НИЗКОТЕМПЕРАТУРНОЕ ПОВЕДЕНИЕ ТЕПЛОЕМКОСТИ В СПИНОВОМ СТЕКЛЕ

© *Р.В.Сабурова, Г.П.Чугунова*

Казанский государственный технологический университет,
420015 Казань, Россия
(Поступила в Редакцию 9 июня 1995 г.
В окончательной редакции 9 октября 1995 г.)

Идеи квантового туннелирования малых магнитных кластеров и фрустрации магнитных диполь-дипольных взаимодействий между туннелирующими кластерами используются для описания низкотемпературной теплоемкости спиновых стекол. Рассчитан вклад в теплоемкость, обусловленный коллективными модами взаимодействующих между собой туннелирующих кластеров. Найдены фононный вклад и вклад «изолированных» туннелириющих кластеров. Проведено сравнительное изучение различных вкладов.

Обычные стекла и спиновые стекла имеют много общих физических свойств, особенно при очень низких температурах T ($T \leqslant 1\,\mathrm{K}$). Например, сходное низкотемпературное поведение теплоемкости и наличие сплошного спектра времен релаксации характерны для этих неупорядоченных твердых тел [1,2]. Универсальные низкотемпературные свойства стекол достаточно хорошо описываются моделью двухуровневых систем (ДУС) [3,4] в области температур ниже 1 K (отметим, что модель мягких атомных потенциалов является более общей и описывает универсальные свойства стекол и при температурах больше нескольких градусов Кельвина [5,6]).

В модели ДУС предполагается, что в стекле существуют атомы (группы атомов), находящиеся в двух положениях равновесия, разделенных потенциальным барьером, который преодолевается квантово-механическим туннелированием. Два низших уровня энергии образуют ДУС. ДУС являются квазилокальными низкоэнергетическими возбуждениями. В последние годы уделяется повышенное внимание изучению взаимодействий между ДУС в стеклах [7–9]. Предполагается, что фрустированные диполь-дипольные взаимодействия между ДУС приводят не к коллективным модам, а, скорее всего, к «свободно» туннелирующим центрам. Туннелирование понижает энергию системы. В результате фрустированного диполь-дипольного взаимодействия имеются слабо взаимодействующие туннельные локализованные центры. Это может объяснить успех теории невзаимодействующих ДУС. ДУС менее важны в спиновых стеклах, чем в обычных структурных стеклах, однако при температурах ниже 1 K они могут описывать физические свойства спиновых стекол, например поведение остаточной намагниченности [10].

В данной работе мы рассчитываем низкотемпературную теплоемкость в спин-стекольной модели малых туннелирующих магнитных кластеров, которые связаны между собой посредством магнитного диполь-дипольного взаимодействия. Мы полагаем, что при очень низких температурах ($T \sim 1\,\mathrm{K}$) спиновые стекла можно представить как ансамбль, состоящий из N малых туннелирующих магнитных кластеров, находящихся в асимметричных (в общем случае) двухъямных потенциалах. Каждый туннелирующий кластер имеет магнитный дипольный момент μ_i (i — номер кластера). Мы предполагаем диполь-дипольное взаимодействие между туннелирующими магнитными кластерами и не рассматриваем внутрикластерное взаимодействие. Идеи фрустрации диполь-дипольных взаимодействий между туннелирующими магнитными дипольными моментами в рассматриваемом нами случае аналогичны идеям, высказанным в [7–9].

Гамильтониан, описывающий малые туннелирующие взаимодействующие между собой кластеры, имеет вид

$$H = -\Gamma \sum_{i}^{N} \sigma_i^x - \varepsilon \sum_{i}^{N} \sigma_i^z - \sum_{i,j}^{N} J_{ij} \sigma_i^z \sigma_j^z. \tag{1}$$

Первый член в выражении (1) описывает туннелирование кластера; Γ — туннельный параметр, $\sigma_\alpha (\alpha = x, y, z)$ — матрицы Паули. Второй член описывает асимметрию двухъямного потенциала, в котором находится кластер; ε — затравочная асимметрия. Мы полагаем, что кластеры находятся в нулевом внешнем магнитном поле. Третий член описывает магнитное диполь-дипольное взаимодействие между кластерами, это взаимодействие хаотичное;

$$J_{ij} = \mu_i \mu_j r_{ij}^{-3} (1 - 3\cos^2\varphi),$$

где r_{ij} — расстояние между i-м и j-м диполями, φ — угол между $\mathbf{r}_{ij}$ и осью $\mathbf{z}$, $r_{ij} = |\mathbf{r}_{ij}|$.

Хорошо известно, что в области низких температур фазовое пространство спиновых стекол характеризуется наличием большого числа локальных минимумов свободной энергии (множеством основных состояний), разделенных высокими потенциальными барьерами. Поэтому спин-система, оказавшись в одном из метастабильных состояний, будет достаточно долго в нем оставаться. Наблюдается спектр релаксации от минимального времени $\tau \sim 10^{-12}$ s до максимального $\tau_{\max} \sim 10^{20}{-}10^{40}$ s [1]. Типичные времена установления равновесия в спиновых стеклах превосходят $10^4{-}10^5$ s.

Рассчитаем низкотемпературную теплоемкость в нашей модели малых туннелирующих магнитных кластеров. Отметим, что диполь-дипольные взаимодействия обладают свойством фрустрации. Знак взаимодействия между парой взаимодействующих спинов является случайным и не всегда соответствует минимуму энергии при данной ориентации спинов. Это свойство неудовлетворенности взаимных ориентаций спинов знаком их взаимодействий (дипольных связей) называется фрустрацией. Наличие фрустраций отличает магнитную структуру спиновых стекол от других магнитных систем.

Аналогично [11] мы предположим, что те малые туннелирующие магнитные кластеры, которые слабо взаимодействуют между собой (поскольку их дипольные связи фрустрированы и происходит «вымораживание» взаимодействий), можно рассматривать как свободно туннелирующие кластеры, изолированные друг от друга. Такие полностью фрустрированные [11] «невзаимодействующие» кластеры будут описываться гамильтонианом (1) без третьего члена. Их вклад в низкотемпературную теплоемкость $C_t\,(T, t_0)$ описывается с учетом распределения времен релаксации следующим выражением [2]:

$$C_t(T, t_0) = \frac{1}{2} n_0 \ln\left(\frac{4t_0}{\tau}\right) \int\limits_0^\infty \frac{E^2}{4k_B T^2} \operatorname{sech}^2\left(\frac{E}{2k_B T}\right) dE = \frac{\pi^2}{12} n_0 k_B^2 T \ln\left(\frac{4t_0}{\tau}\right), \tag{2}$$

где t_0 —время эксперимента, τ — минимальное время релаксации состояний с энергией E, $E^2 = \Gamma^2 + \varepsilon^2$, k_B — постоянная Больцмана, n_0 — средняя плотность состояний туннелирующих кластеров на единицу энергии и единицу объема. Этот вклад в теплоемкость подобен низкотемпературному вкладу ДУС в теплоемкость стекла; он линеен по температуре. Но в обычном стекле плотность состояний ДУС является приблизительно постоянной величиной. В нашем случае плотность состояний зависит от концентрации кластеров. Для $T = 0.1\,\mathrm{K}$ и $n_0 \sim 10^{32}\,\mathrm{erg}^{-1}\cdot\mathrm{cm}^{-3}$ мы имеем $C_t = 0.15 \ln\frac{t_0}{\tau}\,\mathrm{erg}/(\mathrm{cm}^3\cdot\mathrm{k})$, для $T = 1\,\mathrm{K}$ имеем $C_t = 1.5 \ln\frac{t_0}{\tau}\,\mathrm{erg}/(\mathrm{cm}^3\cdot\mathrm{k})$. Взятое нами значение n_0 примерно такое же, как в обычном стекле.

Далее мы рассмотрим спин-волновой вклад в теплоемкость спинового стекла. Те дипольные связи между туннелирующими кластерами, которые не фрустрированы, приводят к существованию коллективных возбуждений (кластерных спиновых волн). Они дают спин-волновой (магнонный) вклад в низкотемпературную теплоемкость спинового стекла. Спин-волновой спектр можно описать выражением, которое аналогично выражению (18) из работы [12] для псевдоспин-волнового спектра, если мы заменим в этом выражении электрический дипольный момент на магнитный дипольный момент кластера, а константу электрического диполь-дипольного взаимодействия заменим на константу магнитного диполь-дипольного взаимодействия между кластерами. Тогда имеем следующее выражение для спектра кластерных спиновых волн:

$$\omega_{\mathbf{k}}^2 = \Gamma^2 - c\Gamma J(\mathbf{k})\overline{\langle\sigma^x\rangle} + cJ^2(0)\overline{\langle\sigma^z\rangle^2}, \tag{3}$$

где $\omega_{\mathbf{k}}$ — спин-волновая частота, $\mathbf{k}$ — волновой вектор, c — концентрация магнитных кластеров, $\langle\ldots\rangle$ означает тепловое среднее с гамильтонианом (1), черта сверху означает усреднение по конфигурациям кластеров, а $J(\mathbf{k})$ — фурье-преобразование магнитного диполь-дипольного взаимодействия между кластерами. Спектр (3) имеет щель, обусловленную туннелированием. Возбуждения (3) представляют собой распространиющиеся моды с сильным затуханием. Плотность состояний этих мод

$$\rho(\omega) \sim \left(6\pi^2 A\right)^{-1} \left(1 - \omega^2 A^{-2}\right)^{-1/2},$$

где

$$A^2 = \Gamma^2 + a^2 J^2(0), \quad a = c\overline{\langle\sigma^z\rangle^2},$$

т.е.

$$\rho \sim \left(\Gamma^2 + a^2 J^2\right)^{-1/2} .$$

Если $[\Gamma/(aJ)] < 1$, мы имеем $\rho \sim (aJ)^{-1}$, $J = J(0)$. Плотность состояний «изолированных» туннелирующих кластеров ($n_0 \sim 10^{32}\,\mathrm{erg}^{-1}\cdot\mathrm{cm}^{-3}$) намного меньше плотности состояний (на единицу энергии и единицу объема) коллективных мод n_{col} ($n_{\mathrm{col}} = \rho(\omega) r^{-3} \sim 10^{35}\,\mathrm{erg}^{-1}\cdot\mathrm{cm}^{-3}$), если среднее расстояние между кластерами $r \sim 25\,\text{Å}$, $J \sim 10^{-15}\,\mathrm{erg}$ и $c \sim 10^{-2}$.

Предположим вначале, что система кластеров находится в одном из метастабильных состояний в течение очень длительного времени. Тогда спин-волновой вклад в теплоемкость определяется выражением

$$C_m(T) = \frac{\partial}{\partial T}\sum_k \hbar\omega_{\mathbf{k}}\langle n_{\mathbf{k}}\rangle = \frac{\partial}{\partial T}\int\limits_0^\infty \frac{\omega\rho(\omega)d\omega}{e^{\frac{\hbar\omega}{k_B T}} - 1} \approx$$

$$\approx \frac{1}{3\pi^2} k_B^2 A^{-1}[\zeta(2)T + 6k_B^2 A^{-2}\zeta(4)T^3], \tag{4}$$

где $\langle n_{\mathbf{k}}\rangle$ — равновесные числа заполнения магнонов, $\zeta(s)$ — дзета-функция Римана. В выражении (4) имеются линейный и кубический по температуре члены. Для температуры $T = 0.1\,\mathrm{K}$ магнонная часть теплоемкости $C_m = (3.6 + 1.2)\,\mathrm{erg}/(\mathrm{cm}^3\cdot \mathrm{k})$. Для $T = 1\,\mathrm{K}$ мы имеем $C_m = (3.6\cdot 10^2 + 1.2\cdot 10^3)\,\mathrm{erg}/(\mathrm{cm}^3\cdot\mathrm{k})$. Оценка показывает, что линейный член немного больше кубического при очень низких температурах ($T < 1\,\mathrm{K}$).

Если учесть существование спектра времен релаксации в спиновом стекле (с минимальным временем релаксации τ), тогда имеет физический смысл рассматривать только область магнонных колебаний с частотами $\omega > \tau^{-1}$. Это ограничение учтем далее при вычислении магнонного вклада в теплоемкость, так как оно может изменить температурную зависимость C_m в области низких температур. С учетом этого выполним интегрирование по ω с нижним пределом, равным τ^{-1}. Тогда имеем следующее выражение для магнонного вклада в теплоемкость:

$$C_m(T, t_0) = \frac{\partial}{\partial T}\left(\frac{1}{2}\ln\left(\frac{4t_0}{\tau}\right)\int\limits_{\tau-1}^{\infty}\frac{\omega\rho(\omega)d\omega}{e^{\frac{\hbar\omega}{k_B T}} - 1}\right). \tag{5}$$

Для $\tau^{-1} \sim A$ имеем $C_m(T,t_0) \simeq \frac{A}{12\pi^2}\ln\left(\frac{4t_0}{\tau}\right)\frac{\partial}{\partial T}\left[K_1\left(\frac{\hbar\tau^{-1}}{k_B T}\right)\right]$, где $K_1(z)$ — модифицированная функция Бесселя, температурная зависимость которой определяется величиной аргумента z. В зависимости от соотношения между τ, A и T температурная зависимость магнонного вклада C_m будет различной. Так, при малом значении аргумента z ($z \to 0$) имеем $K_1(z) \sim z^{-1}$, и $C_m(T,t_0)$ не зависит от температуры. При большом аргументе z $K_1(z) \sim e^{-z}z^{-1/2}\left\{1 + \frac{3}{8z} - \frac{15}{2(8z)^2} + \ldots\right\}$, в этом случае $C_m(T,t_0) \sim$ $\sim \exp\left\{-\frac{\hbar\tau^{-1}}{k_B T}\right\}\left[\left(\frac{\hbar\tau^{-1}}{k_B}\right)^{\frac{1}{2}}T^{-\frac{3}{2}} + \frac{1}{2}\left(\frac{k_B}{\hbar\tau^{-1}}\right)^{\frac{1}{2}}T^{-\frac{1}{2}} + \frac{3}{2}\left(\frac{k_B}{\hbar\tau^{-1}}\right)^{\frac{3}{2}}T^{\frac{1}{2}} + \ldots\right]$. Таким образом, температурная зависимость C_m является сложной.

Авторы работы [13] нашли частоты локализованных и распространяющихся возбуждений (с помощью компьютерного моделирования спинового стекла) для РККИ-связанных классических спинов, хаотично расположенных в гранецентрированной кубической решетке. Обнаружена небольшая щель в спектре коллективных возбуждений. При температуре $T \to 0$ найдена приблизительно линейная температурная зависимость магнитной теплоемкости, аналогичная экспериментальным данным. (см. обзор [1]).

Далее мы полагаем, что полная теплоемкость состоит из фононного вклада, магнонного вклада и вклада, обусловленного внутренними степенями свободы кластеров («туннельный» вклад). Тогда соответствующее выражение для теплоемкости имеет следующий вид:

$$C(T, t_0) = C_{\text{ph}} + C_t + C_m = \frac{12}{5}\pi^4 n k_B \left(\frac{T}{\Theta}\right)^3 + \frac{\pi^2}{12} n_0 k_B^2 T \ln\left(\frac{4t_0}{\tau}\right) + \\ + \frac{A}{12\pi^2} \ln\left(\frac{4t_0}{\tau}\right) \frac{\partial}{\partial T} \left[K_1\left(\frac{\hbar\tau^{-1}}{k_B T}\right)\right], \qquad (6)$$

где n — число элементарных ячеек в кристалле, Θ — температура Дебая. Первый член в правой части выражения (6) описывает фононный вклад в теплоемкость, второй член представляет собой «туннельный» вклад, обусловленный невзаимодействующими туннелирующими кластерами, третий член описывает магнонный вклад в теплоемкость. Оценки показывают, что при очень низких температурах ($T \lesssim 0.1$ K) фононный вклад примерно на два порядка меньше двух остальных вкладов, которые приблизительно одинаковы по величине. Но уже при температуре $T \sim 1$ K фононный вклад сравним с остальными вкладами.

Итак, при очень низких температурах модель спинового стекла, состоящего из малых туннелирующих магнитных кластеров, связанных между собой посредством магнитного дипольного взаимодействия, объясняет приблизительно линейную температурную зависимость теплоемкости. Такое поведение теплоемкости спинового стекла подтверждает одно из низкотемпературных универсальных свойств неупорядоченных твердых тел (стекол, спиновых стекол, аморфных твердых тел).

Список литературы

[1] Binder K., Young A.P. Rev. Mod. Phys. **58**, *4*, 801 (1986).
[2] Phillips W.A. Rep. Prog. Phys. **50**, *5*, 1657 (1987).
[3] Anderson P.W., Halperin B.I., Varma C.M. Phil. Mag. **25**, *1*, 1 (1972).
[4] Phillips W.A. J. Low Temp. Phys. **7**, *12*, 351 (1972).
[5] Карпов В.Г., Клингер М.И., Игнатьев Ф.Н. ЖЭТФ **84**, *3*, 760 (1983).
[6] Паршин Д.А. ФТТ **36**, *7*, 1809 (1994).
[7] Yu C.C., Leggett A.J. Comments Condens. Matter Phys. **14**, *4*, 231 (1988).
[8] Yu C.C. Phys. Rev. Lett. **63**, *11*, 1160 (1989).
[9] Klein M.W. Phys. Rev. Lett. **65**, *10*, 3017 (1990).
[10] Van Hemmen J.L., Suto A. Z. Phys. **B 61**, *2*, 263 (1985).
[11] Coppersmith S.N. Phys. Rev. Lett. **67**, *17*, 2315 (1991).
[12] Akhmadullin I.Sh., Saburova R.V. Phys. Stat. Sol. (b) **97**, *2*, 407 (1980).
[13] Walker L.R., Walstedt R.E. Phys. Rev. Lett. **38**, *3*, 514 (1977).