

Магнитострикция спин-пайерлсовского магнетика CuGeO_3

© Г.А. Петраковский, А.М. Воротинов, Г. Шимчак*, Л. Гладчук*

Институт физики им. Л.В. Киренского Сибирского отделения Российской академии наук,
660036 Красноярск, Россия

* Институт физики Польской академии наук,
02-668 Варшава, Польша

(Поступила в Редакцию 17 февраля 1998 г.)

Измерены температурные зависимости продольной магнитострикции монокристалла CuGeO_3 в области температур 4.2–20 К в магнитном поле 10 Т. При повышении температуры от 4.2 К магнитострикция сначала увеличивается от исчезающе малых значений, достигает максимума при температуре около 12 К и затем резко уменьшается при подходе к температуре спин-пайерлсовского перехода. Дана интерпретация результатов на основе простой модели, использующей реальную картину магнитных возбуждений в спиновой системе.

В настоящее время достоверно установлено, что низкотемпературный спад магнитной восприимчивости орторомбического кристалла CuGeO_3 по крайней мере в значительной степени обусловлен спин-пайерлсовским фазовым переходом (SP) этого магнетика в синглетное димеризованное состояние. Суть этого явления состоит в том, что благодаря спин-фононному взаимодействию антиферромагнитная цепочка спинов $S = 1/2$, помещенная в трехмерную решетку, может перейти в димеризованное состояние при температурах, ниже некоторой критической. Переход сопровождается удвоением периода решетки вдоль оси цепочки и в магнитном отношении характеризуется синглетным основным состоянием. Спектр магнитных синглет-триплетных возбуждений имеет характерную энергетическую щель, которая определяет такие особенности магнитных свойств спин-пайерлсовского магнетика, как низкотемпературный экспоненциальный спад магнитной восприимчивости и интенсивности магнитного резонанса и скачок намагниченности при некотором критическом значении магнитного поля.

Сказанное делает вполне очевидным важность изучения спин-фононных взаимодействий в спин-пайерлсовских системах [1–4]. Изучение магнитострикции монокристаллов CuGeO_3 при разных температурах показало, что ее температурная зависимость немонотонна и при температуре около 10 К имеет место максимум магнитострикции. Нами была предложена простая модель такого поведения магнитострикции спин-пайерлсовского магнетика [4]. В настоящей работе проведено более детальное измерение зависимости магнитострикции монокристалла CuGeO_3 от температуры и представлен более корректный анализ модели для объяснения полученных результатов.

1. Экспериментальные результаты

Для измерений использовались монокристаллы CuGeO_3 , выращенные по технологии, описанной в [5]. Образцы были изготовлены из монокристаллов голубого цвета. Измерения магнитной восприимчивости кристал-

лов показали, что температура спин-пайерлсовского перехода T_{SP} равна 14.2 К и что низкотемпературного подъема восприимчивости не наблюдается. Последнее свидетельствует о хорошем качестве кристаллов [6].

Магнитострикция измерялась тензометрическим методом с использованием тензодатчиков с малым гальваномагнитным эффектом в области температур 4.2–25 К. Полученные результаты показаны на рис. 1 и 2. Кривые 1 получены при охлаждении и последующем нагреве образца в отсутствие внешнего магнитного поля, кривые 2 — при охлаждении и нагреве образца во внешнем магнитном поле $H = 10$ Т. Из приведенных данных следует, что при наложении магнитного поля размеры образца увеличиваются, что соответствует положительному значению продольной магнитострикции вдоль осей c и b кристалла.

Кривые 3 температурных зависимостей магнитострикции получены вычитанием кривых 2 и 1. Видно, что магнитострикция мала при температурах меньше 5 К, возрастает при повышении температуры, достигает максимального значения при $T = 12 - 13$ К и затем снижается до исчезающе малых величин при температуре спин-пайерлсовского перехода. Заметим, что качественно подобное поведение температурной зависимости магнитострикции CuGeO_3 наблюдали также авторы работы [3].

2. Обсуждение результатов

В работе [4] нами предложена простая модель, позволяющая объяснить необычное для традиционных магнитных веществ поведение магнитострикции спин-пайерлсовского магнетика в зависимости от температуры. Эта модель основана на простейшем представлении SP-состояния двухуровневой синглет-триплетной системой. При $T = 0$ К такая система немагнитна, и спиновая подсистема кристалла не влияет на решетку. При повышении температуры заселяются триплетные состояния, и магнитная подсистема через магнитоупругую связь влияет на равновесные деформации решетки. Очевидно, что температурная зависимость этого влияния связана с изменением населенности триплетных

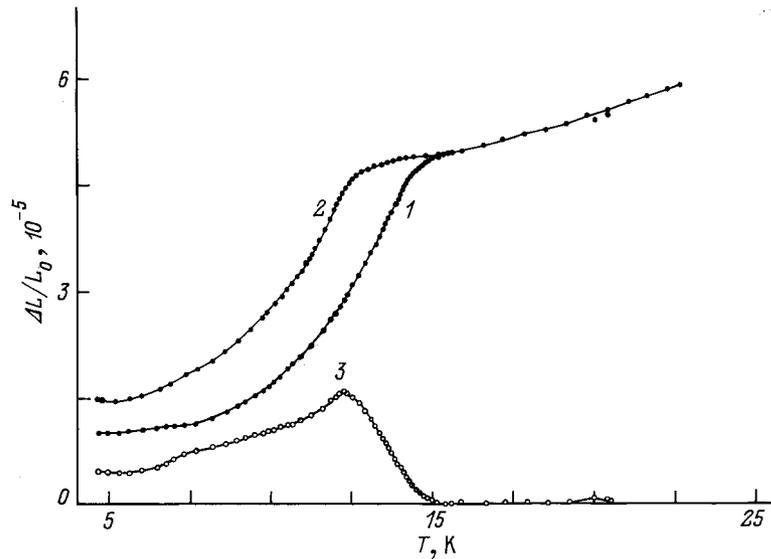


Рис. 1. Температурные зависимости деформации решетки кристалла CuGeO_3 вдоль оси b . 1 — магнитное поле $H = 0$, 2 — магнитное поле $H = 10$ Т приложено вдоль оси b , 3 — магнитострикция (получена вычитанием кривых 2 и 1).

состояний системы. При наложении магнитного поля изменяется энергетический синглет-триплетный зазор, что приводит к изменению населенности триплетных состояний и, следовательно, к изменению "магнитного" вклада в деформацию кристаллической решетки. При высокой температуре, когда населенности триплетного и синглетного состояний выравниваются, влияние магнитного поля на равновесные деформации решетки через уменьшение энергетической щели системы исчезает.

Нейтроннографические исследования [7] показали, что магнитные возбуждения SP -системы образуют триплетную полосу с максимальной дисперсией вдоль c -оси кристалла. Поэтому при более корректном рассмотрении SP -системы следует рассматривать не триплетный возбужденный уровень, а полосу магнитных синглет-триплетных возбуждений. Поскольку обменное взаимодействие внутри цепочки спинов ионов Cu^{2+} кристалла CuGeO_3 на порядок больше межцепочечных обменных взаимодействий, можно рассматривать только спиновые возбуждения вдоль оси c . Дисперсионное уравнение для таких возбуждений можно записать в виде [8]

$$w(k)^2 = [\Delta^2 + (w_M^2 - \Delta^2) \sin^2(k)], \quad (1)$$

где Δ — энергетическая щель в спектре синглет-триплетных возбуждений, w_M — максимальное значение энергии $w(k)$. В экспериментах по неупругому рассеянию нейтронов на кристалле CuGeO_3 измерены следующие значения параметров спектра при низких температурах (1.8 К): $\Delta = 23$ К, $w_M = 180.5$ К [8]. Измерения в сильных магнитных полях показали, что энергетическая щель Δ и температура перехода системы в SP -состояние T_{SP} зависят от магнитного поля [9,10]. Величина Δ линейно снижается при увеличении магнитного поля $\Delta = 23[1 - 0.077H]$ (здесь Δ в градусах К, магнитное

поле H в теслах). Температура T_{SP} также уменьшается с ростом поля и равна 12.5 К в поле 10 Т. Важно также иметь в виду сильную зависимость величины Δ от температуры и давления [8,10].

Анализ температурной зависимости магнитострикции SP -магнетика проведем на основе рассмотрения зависящей от деформации внутренней энергии

$$U = U_{el} + U_{mag} = \frac{1}{2} E u^2 + \frac{2v_0^{-1}}{(2\pi)^3} \int_0^{\pi/2} \frac{w(k) d^3k}{e^{w(k)/T} - 1}, \quad (2)$$

где E — модуль Юнга, u — деформации кристалла, $v_0 = abc$. Минимизация энергии (2) по деформации u дает ее равновесное значение для фиксированной величины энергетической щели Δ . Разность равновесных деформаций для разных величин Δ при отсутствии и наличии

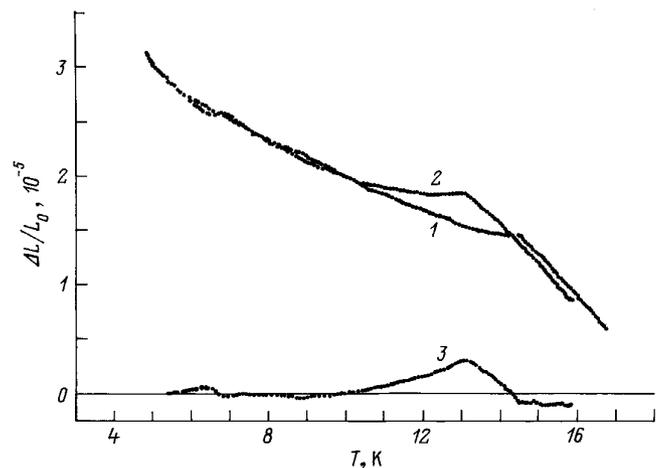


Рис. 2. То же, что на рис. 1, для деформации и магнитного поля вдоль оси c .

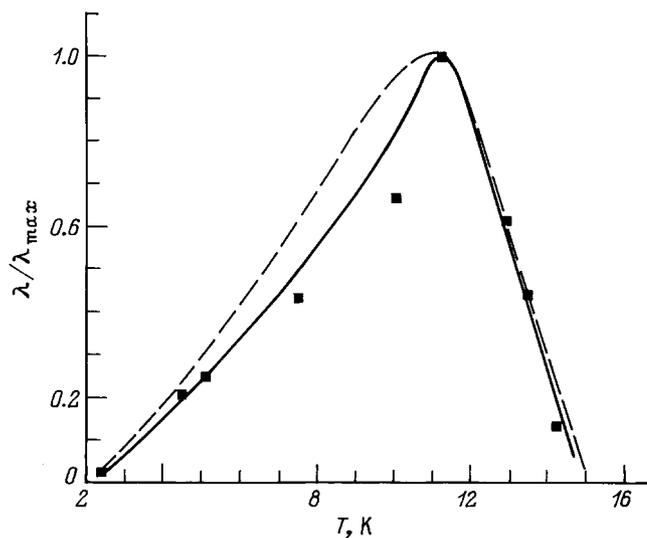


Рис. 3. Расчетная и экспериментальная зависимости приведенных температурных зависимостей продольной магнитострикции. Штриховая линия — расчетная зависимость, точки — эксперимент для магнитного поля вдоль оси b . Кривые нормированы на максимальные значения магнитострикции.

внешнего магнитного поля H определяет зависящую от температуры и магнитного поля магнитострикцию. Принимая во внимание экспериментально измеренные зависимости Δ от температуры и магнитного поля, мы получили численным методом температурную зависимость магнитострикции, показанную на рис. 3 штриховой линией. На этом же рисунке приведена экспериментально измеренная зависимость магнитострикции для случая ориентации магнитного поля вдоль b -оси. Все результаты даны в нормированных на максимальное значение магнитострикции величинах. При расчете принималось, что определяющим механизмом магнитострикции является деформационная зависимость Δ . Зависимость w_M от температуры не учитывалась. Наблюдается удовлетворительное согласие расчета и эксперимента. Для поля, ориентированного вдоль c -оси кристалла, качественное согласие сохраняется, однако для температур ниже температуры максимума экспериментальная зависимость магнитострикции от температуры существенно более резкая.

Качественное согласие температурных зависимостей магнитострикции, рассчитанных на основе предложенной модели и определенных экспериментально, свидетельствует о том, что в области спин-пайерлсовского магнитного состояния магнетика CuGeO_3 предложенный механизм магнитострикции, основанный на существенной зависимости энергетической щели Δ от деформаций решетки и от магнитного поля с одной стороны и на зависимости населенности полосы триплетных состояний от величины Δ с другой стороны, является основным. Исходной причиной магнитострикции является деформационная зависимость обменных взаимодействий. Анизотропия магнитострикции вызывается как упругой анизотропией кристалла, так и сложностью влияния различных деформаций на обменные взаимодействия. Одной из возможных причин неполного соответствия расчетных и экспериментально измеренных температурных зависимостей магнитострикции является игнорирование температурной зависимости ширины полосы спектра магнитных синглет-триплетных возбуждений.

Механизм формирования антиферромагнитного обменного взаимодействия в цепочках спинов Cu^{2+} кристалла CuGeO_3 в настоящее время не вполне ясен. Так, в работе [11] предложено объяснение причины нарушения правил Гуденафа–Канамори за счет влияния на 90° обмен $\text{Cu}^{2+}-\text{O}^{2-}-\text{Cu}^{2+}$ боковых групп $\text{Ge}^{4+}-\text{O}^{2-}$. С другой стороны, в работе [12] показано, что сильное искажение кислородных октаэдров CuO_6 при определенных условиях может привести к возникновению орбитальной сверхрешетки и в соответствии с правилами Гуденафа–Канамори сформировать антиферромагнитное обменное взаимодействие в цепочках ионов меди. Необходимы более точные расчеты из первых принципов обменных взаимодействий для количественного объяснения результатов измерений обменных и магнитоупругих взаимодействий в CuGeO_3 .

Работа выполнена при поддержке Красноярского краевого фонда науки (грант № 6F0004).

Работа выполнена при поддержке Красноярского краевого фонда науки (грант № 6F0004).

Список литературы

- [1] K. Takehana, M. Oshikiri, G. Kido, M. Hase, K. Uchinokura. *J. Phys. Soc. Jap.* **65**, 9, 2783 (1996).
- [2] L. Gladczuk, I. Krynetskii, G. Petrakovskii, K. Sablina, H. Szymczak, A. Vorotinov. *J. Magn. Magn. Mater* **168**, 316 (1997).
- [3] U. Ammerahl, T. Lorenz, B. Buchner, A. Revcolevschi, G. Dhalenne. *Z. Phys.* **B102**, 1, 71 (1997).
- [4] G. Petrakovskii, K. Sablina, A. Vorotinov, I. Krynetskii, A. Bogdanov, H. Szymczak, L. Gladczuk. *Solid State Commun.* **101**, 7, 545 (1997).
- [5] Г.А. Петраковский, К.А. Саблина, А.М. Воротынов, А.И. Круглик, А.Г. Клименко, А.Д. Балаев, С.С. Аплеснин. *ЖЭТФ* **98**, 4, 1382 (1990).
- [6] Г.А. Петраковский, А.И. Панкрац, К.А. Саблина, А.М. Воротынов, Д.А. Великанов, А.Д. Васильев, Г. Шимчак, С. Колесник. *ФТТ* **38**, 6, 1857 (1996).
- [7] M. Nishi, O. Fujita, J. Akimitsu. *Phys. Rev.* **B50**, 6508 (1994).
- [8] L.P. Regnault, M. Ain, B. Hennion, G. Dhalenne, A. Revcolevschi. *Phys. Rev.* **B53**, 9, 5579 (1996).
- [9] M. Hase, I. Terasaki, K. Ushinokura. *Phys. Rev.* **B48**, 9616 (1993).
- [10] M. Nishi, O. Fujita, J. Akimitsu, K. Karurai, Y. Fujii. *Phys. Ref.* **B52**, 6959 (1995).
- [11] W. Geertsma, D. Khomskii. *Phys. Rev.* **B54**, 3011 (1996).
- [12] О.А. Баюков, Г.А. Петраковский, А.Ф. Савитский. *ФТТ* **41**, 9, 1686 (1998).