

К теории намагничивания димеризованных магнетиков

В. М. Калита¹⁾, В. М. Локтев^{+ 1)}

Институт физики НАН Украины, 03028 Киев, Украина

⁺ Институт теоретической физики им. Н.Н. Боголюбова НАН Украины, 03680 Киев, Украина

Поступила в редакцию 12 января 2010 г.

Для описания квантового фазового перехода в димеризованном антиферромагнетике применен формализм теории фазовых переходов Ландау. Минимизация энергии основного состояния осуществляется по параметру смешивания волновых функций с разной мультиплетностью. Критическое поведение параметра волновой функции приводит, соответственно, к критическому ходу наблюдаемых.

1. Квантовые фазовые переходы (КФП) вызывают в последние годы большой интерес как с общезначимой точки зрения (см., например, [1–4]), так и с точки зрения исследования конкретных систем. В этой связи заметное внимание уделяется изучению магнитных свойств веществ, исходно находящихся в немагнитном состоянии и магнетизм которых возникает благодаря внешнему воздействию. Так, магнитный КФП наблюдается в ван-флековских системах $\text{NiCl}_2\text{-}4\text{SC}(\text{NH}_2)_2$ [5–13] и AFeX_3 , где $\text{A} = \text{Ru}, \text{Cs}$, $\text{X} = \text{Cl}, \text{Br}$ [14–23], а также в так называемых димеризованных антиферромагнетиках (АФМ) типа XCuCl_3 , где $\text{X} = \text{K}, \text{Cs}, \text{Tl}, \text{NH}_4$ [24–36]. При имеющихся различиях основное состояние этих веществ оказывается немагнитным, и КФП индуцируется внешним магнитным полем. В результате они переходят в магнитоупорядоченное АФМ состояние. В значительном числе работ (см. [6–12, 22–29]) этот переход связывается с бозе-эйнштейновской конденсацией спиновых возбуждений (в частности, триплетов [24]), появляющихся как следствие того, что в конечном магнитном поле система оказывается возбужденной, а ее релаксация обеспечивает появление в ней намагниченности (в том числе, одноузельного спина).

Представляется, однако, что аналогия с бозе-конденсацией не более, чем формальный прием, поскольку для рассматриваемых КФП речь идет лишь о перестройке основного состояния, а следовательно, упомянутые спиновые возбуждения могут быть лишь виртуальными. На наш взгляд, физика КФП как в ван-флековских, так и в димеризованных АФМ является достаточно прозрачной, и они могут быть последовательно описаны в рамках теории Ландау, когда появление и вид магнитного порядка устанавливаются путем минимизации энергии основного

состояния (либо свободной энергии, при $T \neq 0$) по параметру смешивания волновых функций одноионных состояний. Подобным образом удалось рассчитать спиновые конфигурации и найти критические поля [16, 37] КФП для ван-флековских систем со спином на узле $S = 1$ [5–23], в которых перегруппировка одноионных уровней происходит без изменения мультиплетности состояния в целом и критичным является учет большой (по сравнению с обменом) одноионной анизотропии.

Димеризованные АФМ [25–36] со спином $S = 1/2$ на узле отличаются от ван-флековских тем, что, как будет видно, в них переход в магнитное состояние обусловлен изменением полного спина димера, а следовательно, смешиванием функций разной мультиплетности, и можно пренебречь учетом одноионной анизотропии. Ниже делается попытка описать КФП из исходной синглетной фазы в фазу с АФМ упорядочением в димеризованном магнетике в рамках формализма Ландау, опираясь для определенности на экспериментальные примеры.

2. В работе [24] для моделирования КФП в димеризованных системах использовалась характерная для большинства из них структура, показанная на рис.1. При этом ближайшие спины $S = 1/2$ вследствие доминирующего обменного взаимодействия $J_{\text{dim}} > 0$ между ними формируют димер с полным спином $S_{\text{dim}} = 0$, который оказывается устойчивым даже в присутствии других, но более слабых, обменных взаимодействий. Гамильтониан такой системы может быть представлен в виде

$$\begin{aligned} \hat{H} = & J_{\text{dim}} \sum_{\mathbf{n}\alpha} \mathbf{S}_{\mathbf{n}\alpha,1} \mathbf{S}_{\mathbf{n}\alpha,2} + \\ & + \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{n}\alpha, \mathbf{m}\beta} [J_{\mathbf{n}\alpha,1\mathbf{m}\beta,1}^{XY} (\mathbf{S}_{\mathbf{n}\alpha,1} \mathbf{S}_{\mathbf{m}\beta,1} + \mathbf{S}_{\mathbf{n}\alpha,2} \mathbf{S}_{\mathbf{m}\beta,2}) + \\ & + J_{\mathbf{n}\alpha,1\mathbf{m}\beta,2}^Z \mathbf{S}_{\mathbf{n}\alpha,1} \mathbf{S}_{\mathbf{m}\beta,2}] - H \sum_{\mathbf{n}\alpha} (S_{\mathbf{n}\alpha,1}^Z + S_{\mathbf{n}\alpha,2}^Z), \quad (1) \end{aligned}$$

¹⁾ e-mail: vmkalita@ukr.net; vloktev@bitp.kiev.ua

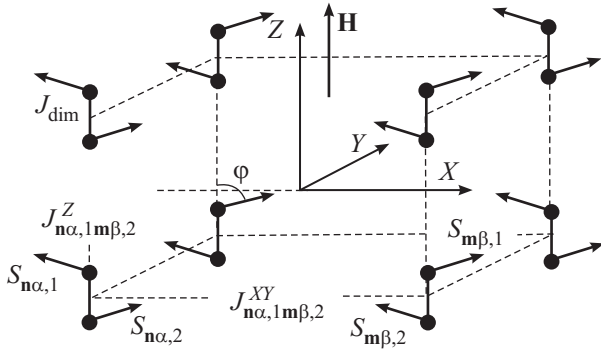


Рис.1. Ориентации спинов АФМ фазы, индуцированной магнитным полем, параллельным оси димера. Векторы спинов лежат в плоскости XZ

где пары (см. рис.1) 1 и 2 спинов $\mathbf{S}_{n\alpha,1}$ и $\mathbf{S}_{n\alpha,2}$ принадлежат одному димеру, положение которого задается вектором \mathbf{n} , а спины $\mathbf{S}_{m\beta,1}$ и $\mathbf{S}_{m\beta,2}$ – другому, $\mathbf{H} \parallel Z$ – магнитное поле (в энергетических единицах), $J_{n\alpha,1m\beta,1}^{XY} > 0$ и $J_{n\alpha,1m\beta,2}^Z > 0$ – обменные взаимодействия между ближайшими спинами в плоскости XY и вдоль оси Z , соответственно. По существу индексы $\alpha (= 1, 2)$ и $\beta (= 1, 2)$ различают магнитные (неелевские) подрешетки, если бы основное состояние магнетика было бы квазиклассическим. При его реализации проекции средних спинов удовлетворяли бы, как видно из рисунка, соотношениям

$$\begin{aligned} s_{\alpha,1}^Z &= s_{\alpha,2}^Z = s_{\beta,1}^Z = s_{\beta,2}^Z = s_Z, \\ -s_{\alpha,1}^X &= s_{\alpha,2}^X = s_{\beta,1}^X = -s_{\beta,2}^X = s_X. \end{aligned} \quad (2)$$

Поскольку основное состояние димеризованных систем формируется благодаря обменной связи J_{dim} , будем учитывать ее точно, в то время как другие обменные взаимодействия учтем в рамках самосогласованного поля. Тогда энергия основного состояния системы (в расчете на ячейку) может быть представлена в виде

$$E_{gr} = J_{dim} \langle \mathbf{S}_1 \mathbf{S}_2 \rangle + 2J(s_X^2 - s_Z^2) - 2Hs_Z, \quad (3)$$

где $\langle \mathbf{S}_1 \mathbf{S}_2 \rangle$ – среднее скалярного произведения операторов спинов димера, J – параметр эффективного обменного взаимодействия, просуммированного по числу ближайших соседей: $J = 4J_{n\alpha,1m\beta,1}^{XY} + 2J_{n\alpha,1m\beta,2}^Z$.

Искомое основное состояние димера можно выразить функцией

$$\psi_{gr} = \sum_{S, M_S} C_{SM_S} \psi_{SM_S} = \sum_{M_S} C_{1M_S} \psi_{1M_S} + C_{00} \psi_{00}, \quad (4)$$

где S – квантовое число полного спина димера ($S = 0$ либо $S = 1$), $M_S = \pm 1, 0$ – его проекция на ось

Z , а C_{SM_S} – коэффициенты. Легко проверить, что для гамильтониана (3) $C_{10} = 0$. Остальные коэффициенты можно выбрать вещественными, причем $C_{11}^2 + C_{1\bar{1}}^2 + C_{00}^2 = 1$, где $C_{1,-1} \equiv C_{1\bar{1}}$.

Используя (4) и условие нормировки, энергию основного состояния системы (3) легко переписать в виде

$$\begin{aligned} E_{gr} &= J_{dim} \left(C_{11}^2 + C_{1\bar{1}}^2 - \frac{3}{4} \right) + J \left[\frac{1}{2} (C_{11}^2 - C_{1\bar{1}}^2)^2 - \right. \\ &\quad \left. - (C_{11} - C_{1\bar{1}})^2 + (C_{11}^2 + C_{1\bar{1}}^2)(C_{11} - C_{1\bar{1}})^2 \right] - H(C_{11}^2 - C_{1\bar{1}}^2). \end{aligned} \quad (5)$$

Сначала проанализируем зависимость $E_{gr}(C_{11}, C_{1\bar{1}})$ при разных величинах поля численно. На рис.2 показан вид $E_{gr}(C_{11}, C_{1\bar{1}})$ для отношения $J/J_{dim} = 0.3$, близкого к реальному. Видно, что для него вплоть до поля $H/J_{dim} \approx 0.63245$ основным состоянием остается синглет ($C_{11} = 0, C_{1\bar{1}} = 0$). При этом на рис.2а показана зависимость $E_{gr}(C_{11}, C_{1\bar{1}})$ для $H/J_{dim} = 0.6$. В интервале полей $0.63245 < H/J_{dim} < 1.6$ в системе формируется скошенная АФМ фаза с минимумом при $C_{11} > 0, C_{1\bar{1}} < 0$. На рис.2б для сравнения изображен профиль энергии в поле $H/J_{dim} = 0.64$, когда минимум (он показан эллипсом) только начинает отдаляться от положения синглетного состояния $C_{11} = 0, C_{1\bar{1}} = 0$. А на рис.2с показан профиль энергии в поле $H/J_{dim} = 1.55$, когда минимум $E_{gr}(C_{11}, C_{1\bar{1}})$ приближается к точке с предельной для каждого узла поляризацией. В больших полях $H/J_{dim} > 1.6$ (рис.2д) минимум энергии отвечает точке $C_{11} = 1, C_{1\bar{1}} = 0$ с коллинеарными спинами всех ионов (парамагнитное состояние). Заметим, что отношение критических полей существования АФМ фазы, полученное из расчетов для $J/J_{dim} = 0.3$, приблизительно составляет $1.6/0.63 \approx 2.55$. Это число неплохо согласуется с данными экспериментов для KCuCl_2 [26], в которых отношение критических полей, ограничивающих АФМ фазу, составляет $H_{cr}^{(2)} (= 54 \text{ Тл})/H_{cr}^{(1)} (= 23 \text{ Тл}) \approx 2.35$.

3. Исходя из вышесказанного, будем искать основное состояние системы, описываемой гамильтонианом (1), минимизируя (5). В результате приходим к системе уравнений

$$\frac{\partial E_{gr}}{\partial C_{11}} = \quad (6)$$

$$= 2[J_{dim}C_{11} + J(C_{11} - C_{1\bar{1}})(3C_{11}^2 + C_{1\bar{1}}^2 - 1) - HC_{11}] = 0,$$

$$\frac{\partial E_{gr}}{\partial C_{1\bar{1}}} = \quad (7)$$

$$= 2[J_{dim}C_{1\bar{1}} + J(C_{1\bar{1}} - C_{11})(3C_{1\bar{1}}^2 + C_{11}^2 - 1) + HC_{1\bar{1}}] = 0.$$

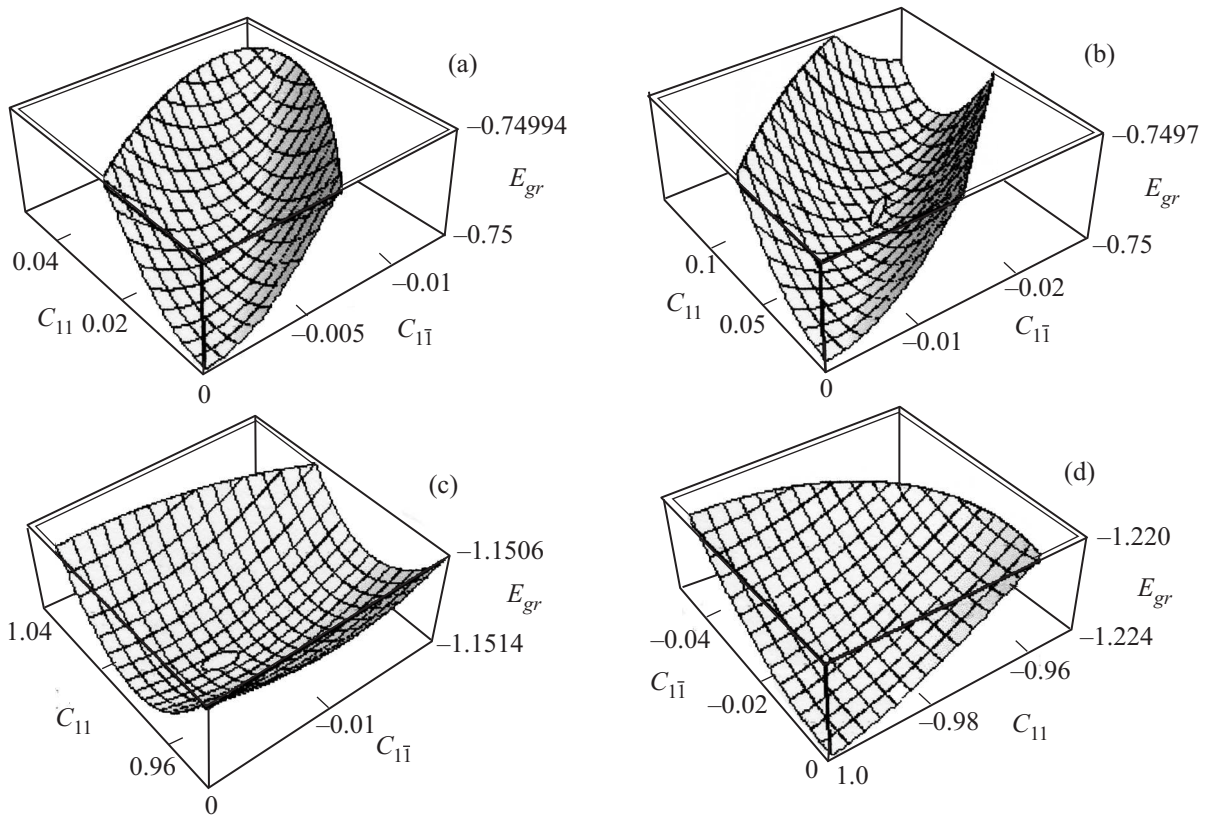


Рис.2. Профили энергии $E_{gr}(C_{11}, C_{1\bar{1}})$, рассчитанные при $J/J_{dim} = 0.3$ в разных полях: (a) $H/J_{dim} = 0.6$, (b) $H/J_{dim} = 0.64$, (c) $H/J_{dim} = 1.55$, (d) $H/J_{dim} = 1.625$. Положение минимума показано эллипсом

Одно из ее решений $C_{11} = C_{1\bar{1}} = 0$, то есть $C_{00} = 1$ (см. (4)), отвечает состоянию с волновой функцией $\psi_{gr} = \psi_{00}$, в котором $S_{dim} = 0$, а энергия $E_{gr}^{(sing)} = -(3/4)J_{dim} < 0$. Из (6) и (7) можно убедиться, что решение $C_{11} \neq 0, C_{1\bar{1}} = 0$ отсутствует, поэтому релаксация возбуждений в состояние с волновой функцией, включающей синглетное состояние и только одно триплетное ψ_{11} , как это предполагалось в [24], не происходит, даже если принять сценарий с бозеконденсацией. Заметим, наконец, что при инверсии поля ($H \rightarrow -H$) уравнения (6) и (7) не изменяют своего вида, если $C_{11} \rightarrow C_{1\bar{1}}$, а $C_{1\bar{1}} \rightarrow C_{11}$.

Из вторых производных (5) находим, что критическое поле КФП из синглетной в АФМ фазу определяется выражением

$$H_{cr}^{(1)} = J_{dim} \sqrt{1 - 2J/J_{dim}}. \quad (8)$$

Для $J/J_{dim} \approx 0.3$ оно дает то же значение, которое было получено при численном моделировании профилей энергии $E_{gr}(C_{11}, C_{1\bar{1}})$.

На рис.3 приведены зависимости для $C_{11}(H)$ и $C_{1\bar{1}}(H)$, полученные из уравнений (6), (7) для $J/J_{dim} = 0.3$. Видно, что процесс смешивания

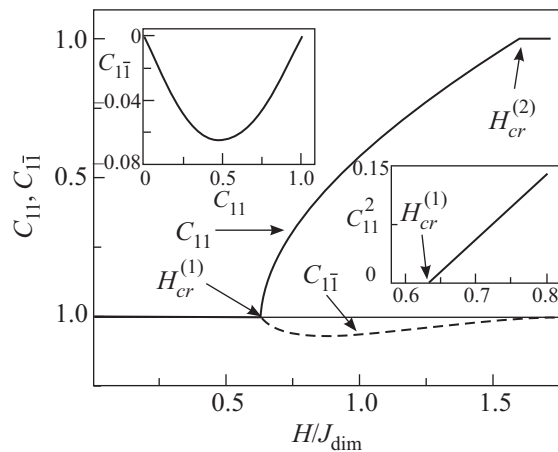


Рис.3. График полевых зависимостей для $C_{11}(H)$ и $C_{1\bar{1}}(H)$ при $J/J_{dim} = 0.3$. На верхней вставке показана зависимость $C_{11}(C_{1\bar{1}})$. На нижней вставке показана полевая зависимость для $C_{11}^2(H)$ вблизи $H_{cr}^{(1)}$

состояний с разной мультиплетностью включается в поле $H_{cr}^{(1)}$. При этом в критической области полевая зависимость параметра C_{11} имеет корневой характер, или $C_{11}(H) \sim \sqrt{H - H_{cr}^{(1)}}$, что прямо следует

из зависимости $C_{11}^2(H) \sim H - H_{cr}^{(1)}$ (см. вставку к рис.3). На другой вставке к рис.3 показан ход зависимости $C_{1\bar{1}}(C_{11})$, которая представляет собой траекторию минимума энергии E_{gr} в плоскости $C_{11}, C_{1\bar{1}}$ при изменении поля.

Переход в ферромагнитную (парамагнитную) фазу с предельной поляризацией, где $s_X = 0, s_Z = 1/2$ и $M = 1$, осуществляется в критическом поле

$$H_{cr}^{(2)} = J_{dim} + 2J. \quad (9)$$

Нетрудно проверить, что в поле $H = H_{cr}^{(2)}$ происходит обычный для АФМ ориентационный спин-флип переход, и система оказывается в однородной парафазе.

КФП из синглетной фазы, в которой $s_X = s_Z = 0$, в АФМ фазу со смешанной волновой функцией, в которой и $s_X \neq 0$, и $s_Z \neq 0$, является фазовым переходом второго рода. В поле $H = H_{cr}^{(1)}$ решение $C_{11} = C_{1\bar{1}} = 0$ и решение $C_{11} \neq 0, C_{1\bar{1}} \neq 0$ имеют одинаковую энергию. На вставке к рис. 4 более детально показан ход полевой зависимости энергии этих решений вблизи критической точки. В точке же ориентационного фазового перехода ($H = H_{cr}^{(2)}$) энергия E_{gr} также изменяется непрерывно (см. рис.4), а сам переход является переходом второго рода.

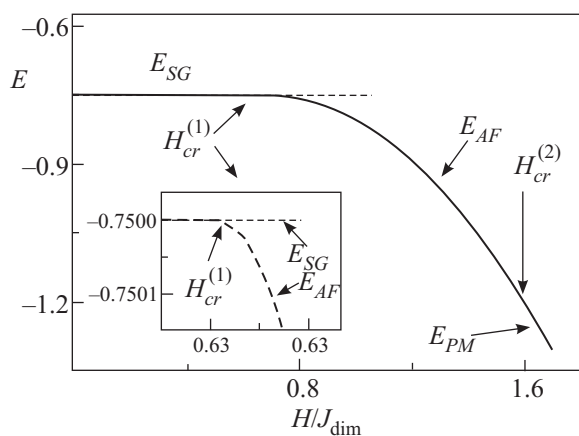


Рис.4. Полевые зависимости энергии основного состояния для $J/J_{dim} = 0.3$. Энергии синглетной фазы, АФМ и парамагнитной фазы обозначены E_{SG}, E_{AF}, E_{PM}

Зная волновую функцию основного состояния, не составит труда рассчитать магнитные свойства АФМ фазы. Средние проекции намагниченности каждой из подрешеток связаны с параметрами волновой функции соотношениями

$$s_Z = \frac{1}{2}(C_{11}^2 - C_{1\bar{1}}^2), \quad s_X = \frac{1}{\sqrt{2}}(C_{11}C_{00} - C_{1\bar{1}}C_{00}). \quad (10)$$

На рис.5 приведены полевые зависимости для $s_Z(H)$ и $s_X(H)$ для $J/J_{dim} = 0.3$. Видно, что полевая за-

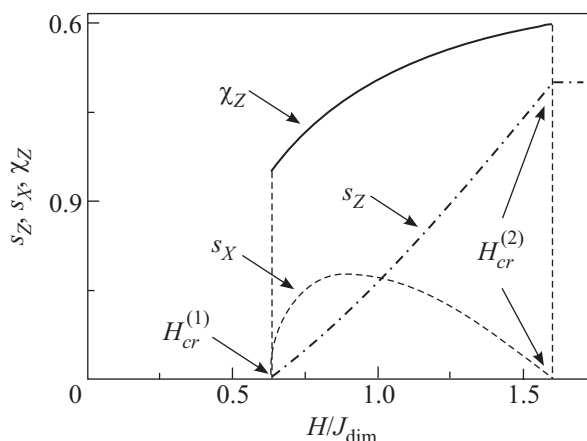


Рис.5. Полевые зависимости $s_Z(H), s_X(H)$ и $\chi_Z(H)$ для случая $J/J_{dim} = 0.3$

висимость проекции $s_Z(H)$ близка к линейной. Такой ход зависимости намагниченности качественно согласуется с экспериментальными данными для $KCuCl_2$. Слабая нелинейность поведения $s_Z(H)$ и, соответственно, нелинейный ход восприимчивости $\chi_Z(H) = ds_Z(H)/dH$ связаны с вкладом от функции $\psi_{1\bar{1}}$ в собственную волновую функцию основного состояния.

Из (10) следует, что в области КФП поперечная к полю проекция спина имеет корневую зависимость от поля: $s_X \sim \sqrt{H - H_{cr}^{(1)}}$, где $H > H_{cr}^{(1)}$ и $(H - H_{cr}^{(1)})/H_{cr}^{(1)} \ll 1$. В области полей фазового перехода из АФМ в парамагнитную фазу при $H \rightarrow H_{cr}^{(2)}$ поперечная проекция $s_Z \sim H_{cr}^{(2)} - H$, что характерно для “классического” ориентационного перехода схлопывания подрешеток, когда квантовыми эффектами можно пренебречь. В итоге оказывается, что приведенная на рис.5 зависимость $s_X(H)$ достаточно хорошо описывается выражением $s_X = k\sqrt{H - H_{cr}^{(1)}}(H_{cr}^{(2)} - H)$, где $k \approx 0.5$ – параметр фитирования.

4. Таким образом, в работе показано, что магнитный КФП в димеризованном АФМ может быть последовательно описан в рамках теории Ландау, когда спонтанная спиновая поляризация ионов димера определяется минимизацией энергии основного состояния. При этом критическое изменение параметров волновой функции приводит к соответствующему критическому поведению наблюдаемых. Несмотря на сильную нелинейность модели, из-за которой величина спиновой поляризации ионов изменяется от 0 до ее предельного значения 1/2, зависимость продольной намагниченности системы оказывается близкой к линейной, что согласуется с данными экс-

периментов для обсуждаемых веществ. Обобщение модели на случай конечных температур и построение ее H – T -диаграммы будет сделано отдельно.

Работа выполнена при частичной поддержке целевой программы фундаментальных исследований ОФА НАН Украины.

1. S. Sachdev, *Quantum Phase Transitions*, Cambridge: Cambridge Univ. Press, 2000.
2. U. Schollwck, J. Richter, D. J. J. Farnell, and R. F. Bishop (Eds). *Quantum Magnetism*. Springer, Berlin Heidelberg, 2004.
3. С. М. Стишов, УФН **174**, 853 (2004).
4. В. Ф. Гантмахер, В. Т. Долгополов, УФН **178**, 3 (2008).
5. S. A. Zvyagin, J. Wosnitza, A. K. Kolezhuk et al., *J. Phys.: Conf. Ser.* **150**, 042244 (2009).
6. X. F. Sun, W. Tao, X. M. Wang, and C. Fan, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 167202 (2009).
7. A. Paduan-Filho, K. A. Al-Hassanieh, P. Sengupta, and M. Jaime, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 077204 (2009).
8. A. Paduan-Filho, K. A. Al-Hassanieh, P. Sengupta et al., *J. Appl. Phys.* **105**, 07D501 (2009).
9. S. A. Zvyagin, J. Wosnitza, A. K. Kolezhuk et al., *Phys. Rev. B* **77**, 092413 (2008).
10. L. Yin, J. S. Xia, V. S. Zapf et al., *Phys. Rev. Lett.* **101**, 187205 (2008).
11. S. A. Zvyagin, J. Wosnitza, C. D. Batista et al., *Phys. Rev. Lett.* **98**, 047205 (2007).
12. V. S. Zapf, D. Zocco, B. R. Hansen et al., *Phys. Rev. Lett.* **96**, 077204 (2006).
13. S. Cox, R. D. McDonald, M. Armanious et al., *Phys. Rev. Lett.* **101**, 087602 (2008).
14. B. Dorner, D. Visser, U. Stiegenberger et al., *Z. Phys. B* **72**, 487 (1988).
15. A. Harrison and D. Visser, *Journ. of Physics: Condensed Matter* **4**, 6977 (1992).
16. Y. Tanaka, H. Tanaka, T. Ono et al., *J. Phys. Soc. Jpn.* **70**, 3068 (2001).
17. Y. Inagaki, S. Okubo, H. Ohta, and H. Tanaka, *J. Phys. Soc. Jpn.* **72**, 127 (2003).
18. M. Chiba, T. Higuchi, K. Kitai et al., *Physica B* **329–333**, 950 (2003).
19. Y. Sasaki, K. Goto, T. Ono et al., *Prog. Theor. Phys.* **159**, 402 (2005).
20. M. Toda, Y. Fujii, S. Kawano et al., *Phys. Rev. B* **71**, 224426 (2005).
21. E. Meloche, C. M. Pinciuc, and M. L. Plumer, *Phys. Rev. B* **74**, 094424 (2006).
22. M. Toda, Y. Fujii, M. Chiba et al., *JMMM* **272–276**, 378 (2004).
23. Han-Ting Wang and Yupeng Wang, *J. Phys.: Condens. Matter* **19**, 386227 (2007).
24. T. Giamarchi, C. Rüegg, and O. Tchernyshyov, *Nature Physics* **4**, 198 (2008).
25. G. Misguich and M. Oshikawa, *J. Phys. Soc. Jpn.* **73**, 3429 (2004).
26. A. Oosawa, T. Takamasu, K. Tatani et al., *Phys. Rev. B* **66**, 104405 (2002).
27. E. Ya. Sherman, P. Lemmens, B. Busse et al., *Phys. Rev. Lett.* **91**, 057201 (2003).
28. R. Dell'Amore, A. Schilling and K. Krämer, *Phys. Rev. B* **79**, 014438 (2009).
29. F. Yamada, T. Ono, H. Tanaka et al., *J. Phys. Soc. Jpn.* **77**, 013701 (2008).
30. H. Inoue, S. Tani, S. Hosoya et al., *Phys. Rev. B* **79**, 174418 (2009).
31. O. Nohadani, S. Wessel, and S. Haas, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 227201 (2005).
32. V. N. Glazkov, A. I. Smirnov, H. Tanaka, and A. Oosawa, *Phys. Rev. B* **69**, 184410 (2004).
33. A. K. Kolezhuk, V. N. Glazkov, H. Tanaka, and A. Oosawa, *Phys. Rev. B* **70**, 020403 (2004).
34. K. Goto, T. Osakabe, K. Kakurai et al., *J. Phys. Soc. Jpn.* **76**, 053704 (2007).
35. M. Matsumoto and M. Sigrist, *J. Phys. Soc. Jpn.* **74**, 2310 (2005).
36. F. Yamada, Y. Ishii, T. Suzuki et al., *Phys. Rev. B* **78**, 224405 (2008).
37. В. М. Калита, В. М. Локтев, *ЖЭТФ* **125**, 1149 (2004).