

полях эффективный коэффициент спиновой диффузии в ферми-жидкостях становится комплексным, т.е. возникает возможность протекания бездиссипативных спиновых токов [34]. Это приводит к ряду явлений, часть которых аналогична наблюдаемым в ^3He -В [35, 36]. Так, например, в нормальном жидком ^3He и в растворах ^3He - ^4He наблюдалась двухдоменная структура, состоящая из двух доменов с противоположным направлением намагниченности и синфазно прецессирующей доменной стенки [37, 38]. В принципе аналогичные явления могут иметь место и в магнитоупорядоченных твердых телах. Для этого, кроме малости магнитной релаксации, необходимо, чтобы параметр порядка был вырожденным по какому-либо углу, описывающему его ориентацию, а гамильтониан содержал соответствующий градиентный член. Возможными кандидатами для таких исследований являются магнитоупорядоченный твердый ^3He [39] и антиферромагнитный CsNiCl_3 [40].

Список литературы

- Vollhardt D, Wölfle P *The Superfluid Phases of ^3He* (London: Taylor & Francis, 1990)
- Минеев В П *УФН* **139** 303 (1983)
- Абрагам А, Гольдман М *Ядерный магнетизм: порядок и беспорядок* Т. 1 (М.: Мир, 1984)
- Osheroff D D et al. *Phys. Rev. Lett.* **29** 920 (1972)
- Borovik-Romanov A S, Bunkov Yu M *Sov. Sci. Rev. Sec. A Phys.* **15** 1 (1990)
- Fomin I A, in *Helium Three* (Modern Problems in Condensed Matter Sciences, Vol. 26, Eds W P Halperin, L P Pitaevskii) (Amsterdam: North-Holland, 1990) p. 609
- Bunkov Yu M, in *Progress in Low Temperature Physics* Vol. 14 (Ed. W P Halperin) (Amsterdam: Elsevier Sci. Publ., 1995) p. 69
- Dmitriev V V, Fomin I A *J. Low Temp. Phys.* **135** 361 (2004)
- Leggett A J *Ann. Phys. (New York)* **85** 11 (1974)
- Leggett A J, Takagi S *Ann. Phys. (New York)* **106** 79 (1977)
- Brinkman W F, Smith H *Phys. Lett. A* **53** 43 (1975); Osheroff D D, Corruccini L R, in *Proc. of the 14th Intern. Conf. on Low Temperature Physics, LT-14* Vol. 1 (Eds M Krusius, M Vuorio) (Amsterdam: North-Holland, 1975) p. 100
- Фомин И А *ЖЭТФ* **93** 2002 (1987)
- Фомин И А *Письма в ЖЭТФ* **40** 260 (1984); *ЖЭТФ* **88** 2039 (1985)
- Corruccini L R, Osheroff D D *Phys. Rev. B* **17** 126 (1978)
- Giannetta R W, Smith E N, Lee D M *J. Low Temp. Phys.* **45** 295 (1981)
- Боровик-Романов А С и др. *Письма в ЖЭТФ* **40** 256 (1984)
- Боровик-Романов А С и др. *ЖЭТФ* **88** 2025 (1985)
- Боровик-Романов А С и др. *ЖЭТФ* **96** 956 (1989)
- Боровик-Романов А С и др. *Письма в ЖЭТФ* **45** 98 (1987)
- Borovik-Romanov A S et al. *Jpn. J. Appl. Phys.* **26** 175 (1987)
- Borovik-Romanov A S et al. *Phys. Rev. Lett.* **62** 1631 (1989)
- Фомин И А *Письма в ЖЭТФ* **45** 106 (1987)
- Боровик-Романов А С и др. *Письма в ЖЭТФ* **47** 400 (1988)
- Фомин И А *ЖЭТФ* **94** (6) 112 (1988)
- Borovik-Romanov A S et al. *Physica B* **165–166** 649 (1990)
- Bunkov Yu M, Dmitriev V V, Mukharskii Yu M *Physica B* **178** 196 (1992)
- Bunkov Yu M, Hakonen P J *J. Low Temp. Phys.* **83** 323 (1991)
- Kondo Y et al. *Phys. Rev. Lett.* **67** 81 (1991)
- Korhonen J S et al. *Phys. Rev. B* **46** 13983 (1992)
- Bunkov Yu M et al. *Phys. Rev. Lett.* **65** 867 (1990)
- Дмитриев В В и др. *Письма в ЖЭТФ* **79** 612 (2004)
- Bunkov Yu M et al. *Phys. Rev. Lett.* **69** 3092 (1992)
- Дмитриев В В и др. *Письма в ЖЭТФ* **76** 371 (2002)
- Leggett A J, Rice M J *Phys. Rev. Lett.* **20** 586 (1968); Leggett A J *J. Phys. C: Solid State Phys.* **3** 448 (1970)
- Fomin I A *Physica B* **210** 373 (1995)
- Дмитриев В В, Фомин И А *Письма в ЖЭТФ* **59** 352 (1994)

- Дмитриев В В, Заказов С Р, Мороз В В *Письма в ЖЭТФ* **61** 309 (1995); Dmitriev V V, Moroz V V, Zakazov S R *J. Low Temp. Phys.* **101** 141 (1995)
- Dmitriev V V et al. *Physica B* **210** 366 (1995)
- Фомин И А, Шопова Д В *Письма в ЖЭТФ* **42** 162 (1985)
- Минеев В П *ЖЭТФ* **110** 2211 (1996)

PACS numbers: **75.10.**–**b**, **75.25.**+**z**, **75.50.**Ee

Новые магнитные состояния в кристаллах

С.С. Сосин, Л.А. Прозорова, А.И. Смирнов

1. Введение

Одним из основных видов магнитных взаимодействий в кристаллах является обменное взаимодействие, которое обычно описывается гейзенберговским гамильтонианом вида

$$\hat{H} = J\hat{S}_1\hat{S}_2, \quad (1)$$

где J — обменный интеграл, определяемый перекрытием электронных оболочек взаимодействующих ионов; \hat{S}_1, \hat{S}_2 — операторы спинов. Гамильтониан системы многих магнитных ионов записывается в виде суммы парных взаимодействий. В зависимости от знака J , основное состояние системы должно обладать либо максимальным ($J < 0$), либо минимальным ($J > 0$) полным спином. В первом случае основным является ферромагнитное состояние типа $|\uparrow\uparrow\dots\rangle$, которое может реализоваться в кристаллических структурах любой размерности и симметрии. Разнообразные магнитные свойства ферромагнетиков интенсивно изучались в течение всего прошлого века.

Менее тривиальный случай возникает при положительном знаке обменного интеграла. Прежде всего, классическое (так называемое неевлевское) состояние вида $|\uparrow\downarrow\uparrow\dots\rangle$, удовлетворяющее условию минимальности полного спина, оказывается несобственным и поэтому может рассматриваться только в качестве приближения. Тем не менее отличие основного состояния трехмерных антиферромагнетиков от такого состояния (нулевые колебания параметра порядка) проявляется только в виде спиновой редукции, т.е. уменьшении упорядоченной компоненты спинов по сравнению с полным спином ионов, $\langle S \rangle / S < 1$. При понижении размерности системы влияние нулевых колебаний увеличивается, и в случае одномерной спиновой цепочки приводит к полному разрушению дальнего магнитного порядка. Основное состояние спиновой цепочки является синглетным, причем среднее значение проекции спина на каждом узле равно нулю: $\langle S_z^i \rangle = 0$. В цепочках спинов $S = 1/2$ антиферромагнитные корреляции спадают по степенному закону, а спектр возбуждений не имеет щели и вблизи $\mathbf{k} = 0$ аналогичен спектру спиновых волн в обычном антиферромагнетике [1]. Для цепочек спинов $S = 1$ спектр возбуждений отделен от синглетного основного состояния щелью обменной природы $\Delta \sim 0,4J$, а корреляции убывают экспоненциально [2]. Благодаря наличию щели магнитные возбуждения вымерзают при низких температурах $T \ll \Delta$, обращая в нуль магнитную теплоемкость и восприимчивость. Одному из интересных

следствий существования такого состояния в антиферромагнетиках посвящен раздел 2.

Другое существенное отличие антиферромагнитных систем от ферромагнетиков проявляется в возможности геометрической фрустрации обменного взаимодействия, т.е. такого пространственного расположения магнитных ионов в кристалле, при котором невозможно одновременное антипараллельное упорядочение всех взаимодействующих спинов. Такой эффект может привести к формированию неколлинеарной спиновой структуры, приведенная энергия основного состояния которой выше, чем у коллинеарного магнетика (слабая фрустрация), а в некоторых случаях полностью препятствует образованию дальнего порядка (сильная фрустрация). В последнем случае образуется принципиально новое сильнокоррелированное спиновое состояние, разупорядоченное вплоть до температур $T \ll JS^2/k_B$, которое называется "коллективным парамагнетиком" [3]. В разделах 3 и 4 будут рассмотрены некоторые необычные магнитные свойства неколлинеарных (треугольных) антиферромагнетиков, а также основное термодинамическое следствие сильной фрустрации обменного взаимодействия на примере магнетика на пироклорной решетке.

2. Индуцированный примесями магнитный порядок в спин-щелевом магнетике

Помимо квазиодномерных цепочек с целым спином имеется ряд других спин-щелевых систем, таких, как лестничные структуры [4], димерные системы [5], а также спиновые цепочки с альтернированным обменом. В последнем случае в результате нарушения трансляционной симметрии кристалла (удвоения периода решетки) обменный интеграл соседних ионов в цепочке попеременно принимает два значения: $J \pm \delta$. Альтернирование спиновых цепочек может быть обусловлено структурой кристалла [6], а может возникать спонтанно в результате так называемого спин-пайерлсовского перехода, происходящего вследствие выигрыша в обменной энергии за счет димеризации [7, 8]. При этом в спектре возбуждений цепочки спинов $S=1/2$ появляется щель, величина которой определяется параметром альтернирования: $\Delta \simeq \delta$ [9]. Появление спиновой щели (так же, как и для цепочек $S=1$) обуславливает конечность длины корреляции $\xi \simeq v\hbar/\Delta$. Такое состояние устойчиво по отношению к малым возмущениям за счет анизотропии и обменного взаимодействия между цепочками, однако может искусственно разрушаться путем допирования немагнитными примесями. При замещении магнитного иона немагнитным происходят обрыв спиновой цепочки и локальное нарушение синглетного состояния. В результате вблизи атомов примеси образуются области антиферромагнитно скоррелированных ненулевых средних проекций спина, т.е. области локального антиферромагнитного порядка. Мы будем называть такие антиферромагнитные области кластерами. Отметим, что эти кластеры образованы спинами основной матрицы на фоне синглетного, т.е. немагнитного состояния. Число магнитных ионов в кластере составляет порядка ξ/a (a — межатомное расстояние), а модуль средней проекции спина достигает максимума вблизи конца цепочки и убывает при удалении в глубь цепочки. Кластер имеет ненулевые спин и магнитный момент. Для спин-пайерлсовского магнетика формирование кластеров с локаль-

ным антиферромагнитным упорядочением рассмотрено, например, в теоретической работе [10].

Кроме того, возникновение кластеров приводит к необычному явлению — стимулированию дальнего антиферромагнитного порядка примесями, внедренными в спин-щелевую матрицу. Этот эффект был предсказан в работе [11] и впоследствии обнаружен в спин-пайерлсовском магнетике [12], халдейновском магнетике [13] и димерной спиновой системе [14]. Возникновение магнитного порядка при введении немагнитных примесей объясняется тем, что крылья спиновых кластеров перекрываются, а кластеры в соседних цепочках коррелируются слабым межцепочечным взаимодействием. Параметр порядка оказывается при этом сильно неоднородным.

Удобным объектом для изучения стимулирования магнитного порядка примесями является неорганический спин-пайерлсовский магнетик CuGeO_3 . Температура спин-пайерлсовского перехода в нем составляет $T_{\text{SP}} = 14,5$ К, величина спиновой щели при низкой температуре — $\Delta(0) \simeq 25$ К [7]. Спиновая щель открывается при температуре T_{SP} , а при температуре ниже 7 К приближается к максимальному значению $\Delta(0)$. Магнитные ионы Cu^{2+} ($S=1/2$) можно замещать, например, немагнитными ионами Zn , Mg . Эти примеси занимают в решетке CuGeO_3 позиции ионов Cu^{2+} , причем предел растворимости превышает 6%. Таким образом, при допировании можно вводить регулируемое число обрывов димеризованных цепочек. Вклады обрывов цепочек в восприимчивость и сигналы магнитного резонанса хорошо заметны на фоне синглетной и немагнитной матрицы.

При фазовом переходе в антиферромагнитное состояние сигнал магнитного резонанса обычно трансформируется из сигнала парамагнитного резонанса в сигнал антиферромагнитного резонанса (АФМР). Частота парамагнитного резонанса определяется свойствами изолированных магнитных ионов, а частота АФМР — колебаниями параметра порядка. Таким образом, фазовый переход в упорядоченное состояние сопровождается перестройкой спектра магнитного резонанса, и наблюдение этой перестройки позволяет определить температуру перехода и другие характеристики фазового превращения. При достаточно большой концентрации примеси (более 3%) примесные ионы расположены недалеко друг от друга, на расстояниях порядка длины корреляции ξ . При таких концентрациях переход в антиферромагнитное состояние в $\text{Cu}_{(1-x)}\text{Mg}_x\text{GeO}_3$ оказался, в целом, аналогичным фазовому переходу в обычных трехмерных антиферромагнетиках. Особый интерес представляет случай малых концентраций, когда расстояние между примесными атомами в цепочках превосходит длину ξ и спиновые кластеры разделены остатками синглетной матрицы. Процесс перехода в антиферромагнитную фазу при понижении температуры изучался в работе [15] с применением методики магнитного резонанса, которая позволяет зарегистрировать как парамагнитную, так и антиферромагнитную фазы спектроскопически, используя различие частот магнитного резонанса в этих фазах. Опыты проводились на монокристаллических образцах $\text{Cu}_{(1-x)}\text{Mg}_x\text{GeO}_3$, в которых неоднородность распределения концентрации примеси по образцу не превышала 10^{-3} .

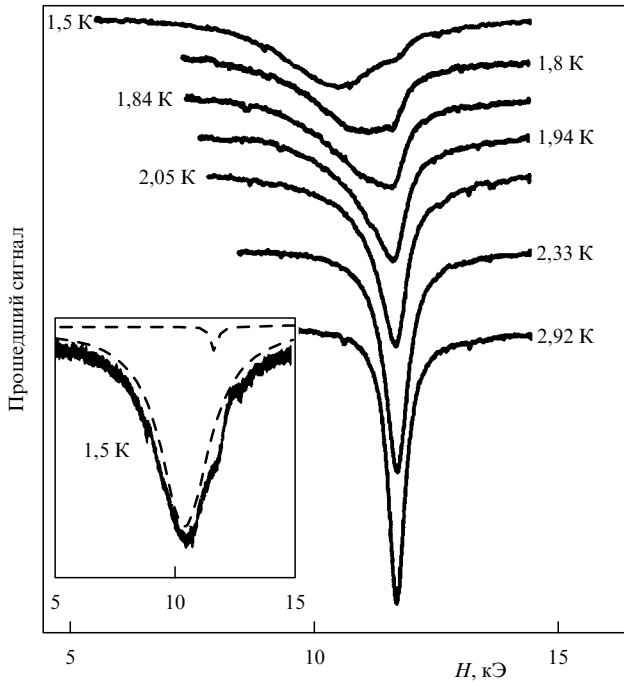


Рис. 1. Изменение формы линии магнитного резонанса в окрестности температуры Нееля в монокристалле $\text{Cu}_{(1-x)}\text{Mg}_x\text{GeO}_3$: $H \parallel b$, $\nu = 36$ ГГц, $T_N = 2,25$ К. На вставке показано разложение резонансной линии при $T = 1,5$ К на два поглощения лоренцевой формы (штриховые кривые).

На рисунке 1 изображена эволюция спектра магнитного резонанса при переходе через точку Нееля в допированном спин-пайерлсовском магнетике $\text{Cu}_{(1-x)}\text{Mg}_x\text{GeO}_3$ с $x = 0,017$. При понижении температуры линия парамагнитного резонанса расщепляется на две. Первая компонента соответствует парамагнитному резонансу — значение резонансного поля не зависит от температуры и совпадает с резонансным полем парамагнитной фазы. Резонансное поле второй компоненты зависит от температуры, и частотно-полевая зависимость для нее (см. [15]) соответствует спектру двухосного антиферромагнетика. Существует широкая область температур, в которой одновременно наблюдаются две линии — антиферромагнитного и парамагнитного резонансов. Однородность распределения примесей по образцу и малый температурный интервал перехода (0,1 К) исключают возможность объяснения сосуществования двух линий магнитного резонанса за счет макроскопической неоднородности образца. Одновременное наличие двух резонансных мод не может быть описано в рамках рассмотрения одной фазы, поскольку антиферромагнитной фазе соответствуют колебания параметра порядка, исключаяющие парамагнитную моду резонанса, а парамагнитная фаза, тем более, не допускает расщепления линии. Существование двух резонансных мод может объясняться микроскопическим фазовым расслоением образца на парамагнитные и антиферромагнитные области. Действительно, рассмотрим спиновые кластеры, образующиеся вокруг примесных атомов, и будем считать, что когерентный антиферромагнитный порядок существует в области диаметром L^* , который можно оценить из соотношения

$$k_B T \sim JS^2 \exp\left(-\frac{2L^*}{\xi}\right). \quad (2)$$

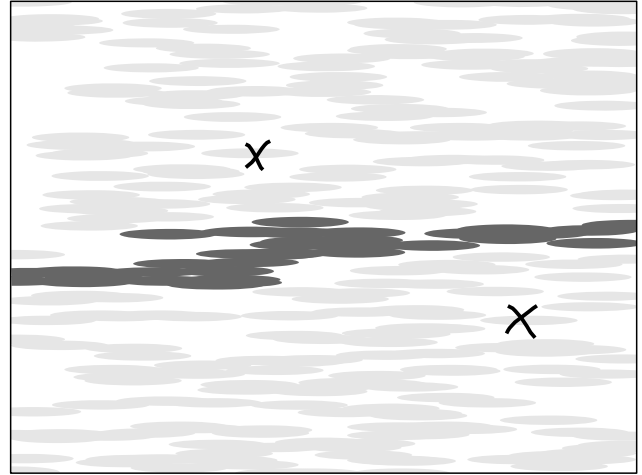


Рис. 2. Результат упрощенного моделирования структуры, индуцированной примесями упорядоченной фазы. Серым цветом отмечены области локального антиферромагнитного порядка, черным выделена область макроскопического упорядочения, белый цвет соответствует неупорядоченным областям. Крестиками отмечены два одиночных кластера.

На расстояниях больших, чем L^* , антиферромагнитные корреляции разрушаются тепловыми флуктуациями. В поперечных направлениях антиферромагнитные корреляции распространяются на расстояния, определяемые обменными интегралами в соответствующих направлениях. Так мы приходим к упрощенной модели [15], в которой в окрестности каждого примесного центра существует антиферромагнитная область эллиптической формы. Длина эллипса вдоль цепочек оценивается с помощью выражения (2), а поперечный размер эллипса получается уменьшением этого значения в соответствии с отношением обменных интегралов. При высокой температуре области локального антиферромагнитного порядка малы и не касаются друг друга, дальний порядок отсутствует, и кластеры дают вклад в восприимчивость и сигнал магнитного резонанса вследствие наличия у каждого кластера полного магнитного момента. Поэтому восприимчивость и частота магнитного резонанса имеют парамагнитный характер. При понижении температуры размер кластеров увеличивается, некоторые из них начинают соприкасаться друг с другом, что приводит к возникновению более протяженных областей с когерентным антиферромагнитным порядком, включающих в себя несколько примесных атомов. Наконец, как показано на рис. 2, возникает упорядоченная область, "протекающая" через весь образец. Возникновение этой области соответствует порогу протекания в задаче о перколяции взаимопроникающих сфер [16]. При перколяционном значении L^* , а также значениях, близких к нему, в образце еще имеются (см. рис. 2) одиночные кластеры, изолированные от больших антиферромагнитных областей слабо возмущенной синглетной матрицей. Свободные спины этих кластеров дают сигналы парамагнитного резонанса так же, как и выше критической точки. Таким образом, при температуре ниже точки Нееля в образце имеются три типа областей: 1) области достаточно большого размера с локальным антиферромагнитным порядком, дающие сигналы АФМР, 2) области синглетной матрицы, не имеющие магнитного

отклика, 3) одиночные кластеры, отделенные от антиферромагнитных областей синглетной матрицей.

Полученная картина микроскопического фазового расслоения соответствует результатам выполненного методом Монте-Карло двумерного численного моделирования для основного состояния спин-пайерловских и халдейновских систем с примесями [17]. Согласно этой модели, в которой учитывалось межцепочечное взаимодействие, в окрестностях спиновых вакансий существуют антиферромагнитно-коррелированные проекции спинов, а вдали от примесей средние значения спиновых проекций близки к нулю. Существенным результатом моделирования [17] является демонстрация сильной модуляции параметра порядка, которая составляет практически 100%. Допуская, что малый параметр порядка в областях между примесями будет разрушен тепловыми флуктуациями при конечных температурах, мы приходим к выводу об эквивалентности структуры, полученной моделированием, и структуры, предложенной на основе сосуществования двух сигналов магнитного резонанса.

3. Треугольные антиферромагнетики

Как отмечалось в разделе 1, антиферромагнитное обменное взаимодействие (в отличие от ферромагнитного) может оказывать фрустрированным вследствие особенностей кристаллической структуры. Наглядным примером такого эффекта являются антиферромагнитные структуры на плоской гексагональной решетке, так называемые треугольные антиферромагнетики. Магнитные моменты, находящиеся в вершинах правильных треугольников, не могут образовать обычную коллинеарную структуру. Минимум классической обменной энергии достигается при условии, что соседние спины ориентированы под углом 120° друг к другу. Такое состояние является двукратно вырожденным. Антиферромагнитное взаимодействие между плоскостями в реальных гексагональных кристаллах не нарушает эту структуру, упорядочивая спины в соседних плоскостях антипараллельно. Статические и динамические свойства таких систем существенно зависят от соотношения обменных взаимодействий магнитных ионов друг с другом внутри гексагональных плоскостей и между ними, но в обоих случаях значительно отличаются от свойств обычных двухподрешеточных антиферромагнетиков. Основные различия проявляются в тензорах магнитной восприимчивости, фазовых диаграммах (в особенности в магнитном поле), числе и полевых зависимостях мод магнитного резонанса. Изучение квазидвумерных систем до последнего времени ограничивалось теоретическими работами (см., например, [18, 19]). Эксперименты в этой области начались на примере соединения $\text{RbFe}(\text{MoO}_4)_2$ сравнительно недавно [20]. Наиболее полный обзор магнитоэлектрических и резонансных свойств этой системы содержится в работе [21].

Интенсивное экспериментальное и теоретическое исследование квазидвумерных треугольных антиферромагнетиков продолжается в течение двух последних десятилетий. Такие системы в основном реализуются на кристаллических структурах типа ABX_3 (A — щелочной металл, B — магнитный 3d-ион, X — галоген), обычно обладающих пространственной группой симметрии $R\bar{3}m$ (D_{6h}^4). Магнитные ионы расположены в узлах простой гексагональной решетки Браве, причем обмен-

ное взаимодействие между соседями вдоль оси шестого порядка оказывается в 10–100 раз больше взаимодействия в базисной плоскости. В упорядоченной фазе соседние спины вдоль цепочек направлены антипараллельно, а внутри гексагональных плоскостей — под углом примерно 120° друг к другу. В зависимости от знака магнитной анизотропии плоскости спинов могут лежать либо в базисной плоскости кристалла (легкоплоскостные антиферромагнетики CsMnBr_3 , KNiCl_3 и др.), либо в плоскости, содержащей ось шестого порядка C_6 (легкоосные антиферромагнетики CsNiCl_3 , RbNiCl_3 , CsMnI_3). Магнитные свойства таких систем существенно различаются. В данной статье приведены результаты исследования статических и резонансных свойств легкоосных структур на примере соединения RbNiCl_3 . По данным нейтронных экспериментов [22] при температуре $T_N \simeq 11$ К этот магнетик приобретает упорядоченную структуру, близкую к геликоидальной с волновым вектором $\mathbf{k} = (4\pi/3a, 0, \pi/c)$, где a, c — параметры решетки. Величина внутрицепочечного обменного взаимодействия по разным оценкам составляет $J \simeq 20$ К [23], межцепочечного взаимодействия — $J' \simeq 2$ К [26], константа легкоосной анизотропии приблизительно равна $D \simeq -0,05$ К. Поскольку $D \ll J, J'$, то треугольная обменная структура оказывается практически не искаженной релятивистскими взаимодействиями. Вследствие квазидвумерности магнитная структура испытывает сильное влияние нулевых колебаний, уменьшающих величину среднего спина на узле до $1,3\mu_B$ при температурах много ниже T_N .

Измерения намагниченности при температуре 1,5 К, выполненные на стандартном SQUID-магнетометре в двух ориентациях магнитного поля относительно легкой оси, представлены на рис. 3. При приложении поля, перпендикулярного оси C_6 (кружки), наблюдается практически линейная зависимость намагниченности, определяемая обычным скосом антиферромагнитных подрешеток в направлении поля. Если же поле направлено вдоль легкой оси (в плоскости спинов), то при $H = H_c \simeq 20$ кЭ на кривой $M(H)$ появляется особенность, связанная с опрокидыванием спиновой плоскости (спин-флоп-переход). Основное отличие от двухподрешеточ-

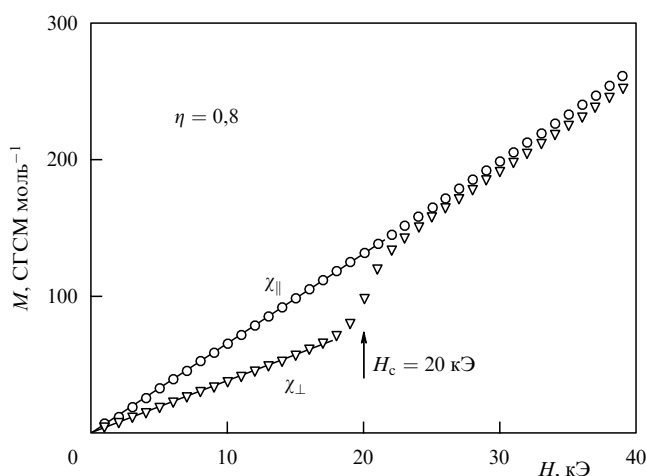


Рис. 3. Полевая зависимость намагниченности образца RbNiCl_3 при $T = 1,5$ К. Треугольники соответствуют $H \parallel C_6$, кружки — $H \perp C_6$. Сплошные прямые — линейная подгонка для определения величин χ_{\parallel} и χ_{\perp} . Стрелкой обозначено поле спин-флопа H_c .

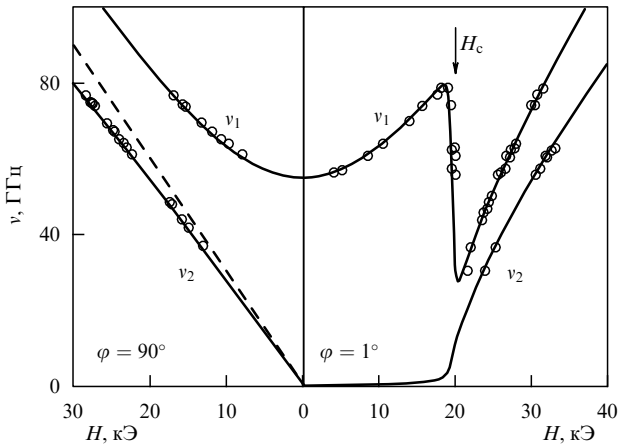


Рис. 4. Частотно-полевые диаграммы АФМР в RbNiCl_3 при $T = 1,3 \text{ К}$ в двух ориентациях магнитного поля относительно оси C_6 . Сплошные кривые получены из уравнения (4) с параметрами $\eta = 0,8$, $H_c = 20 \text{ кЭ}$, определенными из статических измерений; штриховая прямая — парамагнитная линия $\nu = \gamma H$. Стрелкой показано поле опрокидывания спиновой плоскости.

ного антиферромагнетика состоит в том, что в полях меньших H_c при $T \ll T_N$ наблюдается ненулевая восприимчивость, возникающая за счет неколлинеарности структуры. Величины компонент тензора восприимчивости определяются, в основном, внутрицепочечным обменным взаимодействием. Простой расчет в приближении молекулярного поля дает их соотношение $\chi_{\parallel} = 2\chi_{\perp} = 1/(8J)$ (индексы \parallel и \perp вводятся относительно вектора, перпендикулярного спиновой плоскости). Для RbNiCl_3 отношение $\chi_{\parallel}/\chi_{\perp} = 1,8$. Небольшая нелинейность намагниченности в сильных полях, а также различие значений намагниченности при $H \perp C_6$ и $H \parallel C_6$ выше поля спин-флопа связаны с наличием вклада в намагниченность нулевых колебаний [27].

Резонансный спектр различных легкоосных треугольных антиферромагнетиков подробно изучался во многих работах [24–26, 29]. В настоящей статье приведены результаты низкотемпературных спектроскопических измерений на монокристалле RbNiCl_3 , проведенных на спектрометре проходного типа в диапазоне частот 30–80 ГГц в магнитных полях до 40 кЭ, аналогичные результатам работы [26]. На рисунке 4 видно, что резонансный спектр в обеих основных ориентациях магнитного поля (φ — угол между полем и осью C_6) состоит из двух ветвей, обозначенных ν_1 и ν_2 , которые имеют сложную зависимость от магнитного поля. Щелевая ветвь ν_1 при $H \parallel C_6$ сначала возрастает, затем испытывает резкий скачок при значении поля $H_c = 20 \text{ кЭ}$, потом снова возрастает, приближаясь к парамагнитной линии. Ветвь ν_2 остается нулевой вплоть до значения поля H_c , после чего возрастает подобно ν_1 . В другой ориентации обе ветви монотонно возрастают, причем мода ν_2 оказывается близкой к парамагнитной зависимости $\nu = \gamma H$ (где γ — гиромагнитное отношение), однако четко отличается от нее.

Анализ резонансных свойств подобных неколлинеарных структур на основе микроскопического спинового гамильтониана оказывается весьма сложным, и к тому же требует введения многочисленных модельных ограничений, связанных с наличием в системе многих подрешеток. Наиболее адекватным методом теоретиче-

ского описания длинноволновой части резонансного спектра таких структур является подход, основанный на идеях обменной симметрии [28]. Пространственная спиновая плотность 120° -й магнитной структуры задается двумя единичными ортогональными векторами $\mathbf{l}_1, \mathbf{l}_2$ и волновым вектором структуры \mathbf{k} :

$$\mathbf{S} \sim \mathbf{l}_1 \cos \mathbf{k}\mathbf{r} + \mathbf{l}_2 \sin \mathbf{k}\mathbf{r}.$$

Длинноволновая динамика магнетика (без учета его внутренних степеней свободы) задается движением этих векторов, а его кинетическая энергия в магнитном поле определяется квадратичной формой вида

$$E = \frac{\chi_{\alpha\beta}}{2} (\Omega + H)_\alpha (\Omega + H)_\beta,$$

где $\chi_{\alpha\beta} = \chi_{\perp} \delta_{\alpha\beta} + (\chi_{\parallel} - \chi_{\perp}) n_\alpha n_\beta$ — тензор восприимчивости обменной структуры, Ω — угловая скорость вращения в спиновом пространстве, $\mathbf{n} = [\mathbf{l}_1 \mathbf{l}_2]$ — вектор нормали к спиновой плоскости. Потенциальная энергия взаимодействия спиновой системы с кристаллом (слабого по сравнению с обменом) в первом приближении вводится в виде квадратичной по компонентам $\mathbf{l}_1, \mathbf{l}_2$ формы, инвариантной относительно преобразований симметрии обменной структуры. В результате лагранжиан системы представляется в виде

$$\mathcal{L} = E - \frac{\alpha}{2} n_z^2. \quad (3)$$

При направлении магнитного поля под произвольным углом φ к легкой оси, равновесная ориентация спиновой плоскости, задаваемая углом ψ между вектором \mathbf{n} и легкой осью, определяется соотношением

$$\tan 2\psi = \frac{H^2 \sin 2\varphi}{H^2 \cos 2\varphi - H_c^2},$$

где $H_c^2 = \alpha/(\chi_{\parallel} - \chi_{\perp})$ — поле опрокидывания спиновой плоскости при направлении \mathbf{H} вдоль легкой оси ($\varphi = 0$).

Разложив входящие в лагранжиан (3) векторы \mathbf{n} и Ω до членов второго порядка по малому углу отклонения от равновесия θ и варьируя полученное выражение, получаем секулярное уравнение для собственных частот:

$$\begin{vmatrix} \omega^2 - \eta P & i\omega(1 - \eta)Z \\ -i\omega(1 - \eta)Z & \omega^2 - \eta Q \end{vmatrix} = 0, \quad (4)$$

где

$$Q = \sqrt{H^4 - 2H^2 H_c^2 \cos 2\varphi + H_c^4},$$

$$P = \frac{1}{2}(Q - H_c^2 + H^2),$$

$$Z = H \cos(\psi - \varphi), \quad \eta = \frac{\chi_{\parallel} - \chi_{\perp}}{\chi_{\perp}}.$$

Впервые подобный расчет был выполнен в работе [25]. Как видно из (4), для описания спектра АФМР достаточно всего двух феноменологических параметров: η и H_c ; причем самосогласованность подхода проявляется в том, что эти параметры можно определить независимо из магнитостатических измерений. Результаты расчета по уравнению (4) с параметрами $\eta = 0,8$, $H_c = 20 \text{ кЭ}$, представленные на рис. 4 сплош-

ными кривыми, демонстрируют прекрасное согласие с экспериментом.

Две релятивистские ветви спектра ν_1 и ν_2 связаны с колебаниями спиновой плоскости (вектора \mathbf{n}) относительно кристалла и магнитного поля. Очевидно, в спектре плоской неколлинеарной структуры должна существовать и третья релятивистская ветвь колебаний, связанная с однородным вращением спинов в плоскости (вокруг вектора \mathbf{n}). При малых искажениях треугольной структуры вследствие анизотропии такая степень свободы оказывается практически вырожденной, поэтому данная ветвь в спектре RbNiCl_3 не наблюдается. С увеличением анизотропии для ее описания необходимо ввести релятивистские инварианты более высоких порядков по компонентам I_1, I_2 , снимающие вырождение спиновой структуры в плоскости. Это было впервые сделано при описании нижней ветви спектра АФМР в антиферромагнетике CsMnI_3 [29] и диамагнитно разбавленном $\text{RbNi}_{1-x}\text{Mg}_x\text{Cl}_3$ [30].

Таким образом, неколлинеарное магнитное упорядочение, возникающее благодаря слабой геометрической фрустрации обменного взаимодействия в гексагональных кристаллах, обладает весьма необычными свойствами. Наиболее интересное из них проявляется в длинноволновой спиновой динамике, отличающейся от динамики в коллинеарном случае как по виду колебаний и числу мод магнитного резонанса, так и по их эволюции во внешнем магнитном поле. Возможность самосогласованного описания этих эффектов в рамках симметричного "гидродинамического" подхода [28], не требующего введения каких-либо модельных ограничений, вызывает дополнительный интерес к данной проблеме.

4. Сильнофрустрированные антиферромагнетики

В разделе 3 был рассмотрен случай слабой фрустрации обменного взаимодействия, не препятствующей образованию неелевского состояния. Однако существуют кристаллические решетки (типа кагоме, граната и пирохлора), в которых обменное взаимодействие не может стабилизировать какое-либо упорядочение. В последнее десятилетие было исследовано несколько таких систем [31]. В данной статье мы ограничимся рассмотрением магнитных свойств пирохлорного антиферромагнетика $\text{Gd}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$. Магнитные ионы ^{3+}Gd ($S = 7/2, L = 0$) в этом кристалле образуют гранецентрированную кубическую решетку Браве, базисом которой является правильный тетраэдр (проекция решетки на плоскость [111] кристалла схематически показана на рис. 5). Магнитное основное состояние такой структуры в приближении обмена между ближайшими соседями должно удовлетворять условию равенства нулю полного спина на каждом тетраэдре, однако таких классических состояний оказывается бесконечно много. Флуктуации различных практически вырожденных по энергиям состояний приводят к тому, что спиновая система не упорядочивается вплоть до $T = 0$ [32, 33]. Недавние экспериментальные исследования теплоемкости и магнитной восприимчивости [34–36], а также нейтронные эксперименты [37] показали, что $\text{Gd}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ действительно остается разупорядоченным в широком интервале температур ниже температуры Кюри–Вейсса $\theta_{\text{CW}} \simeq 10$ К. Переход в упорядоченную фазу, предположительно обусловленный диполь-дипольным взаимодействием, происходит только при температуре $T_{\text{N1}} \approx 1$ К.

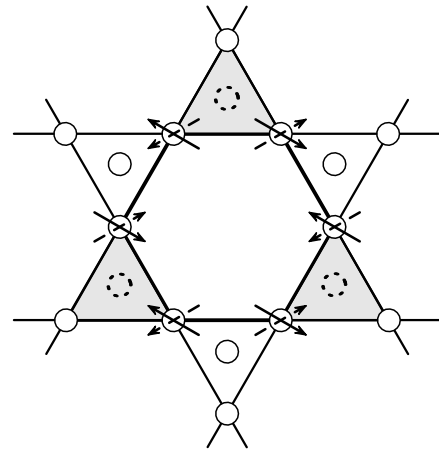


Рис. 5. Схематическое изображение кристаллической структуры пирохлора в проекции на плоскость [111]. Серыми и белыми треугольниками обозначены тетраэдры с магнитными ионами в вершинах, выходящие из плоскости соответственно вниз и вверх; жирной линией обведен шестиугольник, образованный гранями соседних тетраэдров. Стрелками показано антиферромагнитное упорядочение магнитных моментов ионов на шестиугольнике.

Бесконечное вырождение основного состояния фрустрированного магнетика эквивалентно наличию в спектре его возбуждений макроскопического числа локальных мягких мод. Эти моды соответствуют вращательным степеням свободы групп спинов, находящихся в вершинах шестиугольников, образованных ребрами соседних тетраэдров в кагоме-плоскостях (см. рис. 5). Если спины по периметру шестиугольника упорядочены антипараллельно, то в отсутствие внешнего поля их поворот в спиновом пространстве на произвольный угол не изменяет полную обменную энергию системы. Такие низколежащие моды наблюдались в экспериментах по квазиупругому рассеянию нейтронов в соединении ZnCr_2O_4 , которое также является гейзенберговским антиферромагнетиком на пирохлорной решетке [38].

Основное термодинамическое следствие существования мягких мод состоит в том, что значительная часть магнитной энтропии не вымерзает вплоть до температур много меньших θ_{CW} . Такие моды сохраняются в системе вплоть до поля насыщения H_{sat} (в $\text{Gd}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ $H_{\text{sat}} \simeq 70$ кЭ), после чего они приобретают шель зеemanовской природы. Переход от невырожденного, полностью поляризованного состояния, существующего выше H_{sat} , в бесконечнократно вырожденное состояние ниже H_{sat} происходит посредством "конденсации" макроскопического числа локальных мод и сопровождается большим изменением энтропии в окрестности критического поля [39]. Данное свойство является предпосылкой существования в $\text{Gd}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ усиленного магнитокалорического эффекта, исследованного недавно в работе [40]. На рисунке 6 представлены зависимости температуры образца $\text{Gd}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$, находящегося в квазиadiaбатических условиях, от магнитного поля при размагничивании, начиная с различных температур T_i . На всех кривых $T_S(H)$, начинающихся от 10 К и ниже, наблюдается резкое падение температуры в области значений поля 120–60 кЭ (в отличие от равномерного охлаждения идеального парамагнетика по закону $T/H = \text{const}$), причем максимальное отношение начальной температуры к конечной T_i/T_f больше 10. Этот эксперимент наглядно

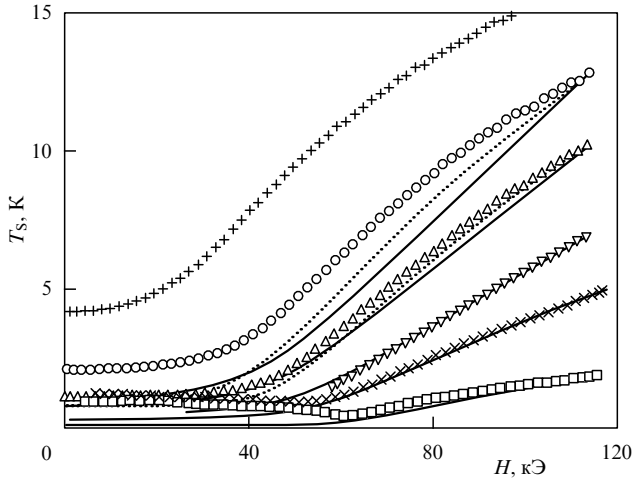


Рис. 6. Зависимости температуры образца $\text{Gd}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ от магнитного поля (приложенного в плоскости [111]) при квазиadiaбатическом размагничивании начиная от значения поля 118 кЭ при различных стартовых температурах T_i . Сплошные кривые — результаты моделирования методом Монте-Карло, пунктирные кривые — кривые размагничивания с поправками на решеточную теплоемкость.

демонстрирует принципиальную роль сильной обменной фрустрации в магнитном охлаждении $\text{Gd}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$. Для количественного описания полученных данных было выполнено моделирование методом Монте-Карло для классического антиферромагнетика в приближении ближайших соседей (подробное описание см. в работе [39]). Единственным параметром, необходимым для наложения результатов моделирования на экспериментальные данные, является обменная константа J . Ее можно оценить по величинам поля насыщения и температуры Кюри–Вейсса, которые для пирохлорного магнетика выражаются в приближении молекулярного поля следующим образом (см., например, [39]):

$$g\mu_B H_{\text{sat}} = 8JS, \quad k_B\theta_{\text{CW}} = 2JS(S+1). \quad (5)$$

Оценка обменной константы из обоих выражений (5) дает величину $J \approx 0,3$ К. Результаты моделирования с этим значением параметра J представлены на рис. 6 сплошными кривыми. С учетом поправок на решеточный вклад в теплоемкость при высоких температурах (показанных пунктирными кривыми) они находятся в прекрасном согласии с экспериментом, что является прямым доказательством правильности концепции мягких мод для термодинамического описания фрустрированного магнетика.

В заключение оценим хладопроизводительность процесса, используя приведенные выше кривые адиабатического размагничивания $T_s(H)$ и данные по теплоемкости $C(T)$ антиферромагнетика $\text{Gd}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ в сильном магнитном поле $H = 90$ кЭ, полученные на калориметре "Quantum Design" в диапазоне температур 1,5–20 К. Количество тепла, поглощаемого магнетиком при изотермическом размагничивании, связано с изменением его энтропии простым соотношением

$$\Delta Q = T \Delta S \Big|_{H_i}^{H_f}.$$

Рассмотрим кривую адиабатического размагничивания от начальной точки (H_i, T_i) до конечной точки (H_f, T_f) . Энтропия вдоль кривой остается постоянной, поэтому

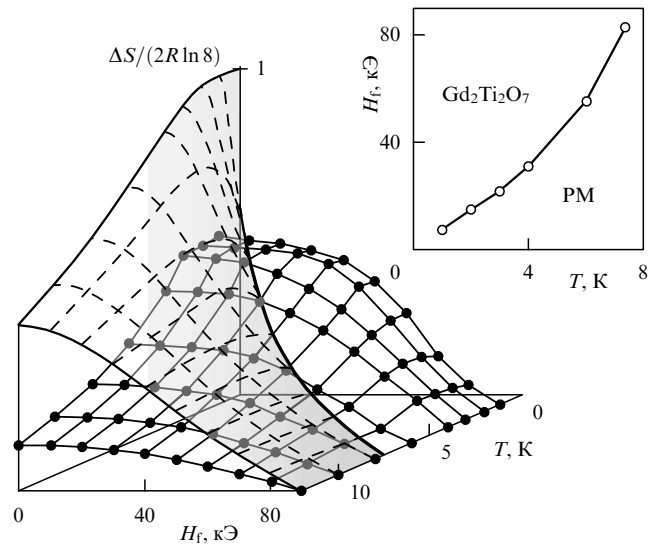


Рис. 7. Изменение энтропии в ходе изотермического размагничивания $\text{Gd}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ начиная от $H_i = 90$ кЭ при различных температурах в зависимости от значений конечного поля H_f . Серая поверхность со штриховыми линиями — аналогичные расчетные данные для идеального парамагнетика со спином $S = 7/2$. На вставке показана граница областей преимущественного размагничивания пирохлора и идеального парамагнетика (PM) в координатах $H_f - T$.

можно связать изменение энтропии при постоянной температуре T_f и в постоянном поле H_i соотношением

$$\Delta S(T_f) \Big|_{H_i}^{H_f} = \Delta S(H_i) \Big|_{T_i}^{T_f} = \int_{T_i}^{T_f} \frac{C(T)}{T} dT. \quad (6)$$

Величины $\Delta S|_T$, вычисленные по формуле (6) при различных температурах для размагничивания от значения поля $H_i = 90$ кЭ до конечного значения H_f , представлены черными кружками на рис. 7 (при этом полная энтропия системы остается неопределенной). Необходимо отметить две основные особенности: 1) примерно половина полной магнитной энтропии $2R \ln 8$ сохраняется в системе даже при температурах, близких к температуре упорядочения $T_{N1} = 1$ К; 2) наиболее сильное изменение энтропии (и поглощения тепла) приходится на область сильных полей выше H_{sat} . Это значительно отличается от поведения обычного парамагнетика при низкой температуре (показанного на рис. 7 штриховыми кривыми на серой поверхности), энтропия которого высвобождается только при размагничивании до значений поля $H_f \ll H_i$. На вставке рис. 7 показана граница области в координатах $H_f - T$, в которой энтропия $\text{Gd}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ изменяется сильнее, чем энтропия идеального парамагнетика. Хладопроизводительность ΔQ имеет максимум вблизи 4 К, достигая значения 30 Дж моль $^{-1}$ Gd. Такое количество тепла соответствует теплоте испарения приблизительно одного моля жидкого ^3He при $T = 3$ К, что создает принципиальную возможность использования пирохлорного магнетика $\text{Gd}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ в практической криогенике.

5. Заключение

В статье описано несколько типов сильнокоррелированных диэлектрических спиновых систем с антиферромагнитным обменным взаимодействием, в которых, в

отличие от обычных магнитных кристаллов, упорядочение спинов при низких температурах либо вовсе отсутствует, либо реализуется необычным образом. В неупорядоченных низкоразмерных структурах проявляются новые эффекты, например, индуцирование магнитного порядка немагнитными примесями. В критической точке, соответствующей возникновению этого нетривиального упорядочения, экспериментально обнаружено микроскопическое фазовое расслоение магнитных состояний диэлектрической матрицы.

Геометрическая фрустрация антиферромагнитного обменного взаимодействия на гексагональной кристаллической решетке может привести к возникновению экзотических неколлинеарных магнитных структур треугольного типа, обладающих интересными динамическими свойствами, подробно исследованными как экспериментально, так и теоретически. В случае сильной фрустрации, например, в магнетиках на пироклорной решетке, невозможность обычного упорядочения сопровождается полным разрушением дальнего порядка и образованием нового коллективного парамагнитного состояния типа спиновой жидкости, обладающего уникальной термодинамикой в магнитном поле. Открываются перспективы практического применения наблюдавшегося в таких системах усиленного магнитокалорического эффекта в криотехнике. Дальнейшее изучение этих систем представляется одной из актуальных задач физики магнитных явлений.

Авторы благодарят В.Н. Глазкова, М.Е. Житомирского, В.И. Марченко и О.А. Петренко за плодотворное сотрудничество, а также С.В. Петрова, Г. Балакришнан, Т. Масуду и К. Учинокуру за предоставленные образцы.

Список литературы

1. Bethe H Z. *Phys.* **71** 205 (1931)
2. Haldane F D M. *Phys. Rev. Lett.* **50** 1153 (1983)
3. Villain J Z. *Phys. B* **33** 31 (1979)
4. Dagotto E, Rice T M. *Science* **271** 618 (1996)
5. Kagayama H et al. *Phys. Rev. Lett.* **82** 3168 (1999)
6. Garrett A W et al. *Phys. Rev. Lett.* **79** 745 (1997)
7. Hase M, Terasaki I, Uchinokura K. *Phys. Rev. Lett.* **70** 3651 (1993)
8. Pytte E. *Phys. Rev. B* **10** 4637 (1974)
9. Булаевский Л Н. *ФТТ* **11** 1132 (1969)
10. Fukuyama H, Tanimoto T, Saito M. *J. Phys. Soc. Jpn.* **65** 1182 (1996)
11. Shender E F, Kivelson S A. *Phys. Rev. Lett.* **66** 2384 (1991)
12. Regnault L P et al. *Europhys. Lett.* **32** 579 (1995)
13. Uchiyama Y et al. *Phys. Rev. Lett.* **83** 632 (1999)
14. Oosawa A, Ono T, Tanaka H. *Phys. Rev. B* **66** 020405(R) (2002)
15. Glazkov V N et al. *Phys. Rev. B* **65** 144427 (2002)
16. Shante V K S, Kirkpatrick S. *Adv. Phys.* **20** 325 (1971)
17. Yasuda C et al. *Phys. Rev. B* **64** 092405 (2001)
18. Chubukov A V, Golosov D I. *J. Phys.: Condens. Matter* **3** 69 (1991)
19. Гехт П С, Бондаренко И Н. *ЖЭТФ* **111** 627 (1997)
20. Inami T, Ajiro Y, Goto T. *J. Phys. Soc. Jpn.* **65** 2374 (1996)
21. Svistov L E et al. *Phys. Rev. B* **67** 094434 (2003)
22. Yelon W B, Cox D E. *Phys. Rev. B* **6** 204 (1972)
23. Achiwa N. *J. Phys. Soc. Jpn.* **27** 561 (1969); Iio K, Hyodo H, Nagata K. *J. Phys. Soc. Jpn.* **49** 1336 (1980)
24. Tanaka H et al. *J. Phys. Soc. Jpn.* **57** 1153 (1988)
25. Зализняк И А и др. *Письма в ЖЭТФ* **47** 172 (1988)
26. Петренко О А, Петров С В, Прозорова Л А. *ЖЭТФ* **98** 727 (1990)
27. Zaliznyak I A. *Solid State Commun.* **84** 573 (1992)
28. Андреев А Ф, Марченко В И. *УФН* **130** 39 (1980)
29. Абаржи С И и др. *ЖЭТФ* **104** 3232 (1993)
30. Житомирский М Е и др. *ЖЭТФ* **108** 343 (1995)
31. Ramirez A P "Geometrical Frustration", in *Handbook of Magnetic Materials* Vol. 13 (Ed. K H J Buschow) (Amsterdam: Elsevier, 2001) p. 423
32. Moessner R, Chalker J T. *Phys. Rev. Lett.* **80** 2929 (1998)
33. Canals B, Lacroix C. *Phys. Rev. B* **61** 1149 (2000)
34. Raju N P et al. *Phys. Rev. B* **59** 14489 (1999)
35. Ramirez A P et al. *Phys. Rev. Lett.* **89** 067202 (2002)
36. Bonville P et al. *J. Phys.: Condens. Matter* **15** 7777 (2003)
37. Champion J D M et al. *Phys. Rev. B* **64** 140407(R) (2001)
38. Lee S-H et al. *Nature* **418** 856 (2002)
39. Zhitomirsky M E. *Phys. Rev. B* **67** 104421 (2003)
40. Sosin S S et al., cond-mat/0404529; submitted to *Phys. Rev. B*