# СТАБИЛИЗИРОВАННЫЕ ПОЛЕМ МАГНИТНЫЕ ФАЗЫ В ТРЕУГОЛЬНОМ АНТИФЕРРОМАГНЕТИКЕ RbFe(MoO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>

Ю. А. Сахратов  $^{a,b}$ , Л. Е. Свистов  $^{c^*}$ , А. П. Рейес  $^{a^{**}}$ 

<sup>а</sup> Национальная лаборатория сильных магнитных полей 32310, Таллахасси, Флорида, США

<sup>b</sup> Казанский государственный энергетический университет 420066, Казань, Россия

<sup>с</sup> Институт физических проблем им. П. Л. Капицы Российской академии наук 119334, Москва, Россия

> Поступила в редакцию 31 мая 2023 г., после переработки 31 мая 2023 г. Принята к публикации 8 июня 2023 г.

Изучена магнитная фазовая H-T-диаграмма квазидвумерного легкоплоского антиферромагнетика  $\mathrm{RbFe}(\mathrm{MoO}_4)_2$  (S=5/2) с правильной треугольной структурой решетки методом ЯМР  $^{87}\mathrm{Rb}$  в поле, направленном вдоль «трудной» оси  $C_3$ . Исследования подтверждают двухступенчатый переход из низкополевой зонтичной несоизмеримой магнитной структуры в поляризованную парамагнитную, обнаруженный недавно (Mitamura et al. 2016). Переходы сопровождались лямбда-аномалиями скорости спин-решеточной релаксации и скачкообразным увеличением магнитной восприимчивости при промежуточном переходе. Исследование ЯМР  $^{87}\mathrm{Rb}$  исключает возможность V- или веерной спиновых структур в новой высокополевой фазе. Дополнительный переход предположительно связан с потерей межплоскостного магнитного порядка перед переходом в парамагнитное поляризованное состояние отдельных треугольных плоскостей.

Статья для специального выпуска ЖЭТФ, посвященного 95-летию Л. А. Прозоровой

**DOI:** 10.31857/S0044451023100139 **EDN:** XLMEMC

#### 1. ВВЕДЕНИЕ

RbFe(MoO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> является примером квазидвумерного (2*D*) антиферромагнетика (S = 5/2) с правильной треугольной решеткой. В этом соединении антиферромагнитное межплоскостное обменное взаимодействие *J'* значительно слабее доминирующего внутриплоскостного взаимодействия *J* (*J'*/*J*  $\approx$  0.01). Это определяет квазидвумерный характер магнитного состояния RbFe(MoO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>. Для магнитного поля, приложенного в плоскости треугольной структуры, достаточно сильная одноионная анизотропия типа «легкая плоскость» приводит к сходству фазовой *H*–*T*-диаграммы RbFe(MoO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> [1–4] с фазовой диаграммой 2*D*-анрамках XY-модели (XY 2D TLAF), подробно изученной в работах [5-8]. В квазиклассическом пределе большого спина магнитное состояние TLAF бесконечно вырождено. В результате ожидается, что магнитные структуры на фазовой температурно-полевой *Н*-*Т*-диаграмме будут определяться либо слабыми магнитными взаимодействиями, либо квантовыми и тепловыми флуктуациями. Магнитные структуры, реализующиеся в XY 2D TLAF с ростом поля, приложенного вдоль треугольной плоскости, показаны на рис. 1а. Магнитные структуры, изображенные на рисунке буквами «Y», «UUD» и «V» реализуются в RbFe(MoO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> в широком диапазоне полей  $0.14H_{sat} \lesssim H \lesssim 0.7H_{sat}$ . Такие магнитные структуры в рамках модели XY 2D TLAF становятся выгодными при учете квантовых и тепловых флуктуаций. Этот необычный механизм установления магнитного порядка, называемый как «порядок через беспорядок» усилил

тиферромагнетика с треугольной структурой в

<sup>\*</sup> E-mail: svistov@kapitza.ras.ru

<sup>\*\*</sup> A. P. Reyes



**Рис. 1.** *а*) Магнитные структуры, ожидаемые в рамках модели *XY* TLAF, учитывающей спиновые флуктуации при возрастании магнитного поля  $H \perp C_3$ . *b*) «Зонтичные» магнитные структуры, ожидаемые в квазиклассической модели TLAF с анизотропией типа «легкая плоскость» при возрастании магнитного поля  $H \parallel C_3$ 

интерес к исследованиям  $RbFe(MoO_4)_2$ . Обзор экспериментальных данных о магнитных структурах  $RbFe(MoO_4)_2$ , полученных различными методами, при поле, приложенном в треугольной плоскости, дан в [9].

В случае достаточно сильной анизотропии типа «легкая плоскость» в 2D-модели TLAF ожидается «зонтичная» магнитная структура (U-структура) вплоть до поля насыщения в поле, приложенном перпендикулярно треугольным плоскостям RbFe(MoO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>. Схема U-структуры в возрастающем поле показана на рис. 1 в. Проекции магнитных моментов подрешеток на треугольную плоскость направлены под углом 120°. Проекции подрешеток на направление поля равны и возрастают от нуля при H = 0 до поляризованного состояния при  $H_{sat}$ . В рамках этой модели поворот магнитной структуры вокруг С<sub>3</sub> не меняет магнитную энергию. Магнитная структура  $\text{RbFe}(\text{MoO}_4)_2$  при H = 0 изучалась методом упругого рассеяния нейтронов. Волновой вектор магнитной структуры оказался равным (1/3,1/3, 0.458) [10]. Подрешетки соседних плоскостей поворачиваются на угол  $165^{\circ}$  вокруг  $C_3$ . Такая несоизмеримая структура может быть объяснена антиферромагнитными обменными взаимодействиями магнитных подрешеток соседних плоскостей [11].

Исследование намагничивания  $\mathrm{RbFe}(\mathrm{MoO}_4)_2$  в импульсных полях  $H \parallel C_3$  [12] не выявило особенностей в полях вплоть до поля насыщения. Поэтому длительное время считалось, что в процессе намагничивания  $\mathrm{RbFe}(\mathrm{MoO}_4)_2$  при такой ориентации поля реализуется единственная U-структура. Более поздние исследования упругих и магнитоэлектрических свойств RbFe(MoO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> [11, 13] показали, что фазовая диаграмма для этого направления поля более сложная. В широком диапазоне полей ниже насыщения обнаружена новая магнитная фаза. Для простоты эту фазу будем обозначать как X-фазу. X-фаза, в отличие от U-фазы, не демонстрирует электрической поляризации. Переход от U-фазы к X-фазе сопровождается аномалиями скорости звука. Было высказано предположение [11, 13], что в X-фазе реализуется планарная V-структура, аналогичная V-структуре для поля, приложенного в треугольной плоскости (рис. 1a).

В данной работе исследуется магнитная структура  $RbFe(MoO_4)_2$  в полях вплоть до поля насыщения, направленного перпендикулярно треугольным плоскостям, с использованием метода SMP <sup>87</sup>Rb. Спектры SMP сравнивались с результатами моделирования в рамках структур U и V.

Прежде чем приступить к описанию деталей эксперимента и результатов, в следующем разделе мы рассмотрим магнитные свойства  $RbFe(MoO_4)_2$ .

#### 2. МАГНИТНЫЕ ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ И СТРУКТУРА RbFe(MoO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>

Кристаллическая структура RbFe(MoO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> состоит из чередующихся слоев ионов Fe<sup>3+</sup>, (MoO<sub>4</sub>)<sup>2-</sup> и Rb<sup>+</sup>, перпендикулярных оси третьего порядка  $C_3$ . Внутри слоев ионы образуют правильные треугольные решетки. На рис. 2 показаны магнитные ионы Fe<sup>3+</sup> (3 $d^5$ , S = 5/2) и немагнитные ионы Rb<sup>+</sup>,



Рис. 2. Кристаллическая структура  $\mathrm{RbFe}(\mathrm{MoO}_4)_2$ . Маленькие черные сферы обозначают позиции магнитных ионов  $\mathrm{Fe}^{3+}$ , большие красные сферы обозначают позиции ионов  $\mathrm{Rb}^+$ , комплексы  $(\mathrm{MoO}_4)^{2-}$  не показаны. На рисунке обозначены внутриплоскостные обменные связи (J) и межплоскостные обменные связи  $(J', J_a, J_b)$ . Кристаллическая симметрия  $\mathrm{RbFe}(\mathrm{MoO}_4)_2$  допускает разные значения  $J_a$  и  $J_b$ 

 $(MoO_4)^{2-}$ -комплексы для ясности опущены [14]. Параметры решетки RbFe(MoO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> равны a = 5.69 Å и c = 7.48 Å. При комнатной температуре кристаллическая структура принадлежит пространственной группе  $P\bar{3}m1$ , а ниже 190 К симметрия понижается до пространственной группы  $P\bar{3}c1$ . [15] Обменный интеграл связей в плоскости J = 0.086(2) мэВ является антиферромагнитным и намного сильнее межплоскостных интегралов J', Ja, Jb. [16] Интеграл межплоскостного обмена примерно в сто раз меньше интеграла внутриплоскостного обмена, J'/J = 0.008(1) по данным нейтронографических экспериментов и J'/J = 0.01 по данным измерений ЭСР [2, 16, 17]. Диагональный межплоскостной обменный интеграл оценивался из вычислений аb *initio* [18] как  $|J_{a,b}|/J \approx 0.002$ .

RbFe(MoO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> становится магнитоупорядоченным ниже  $T_N \approx 3.8$  K [1]. Магнитные структуры для поля, приложенного в плоскости треугольной структуры, получены с помощью различных экспериментальных методик [1–4, 10–12, 16, 19]. Магнитные структуры фазовой H–T-диаграммы, определенные в этих экспериментах, подробно обсуждаются в [9].



**Рис. 3.** Магнитная фазовая диаграмма  $RbFe(MoO_4)_2$  для *H* ∥ *C*<sub>3</sub>. Магнитные фазы обозначены как U-фаза в низких полях (зеленая), неизвестная Х-фаза в сильных полях (красная) и поляризованная фаза РМ. Штриховыми линиями на рисунке отмечены границы фаз из [12, 13]. Сплошной линией показаны границы фаз, полученные авторами [11] из акустических экспериментов. Тонкими сплошными линиями показаны температурные и полевые срезы, вдоль которых были проведены ЯМР-исследования. Штрихпунктирные линии служат ориентиром для глаз. Контурные синие кружки и сплошные красные кружки обозначают переходы между фазами U и X или X и PM, полученные в экспериментах ЯМР на образцах из ростовых партий I и II соответственно. Красными и синими звездочками показаны  $T_N$ , измеренные в образцах партий I и II по аномалии на температурной зависимости намагниченности в поле  $\mu_0 H = 0.1$  Тл. Контурным треугольником показано значение  $H_{sat}$ , полученное из M(H)-измерений, проведенных в импульсных магнитных полях на образце из партии I [12]

Фазовая H-T-диаграмма для магнитного поля, направленного перпендикулярно треугольным плоскостям, показана на рис. 3. Штриховыми линиями на рисунке отмечены фазовые границы из [12, 13], полученные из аномалий на температурных и полевых зависимостях магнитного момента, теплоемкости, электрической поляризации и диэлектрической проницаемости. Сплошной линией показаны границы фаз, найденные авторами [11] из акустических экспериментов. Фазовые диаграммы, полученные на двух разных образцах, в целом подобны, но температуры Нееля различаются на 0.25 К. Разброс  $T_N$ в пределах 0.3 К ранее наблюдался в образцах из разных партий [9]. Образцы с меньшими значениями  $T_N$  демонстрируют пониженные значения поля насыщения, а также переход от фазы U к фазе X происходит при более низких значениях поля.

В настоящей работе мы исследовали Н-Т-эволюцию спектров ЯМР и времени спин-решеточной релаксации Т<sub>1</sub> вдоль штриховых линий, показанных на диаграмме. Мы исследовали два монокристалла с немного различающимися температурами Нееля. Точки, соответствующие аномалиям в  $T_1(T, H)$ при фазовых переходах и  $T_N$ , показаны контурными (синими) и сплошными (красными) символами для образцов с более высокой и более низкой температурами Нееля соответственно. Символ открытого треугольника для образца с более высоким  $T_N$ обозначает поле насыщения, измеренное в импульсном поле [12, 13]. Штрихпунктирные линии служат ориентиром для глаз. Область *H*-*T*-диаграммы, где предполагается низкополевая U-фаза, окрашена зеленым цветом. Эта фаза характеризуется наличием спонтанной электрической поляризации, направленной вдоль С<sub>3</sub>. В нулевом поле внутри каждой треугольной плоскости устанавливается 120°-магнитная структура. Волновой вектор несоизмеримой структуры равен (1/3, 1/3, 0.458). [10]

### 3. ИЗГОТОВЛЕНИЕ ОБРАЗЦОВ И ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ ДЕТАЛИ

Мы использовали монокристаллы RbFe(MoO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> из двух ростовых партий, как и в нашей предыдущей работе [9], в которой сообщаются результаты ЯМР <sup>87</sup>Rb в поле  $H \perp C_3$ . Ростовые партии обозначены как I и II в соответствии с обозначениями, принятыми в работе [9]. Рентгенофазовое исследование структур не показало заметной разницы между кристаллами из разных партий, однако температура магнитного упорядочения  $T_N$  и значения  $H_{sat}$  для второй партии были примерно на 7% ниже, чем у образцов из первой партии. Типичный размер кристаллов составлял  $2 \times 2 \times 0.5$  мм<sup>3</sup>, при этом наименьший размер соответствовал  $C_3$  кристалла.

ЯМР-исследования проводились в сверхпроводящем магните Сгуотаgnetics 17.5 Тл в Национальной лаборатории высоких магнитных полей, Флорида, США. Методом импульсного ЯМР проведены исследования RbFe(MoO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> на ядрах <sup>87</sup>Rb (ядерный спин I = 3/2, гиромагнитное отношение  $\gamma/2\pi = 13.9318 \,\mathrm{MFu}/\mathrm{Tn}$ ). Спектры были получены путем суммирования быстрых преобразований Фурье сигналов спинового эха (FFT-методика) при сканировании поля вдоль резонансной линии. ЯМР-сигналы спинового эхо были получены с использованием последовательностей импульсов  $\tau_p - \tau_D - 2\tau_p$ , где длительность импульса  $\tau_p$  составляла 1 мкс, а время между импульсами  $\tau_D$  составляло 15 мкс. Время спин-решеточной релаксации  $T_1$  было определено с использованием мультиэкспоненциального выражения, которое используется в случае, когда линии ЯМР расщеплены квадрупольным взаимодействием [20]. Измерения проводились в диапазоне температур  $1.43 \leq T \leq 25$  К, температурная стабильность во время эксперимента была не хуже 0.05 К.

#### 4. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

На рис. 4 показана центральная линия спектров ЯМР на ядрах <sup>87</sup>Rb, соответствующая центральному переходу  $m_I = -1/2 \leftrightarrow +1/2$ . Два квадрупольно расщепленных сателлита, соответствующие переходам  $m_I = \pm 3/2 \leftrightarrow \pm 1/2$ , не показаны. Спектры измерены при  $T = 1.45 \,\mathrm{K}$  в диапазоне полей  $5.8 < \mu_0 H < 17 \,\mathrm{Tr}$  с полем, направленным параллельно оси С<sub>3</sub> кристалла. В поляризованной фазе РМ все ионы Rb<sup>+</sup> находятся в эквивалентных позициях, и спектр состоит из одной линии. В магнитоупорядоченной фазе положения ионов Rb<sup>+</sup> могут быть неэквивалентны и, как следствие, локальные магнитные поля от магнитных соседей могут быть разными и каждая линия квадрупольного расщепленного спектра при  $H < H_{sat}$  может иметь сложную структуру. Эффективные поля от упорядоченных компонент магнитных моментов меньше, чем квадрупольное расщепление, что позволяет наблюдать тонкую структуру на каждом сателлите без перекрытия [9,21]. Именно поэтому мы приводим только центральную линию спектров, соответствующую переходу  $m_I = -1/2 \leftrightarrow +1/2$ . Полученные спектры в зависимости от  $\mu_0 H - \nu/\gamma$ , где  $\nu$  частота, приведены на рис. 4. Цвета используются для обозначения спектров, полученных в различных магнитных фазах: РМ (красный), Х (синий), U (зеленый). Поля переходов между фазами были найдены по лямбда-аномалиям на зависимости  $T_1(H)$ , представленной на рис. 5а. Из рис. 4 можно сделать вывод, что спектр <sup>87</sup>Rb ЯМР во всем диапазоне полей состоит из одной линии. Уширение линий и тонкая структура линий, наблюдаемые в более высоких полях, могут быть связаны с распределением полей размагничивания в образце неэллиптической формы. Если пренебречь изменением времени спинспиновой релаксации Т<sub>2</sub> с полем, измеренная интенсивность сигнала эха пропорциональна числу ядер рубидия в эффективном поле от магнитных соседей с проекцией на H равной  $\mu_0 H - \nu/\gamma$ . На рис. 5b



**Рис. 4.** Спектры центрального <sup>87</sup>Rb ЯМР-перехода  $m_I = -1/2 \leftrightarrow +1/2$ , измеренные на образце из партии II при  $T = 1.45 \,\mathrm{K}$  в диапазоне полей от 5.8 до  $17.5 \,\mathrm{T}$ л, поле приложено параллельно оси С3 кристалла. Линии, измеренные на разных частотах, для ясности смещены. Красные линии — это спектры, измеренные в поляризованной полем РМ-фазе. Синие линии — это спектры, полученные в полях ниже  $H_{sat}$ , где ожидается фаза X. Спектры в слабых полях, показанные зеленым цветом, получены в U-фазе. Граничные поля между фазами определялись по лямбда-аномалии на зависимости  $T_1(H)$ , представленной на рис. 5. Штриховые линии — модельные спектры, рассчитанные для структур РМ (красный), V (синий) и веерная (пурпурный). При расчете магнитный момент железа принимался равным  $5\mu_B/{
m Fe}^{3+}$ , ширина индивидуальной линии принималась равной  $\delta = 13 \,\mathrm{mTr}$ 



Рис. 5. Полевые зависимости скорости спин-решеточной релаксации  $1/T_1$  (*a*) и эффективного поля  $\mu_0 H_m - \nu/\gamma$  на  $^{87}\mathrm{Rb}$  (*b*), измеренные при  $T = 1.45\,\mathrm{K}$ . Резонансные поля  $H_m$  были получены как центр тяжести каждого спектра, показанного на рис. 4

показана полевая зависимость эффективного поля  $\mu_0 H - \nu / \gamma$  на <sup>87</sup>Rb. Резонансные поля  $H_m$ , используемые на этом графике, были получены как центр тяжести для каждого спектра, показанного на рис. 4. Полевая зависимость эффективного поля от <sup>87</sup>Rb линейна вплоть до поля перехода  $H_c$  из фазы U в фазу X, где наклон увеличивается примерно на 25 %.

На рис. 6 показаны спектры ЯМР, измеренные на частоте 139.3 МГц,  $H \parallel C_3$ , при различных температурах. Цвета используются для обозначения спектров, полученных в различных магнитных фазах: РМ (красный), Х (синий), U (зеленый). Спектры ЯМР центрального перехода во всем диапазоне температур также можно рассматривать как спектр, состоящий из единственной линии. Граничные поля между фазами определялись по лямбдааномалии на зависимости  $T_1(T)$ , представленной на рис. 7*a*. Температурная зависимость эффективного поля  $\mu_0 H_m - \nu/\gamma$  от <sup>87</sup>Rb показана на рис. 7*b*. Температуры переходов, определенные по лямбда-аномалиям, показаны стрелками.



Рис. 6. Спектры ЯМР <sup>87</sup>Rb перехода  $m_I = -1/2 \leftrightarrow +1/2$ , измеренные на частоте  $\nu = 139.3$  МГц, в диапазоне температур от 1.5 до 20 К, в поле, параллельном оси  $C_3$  кристалла, на образце из ростовой партии II. Линии, измеренные при разных температурах, для ясности смещены. Красный, синий, зеленый цвета соответствуют спектрам, измеренным в фазах U, X и PM соответственно. Граничные поля между фазами определялись по лямбда-аномалии на зависимости  $T_1(T)$ , представленной на рис. 7. Штриховая линия — модельный спектр, рассчитанный для U-фазы с использованием магнитного момента железа  $2.4\mu_B/{\rm Fe}^{3+}$ и ширины индивидуальной линии  $\delta = 13$  мТл

Сформулируем основные экспериментальные результаты. Во-первых, высокополевая магнитная X-фаза наблюдалось на образцах  $RbFe(MoO_4)_2$  из двух разных партий при  $H \parallel C_3$  ниже поля насыщения. Во-вторых, спектры ЯМР <sup>87</sup>Rb, наблюдаемые для этого направления, имеют форму одной линии во всем исследованном H–T-диапазоне. Этот результат означает, что в структурах U, X и PM проекции эффективного поля на ядрах рубидия на направление магнитного поля H одинаковы.



Рис. 7. Температурные зависимости скорости спин-решеточной релаксации  $1/T_1$  (*a*) и эффективного поля  $\mu_0 H_m - \nu/\gamma$  ЯМР <sup>87</sup> Rb (*b*), измеренные при  $\nu = 139.3$  МГц. Резонансное поле  $H_m$  (*b*), было найдено как центр тяжести для измеренных спектров, показанных на рис. 6. Вставки повторяют основные панели в увеличенном масштабе

#### 5. ОБСУЖДЕНИЕ

Условие магнитного резонанса ядер <sup>87</sup>Rb в наших экспериментах определяется взаимодействием с сильным внешним магнитным полем  $\nu = \gamma H$ , с малыми поправками за счет квадрупольного взаимодействия, дипольного взаимодействия с магнитным окружением и переносным сверхтонким взаимодействием с ближайшими магнитными соседями. Поправки к резонансному полю за счет квадрупольного взаимодействия одинаковы для всех ядер <sup>87</sup>Rb и, как следствие, приводят к полевому сдвигу спектров ЯМР. В области сильных полей этот сдвиг для центральной линии ЯМР  $m_I = -1/2 \leftrightarrow +1/2$  пренебрежимо мал [21]. Наибольший вклад в эффективное поле вносит дипольное взаимодействие, которое можно непосредственно вычислить для различных магнитных структур.

Дипольные поля рассчитаны для ядра <sup>87</sup>Rb, расположенного в середине цилиндрического образца с радиусом основания 100a и высотой 10c. Такая форма модельного образца учитывает размагничивающее поле. Модельные спектры для частоты  $243.633 \,\mathrm{MFu} \, (\nu/\gamma = 17.5 \,\mathrm{Ta})$  показаны на рис. 4 красной пунктирной линией. Он получен в предположении, что магнитный момент на ионах железа равен  $5\mu_B/\mathrm{Fe}^{3+}$ . Модельный спектр близок к экспериментальному.

Моделирование спектров ЯМР в магнитоупорядоченных фазах проводилось так же, как и в предыдущих работах (см. [9, 22]). В случае магнитных структур с волновыми векторами (1/3, 1/3, k<sub>z</sub>) дипольные поля от ионов Fe<sup>3+</sup> на ядрах <sup>87</sup>Rb вызваны только компонентами магнитных моментов, параллельными приложенному полю, поскольку дипольные поля от компонент, перпендикулярных полю, компенсируют друг друга. Проекции магнитных моментов трех подрешеток вдоль статического поля Н для структуры U совпадают. Таким образом, для фазы U ожидается, что спектр ЯМР будет иметь форму одной линии. Красная пунктирная линия, показанная на рис. 6 для  $T = 1.5 \,\mathrm{K}$ , представляет собой спектр ЯМР, рассчитанный в рамках модели Uфазы с проекцией магнитного момента ионов Fe<sup>3+</sup> на поле равное  $2.4\mu_B/\text{Fe}^{3+}$ . Это значение магнитного момента определено из измерений M(H) при 1.6 К приведено на рис. 3 в работе [2].

Рассмотрим возможность реализации V-структуры в Х-фазе, как это предложено в работах [11,13]. Рассчитанные спектры для планарной соизмеримой V-структуры с волновым вектором (1/3, 1/3, 1/3)показаны на рис. 4 синими пунктирными линиями. Для такой структуры ожидается спектр, состоящий из двух линий, причем интенсивность линии в большем поле ожидается вдвое больше интенсивности линии в меньшем поле [9]. Модельные спектры на рис. 4 вычислены для магнитного момента ионов  $\mathrm{Fe}^{3+}$  равного 5 $\mu_B$ . Расщепление модельных спектров уменьшается с увеличением поля и исчезает в поле насыщения. Экспериментальные спектры не показывают каких-либо заметных изменений при переходе от фазы U к фазе Х. Таким образом, мы можем исключить V-структуру из рассмотрения как возможную структуру в Х-фазе.

В работе [9] при исследовании магнитных фаз при  $H \perp C_3$  была идентифицирована несоизмеримая веерная магнитная структура в полях ниже насыщения, а не соизмеримая V-фаза, ожидаемая в 2*D*-модели. Структура этой фазы была установлена с помощью ЯМР-экспериментов и нейтронной дифракции. Веерная фаза RbFe(MoO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> может быть успешно описана периодическими соизмеримыми колебаниями магнитных моментов вокруг направления поля в каждом слое Fe<sup>3+</sup> в сочетании с несоизмеримой модуляцией магнитной структуры перпендикулярно слоям. Мы рассчитали спектры ЯМР <sup>87</sup>Rb для модельной веерной структуры с ориентацией спинов на ионах железа, приведенной в [9]. Эти спектры показаны на рис. 4 пунктирными пурпурными линиями. Рассчитанные спектры демонстрируют широкую линию с двумя максимумами на границах, обычную для несоизмеримых структур. Здесь мы предполагаем, что несоизмеримый вектор структуры равен  $(1/3, 1/3, k_{ic})$ , при этом  $k_{ic} \approx 0.5$ , как это было установлено экспериментально в U-фазе [3]. Таким образом, моделирование спектров ЯМР с точки зрения либо V, либо веерной структуры несовместимо с одиночными линиями, наблюдаемыми экспериментально.

В заключение, опишем основные особенности Х-фазы, известные из литературы и полученные в настоящей работе.

1. Выявлены границы Х-фазы в виде аномалий на полевых зависимостях диэлектрической проницаемости [13], скорости звука [11] и скорости спинрешеточной релаксации  $T_1^{-1}$  ЯМР <sup>87</sup>Rb.

2. Электрическая поляризация, характерная для фазы U, не наблюдается в фазе X [13].

3. Проекции эффективных полей от магнитных соседей вдоль направления *H* на всех ионах рубидия одинаковы во всей исследованной области полей и температур. Этот результат согласуется с Uи PM-структурами и не согласуется с V- и веерной структурами.

4. Сдвиг Найта <sup>87</sup>Rb, пропорциональный намагниченности RbFe(MoO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>, демонстрирует перегиб в полевой зависимости при переходе от U-фазы к X-фазе. Этот сдвиг можно объяснить увеличением магнитной восприимчивости в этом поле примерно на 25%. Удивительно, но дифференциальная восприимчивость dM/dH не демонстрирует заметного изменения при переходе от фазы U к фазе X [12,13]. Возможно, это различие связано с неравновесным магнитным состоянием при измерениях в импульсных полях.

В результате мы предлагаем две возможные магнитные структуры для Х-фазы, которые согласуются с наблюдаемыми спектрами ЯМР.

1. Зонтичная (U) магнитная структура в каждой отдельной треугольной плоскости с межплоскостным беспорядком.

2. Спиновая структура с тензорным параметром порядка внутри каждой треугольной плоскости.

Для обеих структур проекции моментов на направление поля одинаковы для всех ионов  $\mathrm{Fe}^{3+}$ , в результате чего в спектрах ЯМР <sup>87</sup>Rb ожидается одна линия, которая согласуется с экспериментом.

**Благодарности.** Мы благодарны А. И. Смирнову, С. С. Сосину, А. В. Сыромятникову и М. Е. Житомирскому за стимулирующие дискуссии.

Финансирование. Работа в части моделирования ЯМР-спектров была поддержана Российским научным фондом (грант 22-12-00259). Работа в Национальной лаборатории сильных магнитных полей поддержана User Collaborative Grants Program (UCGP) under NSF Cooperative Agreement No. DMR-1157490 and DMR-1644779, and the State of Florida.

## ЛИТЕРАТУРА

- T. Inami, Y. Ajiro, and T. Goto, J. Phys. Soc. Jpn. 65, 2374 (1996).
- L. E. Svistov, A. I. Smirnov, L. A. Prozorova, O. A. Petrenko, L. N. Demianets, and A. Ya. Shapiro, Phys. Rev. B 67, 094434 (2003).
- G. A. Jorge, C. Capan, F. Ronning, M. Jaime, M. Kenzelmann, G. Gasparovic, C. Broholm, A. Ya. Shapiro, and L. N. Demianets, Physica B 354, 297 (2004).
- L. E. Svistov, A. I. Smirnov, L. A. Prozorova, O. A. Petrenko, A. Micheler, N. Büttgen, A. Y. Shapiro, and L. N. Demianets, Phys. Rev. B 74, 024412 (2006).
- S. E. Korshunov, J. Phys. C: Solid State Phys. 19, 5927 (1986).
- D. H. Lee, J. D. Joannopoulos, J. W. Negele, and D. P. Landau, Phys. Rev. B 33, 450 (1986).
- A. V. Chubukov and D. I. Golosov, J. Phys.: Cond. Matt. 3, 69 (1991).
- R. S. Gekht and I. N. Bondarenko, J. Exp. Theor. Phys. 84, 345 (1997).
- Yu. A. Sakhratov, O. Prokhnenko, A. Ya. Shapiro, H. D. Zhou, L. E. Svistov, A. P. Reyes, and O. A. Petrenko, Phys. Rev. B 105, 014431 (2022).
- M. Kenzelmann, G. Lawes, A. B. Harris, G. Gasparovic, C. Broholm, A. P. Ramirez, G. A. Jorge,

M. Jaime, S. Park, Q. Huang, A. Ya. Shapiro, and L. A. Demianets, Phys. Rev. Lett. **98**, 267205 (2007).

- A. Zelenskiy, J. A. Quilliam, A. Ya. Shapiro, and G. Quirion, Phys. Rev. B 103, 224422 (2021).
- A. I. Smirnov, H. Yashiro, S. Kimura, M. Hagiwara, Y. Narumi, K. Kindo, A. Kikkawa, K. Katsumata, A. Ya. Shapiro, and L. N. Demianets, Phys. Rev. B 75, 134412 (2007).
- H. Mitamura, R. Watanuki, N. Onozaki, Y. Amoub, Y. Kono, S. Kittaka, Y. Shimura, I. Yamamoto, K. Suzuki, and T. Sakakibara, J. Magn. Magn. Mat. 400, 70 (2016).
- Р.Ф. Клевцова, П.В. Клевцов, Кристаллография 15, 953 (1970).
- 15. S. A. Klimin, M. N. Popova, B. N. Mavrin, P. H. M. van Loosdrecht, L. E. Svistov, A. I. Smirnov, L. A. Prozorova, H.-A. Krug von Nidda, Z. Seidov, A. Loidl, A. Ya. Shapiro, and L. N. Demianets, Phys. Rev. B 68, 174408 (2003).
- 16. J. S. White, Ch. Niedermayer, G. Gasparovic, C. Broholm, J. M. S. Park, A. Ya. Shapiro, L. A. Demianets, and M. Kenzelmann, Phys. Rev. B 88, 060409(R) (2013).
- L. E. Svistov, A. I. Smirnov, L. A. Prozorova, O. A. Petrenko, L. N. Demianets, and A. Y. Shapiro, Phys. Rev. B 74, 139901(E) (2006).
- Kun Cao, R. D. Johnson, Feliciano Giustino, P. G. Radaelli, G-C. Guo, and Lixin He, Phys. Rev. B 90, 024402 (2014).
- H. Mitamura, R. Watanuki, K. Kaneko, N. Onozaki, Y. Amou, S. Kittaka, R. Kobayashi, Y. Shimura, I. Yamamoto, K. Suzuki, S. Chi, and T. Sakakibara, Phys. Rev. Lett. 113, 147202 (2014).
- A. Suter, M. Mali, J. Roos, and D. Brinkmann, J. Phys.: Cond. Matt. 10, 5977 (1998).
- Л. Е. Свистов, Л. А. Прозорова, Н. Бюттген, А. Я. Шапиро, Л. Н. Демьянец, Письма в ЖЭТФ 81, 133 (2005).
- 22. Yu. A. Sakhratov, M. Prinz-Zwick, D. Wilson, N. Buuttgen, A. Ya. Shapiro, L. E. Svistov, and A. P. Reyes, Phys. Rev. B 99, 024419 (2019).