Magnetisierungsplateaus in einem frustrierten Heisenbergmodell mit Ferro- und Antiferromagnetischen Wechselwirkungen

A. Honecker[1], M. Kaulke[2], K.D. Schotte[2]

[1] *S.I.S.S.A., Via Beirut 2-4, I–34014 Trieste, Italien*
[2] *Fachbereich Physik, Freie Universität Berlin, Arnimallee 14, 14195 Berlin*

Motivation

$CsCuCl_3$ ist in mancherlei Hinsicht ein recht ungewöhnlicher gestapelter Dreiecks-Magnet. Unter anderem zeichnet er sich dadurch aus, daß alle Kopplungskonstanten die gleiche Größenordnung haben. Die Kristallstruktur und die magnetische Struktur ist in Fig. 1 dargestellt [1]. Man beachte insbesondere in Fig. 1b) die Modulation in Richtung der c-Achse mit einer Periodizität von etwas mehr als 70 Lagen.

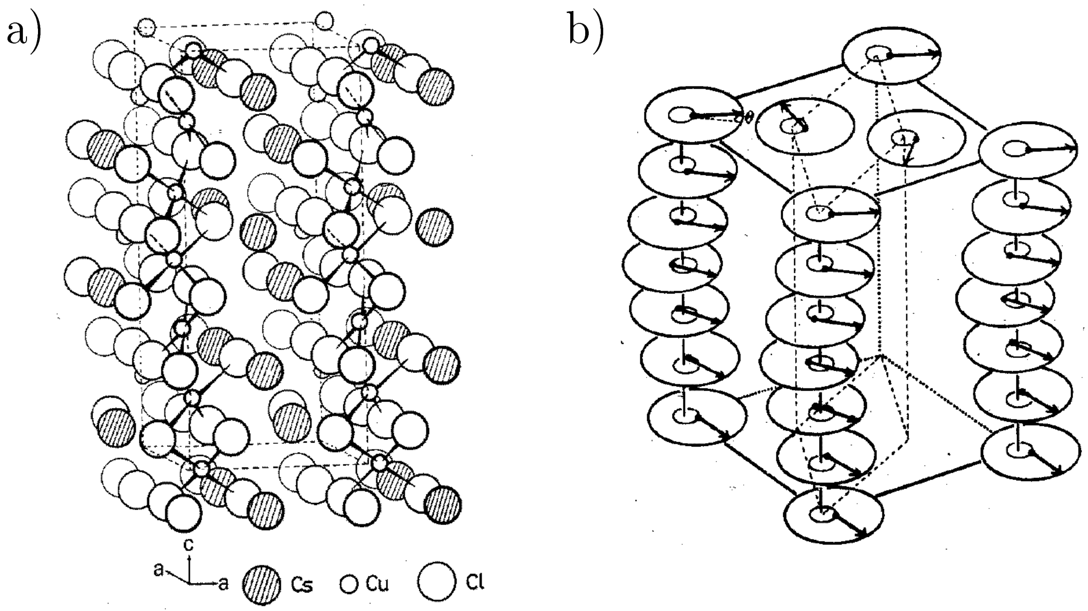

Fig. 1: (Nach [1]) **a)** Kristallstruktur von $CsCuCl_3$. Die Pfeile zeigen Cu–Cl-Bindungen, die die quadratischen $(CuCl_4)^{2-}$ Gruppen bilden, welche entlang einer Helix um die c-Achse verbunden sind. **b)** Magnetische Struktur von $CsCuCl_3$. Die magnetischen Momente drehen sich zwischen den Ebenen um 5.1°. Die gepunktete Linie zeigt die chemische Einheitszelle.

Uns interessiert hier primär das Verhalten von $CsCuCl_3$ in starken äußeren Magnetfeldern und bei tiefen Temperaturen. Ein ungewöhnliches Verhalten dieses Materials ist bereits seit längerem bekannt. Fig. 2 zeigt ein Beispiel experimentell gemessener Magnetisierungskurven [2]. Man beobachtet deutlich unterschiedliches Verhalten, je nachdem ob man das Magnetfeld parallel oder senkrecht zur c-Achse anlegt. Liegt das Magnetfeld in Richtung der c-Achse, so tritt ungefähr bei Werten der Magnetisierung $\langle M \rangle$ von 1/3 des Sättungswertes ein Sprung auf. Für ein Magnetfeld senkrecht zur c-Achse findet man hingegen ein Plateau in dieser Gegend.

Ein Plateau mit $\langle M \rangle = 1/3$ wird auch in anderen Dreiecksmagneten beobachtet (vgl. z.B. [3]).

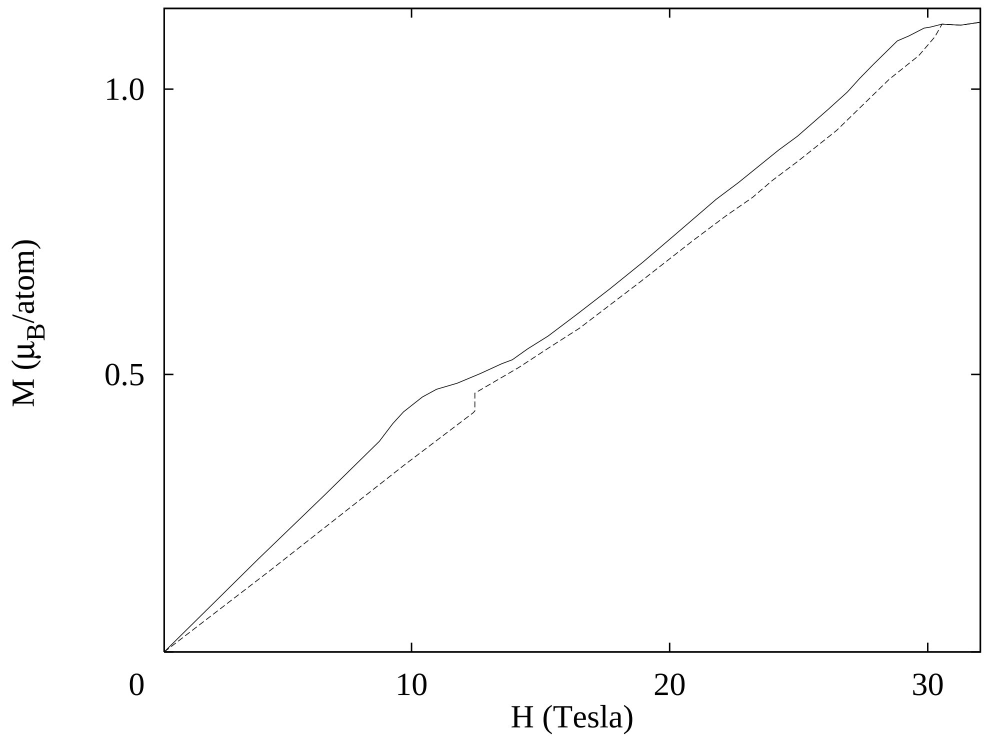

Fig. 2: Magnetisierungs-Kurve von $CsCuCl_3$ bei $T = 1.1K$. Die durchgezogene Linie steht für ein Magnetfeld senkrecht zur c-Achse, die gestrichelte für Magnetfeld parallel zur c-Achse. Adaptiert von [2].

Dieses Verhalten von $CsCuCl_3$ ist bis jetzt noch nicht vollständig verstanden. Komplikationen entstehen z.B. durch den intrinsisch drei-dimensionalen Charakter des Materials, sowie den Spin 1/2 der Kupfer-Atome. Es ist naheliegend, daß Quanteneffekte eine wichtige Rolle spielen, und somit nicht überraschend, wenn eine (semi)klassische Analyse zu einer nur unzureichenden Beschreibung führt.

Das Modell

Unser Ziel ist es, den Spin $S = 1/2$-Fall direkt zu studieren, wofür wir aber bzgl. der Dimensionalität des Systems Kompromisse machen müssen. Ferner werden wir die für $CsCuCl_3$ charakteristische Überstruktur in Richtung der c-Achse vernachlässigen, die normalerweise durch einen Dzhalozhinski-Moriya Wechselwirkungsterm berücksichtigt wird.

Wir kommen also zu einem gestapelten Dreiecksmagenten, wie er in Fig. 3 angedeutet ist. Bei $CsCuCl_3$ ist die Kopplung entlang der Ketten ferromagnetisch ($J < 0$) und die in den Dreiecksebenen antiferromagnetisch ($J' > 0$). Diese Kopplungen stehen ungefähr im Verhältnis $J'/|J| \approx 1/3$. Dies legt nahe, daß ein 3-Ketten-Modell (wie in Fig. 3 durch die fetten Linien angedeutet) eine vernünftige erste Approximation sein sollte.

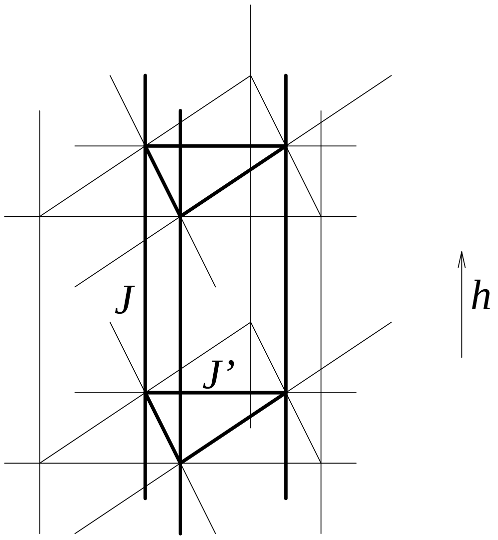

Fig. 3: Der gestapelte Dreiecksmagnet im Magnetfeld h. Die fetten Linien deuten unser 3-Ketten-Modell an.

In Formeln ist unser Modell durch den folgenden Hamilton-Operator gegeben:

$$\begin{aligned} H = & J \sum_{i=1}^{N} \sum_{x=1}^{L} \Delta S_{i,x}^z S_{i,x+1}^z + \tfrac{1}{2} \left(S_{i,x}^+ S_{i,x+1}^- + S_{i,x}^- S_{i,x+1}^+ \right) \\ & + J' \sum_{\langle i,j \rangle} \sum_{x=1}^{L} \Delta S_{i,x}^z S_{j,x}^z + \tfrac{1}{2} \left(S_{i,x}^+ S_{j,x}^- + S_{i,x}^- S_{j,x}^+ \right) \\ & - h \sum_{i,x} S_{i,x}^z \, , \end{aligned} \tag{1}$$

wobei die $\vec{S}_{i,x}$ Spin-1/2 Operatoren sind und h ist ein dimensionsloses Magnetfeld. Die Notation $\langle i,j \rangle$ steht für benachbarte Paare der N Ketten. Wir werden die Zahl der Ketten festhalten ($N = 3$), aber den Grenzwert in der Länge $L \to \infty$ betrachten. Für $N = 3$ sind die Nachbarpaare $\langle 1,2 \rangle$, $\langle 2,3 \rangle$ und $\langle 3,1 \rangle$.

Wie durch $CsCuCl_3$ motiviert, wählen wir J ferromagnetisch ($J < 0$) und J' antiferromagnetisch ($J' > 0$). Bei $CsCuCl_3$ ist ferner Δ etwas kleiner als 1.

Im folgenden werden wir uns auf Temperatur null konzentrieren. Man beachte, daß das Magnetfeld in (1) für allgemeines Δ an einen erhaltenen Ordnungsparameter gekoppelt ist. Dies enstpricht einem Magnetfeld entlang der c-Achse und führt zu technischen Vereinfachungen.

Die Magnetisierung $\langle M \rangle$ ist definiert durch

$$\langle M \rangle = \frac{2}{NL} \left\langle \sum_{i=1}^{N} \sum_{x=1}^{L} S_{i,x}^z \right\rangle . \tag{2}$$

Der Vorfaktor dient zur Normierung des Sättigungswertes auf 1.

Als ein erstes Ergebnis ist der Übergang zu Sättigung $\langle M\rangle \to 1$ leicht durch eine Spinwellen-Analyse zu verstehen. Man findet für $N = 3$ zylindrisch gekoppelte Ketten ein oberes kritisches Feld

$$h_{uc} = J'(\Delta + \tfrac{1}{2}) + J(\Delta - 1)\,. \tag{3}$$

Dies gilt, solange der Übergang durch einen einzelnen Spin-Flip statfindet, was nur für kleine Δ (insbesondere $\Delta \leq 1$) der Fall ist.

Ising-Entwicklungen

Zuerst betrachten wir den Ising-Grenzfall $\Delta \to \infty$ von (1). In diesem Grenzfall sind aufgrund der ferromagnetischen Kopplung $J < 0$ alle Spins innerhalb einer Kette gleich ausgerichtet. Für $N = 3$ können somit nur Zustände mit $\langle M\rangle = \pm 1$ und $\langle M\rangle = \pm 1/3$ bei Temperatur null realisiert werden. Es ergibt sich also ein Plateau mit $\langle M\rangle = 1/3$. In dem zugehörigen Grundzustand zeigen die Spins in 2 Ketten nach oben und in der dritten nach unten.

Diese Plateaus bleiben auch für endliche Δ erhalten. Nun treten aber auch Zwischenzustände auf, und der Übergang wird geglättet. Reihenentwicklungen in Δ^{-1} lassen sich für die Energielücken einzelner Spinanregungen über den Plateauzuständen durchführen. Die niedrigsten Lücken gehören zu translationsinvarianten Zuständen entlang der Kettenrichtung. Kann ein Spin in 2 Ketten umgedreht werden, so ist eine antisymmetrische Kombination zu wählen. Diese Berechnung der Energielücken führt zu Approximationen für die Plateau-Ränder in den Bereichen, wo der Übergang zweiter Ordnung ist (für Übergänge erster Ordnung ist das Plateau breiter).

Entwicklungen in Δ^{-1} für den unteren und oberen Rand des $\langle M\rangle = 1/3$ Plateaus sind nun mit Standardverfahren für allgemeine J und J' zu berechnen. Zur Vereinfachung geben wir hier nur die Spezialisierung des Ergebnisse zu $J' = -J/3$ an:

$$\begin{aligned}
\frac{h_{c_1}}{|J|} &= -\Delta + \frac{7}{6} - \frac{11}{432\Delta^2} + \frac{1993}{72576\Delta^3} - \frac{5843545}{109734912\Delta^4} + \frac{202825209149}{2824576634880\Delta^5} \\
&\quad + \mathcal{O}(\Delta^{-6})\,, &(4)\\
\frac{h_{c_2}}{|J|} &= \frac{4\Delta}{3} - 1 - \frac{1}{36\Delta} + \frac{11}{432\Delta^2} - \frac{3887}{54432\Delta^3} + \frac{1558903}{18289152\Delta^4} - \frac{33098775077}{224682232320\Delta^5} \\
&\quad + \mathcal{O}(\Delta^{-6})\,. &(5)
\end{aligned}$$

Numerische Ergebnisse

Wir haben Diagonalisierungen von (1) für $N = 3$ auf endlichen Systemen mit $L \leq 8$ durchgeführt. Das hierbei beobachtete Verhalten lässt sich am Beispiel $L = 8$ gut darstellen.

Um Parameterabhängigkeiten darstellen zu können, wählen wir zur Präsentation anstelle von Magnetisierungkurven 'magnetische Phasendiagramme'. Hierbei geben wir die Magnetfelder h, bei denen für $L = 8$ Übergänge auftreten, als Funktion des Parameters an. Die Werte der Magnetisierung $\langle M\rangle$ notieren wir zwischen diesen Linien.

Ein Beispiel ist in Fig. 4 gegeben, das die Abhängigkeit von $J'/|J|$ in der $su(2)$-symmetrischen Situation $\Delta = 1$ zeigt. Bereiche mit dichtliegenden Linien gehen im thermodynamischen Limes $L \to \infty$ in glatte Änderungen von $\langle M \rangle$ als Funktion von h über. In Fig. 4 beobachten wir somit für alle $J' > 0$ ein Plateau mit $\langle M \rangle = 1/3$.

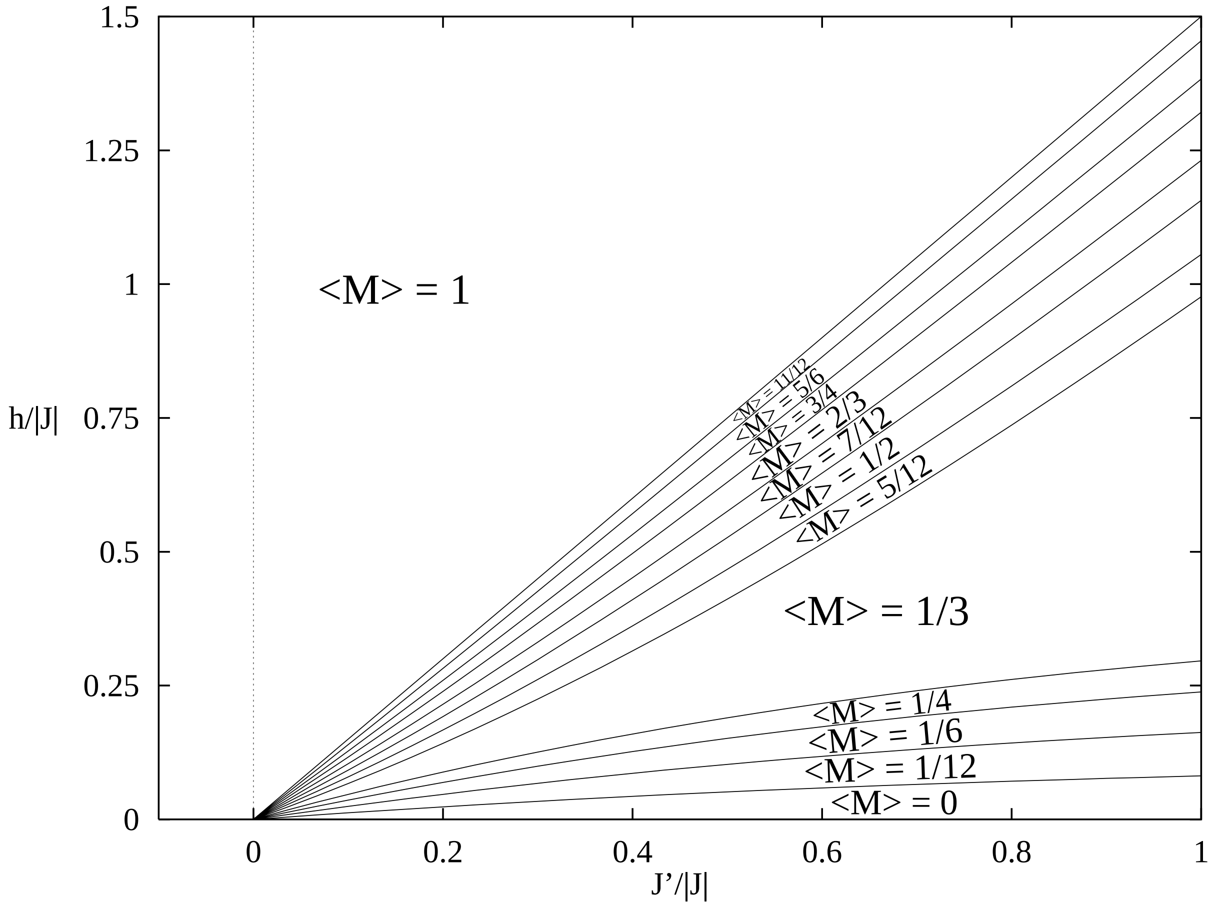

Fig. 4: Magnetisches Phasendiagramm für 3 antiferromagnetisch gekoppelte ferromagnetische Ketten mit Länge $L = 8$ und $\Delta = 1$.

Nun wählen wir die Kopplungskonstanten zu $J' = |J|/3$ und betrachten die Abhängigkeit von Δ. Das zugehörige magnetische Phasendiagramm ist Fig. 5.

Man beobachtet, daß für $\Delta \gtrsim 1.4$ wie im Ising-Fall nur die Werte $\langle M \rangle = 0,\ \pm 1/3,\ \pm 1$ auftreten. In diesem Bereich sind die zugehörigen Plateaus durch Übergänge erster Ordnung voneinander getrennt. Außerhalb dieses Bereiches scheinen der untere Rand des $\langle M \rangle = 1/3$ Plateaus und der Übergang zu Sättigung Übergänge zweiter Ordnung zu bleiben. Die Formel (3) trifft zu, solange es sich bei letzterem Übergang um einen zweiter Ordnung handelt.

Das $\langle M \rangle = 1/3$ Plateau kann in Fig. 5 für $\Delta \gtrsim 0.98$ beobachtet werden. Es überlebt also einen kleiner Betrag XY-artiger Anisotropie $\Delta < 1$. Der Übergang an seinem oberen Rand ist vermutlich erster Ordnung für schwache Ising-artige Werte von Δ: Für $L = 8$ ist es für $\Delta \gtrsim 1.05$ energetisch günstiger zwei anstelle nur eines Spins umzudrehen.

Die gepunktete Linie in Fig. 5 zeigt die Reihenentwicklungen (4) and (5) in Δ^{-1}. Diese stehen für die Energie, die aufgebracht werden muß, um einen *einzelnen* Spin umzudrehen und sollten mit den entsprechenden durchgezogenen Linien verglichen werden. Die Übereinstimmung ist recht gut, wenn berücksichtigt, daß die Reihen 6. Ordnung in einem Bereich hergeleitet wurden, der weit außerhalb des gezeigten Fensters liegt. Die Reihen legen ein Verschwinden des $\langle M \rangle = 1/3$ Plateaus in ungefähr demselben Bereich nahe, der sich auch aus den numerischen Daten ergibt.

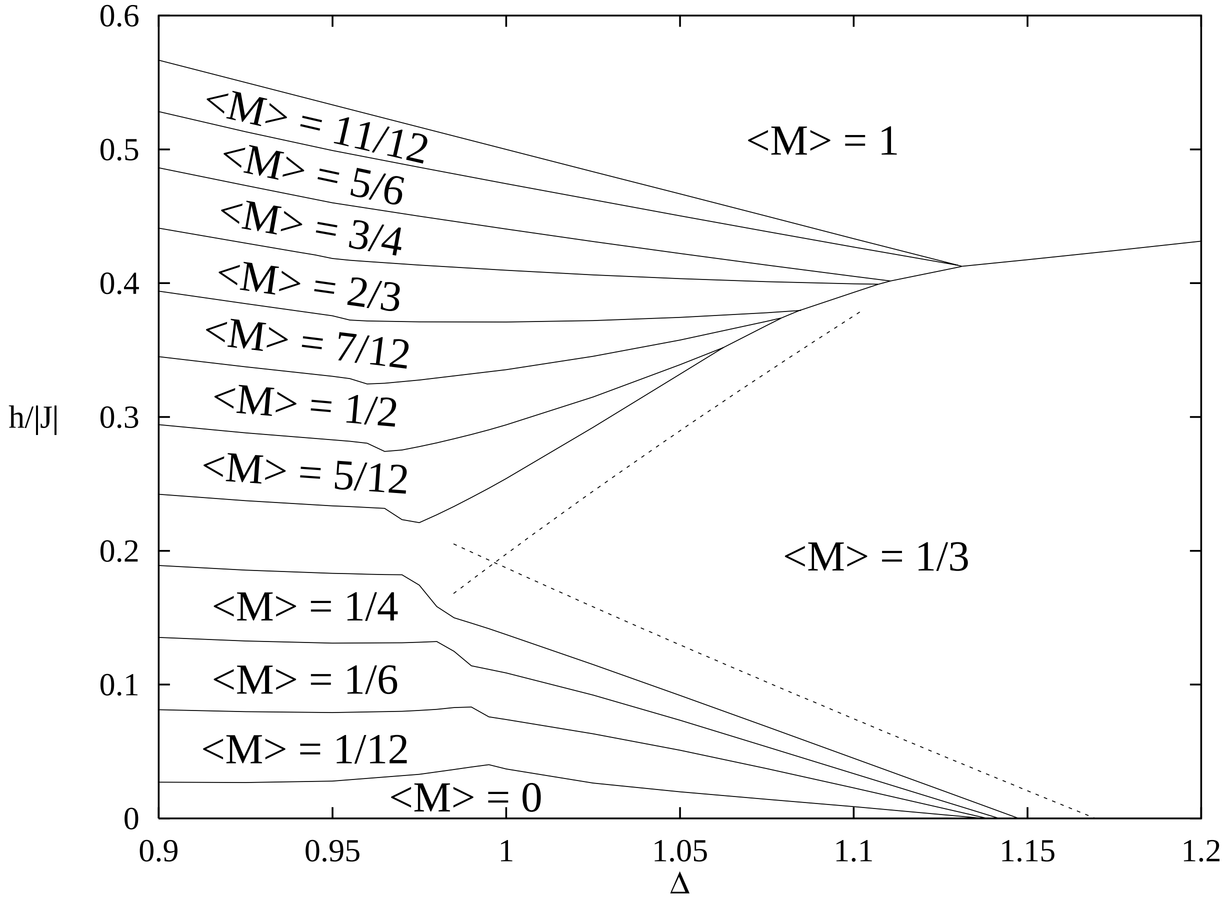

Fig. 5: Magnetisches Phasendiagramm für 3 gekoppelte Ketten mit $L = 8$ und $J' = |J|/3$. Die gepunkteten Linien zeigen die 6.-Ordnung Ising-Entwicklungen (4) und (5).

Die quasi eindimensionale Natur unseres 3-Ketten-Modells legt es nahe, dessen thermodynamischen Grenzfall durch DMRG [4] zu untersuchen. Auf diese Weise sollte sich insbesondere das Verhalten der Plateaugrenzen für verschiedene Werte der Modellparameter als Funktion der Systemgröße aufklären lassen. Die Größe des Zustandsraumes für die drei periodisch gekoppelten Ketten führt zwar zu einem hohen numerischen Aufwand, doch gerade für Grundzustandsenergien, wie sie hier ausschließlich benötigt werden, liefert die DMRG typischerweise sehr genaue Resultate. Eine solche DMRG-Analyse des Modells befindet sich in Arbeit.

Zusammenfassung

Wir haben theoretisch ein Plateau mit $\langle M \rangle = 1/3$ in einem frustrierten Dreiecksmagneten gefunden. Dessen Breite wird durch verschiedene Faktoren bestimmt.

Betrachten wir z.B. ein einzelnes Dreieck. Bei 3 Spins kann die Magnetisierung offensichtlich nur die Werte $\langle M \rangle = \pm 1/3$ und ± 1 annehmen. Das Plateau mit $\langle M \rangle = 1/3$ überlebt (zumindest für $\Delta = 1$) zwar die ferromagnetische Stapelung unendlich vieler solcher Dreiecke, büßt aber durch die Wechselwirkung an Breite an. Ein ähnliches Phänomen tritt auf, wenn wir stattdessen in der Ebene zu einem zweidimensionalen Dreiecksgitter übergehen. Auch hier überlebt das Plateau den thermodynamischen Grenzfall (zumindest für $\Delta = 1$ [5]), wird aber wiederum deutlich schmäler.

Ein weiterer Faktor ist die XXZ-Anisotropie Δ. Für Magnetfelder entlang der c-Achse überlebt das Plateau zwar kleine XY-artige Anisotropien, verschwindet aber bald. Liegt das Magnetfeld in der Dreiecksebene senkrecht zur c-Achse, so ist vom Dreiecksgitter ein entgegengesetztes Verhalten bekannt [6]: Hier beobachtet man im XY-Fall $\Delta = 0$ ein deutliches Plateau mit $\langle M \rangle = 1/3$.

Kombiniert man diese Beobachtung mit den für $CsCuCl_3$ zutreffenden Werten, so wird einsichtig, warum für ein Magnetfeld enlang der c-Achse kein Plateau auftritt, sondern nur für ein in der Ebene angelegtes (vgl. Fig. 2). Der Sprung in der Kurve für ein Magnetfeld entlang der c-Achse wird jedoch hierdurch nicht erklärt. Die Ursache hierfür könnte eng mit der in Fig. 1b) angedeuteten und bisher vernachlässigten Modulation entlang der c-Achse zusammenhängen.

Literaturverweise

[1] K. Adachi, N. Achiwa, M. Mekata, *Helical Magnetic Structure in $CsCuCl_3$*, J. Phys. Soc. Jpn. **49** (1980) 545-553

[2] H. Nojiri, Y. Tokunaga, M. Motokawa, *Magnetic Phase Transition of Helical $CsCuCl_3$ in High Magnetic Field*, Journal de Physique **49**, Suppl. C8 (1988) 1459-1460

[3] T. Inami, Y. Ajiro, T. Goto, *Magnetization Process of the Triangular Lattice Antiferromagnets $RbFe(MoO_4)_2$ and $CsFe(SO_4)_2$*, J. Phys. Soc. Jpn. **65** (1996) 2374-2376

[4] S.R. White, *Density Matrix Formulation for Quantum Renormalization Group*, Phys. Rev. Lett. **69** (1992) 2863-2866; *Density-Matrix Algorithms for Quantum Renormalization Groups*, Phys. Rev. **B48** (1993) 10345-10356

[5] H. Nishimori, S. Miyashita, *Magnetization Process in the Spin-1/2 Antiferromagnetic Ising-Like Heisenberg Model on the Triangular Lattice*, J. Phys. Soc. Jpn. **55** (1986) 4448-4455

[6] N. Suzuki, F. Matsubara, *Phase Diagrams of the $S = \frac{1}{2}$ Quantum Antiferromagnetic XY Model on the Triangular Lattice in Magnetic Fields*, Phys. Rev. **B55** (1997) 12331-12337