

НЕЛИНЕЙНАЯ НИЗКОТЕМПЕРАТУРНАЯ НАМАГНИЧЕННОСТЬ КВАЗИОДНОМЕРНОГО ПРОВОДНИКА $K_{0.3}MoO_3$ С ВОЛНАМИ ЗАРЯДОВОЙ ПЛОТНОСТИ

Д.В.Еременко, С.В. Зайцев-Зотов⁺¹⁾, А.В.Кузнецов, В.Н.Трофимов*

*Московский инженерно-физический институт
115409 Москва, Россия*

*+ Институт радиотехники и электроники РАН
103907 Москва, Россия*

** Объединенный институт ядерных исследований
141980 Дубна, Московская область, Россия*

Поступила в редакцию 2 июля 1998 г.

Изучены температурные и полевые зависимости анизотропной намагниченности квазиодномерного проводника с волнами зарядовой плотности – голубой бронзы $K_{0.3}MoO_3$. При температурах ниже 100 К обнаружена нелинейность кривых намагничивания. Температурные и полевые зависимости магнитного момента свидетельствуют о коллективной природе эффекта.

PACS: 71.45.Lg, 75.30.-m

В последние годы повышенный интерес вызывают вопросы, связанные с макроскопическими квантовыми явлениями в волнах зарядовой плотности (ВЗП). Хотя возможность наблюдения подобных эффектов обсуждается на протяжении более чем 20 лет [1–5], лишь сравнительно недавно удалось экспериментально показать, что они действительно могут наблюдаться в квазиодномерных проводниках с ВЗП [6, 7]. Так, в работе [7] сообщалось об обнаружении осцилляций нелинейной проводимости в магнитном поле в образцах $NbSe_3$ с колонарными дефектами. Предполагается, что данный эффект является аналогом эффекта Ааронова-Бома для коллективной проводимости, обусловленной движением ВЗП [2–5, 7, 8]. Существование эффекта Ааронова – Бома ставит вопрос о возможности наблюдения незатухающих токов в системах с ВЗП [3, 5]. Целью нашего исследования являлся экспериментальный поиск вклада незатухающих токов в намагниченность квазиодномерного проводника с ВЗП. К сожалению, наиболее прямые методы (изучение намагничивания кольца из квазиодномерного проводника или же образца с колонарными дефектами) труднодоступны из-за отсутствия подходящей технологии создания кольцевых структур, а также из-за необходимости проведения измерений в сильных магнитных полях (> 100 кЭ) при исследовании образцов с колонарными дефектами. Тем не менее, так как ВЗП не является однородной из-за случайности распределения центров пиннинга и может содержать топологические дефекты (дислокации, солитоны), следует ожидать существования вклада незатухающих токов в намагниченность квазиодномерных проводников любых размеров и форм [3, 9]²⁾. В настоящей работе мы

¹⁾ e-mail: serzz@mail.cplire.ru

²⁾ Можно ожидать, что при достаточно низких температурах движение электронов вдоль центров дислокационных петель ВЗП с металлизацией сердцевин [9] приводит к появлению незатухающих токов.

провели прецизионные исследования зависимости намагниченности m монокристаллов $K_{0.3}MoO_3$ от температуры, напряженности магнитного поля, его ориентации по отношению к кристаллической решетке и от размеров образцов.

Выбор $K_{0.3}MoO_3$ в качестве объекта исследования обусловлен тем, что данный квазиодномерный проводник сравнительно хорошо изучен [10] и доступен в виде крупных кристаллов. $K_{0.3}MoO_3$ сильно анизотропен [10, 11], имеет моноклинную элементарную ячейку и состоит из металлических цепочек, ориентированных в направлении моноклинной оси b , являющейся направлением наивысшей проводимости. Цепочки состоят из октаэдров MoO_6 , располагающихся в слоях, параллельных $(\bar{2}01)$ плоскости обратной решетки. При температуре $T_P = 182$ К он переходит в пайерлсовское состояние с образованием несоизмеримой ВЗП с зависящим от температуры периодом, чуть большим $4b$. Исчезновение поверхности Ферми в результате образования ВЗП приводит к уменьшению электронного вклада в магнитную восприимчивость, наблюдаемому в виде ступеньки на зависимости $\chi(T)$ [11].

Намагниченность измерялась с помощью СКВИД-магнитометра [12] в стационарных магнитных полях H амплитудой до 9 кЭ в области температур 4.2 К $\leq T \leq 300$ К. Образцы с типичными размерами $2 \times 2 \times 2$ мм вырезались из сравнительно больших монокристаллов. $K_{0.3}MoO_3$ легко скалывается вдоль MoO_6 слоев, поэтому одна из граней образцов была параллельна плоскости $(\bar{2}01)$. Измерения проводились при ориентациях поля параллельно цепочкам, перпендикулярно плоскостям, а также и параллельно плоскостям, но перпендикулярно цепочкам. Было исследовано несколько монокристаллов, продемонстрировавших качественно одинаковое поведение.

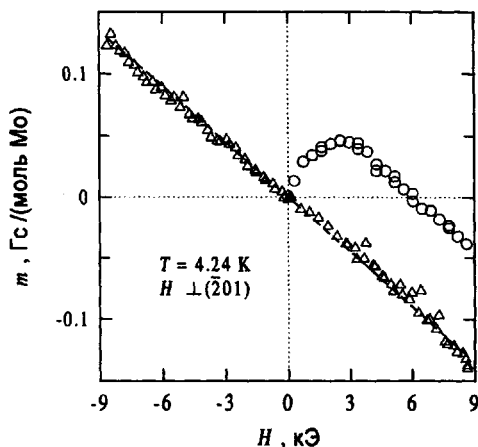


Рис.1. Кривые намагничивания монокристалла $K_{0.3}MoO_3$ в поле, перпендикулярном MoO_6 слоям при отсутствии (Δ) и в присутствии (\circ) нелинейной намагниченности. Наклон штриховой прямой соответствует восприимчивости, измеренной при $T = 4.24$ К (см. рис.3)

В металлическом состоянии при $T > T_P$ полевая зависимость намагниченности линейна. В состоянии ВЗП при $T < 100$ К мы наблюдали как линейную, так и нелинейную $m(H)$. На рис.1 приведены типичные кривые намагничивания в поле, приложенном перпендикулярно плоскостям. Сразу после охлаждения в нулевом поле у образца наблюдалась линейная намагниченность. Сильная нелинейность $m(H)$, как правило, скачком возникавшая спустя некоторое время, являлась впоследствии

воспроизводимой. Подобное поведение наблюдалось для всех ориентаций поля ³⁾, при этом для большинства монокристаллов нелинейная намагниченность наблюдалась чаще, чем линейная. Как видно из рисунка, наклоны кривых практически совпадают при $H > 4$ кЭ. Следовательно, наряду с линейным, в образце возникает дополнительный нелинейный вклад в намагниченность, насыщающийся в больших полях.

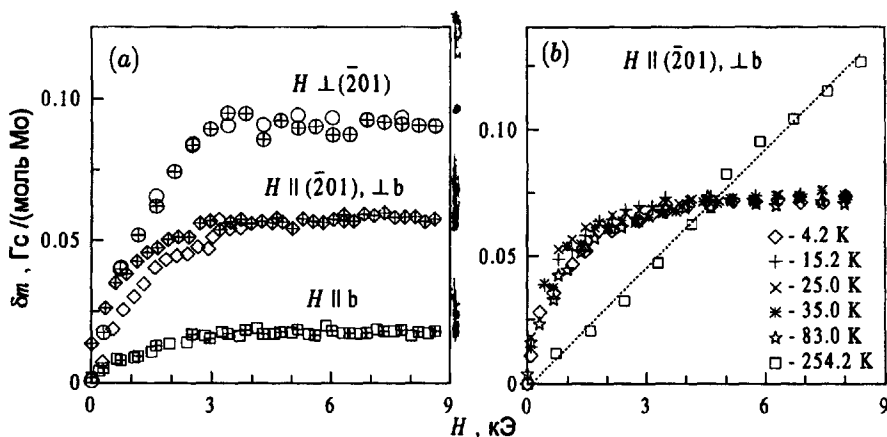


Рис.2. Нелинейный вклад намагниченности монокристалла $K_{0.3}MoO_3$ (а) для различных ориентаций поля при $T = 4.2$ К и (б) в поле, перпендикулярном MoO_6 слоям, при различных температурах. Открытые символы на рис.(а) соответствуют первоначальному вводу, а с крестиками внутри – выводу магнитного поля

На рис.2 приведена форма нелинейного вклада $\delta m(H)$, полученного после вычитания линейной части намагниченности. Сравнение кривых для различных ориентаций поля (рис.2а) показывает, что нелинейный вклад анизотропен. В поле $H \parallel (\bar{2}01), \perp b$, на зависимости $\delta m(H)$ наблюдаются отчетливо выраженный гистерезис и сопутствующая ему ненулевая намагниченность в нулевом поле. Точность нашего эксперимента не позволила однозначно определить наличие или отсутствие гистерезиса для других ориентаций, но остаточная намагниченность очень малой амплитуды регистрировалась и для них. Отметим, что поле, в котором $\delta m(H)$ насыщается, и величина намагниченности в насыщении практически не зависят от температуры (рис.2б).

Нами был изучен температурный ход намагниченности. На рис.3 показаны типичные зависимости $m(T)/H$ в поле 8.5 кЭ. При отсутствии нелинейного вклада кривые соответствуют температурным зависимостям анизотропной магнитной восприимчивости $\chi(T)$, которые согласуются с опубликованными данными [11]. При низких температурах зависимости, содержащие нелинейный вклад, отличаются от соответствующих кривых $\chi(T)$ примерно на постоянную величину, что подтверждает слабую зависимость насыщенной нелинейной намагниченности от температуры (рис.2б), по крайней мере при $T \lesssim 100$ К.

Чтобы выявить влияние поверхности и размеров, мы провели измерения намагниченности порошка, изготовленного из части монокристалла. Оказалось, что при

³⁾ Для ориентации $H \parallel b$ линейная намагниченность парамагнитна, а при $H \parallel (\bar{2}01), \perp b$, восприимчивость близка к нулю (см. ниже рис.3).

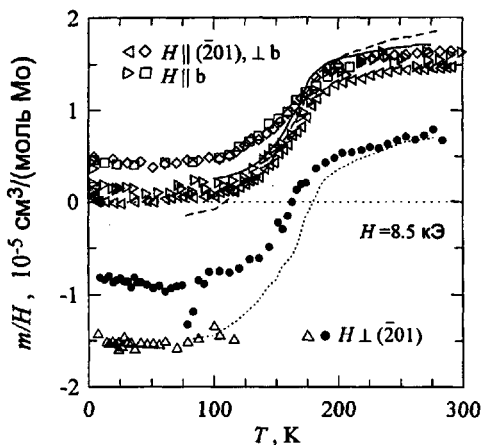


Рис.3. Зависимости $m(T)/H$. Треугольники соответствуют анизотропной восприимчивости монокристалла $K_{0.3}MoO_3$ при отсутствии нелинейной намагниченности, остальные символы отражают температурное поведение намагниченности, содержащей нелинейный вклад. Непрерывные кривые – опубликованные в [11] зависимости $\chi(T)$: сплошная – Johnston, пунктирная – Kwok и др., точечная – Morris и Wold

низких температурах она также состоит из линейного и нелинейного вкладов. При $T > 50$ К величина линейного вклада примерно соответствовала усредненной по ориентациям линейной намагниченности монокристалла. При $T < 20$ К линейный вклад демонстрировал температурное поведение, близкое к закону Кюри. При $T = 4.2$ и 61 К нелинейный вклад насыщался, соответственно, в полях 2 кЭ и 4 кЭ и имел при этом амплитуду 19 ± 2 и 15 ± 1 мГс/(моль Мо).

Изложенные результаты свидетельствуют, что низкотемпературная намагниченность $K_{0.3}MoO_3$ содержит нелинейный по полю вклад, не зависящий от отношения объем/поверхность и потому отражающий объемные свойства образцов. Нелинейность намагниченности ранее отмечалась при исследовании восприимчивости $K_{0.3}MoO_3$ [11] и была отнесена к ферромагнитному загрязнению. Мы наблюдали ферромагнитное загрязнение некоторых образцов, однако их поведение отличается от описанного выше. У загрязненных образцов значительная нелинейная намагниченность присутствует как выше, так и ниже температуры пайерлсовского перехода, а выше перехода величина $m(T)/H$ превышает известные значения восприимчивости.

Проанализируем возможное происхождение δm . Возможность скачкообразного появления нелинейного вклада свидетельствует о связи эффекта с электронной сверхструктурой. В то же время его связь с незатухающими токами представляется маловероятной. Вклад в намагниченность от незатухающих токов ВЗП или нормальных электронов [9] должен иметь осциллирующий характер с периодом $\Delta H = \Phi_0/2S_{\perp}$, где Φ_0 – квант магнитного потока и S_{\perp} – проекция площади замкнутой траектории движения носителей на плоскость, ортогональную направлению магнитного поля. Учитывая разброс форм и ориентаций траекторий, усредненный по траекториям вклад должен иметь максимум при $H \sim \Phi_0(1/S_{\perp})$ и исчезать при $H \gg \Phi_0(1/S_{\perp})$, что не соответствует поведению $\delta m(H)$ (рис.2а).

На каждые десять ионов Мо приходится по три $4d$ -электрона, не связанных кислородными орбиталями, поэтому нелинейная намагниченность может отражать возникновение корреляций электронной структуры с образованием антиферромагнитного упорядочения или волн спиновой плотности [13]. Такому объяснению противоречит малая величина момента, приходящегося на ион Мо, $\mu \sim 2 \cdot 10^{-5} \mu_B$ (μ_B –

магнетон Бора), которая на три порядка меньше величин моментов, характерных для волн спиновой плотности [14] или одноосных антиферромагнетиков [15].

Мы связываем скачкообразное появление нелинейной намагниченности с релаксацией метастабильных состояний ВЗП. Как известно, величина волнового вектора ВЗП в $K_{0.3}MoO_3$ зависит от температуры [16]. Изменение волнового вектора, происходящее за счет проскальзывания фазы ВЗП, сопровождается преодолением энергетических барьеров $\sim 10^3$ К, зависящих от величины отклонения от равновесия и приводящих к появлению долгоживущих метастабильных состояний [17]. Пиннинг ВЗП является дополнительным фактором, способствующим образованию метастабильных состояний. Релаксация метастабильных состояний может возникать под действием вибраций, электромагнитных импульсов и других плохо контролируемых воздействий, что, по-видимому, и происходит при длительном нахождении образцов при низкой температуре. Гистерезис полевой зависимости нелинейной намагниченности означает, что энергии взаимодействия с магнитным полем достаточно для перевода части ВЗП в новое долгоживущее метастабильное состояние.

Сама ВЗП, рассматриваемая как результат синглетного спаривания электрона и дырки, магнитными свойствами не обладает, но осцилляции зарядовой и спиновой плотности, возникающие вокруг центров пиннинга [13], могут приводить к появлению магнитного момента у центров пиннинга. При типичной атомной концентрации примесей $\sim 10^{-3}$ в наших образцах на каждый центр пиннинга приходится момент $\mu \sim 10^{-2} \mu_B$, по порядку величины соответствующий моменту, характерному для периода волны спиновой плотности [13, 14]. Такая величина момента представляется вполне разумной оценкой для спиновой поляризации, возникающей вокруг центра пиннинга.

Полученный вид $\delta m(H)$ свидетельствует о коррелированном состоянии магнитных моментов. Наблюдавшаяся в экспериментах остаточная намагниченность отсутствует в случае независимых моментов вследствие их тепловой разориентации. Кроме того, насыщение в системе независимых моментов наблюдается, когда энергия взаимодействия момента с полем становится порядка тепловой энергии. Для измеренного поля насыщения и оцененного выше μ энергия взаимодействия $\sim 10^{-3} K \ll T$, поэтому насыщение не должно происходить в столь малых полях.

Отметим, что среднее расстояние между центрами пиннинга, а следовательно, и между моментами, порядка десяти периодов кристаллической решетки. При этом длина фазовой корреляции в $K_{0.3}MoO_3$ (не ниже 1000 \AA [16]) значительно превышает расстояние между моментами. Не исключено, что взаимодействие магнитных моментов через когерентную ВЗП и является причиной возникновения корреляции моментов. Выяснение структуры возникающего магнитного порядка и механизма взаимодействия моментов требует проведения дальнейших исследований.

Таким образом, низкотемпературная магнитная восприимчивость $K_{0.3}MoO_3$ является нелинейной функцией магнитного поля и обладает гистерезисом. Полученные результаты свидетельствуют о коллективной природе эффекта.

Авторы выражают благодарность R.E.Thorne за предоставление монокристаллов $K_{0.3}MoO_3$ и К.В.Клементьеву за разработку программы обработки сигналов СКВИД-магнитометра. Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант #98-02-16667) и Международной научно-технической программы "Физика твердотельных наноструктур" (грант #97-1052).

-
1. A.I.Larkin and P.A.Lee, *Phys. Rev.* **B17**, 1596 (1978); K.Maki, *Phys. Rev. Lett.* **30**, 46 (1977); *Phys. Rev.* **B18**, 1641 (1978); J.Bardeen, *Phys. Rev. Lett.* **42**, 1498 (1979); **45**, 1978 (1980).
 2. И.О.Кулик, А.С.Рожавский, Э.Н.Богачек, *Письма в ЖЭТФ* **47**, 251 (1988).
 3. Э.Н.Богачек, И.В.Криве, И.О.Кулик, А.С.Рожавский, *ЖЭТФ* **97**, 603 (1990).
 4. А.С.Рожавский, *Физ. низких темп.* **22**, 462 (1996).
 5. M.F.Visscher, В.Режаеи, and G.E.W.Bauer, *Europhys. Lett.* **36**, 613 (1996).
 6. S.V.Zaitsev-Zotov, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 605 (1993); S.V.Zaitsev-Zotov, G.Remenyi, and P.Monceau, *Phys. Rev.* **B56**, 6388 (1997).
 7. Yu.I.Latyshov, O.Laborde, P.Monceau, and S.Klaumünzer, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 919 (1997).
 8. А.А.Звягин, И.В.Криве, *Физ. низк. темп.* **21**, 697 (1995).
 9. S.N.Artemenko and F.Gleisberg, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 497 (1995).
 10. J.Dumas and C.Schlenker, *Int. J. of Mod. Phys.* **B7**, 4045 (1993).
 11. L.F.Schneemeyer, F.J.DiSalvo, R.M.Fleming, and J.V.Waszczyk, *J. Solid State Chem.* **54**, 358 (1984); D.C.Johnston, *Phys. Rev. Lett.* **52**, 2049 (1984); R.S.Kwok, G.Grüner, and S.E.Brown, *Phys. Rev. Lett.* **65**, 365 (1990); B.L.Morris and A.Wold, *Rev. Sci. Instrum.* **39**, 1937 (1968).
 12. V.N.Trofimov, *Cryogenics* **32**, 513 (1992).
 13. G.Grüner, *Rev. Mod. Phys.* **66**, 1 (1994).
 14. K.Mortensen, Y.Tomkiewicz, and K.Bechgaard, *Phys. Rev.* **B25**, 3319 (1982).
 15. K.Miyagawa, A.Kawamoto, Y.Nakazawa, and K.Kanoda, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 1174 (1995); A.Zheludev, S.Maslov, G.Shirane et al., *Phys. Rev. Lett.* **78**, 4857 (1995).
 16. J.P.Pouget, S.Girault, and A.H.Moudden, *Physica Scripta* **T25**, 58 (1989).
 17. Д.В.Бородин, С.В.Зайцев-Зотов, Ф.Я.Надь, *ЖЭТФ* **93**, 1394 (1987).