

О последовательности квантовых (мета)магнитных переходов в изинговских антиферромагнетиках с одноионной анизотропией

В.М. Калита¹, В.М. Локтев²

¹Институт физики НАН Украины, пр. Науки, 46, г. Киев, 03028, Украина

²Институт теоретической физики им. Н.Н. Боголюбова
ул. Метрологическая, 14-б, г. Киев, 03143, Украина
E-mail: vloktev@bitp.kiev.ua

Статья поступила в редакцию 14 марта 2005 г.

Предложена простая интерпретация наблюдаемой во внешнем продольном поле серии скачков намагниченности в изинговских двухподрешеточных антиферромагнетиках с одноионной анизотропией типа «легкая плоскость».

Запропоновано просту інтерпретацію серії стрибків намагніченості, що спостерігається у зовнішньому повздовжньому магнітному полі, в ізінгівських двохпідграткових антиферромагнетиках з одноіонною анізотропією типу «легка площина».

PACS: 75.10.Hk, 75.10.Pq

В последние годы появилось большое число экспериментальных и теоретических работ, в которых активно обсуждаются низкотемпературные свойства, фазовые диаграммы, теплоемкость и магнитная восприимчивость никелесодержащих антиферромагнитных систем (никелатов) [1–11]. Среди них были исследованы $\text{Ni}(\text{C}_2\text{H}_8\text{N}_2)_2\text{NO}_2(\text{ClO}_4)$ [12], $\text{Ni}(\text{C}_2\text{H}_8\text{N}_2)_2\text{Ni}(\text{CN})_4$ [13], $\text{Ni}(\text{C}_{11}\text{H}_{10}\text{N}_2\text{O})_2\text{Ni}(\text{CN})_4$ [13], $\text{Ni}(\text{C}_{10}\text{H}_8\text{N}_2)_2\text{Ni}(\text{CN})_4\text{H}_2\text{O}$ [14] и другие $1D$ соединения [15]. Их особенностью, наблюдающейся экспериментально (см., например, [9,10]), является скачкообразная зависимость намагниченности от внешнего магнитного поля.

Такое поведение намагниченности связывается с низкой размерностью магнитных свойств этих соединений, проявляющейся в особом характере спектра. Последний, как известно, даже в изотропных (гейзенберговских) цепочках с целочисленным спином S имеет щель (так называемую щель Холстейна [16]), изменяющую низкотемпературное поведение термодинамических характеристик $1D$ магнитных объектов. Их описание из-за развитых флуктуаций требует более точных методов, чем широко распространенные в теории магнетизма феноменологиче-

ский (квазиклассический) подход или чувствительное к размерности приближение хаотических фаз [17]. Поэтому в теоретических публикациях используются такие методы, как метод трансфер-матрицы [8], метод Монте-Карло [18], ренормгрупповые подходы [19], численные методы [20], интегрируемая $SU(3)$ модель (для $S = 1$) [21] и другие.

Наиболее интересной особенностью намагничивания упомянутых выше, строго говоря, квази- $1D$ соединений является, как говорилось, его ступенчатый характер и, соответственно, наличие четко выраженного плато на полевых зависимостях кривых намагниченности, демонстрирующих близкую к нулю величину статической магнитной восприимчивости. Подобное поведение давно известно для ферромагнетиков с большим вкладом спин-орбитального движения, или, что то же самое, сильной, превосходящей обмен, одноионной анизотропией [22] (см. также обзор [23]). Однако в приведенных выше соединениях одноионная анизотропия хотя и велика, но не превосходит константы обменного взаимодействия. И если бы последнее принадлежало к гейзенберговскому типу, то нетрудно было бы убедиться, что поведение этих антиферромагнитных систем во

внешнем магнитном поле было бы традиционным — схлопывание магнитных моментов подрешеток при конечном значении восприимчивости [23,24].

Целью настоящего сообщения является изучение спектральных особенностей простой модели, из которой следует, что наблюдаемое в упомянутых веществах [1–11] полевое поведение намагниченности (и тем самым восприимчивости) не связано с их низкой размерностью, а обусловлено изинговским характером межспинового обменного взаимодействия. В частности, будет показано, что намагничение двухподрешеточного изинговского антиферромагнетика с одноионной анизотропией протекает в виде последовательности квантовых метамагнитных фазовых переходов, в результате которых двухподрешеточная антиферромагнитная система превращается в ферромагнитную. При этом такая задача в приближении самосогласованного поля решается подобно случаю ферросистем [22] тривиально и не требует ограничения величиной $S = 1$ (хотя в никелатах реализуется такая ситуация).

Запишем гамильтониан модельной спиновой антиферромагнитной изинговской системы в виде

$$\hat{H} = \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{n}_\alpha \mathbf{m}_\beta} I_{\mathbf{n}_\alpha \mathbf{m}_\beta} S_{\mathbf{n}_\alpha}^Z S_{\mathbf{m}_\beta}^Z + D \sum_{\mathbf{n}_\alpha} (S_{\mathbf{n}_\alpha}^Z)^2 - h \sum_{\mathbf{n}_\alpha} S_{\mathbf{n}_\alpha}^Z, \quad (1)$$

где $I_{\mathbf{n}_\alpha \mathbf{m}_\beta}$ — константы обменного взаимодействия между ионами, положения которых заданы векторами \mathbf{n}_α и \mathbf{m}_β , а индексы $\alpha, \beta = 1, 2$ нумеруют магнитные подрешетки, $S_{\mathbf{n}_\alpha}^Z$ — операторы проекций спина, D — параметр одноионной анизотропии, $h = \mu_B g H$ — магнитное поле, записанное в энергетических единицах (μ_B — магнетон Бора, g — g -фактор).

В общем случае оператор (1) следовало бы дополнить слагаемыми одноионной анизотропии более высокого порядка, а также «поперечным» обменом типа $I_{\mathbf{n}_\alpha \mathbf{m}_\beta}^\perp (S_{\mathbf{n}_\alpha}^X S_{\mathbf{m}_\beta}^X + S_{\mathbf{n}_\alpha}^Y S_{\mathbf{m}_\beta}^Y)$, которые мы в настоящей работе игнорируем. Учет анизотропных слагаемых в случае изинговского обмена не составляет особого труда. Что касается поперечных проекций спиновых операторов, то по мере роста $I_{\mathbf{n}_\alpha \mathbf{m}_\beta}^\perp$ может измениться основное состояние и исследование задачи становится затруднительным.

Ниже ограничимся в (1) обменными взаимодействиями только ближайших соседей, причем константу межподрешеточного обмена ($\alpha \neq \beta$) обозначим I , а внутримодрешеточного — J ; при этом первый в силу модели должен быть антиферромагнитным, $I > 0$, а константы D и J , в принципе, как положительными, так и отрицательными. При их положительном (другими словами, антиферромагнитном) знаке величина внутримодрешеточного обмена должны быть существенно меньше I , чтобы

основное состояние модели не противоречило ее двухподрешеточной природе. Более того при таком знаке J действие магнитного поля может, как известно [25] (см. также [26]), приводить к дополнительной «генерации» подрешеток, возможностью которой мы ниже будем пренебрегать.

В используемом приближении самосогласованного поля (а также в предположении об однородности магнитного состояния системы) энергия системы (1) в расчете на одну магнитную ячейку (для простоты ограничиваемся случаем $T = 0$)

$$E_j = -IS(S - j) + (D + J)[S^2 + (S - j)^2] - hj, \quad (2)$$

где учтено, что величина направленного вдоль поля спина магнитной подрешетки (для определенности назовем ее первой) равна S . Он не изменяется, оставаясь постоянным, а спин другой подрешетки (будем ее называть второй), исходно направленной против поля, может быть в основном (нижайшем) состоянии равен $-(S - j)$; при этом j , как нетрудно видеть, пробегает значения от 0 (основное состояние при $h = 0$) до $2S$ в больших полях. В (2) предполагается, что параметры I и J включают число ближайших соседей, задавая обменное поле.

По мере роста поля энергия основного состояния первой подрешетки остается неизменной, в то время как уровни второй начинают пересекаться, так что основным поочередно становится состояние с проекцией $-(S - j)$. Используя (2), легко записать разность значений энергий двух состояний со значениями спина второй подрешетки, отличающимися на единицу:

$$E_j - E_{j-1} = 2IS - (D + J)(2S - 2j + 1) - h. \quad (3)$$

Обратим внимание, что при $J < 0$, $D < 0$ вклад второго слагаемого в (3) положительный и уменьшается по мере возрастания j . Это означает, что при таких знаках констант система при введении h испытывает только один переход, когда спин второй подрешетки, равный S и направленный против поля, скачком переходит в состояние, когда его величина имеет это же значение S при направлении вдоль поля. Другими словами, в изинговской системе с легкоосным характером одноионной анизотропии и ферромагнитным знаком J может иметь место лишь один метамагнитный переход. Его особенности проанализированы в работе [27].

При $J > 0$ и $D > 0$ вклад того же второго слагаемого в (3) уже отрицательный и возрастает с ростом j . Следовательно, в такой антиферромагнитной системе возникает последовательная кроссовая смена основного состояния, или последовательность квантовых фазовых переходов, вследствие которых про-

екция спина второй подрешетки испытывает скачки, каждый раз изменяясь на единицу.

В рамках предположений, сделанных при записи гамильтониана (1), найдем критические поля $h_{cr}^{(j)}$ этих скачков намагниченности для случая относительно малой одноионной анизотропии (точнее, при $D < IS / (2S - 1) - J$). Выражения для величин $h_{cr}^{(j)}$ определим из очевидного равенства $E_j = E_{j-1}$, используя которое, находим:

$$h_{cr}^{(j)} = IS - (D + J)(2S - 2j + 1), \quad j \neq 0. \quad (4)$$

Из (4) прямо следует, что для полей $h_{cr}^{(j)} < h < h_{cr}^{(j+1)}$, как и для $h < h_{cr}^{(1)}$, величина намагниченности изинговского антиферромагнетика будет постоянной и для $T = 0$, равной j . Иными словами, для полевых зависимостей намагниченности $m(h)$ имеется плато. Разность между полями двух последовательных метамагнитных фазовых переходов не зависит ни от I , ни от j :

$$\Delta h = h_{cr}^{(j+1)} - h_{cr}^{(j)} = 2(D + J). \quad (5)$$

В то же время, величина $h_{cr}^{(1)}$ зависит от I : $h_{cr}^{(1)} = IS - (D + J)(2S - 1)$. Интересно, что при $J = D = 0$ рассматриваемая модель становится вырожденной, ибо при всех возможных значениях j критические поля сравниваются: $h_{cr}^{(j)} = IS$ и, как видно, не зависят от j .

Подчеркнем, что для описанной выше последовательности квантовых метамагнитных фазовых переходов из исходной (антиферромагнитной) фазы в конечную (ферромагнитную) фазу, ионы до и после перехода находятся в одном и том же одноионном состоянии, которое несмотря на действие кристаллического поля, определяется обменным взаимодействием. Однако в процессе перехода ионы 2-й подрешетки изменяют свое одноионное состояние (проходя через состояние с нулевой проекцией спина на ось квантования), что и является основной причиной возникновения последовательности метамагнитных фазовых переходов, для которой разность (5) не зависит от I .

Для иллюстрации рассмотрим простейший случай двухподрешеточного изинговского антиферромагнетика с одноионной анизотропией. В этом случае $S = 1$, а из (2) легко записать энергии трех возможных состояний:

$$E_0 = -I + 2(D + J); \quad E_1(h) = (D + J) - h; \\ E_2(h) = I + 2(D + J) - 2h. \quad (6)$$

На рис. 1,а приведены графики изменения энергий (6) от величины h при $J = D = 0$. Видно, что $E_1(h)$ и $E_2(h)$ пересекают значение E_0 в одной точке, что отвечает отмеченному выше вырождению модели и,

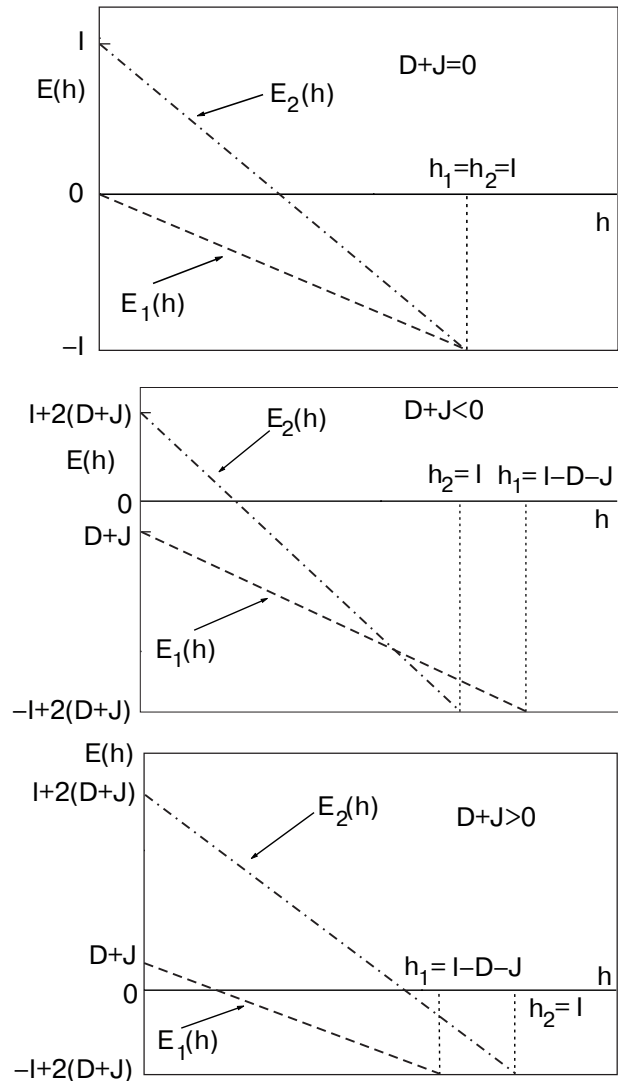


Рис. 1. Полевые зависимости энергий $E_1(h)$ (пунктир) и $E_2(h)$ (штрих-пунктир) согласно выражениям (6) при $D + J = 0$ (а), $D + J < 0$ (б) и $D + J > 0$ (в). Сплошная линия отвечает энергии основного состояния E_0 в отсутствие поля.

соответственно, единственно возможному метамагнитному переходу.

На рис. 1,б приведены те же зависимости $E_1(h)$ и $E_2(h)$ при отрицательных значениях J и D , либо $J + D < 0$. При этом прямая $E_2(h)$ пересекается с энергией E_0 раньше, чем линия $E_1(h)$, т.е. при таких знаках и величинах параметров также возможен лишь один метамагнитный переход, а на зависимости $m(h)$ наблюдаются два плато. Поля, в которых $E_1(h)$ и $E_2(h)$ пересекают E_0 : $h_1 = I - D - J$, $h_2 = I$, причем, естественно, $h_1 > h_2$.

Случай, когда $J > 0$ и $D > 0$, либо $J + D > 0$, показан на рис. 1,в. Теперь энергия $E_1(h)$ первой пересечет прямую E_0 , опережая такое пересечение для зависимости $E_2(h)$. Другими словами, при этих зна-

ках параметров $h_1 < h_2$, и в системе будет происходить два метамагнитных перехода и, соответственно, формироваться три плато на зависимости $m(h)$.

В результате, полученное для $T = 0$ поведение изинговского антиферромагнетика с $S = 1$ полностью соответствует наблюдаемому в низкотемпературных экспериментах [1–11]. При этом использованное приближение показывает, что Δh (см. (5)) не зависит от пространственной размерности системы, полностью определяясь величиной одноионной анизотропии (последнее также видно из эксперимента), где для всех температур в области $T < D (< I)$ с хорошей точностью $\Delta h \approx 2D$. Повышение температуры до значений $T \sim D$, а тем более $T \sim I$, несомненно, приведет к сглаживанию скачков, однако в низкотемпературной области метамагнитный переход в исследуемой модели должен сохранить свой скачкообразный характер. При этом необходимо иметь в виду, что в случае конечных температур самосогласованная задача определения спектра энергий и средней намагниченности будет включать все одноионные уровни, приводя к трансцендентной системе уравнений. Соответствующий случай требует отдельного рассмотрения.

В заключение необходимо заметить, что при больших величинах D ($D > IS/(2S - 1) - J$) полученная выше «эквидистантность» величин критических полей (5) уже не выполняется. В частности, при $D \gg I, J$ изменяется основное состояние магнетика. К примеру, для $S = 1$ основным состоянием ионов становится состояние с проекцией спина, равной нулю. Если так, кристалл является ван-Флекковским парамагнетиком, хотя и с антиферромагнитным обменом между ионами. Действие магнитного поля теперь приводит к индуцированию в таком кристалле магнитоупорядоченного состояния [22,23], которое при $T = 0$ происходит двумя скачками. Это же имеет место и для полупелых спинов и, например, для $S = 3/2$ при большом значении D проекции спинов обеих подрешеток в основном состоянии равны $\pm 1/2$. При включении поля сначала произойдет скачок (на единицу) проекции спина второй подрешетки, а проекция спина первой подрешетки останется неизменной. При этом одноионные спиновые состояния также не изменятся, вследствие чего этот переход следует считать метамагнитным. Затем, по мере возрастания поля, произойдут еще два скачка, при которых последовательно будут увеличиваться проекции спинов обеих подрешеток с их переходом на другое (вышележащее) одноионное состояние. Однако это будут не метамагнитные фазовые переходы, а индуцированное полем намагничивание, происходящее при изменении одноионных состояний. Поэтому следует в зависимости от соот-

ношения констант D и I различать последовательность квантовых метамагнитных переходов от тоже квантовых переходов, также индуцированных магнитным полем и связанных с изменением одноионных состояний.

Мы благодарны С.М. Рябченко, обратившего наше внимание на статью [8], в которой на основании численного расчета обсуждается проблема появления плато на полевой зависимости намагниченности никелатов, а также рецензенту работы за конструктивные замечания.

1. K. Hida, *J. Phys. Soc. Jpn.* **63**, 2359 (1994).
2. M. Oshikawa, M. Yamanaka, and I. Affleck, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 1984 (1997).
3. T. Sakai and M. Takahashi, *Phys. Rev.* **B57**, R3201 (1998).
4. T. Tonegawa, T. Nishida, and M. Kaburagi, *Physica* **B246**, 368 (1998).
5. D.C. Cabra and M.D. Grynberg, *Phys. Rev.* **B59**, 119 (1999).
6. T. Yamamoto, M. Asano, and C. Ishii, *J. Phys. Soc. Jpn.* **69**, 3965 (2000).
7. V.R. Ohanyan and N.S. Ananikian, *Phys. Lett.* **A307**, 76 (2003).
8. E. Aydiner and C. Akyuz, *E-print Archive: Preprint cond-mat/0501111* (2005).
9. W. Shiramura, K. Takatsuka, B. Kurniawan, H. Tanaka, H. Uekusa, Y. Ohashi, K. Takisawa, H. Mitamura, and T. Goto, *J. Phys. Soc. Jpn.* **67**, 1548 (1998).
10. Y. Narumi, M. Hagiwara, R. Sato, K. Kindo, H. Nakano, and M. Takahashi, *Physica* **B246**, 509 (1998).
11. T. Goto, M.I. Bartashevich, Y. Hosokoshi, K. Kato, and K. Inoue, *Physica* **B294**, 43 (2001).
12. J.P. Renard, M. Verdagner, L.P. Regnault, W.A.C. Erkelenes, J.R. Mignod, and W.G. Stirling, *Europhys. Lett.* **3**, 945 (1987).
13. M. Orendáč, A. Orendáčová, J. Černák, A. Feher, P.J.C. Signore, M.W. Meisel, S. Merah, and M. Verdagner, *Phys. Rev.* **B52**, 3435 (1995).
14. A. Feher, M. Orendáč, A. Orendáčová, and E. Gizmar, *Low Temp. Phys.* **28**, 551 (2002).
15. M. Orendáč, E. Gizmar, A. Orendáčová, J. Černák, A. Feher, M.W. Meisel, K.A. Abboud, S. Zvyagin, M. Sieling, T. Reith, and B. Luthi, *Phys. Rev.* **B61**, 3223 (2000).
16. F.D.M. Haldane, *Phys. Rev. Lett.* **50**, 1153 (1983).
17. Ю.А. Изюмов, Ю.М. Скрябин. *Статистическая механика магнитоупорядоченных систем*, Наука, Москва (1987).
18. S. Yamamoto and S. Miyashita, *Phys. Rev.* **B48**, 9528 (1993).
19. S.R. White and D. A. Huse, *Phys. Rev.* **B48**, 3844 (1993).
20. L.S. Campana, A. Caramico D'Auria, F. Esposito, U. Esposito, and G. Kamieniarz, *Phys. Rev.* **B45**, 5035 (1992).

21. M.T. Batchelor, X.W. Guan, and N. Oelkers, *Phys. Rev.* **B70**, 184408 (1993).
22. Е.В. Розенфельд, *Письма в ЖЭТФ* **24**, 60 (1976).
23. В.М. Локтев, В.С. Островский, *ФНТ* **20**, 983 (1994).
24. В.М. Калита, В.М. Локтев, *ЖЭТФ* **125**, 1149 (2004).
25. А.И. Бугрий, В.М. Локтев, *ФНТ* **13**, 407 (1987).
26. В.В. Еременко, В.А. Сиренко, *Магнитные и магнитоупругие свойства антиферромагнетиков и сверхпроводников*, Наукова думка, Киев (2004).
27. В.Г. Барьяхтар, И.М. Витебский, Д.А. Яблонский, *ФТТ* **19**, 2135 (1977).

On the sequence of quantum (meta)magnetic transitions in Ising antiferromagnets with single-ion anisotropy

V.M. Kalita and V.M. Loktev

A simple interpretation of the jumps of magnetization observed in external longitudinal magnetic field in two-sublattice Ising antiferromagnets with an easy-plane single-ion anisotropy is proposed.