,2,3; \\ (2\alpha-5)\pi/3, & \alpha = 4,5,6, \end{cases} \tag{6}$$

$$\frac{E_0}{N} = -(3J+2J')S^2 + (9J+4J')S^2\cos^2\theta - \mu HS\cos\theta. \tag{7}$$

Подставляя в (7) равновесное решение $\cos\theta = H/H_s$, где поле насыщения $H_s = (18J+ +8J')S/\mu$, получаем $E_0 = E_*$:

$$\frac{E_*}{N} = -(3J+2J')S^2 - \frac{1}{2}\mu SH_s h^2, \quad h = \frac{H}{H_s}. \tag{8}$$

2. Планарная конфигурация b. При вычислении энергии планарных структур положим здесь и ниже $\varphi_\alpha = 0$, а θ_α возьмем в интервале от $-\pi$ до π. Тогда для структуры b имеем $\theta_1 = \theta_6 = \pi$, $\theta_2 = \theta_4 = -\theta_3 = -\theta_5 = \theta$. Классическая энергия такой конфигурации

$$\frac{E_0}{N} = 2\left(J + \frac{J'}{3}\right)(\cos 2\theta - 2\cos\theta)S^2 + \frac{1}{3}\mu HS(1-2\cos\theta). \tag{9}$$

Угол наклона подрешеток относительно поля и минимальная энергия в линейном приближении по $j = J'/J (\ll 1)$ даются следующим образом:

$$\cos\theta = \frac{\mu H + 2(3+j)JS}{4(3+j)JS}, \tag{10}$$

$$E_0 = E_* + j(1-h^2)JS^2N. \tag{11}$$

Такой же энергией обладает и структура, образованная при циклической перестановке подрешеток конфигурации b на рис. 1 ($4\to 6$, $5\to 4$, $6\to 5$). Однако при других возможных перестановках подрешеток структуры с конфигурацией типа b имеют в угловом интервале от нуля до $\pi/3$ большую энергию. Так, для структур с параллельными подрешетками 1 и 6, 2 и 5, 3 и 4 (или 1 и 5, 2 и 4, 3 и 6) имеем

$$E_0 = E_* + 2(1+h)(1-2h)jJS^2N,$$

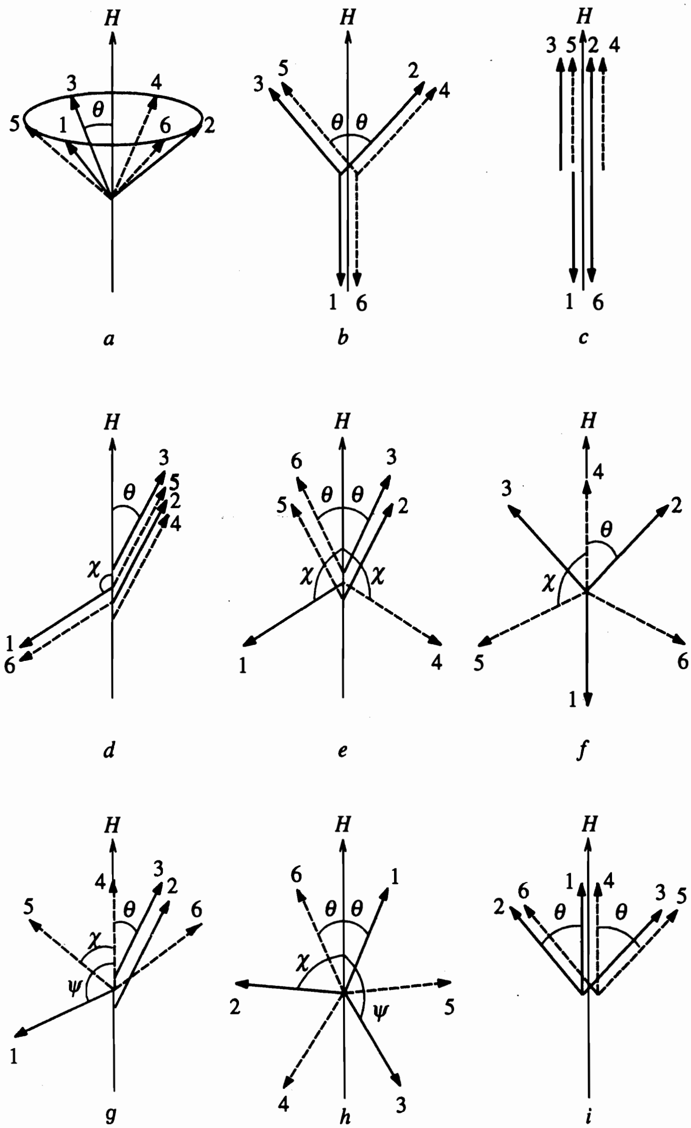

Рис. 1. Спиновые конфигурации треугольных антиферромагнетиков со слоистой структурой во внешнем магнитном поле **H**: a — непланарная конфигурация зонтичного типа; b, d, e, f, g, h, i — планарные конфигурации; c — коллинеарная фаза. Стрелки со сплошными и штриховыми линиями соответствуют направлениям спинов в двух различного типа слоях

а для структуры, где параллельны 1 и 4, 2 и 6, 3 и 5:

$$E_0 = E_* + 2(1+h)^2 jJS^2N.$$

Наибольшая энергия в этом классе конфигураций будет, естественно, у структуры, у которой направления спинов в соседних слоях гексагональной решетки совпадают: при параллельных 1 и 4, 2 и 5, 3 и 6 разность $E_0 - E_*$ в четыре раза больше разности в (11).

3. Коллинеарная структура c: $\theta_1 = \theta_6 = \pi$, $\theta_2 = \theta_3 = \theta_4 = \theta_5 = 0$. Ее энергия при больших S дается в виде

$$E_0 = E_* + \left[(1-3h)^2 + \frac{4}{3}j(1-2h+3h^2)\right] JS^2N. \tag{12}$$

Аналогичное выражение и для структуры, образованной при перестановке подрешеток 6 и 5. Энергия же другой структуры (перестановка подрешеток 6 и 4) больше (12) на величину $8jJS^2N/3$.

4. Планарная конфигурация d: $\theta_1 = \theta_6 = \chi$, $\theta_2 = \theta_3 = \theta_4 = \theta_5 = \theta$. Классическая энергия данной структуры

$$\frac{E_0}{N} = 2\left(J + \frac{J'}{3}\right) S^2 [1 + 2\cos(\theta+\chi)] - \frac{1}{3}\mu HS(\cos\chi + 2\cos\theta). \tag{13}$$

Из условия равновесия $\partial E_0/\partial\theta = 0$, $\partial E_0/\partial\chi = 0$ получаем

$$\begin{aligned} &(3+j)\sin(\theta+\chi) - (9+4j)h\sin\theta = 0,\\ &2(3+j)\sin(\theta+\chi) - (9+4j)h\sin\chi = 0. \end{aligned} \tag{14}$$

Решение этих уравнений имеет следующий вид:

$$\cos\theta = \frac{3}{4}hk + \frac{1}{4hk}, \quad \cos\chi = \frac{3}{2}hk - \frac{1}{2hk}, \tag{15}$$

где $k = (9+4j)/(9+3j)$. Подставляя (15) в (13) и ограничиваясь линейным приближением по j, получаем выражение для E_0, совпадающее с (11). Данное состояние вырождено относительно перестановки подрешеток 6 и 5. Однако при перестановке подрешеток 6 и 4 разность $E_0 - E_*$ возрастает в четыре раза.

5. Планарная конфигурация e: $\theta_1 = -\theta_4 = -\chi$, $\theta_2 = \theta_3 = -\theta_5 = -\theta_6 = \theta$. Ее энергия дается в виде

$$\frac{E_0}{N} = 2JS^2[1 + 2\cos(\theta+\chi)] + \frac{2}{3}J'(\cos 2\chi + 2\cos 2\theta) - \frac{1}{3}\mu HS(\cos\chi + 2\cos\theta). \tag{16}$$

Равновесные значения θ и χ находятся из уравнений

$$\begin{aligned} &3\sin(\theta+\chi) - (9+4j)h\sin\theta + 2j\sin 2\theta = 0,\\ &6\sin(\theta+\chi) - (9+4j)h\sin\theta + 2j\sin 2\chi = 0, \end{aligned} \tag{17}$$

решение которых в линейном приближении по j имеет следующий вид:

$$\begin{aligned} \cos\theta &= \frac{3}{4}h + \frac{1}{4h} + j\frac{(1-h^2)(3h^2-1)}{18h^3},\\ \cos\chi &= \frac{3}{2}h - \frac{1}{2h} + j\frac{(1-h^2)(7-3h^2)}{18h^3}. \end{aligned} \tag{18}$$

Минимальная энергия e-конфигурации

$$E_0 = E_* + \frac{(1-h^2)^2}{2h^2} jJS^2N. \tag{19}$$

Две другие возможные структуры в классе конфигураций e вырождены, а их энергия

$$E_0 = E_* + \frac{(1-h^2)(13h^2-1)}{4h^2} jJS^2N$$

выше либо E_0 в (19), либо энергии планарной конфигурации d.

Энергия структур b, c, d и e больше энергии непланарной структуры a при всех значениях $H < H_s$. Сравнение же энергий планарных структур между собой показывает, что конфигурация b имеет меньшую энергию, если $h < 1/3 - 2j/27$, скошенная структура d — если h лежит в интервале $[1/3, 1/\sqrt{3}]$, а конфигурация e — при $h > 1/\sqrt{3}$. Коллинеарная структура c при $j \neq 0$ также имеет конечный полевой интервал $[1/3, (1-2j/9)/3]$, в котором она среди конфигураций b, d и e наиболее предпочтительна.

6. Планарная конфигурация f (структура типа шестилучевой звезды, рис. 1*f*): $\theta_1 = \pi$, $\theta_2 = -\theta_3 = \theta$, $\theta_4 = 0$, $\theta_5 = -\theta_6 = \chi$. В этом состоянии для классической энергии имеем

$$\frac{E_0}{N} = JS^2(\cos 2\theta + \cos 2\chi) - \left(2JS^2 + \frac{\mu HS}{3}\right)\cos\theta + \\ + \left(2JS^2 - \frac{\mu HS}{3}\right)\cos\chi - \frac{2}{3}J'S^2\left[1 - 2\cos(\theta+\chi)\right]. \tag{20}$$

Минимизируя относительно углов θ и χ, получаем

$$\cos\theta = \frac{3h+1}{2} - \frac{1}{3}jh, \quad \cos\chi = \frac{3h-1}{2} - \frac{1}{3}jh. \tag{21}$$

Так что минимальная энергия f-конфигурации при малых j дается в виде

$$E_0 = E_* + j\left\{1 - h^2 - \left[(1-h^2)(1-9h^2)\right]^{1/2}\right\} JS^2N. \tag{22}$$

Разность между этой энергией и энергией зонтичной структуры a положительна при $H > 0$, однако E_0 в (22) меньше энергии b-конфигурации (11) и в отличие от нее совпадает при $H = 0$ с энергией непланарной структуры E_*. В области слабых полей ($h \ll 1$)

$$E_0 \simeq E_* + j(4h^2 + 8h^4)JS^2N. \tag{23}$$

7. Планарная конфигурация g: $\theta_1 = \psi$, $\theta_2 = \theta_3 = \theta$, $\theta_4 = 0$, $\theta_5 = -\theta_6 = \chi$; ее энергия при больших S

$$\frac{E_0}{N} = 2JS^2\left[\cos\chi + \cos^2\chi + \cos(\theta+\psi)\right] + \frac{2}{3}J'S^2(\cos\psi + 2\cos\chi\cos\theta) - \\ - \frac{1}{6}\mu HS(1 + \cos\psi + 2\cos\theta + 2\cos\chi). \tag{24}$$

При $j = 0$ равновесные решения для углов совпадают с соответствующими решениями в (19) и (21). Минимальная энергия g-конфигурации дается следующим образом:

$$E_0 = E_* + j\frac{(1-h^2)(5h-1)}{2h}JS^2N. \tag{25}$$

Отметим, что данная конфигурация вырождена относительно изменения угла между двумя плоскостями, в одной из которых лежат спины подрешеток 1, 2, 3, а в другой — 4, 5, 6.

Другие структуры, образуемые при различных перестановках подрешеток 4, 5, 6 на рис. 1g, имеют одну и ту же энергию

$$E_0 = E_* + j\frac{1-h}{4h}\left[(1+h)(7h+1)+(3h+1)\sqrt{3(1+h)(3h-1)}\right]JS^2N;$$

в данном классе конфигураций эта энергия больше, чем E_0 в (25).

8. Планарная конфигурация h: $\theta_1 = -\theta_6 = \theta$, $\theta_5 = -\theta_2 = \chi$, $\theta_3 = -\theta_4 = \psi$; энергия данной структуры

$$\frac{E_0}{N} = 2\left\{JS^2\left[\cos(\theta+\chi)+\cos(\psi-\theta)+\cos(\chi+\psi)\right] + \right.$$
$$\left. + \frac{1}{3}J'S^2\left[2\cos(\theta+\psi)+\cos 2\chi\right] - \frac{1}{6}\mu HS(\cos\theta+\cos\chi+\cos\psi)\right\}. \qquad (26)$$

При $J' = 0$ структура вырождена относительно изменения угла ψ, а два других угла даются в зависимости от ψ следующим образом:

$$\begin{aligned}
\cos\theta &= \frac{1}{12}\frac{\mu H}{JS} - \frac{1}{2}\cos\psi + R\sin\psi,\\
\sin\theta &= -\frac{1}{2}\sin\psi + R\left(\frac{1}{6}\frac{\mu H}{JS} - \cos\psi\right),\\
\cos\chi &= \frac{1}{12}\frac{\mu H}{JS} - \frac{1}{2}\cos\psi - R\sin\psi,\\
\sin\chi &= \frac{1}{2}\sin\psi + R\left(\frac{1}{6}\frac{\mu H}{JS} - \cos\psi\right),
\end{aligned} \qquad (27)$$

где

$$R = \left\{\left[\left(\frac{1}{6}\frac{\mu H}{JS}\right)^2 - \frac{1}{3}\frac{\mu H}{JS}\cos\psi + 1\right]^{-1} - \frac{1}{4}\right\}^{1/2}.$$

При $J' \neq 0$ минимальная энергия h-конфигурации определяется варьированием энергии

$$E_0 = E_* + \frac{4}{3}j\left[1 - 3h^2 + \cos(\theta+\psi) + \cos^2\chi\right]JS^2N \qquad (28)$$

относительно угла ψ. Вблизи $h = 0$ равновесное значение ψ_0 равно $5\pi/6$ и, следовательно, $\theta_0 = \pi/6$, $\chi_0 = \pi/2$. Поэтому в области слабых полей

$$E_0 \simeq E_* + j\left(8h^2 - 12\sqrt{3}\,h^3\right)JS^2N. \qquad (29)$$

Из сравнения (23) и (29) видно, что при малых h классическая энергия конфигурации f меньше ее значения в состоянии с конфигурацией на рис. 1h (P-состояние [16]).

Однако вследствие отрицательного знака при члене с h^3 в (29) энергия данной конфигурации может быть меньше энергии f-конфигурации. Действительно, при $h = 1/3$ равновесному значению ψ_0 в (28) соответствует $2\pi/3$ и из (27) имеем $\theta_0 = 0$, $\chi_0 = \pi/3$. В результате, сравнивая (22) и (28), получаем, что энергия h-конфигурации меньше энергии f-конфигурации на величину $jJS^2N/3$.

Отметим, что при $h > 1/3$ состояние, при котором подрешетки 1 и 6 на рис. 1*h* параллельны, не соответствует равновесному. Вместо этого в качестве равновесного состояния возможно состояние, представленное на рис. 1*i*, где угол $\theta \le \pi/2$.

9. Планарная конфигурация i: $\theta_1 = \theta_4 = 0$, $\theta_3 = \theta_5 = -\theta_2 = -\theta_6 = \theta$. Ее энергия записывается в виде

$$\frac{E_0}{N} = \frac{2}{3}J'S^2 - \frac{1}{3}\mu HS + \left(4JS^2 - \frac{2}{3}\mu HS\right)\cos\theta + \left(2J + \frac{4}{3}J'\right)S^2\cos 2\theta. \tag{30}$$

Равновесное значение для угла наклона подрешеток:

$$\cos\theta = \frac{\mu H - 6JS}{4(3+2j)JS}, \tag{31}$$

так что для минимальной энергии конфигурации i имеем

$$E_0 = E_* + 2(1-h)^2 jJS^2N. \tag{32}$$

В работе Растелли и Тасси [16] указано, что при $\theta < \pi/2$ данное состояние (SF-состояние по терминологии авторов) может быть устойчивым в классике при наличии конечной анизотропии типа легкая ось.

Отметим, что при $\theta > \pi/2$ перестановка подрешеток 4 и 6 приводит к конфигурации, обратной конфигурации b, где H заменено на $-H$, а ее энергия совпадает с выражением (11). Структуры, образованные другими перестановками подрешеток, обладают в этом классе конфигураций большей энергией по сравнению с конфигурациями i и обратной b.

Таким образом, при $j \neq 0$ различные структуры имеют разную энергию и наибольший выигрыш достигается для непланарной конфигурации a. Тем не менее мы ожидаем, что при $j \ll 1$ квантовые поправки изменят тонкий баланс полной энергии в пользу планарных структур (по крайней мере, вдали от поля перехода в однородное состояние).

3. МАГНИТНЫЕ ПЕРЕХОДЫ

Рассмотрим влияние квантовых флуктуаций на основное состояние систем во внешнем поле **H**. Перейдем в локальную систему координат (ξ, η, ζ), в которой ось квантования (ось z) выбрана вдоль направления спина

$$S^x_{in} = -S^\xi_{in}\sin\varphi_{in} - S^\eta_{in}\cos\theta_{in}\cos\varphi_{in} + S^\zeta_{in}\sin\theta_{in}\cos\varphi_{in},$$

$$S^y_{in} = S^\xi_{in}\cos\varphi_{in} - S^\eta_{in}\cos\theta_{in}\sin\varphi_{in} + S^\zeta_{in}\sin\theta_{in}\sin\varphi_{in}, \tag{33}$$

$$S_{in}^{z} = S_{in}^{\eta} \sin\theta_{in} + S_{in}^{\zeta} \cos\theta_{in},$$

а θ_{in} и φ_{in} совпадают с углами наклона подрешеток девяти ранее найденных в пределе больших S структур. Для описания спиновых отклонений от равновесных классических состояний введем шесть типов бозевских операторов $a_{k\alpha}$:

$$a_{in} = \sqrt{\frac{6}{N}} \sum_{k} a_{k\alpha} \exp(i\mathbf{kr}_{in}),$$

где волновой вектор $\mathbf{k}$ для каждой из подрешеток α лежит в первой зоне Бриллюэна. Ниже мы ограничимся кубическим приближением по a_{in}:

$$\begin{aligned} S_{in}^{\zeta} &= S - a_{in}^{+}a_{in}, \quad S_{in}^{\xi} + iS_{in}^{\eta} = \sqrt{2S}\left(1 - \frac{a_{in}^{+}a_{in}}{4S}\right)a_{in}, \\ S_{in}^{\xi} - iS_{in}^{\eta} &= \sqrt{2S}\, a_{in}^{+}\left(1 - \frac{a_{in}^{+}a_{in}}{4S}\right), \end{aligned} \tag{34}$$

так что исходный гамильтониан представляется в виде

$$\mathscr{H} = E_0 + \mathscr{H}^{(1)} + \mathscr{H}^{(2)} + \mathscr{H}^{(3)}. \tag{35}$$

Линейный член в $\mathscr{H}$ дается следующим образом:

$$\mathscr{H}^{(1)} = -\frac{S}{2}\sqrt{\frac{SN}{3}} \sum_{\alpha} \left(\sum_{\beta} A_{\alpha\beta}(0) - i\frac{\mu H}{S} \sin\theta_{\alpha} \right) a_{0\alpha} + \text{H.c.}, \tag{36}$$

где

$$A_{\alpha\beta}(\mathbf{k}) = 2J_{\alpha\beta}(\mathbf{k}) \left\{ \sin\theta_{\beta} \sin(\varphi_{\alpha} - \varphi_{\beta}) + i\left[\sin\theta_{\alpha} \cos\theta_{\beta} - \cos\theta_{\alpha} \sin\theta_{\beta} \cos(\varphi_{\alpha} - \varphi_{\beta}) \right] \right\} \tag{37}$$

и $J_{\alpha\beta}(\mathbf{k})$ — компоненты Фурье обменных взаимодействий между спинами различных подрешеток:

$$J_{\alpha\beta}(\mathbf{k}) = \sum_{m-n} J_{m\alpha,n\beta} \exp(i\mathbf{kr}_{m\alpha,n\beta}).$$

При $\mathbf{k} = 0$

$$\sum_{\beta} A_{\alpha\beta}(0) - i\frac{\mu H}{S} \sin\theta_{\alpha} = \frac{6}{NS^2} \left(\frac{1}{\sin\theta_{\alpha}} \frac{\partial E_0}{\partial \varphi_{\alpha}} + i\frac{\partial E_0}{\partial \theta_{\alpha}} \right)$$

и, как и должно быть, $\mathscr{H}^{(1)}$ обращается в нуль для равновесных конфигураций.

При диагонализации квадратичного члена $\mathscr{H}^{(2)}$ положим $j = 0$. Затем сравним энергию нулевых колебаний различных конфигураций с энергией структур за счет малых j. Выражение для $\mathscr{H}^{(2)}$ дается следующим образом:

$$\mathscr{H}^{(2)} = -3JSN + 3JS \sum_{k} \alpha_{k}^{+} M_{k} \alpha_{k}, \tag{38}$$

где $\alpha_k^+ = (a_{k_1}^+, a_{k_2}^+, \ldots, a_{k_6}^+, a_{-k_1}, a_{-k_2}, \ldots, a_{-k_6})$ и

$$M_k = \begin{pmatrix} e(\mathbf{k}) & f(\mathbf{k}) \\ f^*(-\mathbf{k}) & e^*(-\mathbf{k}) \end{pmatrix}.$$

Диагональные элементы 6×6-матриц $e(\mathbf{k})$ и $f(\mathbf{k})$ равны соответственно единице и нулю, а отличные от нуля недиагональные элементы представляются в виде

$$\begin{aligned} e_{\alpha\beta}(\mathbf{k}) &= e^*_{\beta\alpha}(\mathbf{k}) = B^{(+)}_{\alpha\beta}(\mathbf{k}), \\ f_{\alpha\beta}(\mathbf{k}) &= f^*_{\beta\alpha}(\mathbf{k}) = B^{(-)}_{\alpha\beta}(\mathbf{k}), \end{aligned} \tag{39}$$

где

$$B^{(\pm)}_{\alpha\beta}(\mathbf{k}) = \frac{1}{2}\nu_k \left[(1 \pm \cos\theta_\alpha \cos\theta_\beta)\cos(\varphi_\alpha - \varphi_\beta) \pm \sin\theta_\alpha \sin\theta_\beta - i(\cos\theta_\alpha + \cos\theta_\beta)\sin(\varphi_\alpha - \varphi_\beta)\right]$$

и

$$\nu_k = \frac{1}{3}\left[\exp(ik_x) + \exp\left(i\frac{-k_x + \sqrt{3}\,k_y}{2}\right) + \exp\left(i\frac{-k_x - \sqrt{3}\,k_y}{2}\right)\right]; \tag{40}$$

индексы α, β равны либо 1, 2, 3, либо 4, 5, 6. Остальные элементы типа $e_{\alpha,\alpha\pm 3}$, $f_{\alpha,\alpha\pm 3}$ равны нулю.

Спин-волновой спектр в энергии нулевых колебаний

$$E^{(2)} = -3JSN + \frac{1}{2}S\sum_{k\alpha}\omega_\alpha(\mathbf{k}) \tag{41}$$

находился аналитически и численно. Для непланарной конфигурации a он дается следующим образом ($\varepsilon_\alpha = \omega_\alpha/6J$):

$$\varepsilon_\alpha(\mathbf{k}) = \varepsilon_{\alpha+3}(\mathbf{k}) = \left\{(1 - \lambda_\alpha(\mathbf{k}))\left[1 + (2 - 3h^2)\lambda_\alpha(\mathbf{k})\right]\right\}^{1/2} - \sqrt{3}\,h\mu_\alpha(\mathbf{k}), \tag{42}$$

где

$$\begin{aligned} \lambda_\alpha(\mathbf{k}) &= \frac{1}{3}\left\{\cos\left[k_x + \frac{2\pi}{3}(\alpha-1)\right] + 2\cos\left[\frac{k_x}{2} - \frac{2\pi}{3}(\alpha-1)\right]\cos\frac{\sqrt{3}}{2}k_y\right\}, \\ \mu_\alpha(\mathbf{k}) &= \frac{1}{3}\left\{\sin\left[k_x + \frac{2\pi}{3}(\alpha-1)\right] - 2\sin\left[\frac{k_x}{2} - \frac{2\pi}{3}(\alpha-1)\right]\cos\frac{\sqrt{3}}{2}k_y\right\}. \end{aligned}$$

В нулевом поле один и тот же для всех структур частотный спектр $\varepsilon(\mathbf{k})$ находится при решении уравнения

$$\varepsilon^6 + 3\left(|\nu_k|^2 - 1\right)\varepsilon^4 + \frac{3}{4}P_k\varepsilon^2 + Q_k = 0, \tag{43}$$

$$P_k = 9|\nu_k|^4 + 3\left(\nu_k^3 + \nu_k^{*3}\right) + 27|\nu_k|^2 + 4,$$

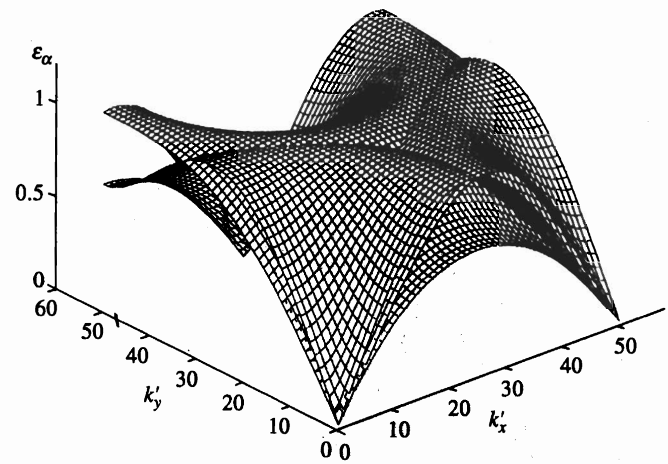

Рис. 2. Энергетический спектр спиновых конфигураций $\varepsilon_\alpha(\mathbf{k})$ в нулевом магнитном поле ($k_x = 4\pi\tilde{k}_x/3\cdot 50$, $k_y = 2\pi\tilde{k}_y/50\cdot\sqrt{3}$). В точках $\mathbf{k} = (2\pi/3, 2\pi/\sqrt{3})$ и $\mathbf{k} = (0, 4\pi/3\sqrt{3})$ $\varepsilon_\alpha = 1$;

$$Q_k = \frac{1}{3}(\nu_k^3 + \nu_k^{*3})\left(\nu_k^3 + \nu_k^{*3} + 3|\nu_k|^2 - 7\right) - \frac{9}{4}|\nu_k|^4 + \frac{15}{4}|\nu_k|^2 - 1.$$

Положительные значения корней полинома (43) представлены на рис. 2. Видно, что три поверхности ε_α имеют общие точки пересечений. Трехкратное вырождение $\varepsilon_\alpha^* = 1$ (в VBr_2 $J = 16$ К [17,9], что соответствует частоте $\omega = 2.2$ ТГц) возникает при $\mathbf{k} = (2\pi/3, 2\pi/3\sqrt{3})$, а также при $\mathbf{k} = (0, 4\pi/3\sqrt{3})$. В плоскости среза ($k_x = 0$), где лежит последняя точка трехкратного вырождения, лежит и линия пересечения двух поверхностей.

В ненулевом поле линии пересечения — прямые при $H = 0$ — искривляются. Однако трехкратное вырождение спектра остается при тех же $\mathbf{k}$ и при том же значении $\varepsilon_\alpha^* = 1$. Данное обстоятельство имеет место не только для конфигурации зонтичного типа, но и для всех планарных конфигураций. На рис. 3 показан для сравнения спектр $\varepsilon_\alpha = \varepsilon_{\alpha+3}$ ($\alpha = 1, 2, 3$) конфигураций a и b при $H = 0.3H_s$. Видно, что нижняя ветвь b-конфигурации везде, за исключением симметричных точек зоны Бриллюэна, ниже соответствующей ветви a-конфигурации. Кроме того, в большей области $\mathbf{k}$ и вторая ветвь b-конфигурации лежит ниже соответствующей ветви a-конфигурации. Подобная ситуация наблюдается при сравнении спектров зонтичной структуры с другими планарными структурами. Поэтому можно ожидать, что энергия нулевых колебаний планарных конфигураций будет меньше непланарной.

Ниже мы вычислили $1/S$-поправки к энергии основного состояния для девяти рассматриваемых конфигураций. Представленные на рис. 4 результаты показывают, что кривая зонтичной структуры лежит по энергии выше всех других структур, а квантовые поправки наиболее существенны для конфигураций b, d и e. Последние, однако, ни при каких значениях H не реализуются, если $jS > 0.082$. Вместо этого, вследствие конкуренции квантовых эффектов с межплоскостным взаимодействием, в области низких и промежуточных полей устойчивы планарные структуры соответственно f и h, а вблизи поля насыщения — зонтичная. Отметим, что возможность существования h-

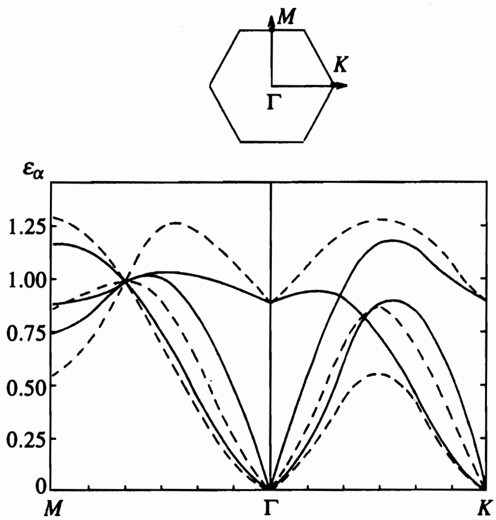

Рис. 3. Энергетический спектр $\varepsilon_\alpha(\mathbf{k})$ конфигураций a и b во внешнем поле $H = 0.3H_s$. Сплошные линии соответствуют непланарной конфигурации a, штриховые — планарной конфигурации b

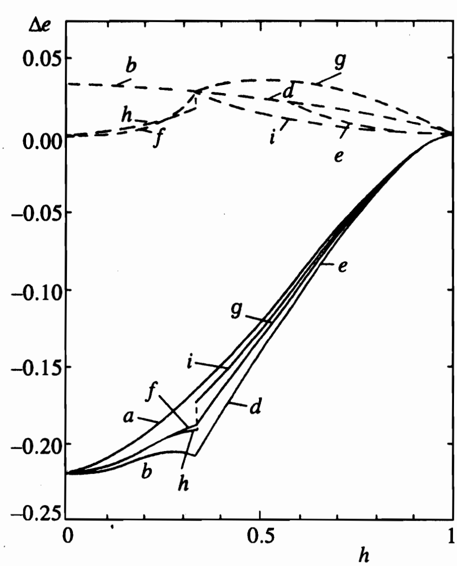

Рис. 4. Квантовые поправки к энергии основного состояния ($\Delta e = \Delta E/3JSN$) для восьми спиновых конфигураций (сплошные линии) и разность энергий классических структур относительно непланарной конфигурации a при $jS = 0.1$ (штриховые линии)

структуры в гейзенберговских системах была указана в [16]. График полной энергии для различных структур при $jS = 0.1$ приведен на рис. 5. Дополнительные состояния — состояния b, d и e — стабилизируются, если $jS < 0.082$. С уменьшением jS область фаз f, h и a также уменьшается, и в предельном случае $jS = 0$ существование данных фаз не должно быть возможным. Как показано Чубуковым и Голосовым [15], в чисто двумерных треугольных антиферромагнетиках квантовые флуктуации выделяют структуры типа b и d (или e), в промежутке между которыми в конечном интервале H устойчива коллинеарная фаза.

В ненулевом поле квантовые эффекты и межплоскостное взаимодействие не толь-

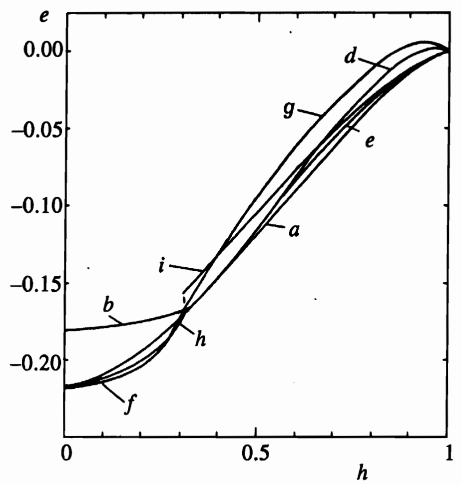

Рис. 5. Полная нормированная энергия $e = E/3JSN$ основного состояния для восьми спиновых конфигураций при $jS = 0.1$. Зависимость e от h измерена относительно $e_* = E_*/3JSN$ непланарной структуры a

ко стабилизируют различные классические структуры, но и модифицируют их. Конфигурационные изменения должны быть особенно заметны вблизи критического поля перехода в коллинеарное состояние ($h = 1/3$), где выигрыш энергии за счет квантовых флуктуаций и конечных j наибольший. Вычислим квантовые поправки к углам наклона равновесных состояний. Кубический член в (35) дается в виде

$$\mathcal{H}^{(3)} = \frac{1}{4}\sqrt{\frac{3S}{N}} \sum_{k_1k_2k_3} \delta(\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 + \mathbf{k}_3) \left[\sum_{\alpha} \left(\sum_{\beta} A_{\alpha\beta}(0) - i\frac{\mu H}{S}\sin\theta_\alpha \right) a^+_{k_3\alpha} a_{k_2\alpha} a_{k_1\alpha} + \right.$$
$$\left. + 4\sum_{\alpha\beta} A_{\alpha\beta}(\mathbf{k}_1) a^+_{-k_3\beta} a_{k_2\beta} a_{k_1\alpha} \right] + \text{H.c.} \tag{44}$$

Заменим два из трех операторов в (44) средними значениями и подставим в $\mathcal{H}^{(3)}$ углы $\theta^{(0)}_\alpha$, $\varphi^{(0)}_\alpha$ для равновесных классических конфигураций. В результате имеем

$$\mathcal{H}^{(3)} = \sqrt{\frac{3S}{N}} \sum_{\alpha\beta} \sum_{k} \left[A_{\alpha\beta}(\mathbf{k}) \langle a^+_{k\beta} a_{k\alpha} \rangle + A^*_{\alpha\beta}(-\mathbf{k}) \langle a^+_{k\beta} a^+_{-k\alpha} \rangle + \right.$$
$$\left. + A_{\beta\alpha}(0) \langle a^+_{k\alpha} a_{k\alpha} \rangle \right] a_{0\beta} + \text{H.c.} \tag{45}$$

Полагая $\mathcal{H}^{(1)} + \mathcal{H}^{(3)} = 0$, получим уравнения для θ_α, φ_α; в случае планарных конфигураций они имеют следующий вид:

$$\sum_{\beta} J_{\alpha\beta}(0)\sin(\theta_\alpha - \theta_\beta) - \frac{\mu H}{2S}\sin\theta_\alpha = \frac{1}{S}\sum_{\beta} I_{\alpha\beta} \sin\left(\theta^{(0)}_\alpha - \theta^{(0)}_\beta\right), \tag{46}$$

где

$$I_{\alpha\beta} = \frac{6}{N}\sum_{k} \left[J_{\alpha\beta}(0) \langle a^+_{k\beta} a_{k\beta} \rangle + J^*_{\alpha\beta}(\mathbf{k}) \left(\langle a^+_{k\alpha} a^+_{-k\beta} \rangle - \langle a^+_{k\alpha} a_{k\beta} \rangle \right) \right]. \tag{47}$$

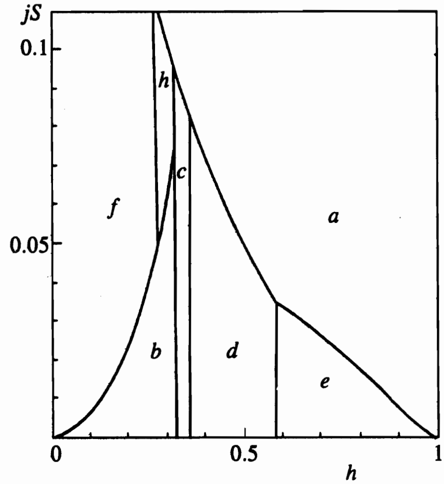

Рис. 6. Фазовая диаграмма $jS - h$ основного состояния ($1/S$-приближение)

Из (46) следует, что в первом порядке по $1/S$ уравнения для углов наклона в классике заменяются на такие же уравнения, но с перенормированными значениями $\tilde{J}_{\alpha\beta}(0)$:

$$\tilde{J}_{\alpha\beta}(0) = J_{\alpha\beta}(0) - \frac{1}{S} I_{\alpha\beta}. \tag{48}$$

Результаты вычислений для угла θ в состоянии с конфигурацией b и для углов θ, χ в состоянии с конфигурацией d показывают, что коллинеарная структура c возникает в промежутке между

$$h_2 = \frac{1}{3} - \frac{2}{27} j - \frac{0.018}{S} \quad \text{и} \quad h_3 = \frac{1}{3} + \frac{0.043}{S}. \tag{49}$$

Отсюда видно, что коллинеарная фаза стабилизируется как квантовыми флуктуациями, так и межплоскостным взаимодействием, причем последнее увеличивает полевой интервал данной фазы только в область $h < 1/3$. Полная фазовая диаграмма jS — h представлена на рис. 6. Как и должно быть, при $jS = 0$ она переходит в фазовую диаграмму для двумерного треугольного антиферромагнетика [15] (конфигурации d и e эквивалентны, если $jS = 0$).

Отметим, что в отличие от систем с анизотропией Δ легкоплоскостного типа [5] в чисто гейзенберговских квазидвумерных ($J' \ll J$) системах зонтичная конфигурация не реализуется в области слабых полей. Данное обстоятельство связано с тем фактом, что в таких полях разность энергий между конфигурациями f и a мала и пропорциональна второй степени h ($E_0 - E_* \sim jh^2 JS^2 N$), а в системах с легкоплоскостной анизотропией такая же разность между планарной и непланарной конфигурациями a имеет конечное значение уже при $h = 0$ ($E_0 - E_* \sim \Delta JS^2 N$). Поэтому в нашем случае квантовые эффекты доминируют в области слабых полей и лишь вблизи поля перехода в однородное состояние, где влияние квантовых флуктуаций мало, а влияние межплоскостной обменной связи, наоборот, сравнительно велико, стабилизируется зонтичная структура.

В соединениях типа VX_2 ионы V^{2+} имеют спин $S = 3/2$, а обменные параметры, например, для VBr_2: $J = 16$ K, $J' = 0.2$ K [9] и, следовательно, $jS = 0.019$. Таким образом, изменение структуры можно ожидать при $h_1 = 0.18$, $h_2 = 0.31$, $h_3 = 0.36$, $h_4 = 0.58$ и $h_5 = 0.78$ (рис. 6), что соответствует для VBr_2 (g-фактор равен 2) полям $H_1 = 58$ Тл, $H_2 = 100$ Тл, $H_3 = 116$ Тл, $H_4 = 187$ Тл и $H_5 = 251$ Тл. Величины H такого порядка достижимы в установках с импульсными полями [18]. Переход во всех критических точках в отличие от h_3 не является непрерывным. Скачок намагниченности при магнитных переходах дается следующим образом:

$$\begin{gathered}\Delta M_1 = \frac{1}{3} j h_1 M_0, \quad \Delta M_2 = \frac{1}{9} j M_0, \\ \Delta M_4 = \frac{1}{9}\left(1 - \frac{1}{\sqrt{3}}\right) j M_0, \quad \Delta M_5 = \frac{1}{54}\,\frac{(1-h_5^2)(3h_5^2+5)}{h_5^3}\, j M_0,\end{gathered} \tag{50}$$

где $M_0 = \mu S$ — намагниченность насыщения. Подставляя в (50) j, h_1 и h_5, для VBr_2 получаем $\Delta M_1/M_0 = 0.76 \cdot 10^{-3}$, $\Delta M_2/M_0 = 1.4 \cdot 10^{-3}$, $\Delta M_4/M_0 = 0.59 \cdot 10^{-3}$, $\Delta M_5/M_0 = 1.3 \cdot 10^{-3}$.

Следует отметить, что в некоторых соединениях из семейства VX_2, в таких, например, как VI_2, имеется заметная анизотропия типа легкая ось. В этом случае фазовая диаграмма может существенно отличаться от представленной на рис. 6: легкоосная анизотропия дополнительно стабилизирует планарные и коллинеарные фазы и дестабилизирует фазы со структурой зонтичного типа. Последняя может исчезнуть полностью при некотором критическом значении анизотропии порядка J'. Вопрос о влиянии анизотропии в таких системах рассматривался недавно в [16].

Мы исследовали также влияние тепловых флуктуаций на устойчивость структур. Вклад от энтропии в свободную энергию

$$F = E_0 - 3JSN + \frac{S}{2}\sum_{k\alpha}\omega_\alpha(\mathbf{k}) + T\sum_{k\alpha}\ln\left[1 - \exp\left(-\frac{S\omega_\alpha(\mathbf{k})}{T}\right)\right]$$

находился численно. Результаты показывают, что с ростом T область непланарной структуры a на фазовой диаграмме jS — h уменьшается как за счет перенормировки поля насыщения, так и вследствие стабилизации структур b, c и d. Интервалы Δh устойчивости структур f, h, b, c, d, a при разных значениях нормированной температуры $t = T/S\omega_*$ представлены в таблице ($jS = 0.1$). Видно, что конфигурации c, d, b возникают, если t соответственно равно примерно 0.05, 0.15 и 0.20, а полевой интервал конфигурации a с ростом температуры уменьшается. Что касается h-конфигурации, то Δh сначала увеличивается до значения 0.05, а затем с дальнейшим ростом T также уменьшается.

Температурная зависимость нормированных полевых интервалов Δh_a, Δh_b, Δh_c, Δh_d, Δh_f, Δh_h соответствующих конфигураций a, b, c, d, f, h при $jS = 0.1$ ($t = T/S\omega_*$)

t	Δh_f	Δh_h	Δh_b	Δh_c	Δh_d	Δh_a
0	0.263	0.032	–	–	–	0.695
0.05	0.267	0.048	–	0.015	–	0.648
0.10	0.269	0.049	–	0.039	–	0.563
0.15	0.270	0.050	–	0.040	0.025	0.473
0.20	0.271	0.037	0.013	0.039	0.055	0.374

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе изучены равновесные состояния с различной конфигурацией спинов, расположенных в треугольных слоях гексагональной решетки. Показано, что в соединениях типа VBr_2, VCl_2 квантовые эффекты конкурируют с эффектами, обусловленными межплоскостным антиферромагнитным взаимодействием. В области $H < H_1$ f-планарная конфигурация со структурой типа шестилучевой звезды стабилизируется как межплоскостным обменом, так и квантовыми флуктуациями; в промежуточной области $H_1 < H < H_5$ планарные конфигурации b, d, e стабилизируются квантовыми флуктуациями, а непланарные конфигурации зонтичного типа в области $H > H_5$ — межплоскостным обменом. Магнитные переходы в критических точках, за исключением $H = H_3$, не являются непрерывными: кривая намагничивания имеет небольшие скачки. Найдена конечная область полевого интервала, где устойчива коллинеарная фаза. Показано также, что промежуточные по полю спиновые конфигурации дополнительно стабилизируются тепловыми флуктуациями.

В заключение отметим: известные к настоящему времени соединения типа $ACrO_2$ (A = H, Li, Na) также состоят из треугольных слоев, на которых ниже T_N гейзенберговские спины образуют 120-градусную структуру [19, 20, 12]. Однако в отличие от соединений типа VX_2 треугольные слои расположены друг относительно друга ромбоэдрически (пространственная группа $R\bar{3}m$). В связи с этим система фрустрирована не только в плоскости, но и в третьем направлении, что приводит к дополнительному вырождению классических структур [21, 22]. Мы полагаем, что в соединениях типа $ACrO_2$ f-конфигурация, частично стабилизируемая в соединениях типа VX_2 обменной связью между слоями, едва ли реализуется при каких-либо значениях j, в то время как планарные конфигурации b, d и e еще более стабилизируются квантовыми флуктуациями.

Авторы благодарны Растелли и Тасси за присылку оттиска статьи [16].

Литература

1. D. H. Lee, J. D. Joannopoulos, J. W. Negele, and D. P. Landau, Phys. Rev. B **33**, 450 (1986).
2. H. Kawamura, J. Phys. Soc. Jap. **56**, 474 (1987).
3. L. P. Regnault and J. Rossat-Mignod, in *Magnetic Properties of Layered Transition Metal Compounds*, ed. by L. J. De Jongh, Kluwer, Dordrecht, Netherlands (1990), p. 271.
4. E. Rastelli, A. Tassi, A. Pimpinelli, and S. Sedazzari, Phys. Rev. B **45**, 7936 (1992).
5. H. Shiba and T. Nikuni, in *Recent Advances in Magnetism of Transition Metal Compounds*, ed. by A. Kotani and N. Suzuki, World Scientific (1993), p. 372.
6. J. Wosnitza, R. Deutschmann, H. V. Löhneysen, and R. K. Kremer, J. Phys.: Condens. Matter **6**, 8045 (1994).
7. M. E. Zhitomirsky, O. A. Petrenko, and L. A. Prozorova, Phys. Rev. B **52**, 3511 (1995).
8. К. С. Александров, Н. В. Федосеева, И. П. Спевакова, *Магнитные фазовые переходы в кристаллах*, Наука, Новосибирск (1983), с. 1.
9. H. Kadowaki, K. Ubukoshi, and K. Hirakawa, J. Phys. Soc. Jap. **54**, 363 (1985).
10. H. Kadowaki, K. Ubukoshi, K. Hirakawa et al., J. Phys. Soc. Jap. **56**, 4027 (1987).
11. K. Takeda, K. Ubukoshi, T. Haseda, and K. Hirakawa, J. Phys. Soc. Jap. **53**, 1480 (1984).
12. N. Kojima, K. Ito, I. Mogi et al., J. Phys. Soc. Jap. **62**, 4137 (1993).

13. I. Yamada, K. Ubukoshi, and K. Hirakawa, J. Phys. Soc. Jap. **53**, 381 (1984).
14. Р. С. Гехт, УФН **159**, 261 (1989).
15. A. V. Chubukov and D. I. Golosov, J. Phys.: Condens. Matter **3**, 69 (1991).
16. E. Rastelli and A. Tassi, J. Phys.: Condens. Matter **8**, 1811 (1996).
17. M. Niel, C. Cros, G. Le Flem et al., Physica B + C **86–88**, 702 (1977).
18. J. J. M. Franse, JMMM **90–91**, 20 (1990).
19. J. L. Soubeyroux, D. Fruchart, J. C. Marmeggi et al., Physica Status Solidi A **67**, 633 (1981).
20. J. Ajiro, K. Kikuchi, S. Sugiyama et al., J. Phys. Soc. Jap. **57**, 2268 (1988).
21. E. Rastelli and A. Tassi, J. Phys. C: Solid State Phys. **19**, L423 (1986).
22. С. С. Аплеснин, Р. С. Гехт, ЖЭТФ **96**, 2163 (1989).