

Моделирование магнитной восприимчивости антиферромагнитной системы с обусловленным беспорядком квантовым критическим поведением

© С.В. Демишев

Институт общей физики им. А.М. Прохорова Российской академии наук,
Москва, Россия

E-mail: demis@lt.gpi.ru

(Поступила в Редакцию 17 июня 2008 г.)

Для антиферромагнитной системы, в которой квантовый критический режим обусловлен беспорядком, предложена простая модель, позволяющая найти магнитную восприимчивость при произвольном соотношении между температурой T и характерной величиной обменного интеграла J в неупорядоченном магнетике. Модель аналитически описывает переход от степенной зависимости $\chi \sim 1/T^\xi$, характерной для основного состояния (фазы Гриффитса, $T \ll J$), к зависимости типа Кюри–Вейсса ($T \geq J$) с эффективными параметрами, зависящими от характеристик функции распределения обменных интегралов. Получена оценка характерного размера спиновых кластеров, образующих фазу Гриффитса. На примере купрата германия, легированного примесью железа, показано, что предложенный подход позволяет хорошо описать экспериментальные данные в широком температурном диапазоне, в котором температура изменяется более чем на два порядка, а магнитные свойства фазы Гриффитса определяются спиновыми кластерами нанометрового размера.

Работа поддержана Программами РАН „Квантовая макрофизика“ и „Сильно коррелированные электроны в полупроводниках, металлах, сверхпроводниках и магнитных материалах“.

PACS: 75.10.Nr, 64.70.Tg, 75.50.Ee, 75.75.+a

1. Введение

Взаимосвязь квантовых критических явлений и магнетизма на нанометровой шкале является актуальной проблемой в современной физике конденсированного состояния. С теоретической точки зрения определение пространственного масштаба, соответствующего квантовой критической области, представляет в общем случае значительные трудности. Например, в случае квантового критического режима, обусловленного беспорядком, основным состоянием оказывается фаза Гриффитса, состоящая из спиновых кластеров, характеризующихся различными значениями обменного интеграла J [1–3]. Магнитная восприимчивость в фазе Гриффитса при низких температурах подчиняется закону $\chi \sim 1/T^\xi$ ($\xi < 1$), являющемуся следствием степенной функции распределения обменных энергий, которая не содержит явной зависимости от пространственного масштаба. Еще более сложный случай представляет собой магнетик, образованный антиферромагнитными (АФ) квантовыми спиновыми цепочками со спином $S = 1/2$, поскольку в отличие от холдейновских цепочек корреляционная длина в такой системе равна бесконечности.

Экспериментально квантовый критический режим, обусловленный беспорядком, был обнаружен в спин-пайерлсовском магнетике CuGeO_3 , легированном магнитными примесями Fe, Co и Mn [4–7]. Исследование спектров ЭПР и намагниченности у $\text{Cu}_{1-x}\text{M}_x\text{GeO}_3$ ($M = \text{Fe}, \text{Co}, \text{Mn}$) показало, что при замещении меди

в цепочках магнитная примесь „утрачивает индивидуальность“ и ее влияние проявляется в изменении свойств спиновых цепочек. Установлено, что у части АФ $S = 1/2$ спиновых цепочек Cu^{2+} магнитные примеси в диапазоне концентраций $x = 0.01–0.02$ полностью подавляют спин-пайерлсовский и неелевский переходы. При этом у оставшейся части цепочек сохраняется переход в спин-пайерлсовское состояние при той же или несколько меньшей температуре T_{SP} , что и в чистом образце. Цепочки с разрушенным дальним магнитным порядком при низких температурах находятся в фазе Гриффитса, объемная доля которой для примеси Co составляет $\sim 90\%$ при $x_{\text{Co}} = 0.02$, а для примеси Mn — около 40% при $x_{\text{Mn}} = 0.009$ [6,7]. В случае примеси железа концентрация $x_{\text{Fe}} = 0.01$ оказывается достаточной для полного разрушения спин-пайерлсовского и антиферромагнитного состояния, и при низких температурах весь объем образца $\text{Cu}_{1-x}\text{Fe}_x\text{GeO}_3$ находится в фазе Гриффитса [4,5]. Кроме того, из анализа спектров ЭПР следует, что в CuGeO_3 для фазы Гриффитса характерны трехмерные АФ-корреляции, усиливающиеся в пределе $T \rightarrow 0$ [8].

Таким образом, актуальной задачей оказывается разработка модели фазы Гриффитса, позволяющей вычислить магнитную восприимчивость квантовой критической системы с АФ-взаимодействием не только в пределе $T \rightarrow 0$, но и при произвольной температуре, а также оценить характерный размер спиновых кластеров в фазе Гриффитса.

2. Модель

Рассмотрим неупорядоченную магнитную систему, состоящую из одинаковых элементарных объемов, каждый из которых характеризуется температурой Нееля $T_N \sim J$ и парамагнитной температурой $\theta = aT_N$. Параметр a выражается через постоянные молекулярного поля антиферромагнетика α и β : $a = (\alpha + \beta)/(\alpha - \beta)$ (здесь и далее мы используем обозначения, принятые в монографии [9]).

Температура Нееля T_N является ограниченной сверху случайной величиной $T_N < T_m$ с функцией распределения

$$w(T_N) = \frac{1 - \xi}{T_m} \left(\frac{T_m}{T_N} \right)^\xi. \quad (1)$$

Магнитная восприимчивость каждого элементарного объема при $T > T_N$ описывается законом Кюри–Вейсса.

$$\chi = \frac{C}{T + aT_N}, \quad (2)$$

а при $T < T_N$ убывает по закону

$$\chi = \frac{C}{T_N(1 + a)} \left(\frac{T}{T_N} \right)^\gamma. \quad (3)$$

Помимо стандартных значений $\gamma = 0$ и 1 [9] может рассматриваться случай $\gamma \gg 1$, моделирующий открытие спиновой щели.

Предположим, что для всех элементарных объемов константа Кюри C и отношение α/β одинаковы. Тогда для магнитной восприимчивости находим

$$\chi(T) = \frac{C}{T} D_\xi(T/aT_m) \quad (T > T_m), \quad (4)$$

$$\chi(T) = \frac{C}{T_m} D_\xi(1/a) \left(\frac{T_m}{T} \right)^\xi F_\xi(a, \gamma, T/T_m) \quad (T < T_m), \quad (5)$$

где функции D_ξ и F_ξ даются формулами

$$D_\xi(y) = 1 - (1 - \xi) \int_0^1 \frac{t^{1-\xi}}{t + y} dt, \quad (6)$$

$$F_\xi(a, \gamma, y) = 1 + \frac{1 - \xi}{(1 + a)D_\xi(1/a)(\gamma + \xi)} (1 - y^{\gamma+\xi}). \quad (7)$$

Выражения (4)–(7) позволяют найти магнитную восприимчивость при произвольной температуре.

Интересно, что при $T > T_m$ формулы (4), (6) дают зависимость $\chi(T)$ псевдокури-вейссовского вида с эффективными парамагнитной температурой $\theta_p = T_m[1 - D_\xi(1/a)]/D_\xi(1/a)$ и константой Кюри

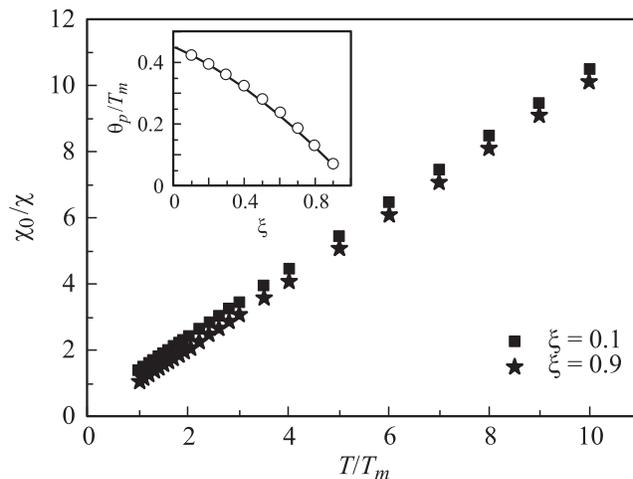


Рис. 1. Температурная зависимость магнитной восприимчивости в области $T > T_m$ для $\xi = 0.1$ и 0.9 при $a = 1$. На вставке — точками обозначены значения парамагнитной температуры, полученные путем обработки по методу наименьших квадратов зависимости $\chi^{-1} = f(T)$, отвечающих различным значениям параметра ξ ; сплошная линия представляет аналитическую оценку θ_p (см. текст).

$C^* \sim C$ (рис. 1; здесь и далее на рисунках используется обозначение $\chi_0 = C/T_m$). В пределе $T \ll T_m$ имеет место степенная асимптотика магнитной восприимчивости $\chi \sim (C/T_m)(T_m/T)^\xi$ (см. (5)–(7)).

Таким образом, в рассматриваемой модели при понижении температуры в области $T < T_m$ осуществляется „сканирование“ по параметрам элементарных объемов, магнитный вклад которых быстро „вымерзает“ после перехода в магнитоупорядоченное состояние, и вместо псевдокури-вейссовского поведения формируется степенная зависимость магнитной восприимчивости. При использовании данного подхода к описанию магнитных свойств фазы Гриффитса образующие ее спиновые кластеры следует рассматривать как совокупности введенных нами элементарных объемов. При этом кластеры в фазе Гриффитса с большей (по сравнению со средним значением) степенью корреляции, определяющие, согласно [1–3], ее магнитные свойства, следует отождествлять с кластерами, состоящими из элементарных объемов, для которых $T_N > T$.

Нетривиальным является вопрос о возможности использования рассматриваемой модели для описания магнитных свойств таких низкоразмерных магнетиков, как CuGeO_3 . В качестве указания на допустимость такого подхода сошлемся на уже упоминавшиеся выше результаты работы [8], согласно которым для купрата германия, содержащего магнитные примеси, существенную роль играют трехмерные АФ-корреляции. Однако окончательный ответ на этот вопрос может быть получен только в результате сравнения теоретических зависимостей (4)–(7) с экспериментом.

3. Сравнение с экспериментом для CuGeO_3

Для сравнения с экспериментом был выбран CuGeO_3 с примесью железа, поскольку для этого материала получены наиболее подробные экспериментальные данные для магнитной восприимчивости $\chi_{\text{exp}}(T)$, охватывающие широкий температурный диапазон 0.5–300 К [4,5]. При аппроксимации $\chi_{\text{exp}}(T)$ формулами (4)–(7) индекс ξ и параметр T_m легко находятся из низкотемпературной асимптотики $\chi_{\text{exp}}(T)$ и характерной температуры, при которой происходит отклонение температурной зависимости магнитной восприимчивости от закона Кюри–Вейсса. Показатель степени γ независимо оценивается из „размера“ переходной области при $T < T_m$ и для исследованных систем удовлетворяет условию $\gamma \gg 1$. Так как из ЭПР-экспериментов [4–8] непосредственно определяется значение эффективного магнитного момента μ на ионах Cu^{2+} , то константа Кюри известна ($C = N_{\text{Cu}^{2+}} \mu^2 / k_B$) и единственным подгоночным параметром оказывается величина a , которая может быть найдена из условия $\chi_{\text{exp}}(T_m) T_m / C = D_\xi (1/a)$. Результаты такого анализа представлены на рис. 2; видно, что предложенная простая модель хорошо описывает экспериментальные данные.

Интересно, что в квантовой критической системе, образованной разупорядоченными квантовыми спиновыми цепочками, величина T_m составляет $T_m \approx 120 \text{ К} \sim J_c$, где J_c — обменный интеграл вдоль цепочек ионов Cu^{2+} . Следовательно, беспорядок, вызванный легированием магнитной примесью, приводит к уменьшению обменных интегралов в цепочках, $J < J_c$ и вызывает разбиение системы на спиновые кластеры. В результате

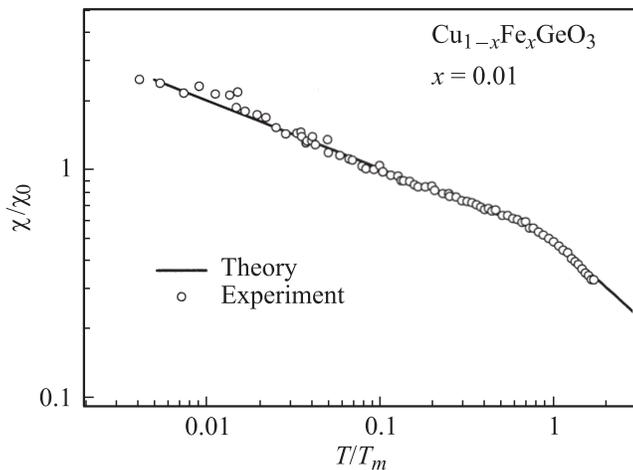


Рис. 2. Сравнение теоретических зависимостей (4)–(7) (сплошная линия) с экспериментом (точки) для CuGeO_3 , содержащего 1% легирующей примеси железа. Теоретическая кривая отвечает следующим параметрам расчета: $\xi = 0.3$, $a = 4$ ($\beta = 0.6\alpha$), $T_m = 120 \text{ К}$ и $\gamma = 9$. Величина $\chi_0 = 1.0019 \cdot 10^{-4}$ ($3.673 \cdot 10^{-3} \text{ emu/mol}$) была вычислена по экспериментальному значению эффективного магнитного момента $\mu = 1.075 \mu_B$, найденному в [4,5,8].

квантовые критические явления начинают проявляться при достаточно высоких температурах, существенно превышающих все известные для CuGeO_3 характерные температуры переходов в магнитоупорядоченные фазы.

Таким образом, в рамках нашей модели получается естественное определение температуры перехода в фазу Гриффитса $T_G = T_m$. При этом ранее в работах [4–7] характерная температура T_G оценивалась по „началу“ низкотемпературной степенной асимптотики $\chi(T)$, что, очевидно, приводило к ее занижению до значений $T_G \sim 30\text{--}40 \text{ К}$ [4–7].

Следует также отметить, что полученные нами теоретические зависимости выполняются в весьма широком диапазоне температур, в котором этот параметр изменяется более чем на два порядка (рис. 2). Этот результат убедительно свидетельствует в пользу применимости предложенной модели для описания магнитных свойств легированного CuGeO_3 .

4. Оценка характерного размера кластеров

Описанный в предыдущем разделе подход не зависит от размера спиновых кластеров. Если считать, что корреляция T_N в соседних элементарных объемах отсутствует, то оценка размера антиферромагнитных кластеров может выполняться так же, как и в теории протекания для известной задачи узлов [10]. Если размер элементарного объема l_0 , то максимальный размер кластера будет

$$R_m(T) \sim \frac{l_0}{|v_{\text{AF}}(T) - v_c|^\eta}, \quad (8)$$

где $v_{\text{AF}} = V_{\text{AF}}/V$ — относительная доля объема образца, занятая антиферромагнитной фазой, а v_c и η — зависящие от размерности пространства D порог протекания и критический индекс соответственно [10]. Поскольку в реальных системах величина l_0 будет порядка нескольких постоянных решетки $l_0 \sim 1\text{--}10 \text{ nm}$, фаза Гриффитса может рассматриваться как наномангнитная фаза. Так как в перколяционной модели при $v_{\text{AF}} \rightarrow v_c$ максимальный размер кластера расходится (см. (8)) и появляется бесконечный кластер, в такой системе возникает новая характерная температура $T^* < T_m$, определяемая из условия $v_{\text{AF}}(T^*) = v_c$, при достижении которой будет изменяться топология спиновых кластеров. Ожидаемая температурная зависимость $R_m(T)$ в рамках рассмотренного перколяционного подхода приведена на рис. 3.

Однако в случае легированного CuGeO_3 реальная ситуация может оказаться более сложной. Из ЭПР-экспериментов известно, что наиболее сильное изменение параметров спиновых цепочек происходит в окрестности примесных центров [8], поэтому может оказываться, что ионы магнитной примеси выступают в роли своеобразных „центров зародышеобразования и роста“ антиферромагнитной фазы.

Проведем оценку характерного размера спинового кластера $R(T)$ для этого случая. В силу дисперсии J

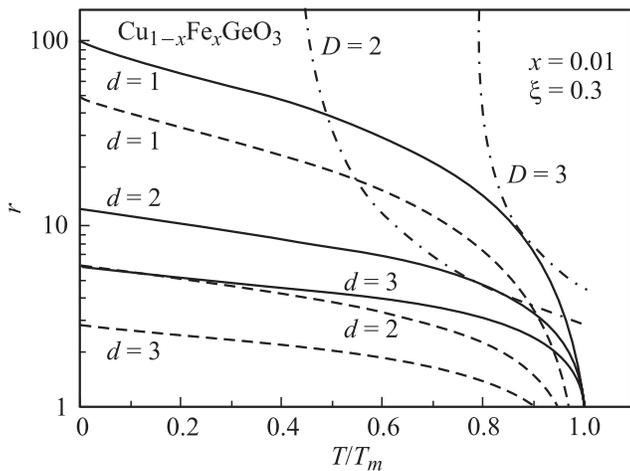


Рис. 3. Характерные размеры кластеров для CuGeO_3 , содержащего 1% примеси железа. Сплошными и штриховыми линиями для различных размерностей роста d показаны максимальный размер кластера r (см. (11)) и средний размер кластера $\langle r \rangle$ соответственно. Штрихпунктирными линиями обозначены максимальный размер кластера $r = R_m/l_0$ в перколяционной модели (см. (8)) для двумерного ($D = 2$) и трехмерного ($D = 3$) случаев. Для $D = 2$ использованы значения $\eta = 1.3$ и $v_c = 0.45$, а для $D = 3$ — $\eta = 0.8$ и $v_c = 0.15$ [10].

рост кластеров в окрестности примесных центров при понижении температуры начнется не одновременно, и параметр R будет случайной величиной с некоторой функцией распределения $f(R, T)$. При этом будет выполняться условие $R < R_m$, где R_m — размер кластера, рост которого начался при $T = T_m$.

Зададим зависимость объема кластера от размера в виде $V(R) = a_d R^d$, где d — размерность роста, и, используя простейшую оценку $f(R, T) = 1/R_m(T)$, найдем долю объема, занятую антиферромагнитной фазой,

$$v_{\text{AF}} = n_i \int_{l_0}^{R_m} V(R) f(R, T) dR = \frac{n_i v_0}{d+1} \left(r^d - \frac{1}{r} \right). \quad (9)$$

При записи формулы (9) мы использовали обозначения $r = R_m/l_0$ и $v_0 = a_d l_0^d$. С другой стороны, в рамках модели, рассмотренной в разделе 2, v_{AF} описывается выражением

$$v_{\text{AF}} = 1 - \left(\frac{T}{T_m} \right)^{1-\xi}, \quad (10)$$

и в результате можно найти зависимость $r(T)$ в неявном виде

$$\frac{T}{T_m} = \left[1 - \frac{n_i v_0}{d+1} \left(r^d - \frac{1}{r} \right) \right]^{\frac{1}{1-\xi}}. \quad (11)$$

Для оценки $r(T)$ примем, что минимальный объем антиферромагнитного кластера v_0 равен объему элементарной ячейки CuGeO_3 , содержащей два иона Cu^{2+} . В этом случае $n_i v_0 \sim 2x$, $l_0 \sim 1$ nm, с помощью формулы (11) легко получить температурную зависимость

максимального размера кластера r и среднего размера кластера $\langle r \rangle = (r - 1/r)/2$ для различных размерностей роста d (рис. 3). Видно, что в рамках рассматриваемой модели, так же как и в рамках перколяционного подхода, в окрестности ионов магнитной примеси образуются антиферромагнитные нанокластеры. Однако в отличие от модели, основанной на теории протекания, в случае роста кластера в окрестности примесного центра температурная зависимость $r(T)$ оказывается менее резкой (рис. 3).

5. Заключение

Мы показали, что магнитные свойства неупорядоченной антиферромагнитной системы, основным состоянием которой является фаза Гриффитса, могут быть интерпретированы и количественно описаны при произвольной температуре в рамках простой модели образования антиферромагнитных кластеров. Несмотря на весьма „прямолинейный“ характер, эта модель хорошо передает температурную зависимость магнитной восприимчивости АФ $S = 1/2$ спиновых цепочек в $\text{Cu}_{1-x}\text{M}_x\text{GeO}_3$ ($M = \text{Fe}, \text{Co}, \text{Mn}$) в широком температурном диапазоне.

Выполненные нами оценки характерного размера спиновых кластеров, образующих фазу Гриффитса, свидетельствуют о том, что эта фаза является наномангнитной, причем возможны различные сценарии, в которых размер кластера контролируется или перколяционными эффектами, или процессами роста в окрестности магнитной примеси. Этот результат показывает перспективность экспериментальных исследований магнитной структуры квантового критического состояния низкоразмерных магнетиков на нанометровой шкале.

Список литературы

- [1] R.B. Griffiths. Phys. Rev. Lett. **23**, 1, 17 (1969).
- [2] A.J. Bray. Phys. Rev. Lett. **59**, 586 (1987).
- [3] D.S. Fisher. Phys. Rev. Lett. **69**, 3, 534 (1992); Phys. Rev. B **50**, 6, 3799 (1994); Phys. Rev. B **51**, 10, 6411 (1995).
- [4] С.В. Демишев, Р.В. Бунтинг, Л.И. Леонюк, Е.Д. Образцова, А.А. Пронин, Н.Е. Случанко, Н.А. Самарин, С.В. Терехов. Письма в ЖЭТФ **73**, 1, 36 (2001).
- [5] S.V. Demishev, A.V. Semeno, A.A. Pronin, N.E. Sluchanko, N.A. Samarin, H. Ohta, S. Okubo, M. Kimata, K. Koyama, M. Motokawa, A.V. Kuznetsov. J. Magn. Magn. Mater. **300**, 346 (2006).
- [6] С.В. Демишев, А.В. Семенов, Н.Е. Случанко, Н.А. Самарин, А.А. Пронин, Ю. Инагаки, С. Окубо, Х. Ота, Ю. Ошима, Л.И. Леонюк. ФТТ **46**, 12, 2164 (2004).
- [7] A.V. Semeno, N.E. Sluchanko, N.A. Samarin, A.A. Pronin, H. Ohta, S. Okubo, S.V. Demishev. Physica B **378–380**, 115 (2006).
- [8] S.V. Demishev, A.V. Semeno, A.A. Pronin, N.E. Sluchanko, N.A. Samarin, H. Ohta, S. Okubo, M. Kimata, K. Koyama, M. Motokawa. Progr. Theor. Phys. Suppl. **159**, 387 (2005).
- [9] С.В. Вонсовский. Магнетизм. Наука, М. (1979). С. 714.
- [10] А.Л. Эфрос. Физика и геометрия беспорядка. Наука, М. (1982). С. 141.