

## НОВАЯ ПРОМЕЖУТОЧНАЯ ФАЗА В СПИРАЛЬНОМ АНТИФЕРРОМАГНЕТИКЕ $\text{CsCuCl}_3$ , ИНДУЦИРОВАННАЯ СИЛЬНЫМ МАГНИТНЫМ ПОЛЕМ

*Н.В.Федосеева, Р.С.Гехт, Т.А.Великанова, А.Д.Балаев*

В спиральном антиферромагнетике  $\text{CsCuCl}_3$  в магнитном поле  $H \gtrsim 50$  кЭ впервые обнаружена новая магнитная фаза в промежуточном интервале температур. Результаты эксперимента объясняются влиянием слабого диполь-дипольного взаимодействия.

Интерес к исследованию антиферромагнитного кристалла  $\text{CsCuCl}_3$  стимулировался открытием его пьезоэлектрических свойств, оптической активности и обнаружением геликоидального искажения решетки <sup>1</sup> при структурном фазовом переходе ( $T = 423$  К), возникающем из-за кооперативного эффекта Яна – Теллера <sup>1</sup>). Известно <sup>2</sup>, что в магнитоупорядоченном состоянии, реализуемом при  $T_N = 10,7$  К, антиферромагнитное взаимодействие между цепочками в  $\text{CsCuCl}_3$  образует треугольную магнитную структуру в базисной плоскости, а сильное обменное взаимодействие внутри цепочек, наряду со слабым анизотропным, описываемым инвариантом Лифшица, приводит к возникновению модулированной вдоль  $c$ -оси спиральной структуры.

В настоящей работе изучался фазовый переход  $\text{CsCuCl}_3$  в магнитоупорядоченное состояние в сильных магнитных полях. Измерения проводились на автокомпенсационном вибрационном магнитометре со сверхпроводящим соленоидом в полях до 80 кЭ и в интервале температур 2 – 24 К.

Поведение температурной зависимости магнитной восприимчивости в малых полях соответствует спиральному упорядочению спинов в  $\text{CsCuCl}_3$ , а значения постоянных внутри и междупочечного обмена  $J_1/k = 25$  К,  $J_2/k = -3,9$  К, что согласуется с данными других авторов <sup>3</sup>.

В поле 3,3 кЭ, приложенном вдоль  $c$ -оси, наблюдается острый излом в кривой зависимости  $M(T)$  (кривая 1, рис. 1), после которого магнитный момент с понижением температуры уменьшается. Увеличение поля изменяет вид кривой  $M(T)$ : при  $H \gtrsim 50$  кЭ в области фазового перехода появляется острый пик, возрастающий по мере повышения магнитного поля (кривые 3, 4, рис. 1). В точке  $T = T_1$  кривая  $M(T)$  имеет, по-прежнему, излом однако при  $T < T_1$  магнитный момент образца с понижением температуры сначала быстро растет, а затем при достижении значения  $T = T_2$  скачком уменьшается. При  $T > T_1$  зависимость  $M(H)$  соответствует парамагнитному поведению; при  $T > T_1$  в кривой намагничивания в поле  $H = H_c$  появляется скачок намагниченности (рис. 1, в), свидетельствующий о возникновении магнитоупорядоченного состояния. На рис. 1, б представлен вид кривых  $d^2M/dT^2$  пропорциональных магнитной части теплоемкости  $C_H$  в окрестности точек  $T_1$  для двух значений  $H$ . Точка, в которой наблюдается особенность в поведении  $C_H$  совпадает с точкой излома  $T_1$  кривой  $M(T)$ . Ниже будет видно, что этому излому кривой соответствует образование длиннопериодических модуляций в базисной плоскости.

Фазовая диаграмма  $\text{CsCuCl}_3$  представлена на рис. 2, из которого видно, что с увеличением поля измерений температуры  $T_1$  и  $T_2$  сдвигаются в область более низких температур, причем  $T_2$  сильнее.

Наблюдаемые результаты могут быть непротиворечиво объяснены, если учесть влияние диполь-дипольного взаимодействия между спинами. Это взаимодействие является важным при изучении фазовых переходов в треугольных антиферромагнетиках <sup>4</sup>, так как оно может при определенных условиях реализовать несоразмерное состояние вследствие неустойчивости конической точки <sup>5</sup>.

<sup>1</sup>) Симметрия решетки принадлежит пространственной группе  $P6_122$ .

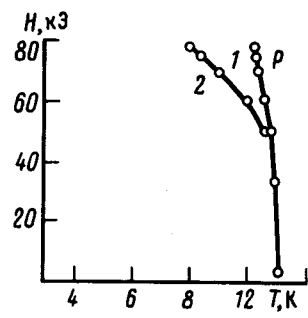
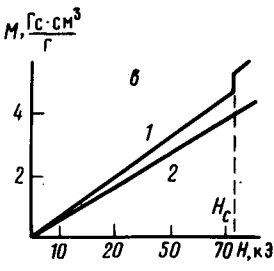
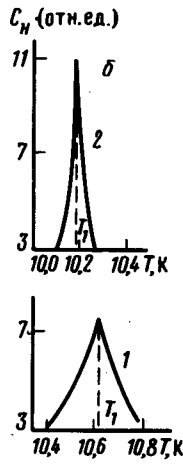
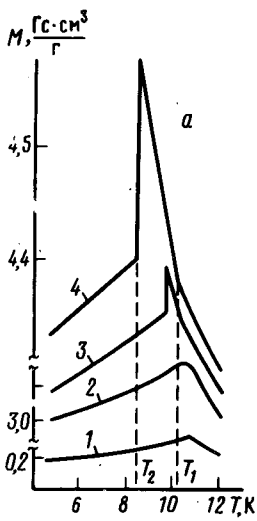


Рис. 2

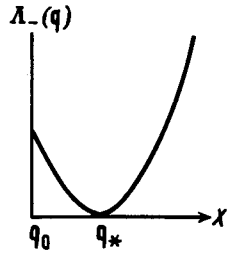


Рис. 3

Рис. 1

Рис. 1. Магнитное поведение  $\text{CsCuCl}_3$  в поле, направленном вдоль оси геликоида ( $H \parallel c$ ): а – зависимость магнитного момента  $\text{CsCuCl}_3$  от температуры при различных значениях поля: 1 – 3,3 кЭ, 2 – 50 кЭ, 3 – 60 кЭ, 4 – 71,6 кЭ; б – магнитная часть теплоемкости  $C_H$  как функция температуры при  $H = 60$  кЭ (1) и  $H = 71,6$  кЭ (2); в – зависимость магнитного момента  $\text{CsCuCl}_3$  от внешнего поля при  $T = 8,7$  К (1) и  $T = 4,2$  К (2)

Рис. 2. Фазовая ( $H - T$ ) диаграмма  $\text{CsCuCl}_3$ : 1 – область существования несоизмерной фазы с периодом модуляции в базисной плоскости, 2 – спиральная структура, модулированная вдоль  $c$ -оси, P – область парафазы

Рис. 3. Зависимость наименьшего собственного значения  $\lambda_-(q)$  от волнового вектора  $q$

Рассмотрим влияние поля на фазовую диаграмму соединения  $\text{CsCuCl}_3$  с  $S = 1/2$  на основе разложения Ландау для свободной энергии по степеням средних значений спина  $\langle S_i^\alpha \rangle$  (до членов четвертого порядка)

$$F = \frac{1}{2} \sum_{ij} a_{ij}^{\alpha\beta} \langle S_i^\alpha \rangle \langle S_j^\beta \rangle + \sum_i b \langle S_i^\beta \rangle^4 - \sum_i g \mu_B H^\alpha \langle S_i^\alpha \rangle, \quad (\alpha, \beta = x, y, z). \quad (1)$$

Здесь фурье-компоненты  $a^{\alpha\beta}(q) = A^{\alpha\beta}(q) + T\delta_{\alpha\beta}$  являются компонентами тензора обратной восприимчивости, у которого нелокальный член  $A^{\alpha\beta}(q)$  представляет собой фурье-компоненты гамильтониана, состоящего из обменных взаимодействий вдоль цепочки и между ними, взаимодействия Дзялошинского (константа взаимодействия  $D \approx 5$  К) и диполь-дипольного взаимодействия.

В нулевом внешнем поле волновой вектор конденсируемых из парафазы мод определяется из условий минимума наименьшего собственного значения  $\lambda_-(q)$  эрмитовой матрицы  $A^{\alpha\beta}(q)$ . Вектор  $q = q_0 = (4\pi/3a, 0, D/J_1c)$ , реализующий этот минимум для функции  $\lambda_-(q)$ , и определяет магнитную структуру  $\text{CsCuCl}_3$ , период которой несоизмерим с периодом решетки только  $c$ -оси. Для того чтобы учесть влияние поля удобно перейти от пере-

менных  $\langle S_i^\alpha \rangle$  к медленно изменяющимся переменным  $\psi_i^\alpha$

$$\langle S_i^\alpha \rangle = (\psi_i^\alpha \exp(i \mathbf{q}_k \mathbf{r}_i) + \text{к.с.}) + m^\alpha, \quad \mathbf{q}_k = \left( \frac{4\pi}{3a}, 0, 0 \right) \quad (2)$$

( $m^\alpha$  — постоянная составляющая вдоль поля). После подстановки (2) в (1) парамагнитное состояние с понижением температуры становится неустойчивым относительно  $\psi^\alpha$ . Эта неустойчивость определяется вычислением собственных значений матрицы коэффициентов  $\tilde{a}^{\alpha\beta}(\mathbf{q})$  при квадратичных членах по  $\psi^\alpha$  в  $F$ . Матрица  $\tilde{a}^{\alpha\beta}(\mathbf{q})$  отличается от  $a^{\alpha\beta}(\mathbf{q})$  тем, что ее элементы перенормированы (из-за существования члена четвертого порядка по  $\psi^\alpha$ , в выражении для  $F$ ) слагаемыми с множителем  $m^\alpha m^\beta b$ .

Если однородное поле  $H$  направлено вдоль оси спиральной структуры, то начиная с некоторого критического значения  $H_c \sim [(\gamma_d/J_2)(D/J_1)]^{1/2}$ , где  $\gamma_d = (g\mu_B)^2/a^3$  собственные значения  $\Lambda(\mathbf{q})$  перенормированной матрицы  $\tilde{a}^{\alpha\beta}(\mathbf{q})$  имеют минимум не в точке  $\mathbf{q} = \mathbf{q}_0$ , а вблизи ее. На рис. 3 представлена наини́зшая ветвь функции  $\Lambda(\mathbf{q}) = \Lambda_-(\mathbf{q})$ ; волновой вектор  $\mathbf{q}_*$ , соответствующий минимуму этой функции, удален от симметричной точки обратной решетки  $\mathbf{q}_k$  на величину, пропорциональную диполь-дипольному взаимодействию. Периоды возникающих мод  $\psi_i^\alpha = \varphi_\alpha \exp(i \mathbf{q}_1 \mathbf{r}_i)$  ( $\mathbf{q}_1 = \mathbf{q}_* - \mathbf{q}_k$ ) становятся теперь несоизмеримыми с периодом решетки в базисной плоскости. Постоянная составляющая намагниченности  $m(T)$  вдоль поля  $H$  дается в этом случае в виде

$$m = \begin{cases} \frac{H}{\Lambda_-(0) - \Lambda_-(\mathbf{q}_*) - 24b |\varphi_x|^2} \dots & T \leq T_1 \quad (T \geq T_2); \\ \frac{H}{\Lambda_-(0) + T}, & T \geq T_1 \end{cases} \quad (3)$$

где  $|\varphi_x|^2 = (T_1 - T)/12b$ ,  $T_1 = -\Lambda_-(\mathbf{q}_*)$ ; в области  $T > T_1$  в выражении (3)  $\varphi_x = 0$ . Таким образом, в точке конденсации мод ( $T = T_1$ ) в кривой намагничивания  $m$  существует излом: при  $T < T_1$  магнитный момент нарастает быстрее, чем в области парафазы  $T > T_1$ , что согласуется с экспериментом (рис. 1, а, кривые 3, 4).

Вычисляя собственные вектора матрицы  $\tilde{a}^{\alpha\beta}$  и сравнивая свободные энергии спирального состояния и состояния с несоизмеримым периодом в базисной плоскости, мы численно определили фазовую диаграмму для  $\text{CsCuCl}_3$ . Результаты этих вычислений для исследуемого образца хорошо согласуются с данными экспериментальных наблюдений (рис. 2). Переход между различными состояниями с несоизмеримой фазой, как и наблюдается в эксперименте, является переходом первого рода. Температурный интервал существования новой промежуточной фазы  $\Delta T \sim (H - H_c)^2$ .

Авторы благодарят К.С.Александрова, В.А.Игнатченко и Г.А.Петраковского за полезные обсуждения настоящей работы.

#### Литература

1. Hirotsu S. J. Phys. C: Sol. St. Phys., 1977, 10, 967.
2. Adachi K., Achiwa N., Mekata M. J. Phys. Soc. Japan, 1980, 49, 545.
3. Tazuke Y., Tanaka H., Iio K., Nagata K. J. Phys. Soc. Japan, 1981, 50, 3919.
4. Shiba H. Sol. State Comm., 1982, 41, 511.
5. Ishibashi G., Dvorak V. J. Phys. Soc. Japan, 1978, 45, 1119.

Поступила в редакцию

12 октября 1984 г.

После переработки

27 февраля 1985 г.