

О ПЕРЕХОДЕ МЕТАЛЛ–ИЗОЛЯТОР В МАГНИТНОМ ПОЛЕ

© Ю.Б.Кудасов

Всероссийский научно-исследовательский институт экспериментальной физики, 607200 Арзамас, Россия
(Поступила в Редакцию 24 февраля 1995 г.
В окончательной редакции 27 сентября 1995 г.)

Теоретически исследована локализация электронов сильно коррелированно-го электронного газа в магнитном поле при ненулевых температурах. Определены линии фазовых переходов первого и второго рода. Обсуждается магнитная фазовая диаграмма соединений $(V_{1-x}M_x)_2O_3$ ($M = Cr, Ti$)

1. Одной из моделей, описывающих переходы металл–изолятор в соединениях переходных металлов, является модель сильно коррелированного электронного газа Бринкмана–Райса [1], которую также часто называют моделью почти локализованной ферми-жидкости (ПлФЖ) [2,3]. В основе этого подхода лежит приближенное решение гамильтониана Хаббарда, предложенное Гутпвиллером [4]. В [5] исследовалась локализация ПлФЖ в произвольном магнитном поле при ненулевых температурах. В частности, было показано, что в сильно коррелированном металле V_2O_3 переход металл–изолятор может произойти в поле ~ 50 Т, которое в настоящее время доступно для эксперимента. Однако термодинамический подход, использованный в [5], не позволяет точно вычислить энтропию коррелированных электронов. Для корректного вычисления свободной энергии ПлФЖ в данной работе использован энергетический спектр ПлФЖ, вычисленный в [6].

Одной из хорошо изученных особенностей V_2O_3 является возможность плавного изменения степени коррелированности электронов введением примесей (например, Cr или Ti) или воздействием давления [1]. Это позволяет исследовать различные режимы перехода металл–изолятор.

2. Энергетический одноэлектронный спектр ПлФЖ может быть представлен в виде [6]

$$E_{k\sigma} = q_{\sigma} \epsilon_{k\sigma}, \quad (1)$$

где $\epsilon_{k\sigma}$ — энергетический спектр некоррелированного электронного газа, k — волновой вектор. В магнитном поле H спектр смещается на величину $\pm \mu_B H$ в зависимости от спина σ , где μ_B — магнетон Бора.

В пределе большого числа узлов решетки ($L \rightarrow \infty$) для случая, когда на узел решетки приходится один электрон, функция q_σ имеет вид [5]

$$q = q_\sigma = q_{-\sigma} = \frac{4\eta}{1 - m^2} \left[1 - 2\eta + \sqrt{(1 - 2\eta)^2 - m^2} \right], \quad (2)$$

где η — доля двукратно занятых узлов решетки, $m = (N_\sigma - N_{-\sigma})/L$ — магнитный момент, приходящийся на один узел решетки, N_σ — полное число электронов со спином σ .

Спектр (1) позволяет точно вычислить свободную энергию газа ПЛФЖ в произвольном магнитном поле. Для этого перейдем к безразмерным переменным [5]

$$\xi = \frac{2\varepsilon}{\Delta}, \quad t = \frac{2k_B T}{\Delta}, \quad h = \frac{2\mu_0 H}{\Delta}, \quad f = \frac{2F}{\Delta}, \quad \nu = \frac{2\mu}{\Delta}, \quad u = \frac{2U}{\Delta}, \quad (3)$$

где Δ — ширина исходной электронной зоны, k_B — постоянная Больцмана, T — температура, H — магнитное поле, $\mu_\sigma = -\mu_{-\sigma}$ — химический потенциал некоррелированных электронов, F — свободная энергия газа ПЛФЖ, нормированная на один узел решетки. Используя спектр (1), можно представить свободную энергию ПЛФЖ в виде [2]

$$f_c = q f_0(t/q, \nu) + u\eta, \quad (4)$$

где

$$f_0\left(\frac{t}{q}, \nu\right) = \sum_{\sigma} \int_{-\Delta/2}^{\Delta/2} \rho(\xi) \left(n_\sigma \xi + \frac{t}{q} \left\{ n_\sigma \ln n_\sigma + [1 - n_\sigma] \ln [1 - n_\sigma] \right\} \right) d\xi \quad (5)$$

— свободная энергия некоррелированного электронного газа как функция эффективной температуры t/q , $n_\sigma = \left(1 + \exp \frac{q(\xi - \nu_\sigma)}{t} \right)^{-1}$, $\rho(\xi)$ — плотность состояний на спин, нормированная на один узел решетки. В качестве модельной зоны будем использовать хаббардовскую эллиптическую зону с плотностью состояний [5]

$$\rho(\xi) = \begin{cases} 2\pi^{-1}(1 - \xi^2)^{1/2}, & |\xi| \leq 1, \\ 0, & |\xi| > 1. \end{cases} \quad (6)$$

В случае низких температур $t \ll q$, раскладывая (5) по степеням t/q и оставляя только члены, квадратичные по t/q , получаем

$$f_c = -q \left\{ \frac{4(1 - \nu^2)^{3/2}}{3\pi} + \frac{2}{3}\pi \left(\frac{t}{q} \right)^2 (1 - \nu^2)^{-1/2} \right\} + \eta u. \quad (7)$$

Выражение (7) справедливо в области не очень больших моментов $1 - m > t/q$, потому что производная $\frac{df_c}{d\xi}$ расходится вблизи точек $\xi = \pm 1$, и низкотемпературное разложение интеграла (5) становится

некорректным. Чтобы найти равновесные состояния ПЛФЖ, необходимо минимизировать свободную энергию ПЛФЖ по параметру η [4]. Это приводит к уравнению

$$\frac{\partial q}{\partial \eta} = -\frac{u}{f_0(t/q, \nu)}. \quad (8)$$

Для решения уравнения (8) в работе [2] функции q и η раскладывались в ряд по степеням t/q . Этот удобный прием, однако, сужает область решений, потому что для такого разложения необходимо существование решений при $t = 0$. Например, когда u больше критического значения $8f_0(0, 0)$, решений при $t = 0$ не существует, однако возможны решения для $t \neq 0$. Поэтому далее мы будем искать численное решение уравнения (8), не прибегая к разложению q и η .

3. Когда магнитное поле отсутствует, полагаем в (8) $\nu = 0$. Для нахождения линии фазового перехода первого рода коррелированный металл-парамагнитный изолятор в $(V_{1-x}M_x)_2O_3$ в работе [3] использовалось равенство

$$f_c = f_p, \quad (9)$$

где $f_p = -t \ln 2$ — свободная энергия парамагнитного изолятора. Однако полученные в [3] значения q оказываются сильно заниженными. Так, например, для V_2O_3 оно составило всего порядка двух. Это противоречит известным представлениям, подтверждаемым экспериментальными данными, что V_2O_3 является сильно коррелированным металлом [1]. Это расхождение связано с тем, что при переходе первого рода металл-парамагнитный изолятор в $(V_{1-x}M_x)_2O_3$ сильно изменяется отношение размеров элементарной ячейки кристалла c/a (при сохранении типа симметрии решетки) [7], т.е. происходит изменение части свободной энергии, связанной с решеткой. Это изменение не учитывается в уравнении (9). Заметим, что вне точки перехода отношение c/a практически не изменяется при введении примесей [7]. Это отношение также слабо зависит от температуры [7]. Поэтому, чтобы учесть свободную энергию решетки, прибавим к правой части (9) постоянную величину \tilde{f} , которая представляет собой разность решеточных частей свободной энергии парамагнитного изолятора и металла. Ее мы будем определять из экспериментальных данных.

Графики свободной энергии парамагнитного изолятора и ПЛФЖ схематично показаны на рис. 1, а. Видно, что при малых значениях u фаза ПЛФЖ стабильна при любых температурах. При больших u имеется область, где свободная энергия парамагнитного изолятора ниже, чем ПЛФЖ. Критическая точка отмечена темным кружком.

В недавней работе [8] из оптических измерений была определена ширина зоны в V_2O_3 . Она составила 0.31 eV в фазе антиферромагнитного (АФМ) изолятора. В [8] были представлены убедительные аргументы в пользу того, что в АФМ-состоянии зона перенормируется незначительно, поэтому для V_2O_3 принимаем $\Delta = 0.5 \text{ eV}$. Из экспериментального значения магнитной восприимчивости вблизи перехода в АФМ-состоянии $\chi_c(T = 170 \text{ K})$ [1] можно определить коэффициент усиления магнитной восприимчивости $K_\chi = \frac{\chi_c}{\chi_0}$, где

$\chi_0 = \frac{8\mu_B^2}{\pi\Delta} \left[1 - \frac{\pi^2}{6} \left(\frac{t}{q} \right)^2 \right]$ — магнитная восприимчивость некоррелированных электронов для модельной зоны (6) на один узел решетки [2]. Можно показать, что при ненулевой температуре коэффициент усиления имеет вид [9]

$$K\chi(t/q) = S(t/q)q(t/q), \quad (10)$$

где $S(t/q) = 1 - \frac{u}{\pi} \frac{1+I/2}{\pi(1+I)^2}$ — фактор Стонера, $q(t/q) = 1 - I^2$, $I = \frac{u}{8f_0(t/q)}$, которые вычисляются из уравнения (8). Отсюда находим $u = 3.7$ или $U = 0.93$ eV (при $T = 170$ К), что согласуется с экспериментальными результатами измерения U . Следуя работам [1,3], предположим, что при введении примесей Cr и Ti ширина зоны меняется непрерывно и линейно по процентному содержанию примеси, а значение U при этом остается постоянным. Для вещества состава $(V_{0.955}Ti_{0.045})_2O_3$, в котором металлическая фаза стабильна до 0 К, из величины магнитной восприимчивости [1] и u можно определить ширину зоны. Она оказывается равной 0.62 eV. Таким образом, нами найдена зависимость ширины исходной зоны от процентного содержания примеси (рис. 1, б). Зафиксируем величину \tilde{f} так, чтобы критическая точка соответствовала составу $(V_{0.995}Cr_{0.005})_2O_3$: $\tilde{f} = 6.42 \cdot 10^{-2}$. Полученная линия перехода металл-изолятор показана на рис. 1, б.

Следует заметить, что в отличие от результатов работы [3] линия перехода смещена в область более высоких u , причем вещества с составом $(V_{1-x}Cr_x)_2O_3$ и чистый V_2O_3 попадают в область $u > 8f_0(0,0) \approx 3.4$, где при $t = 0$ не существует решений ПЛФЖ. Физический смысл этой особенности состоит в том, что при $t = 0$ эти вещества являются изоляторами Мотта [1,3], и, следовательно, их основное парамагнитное состояние является диэлектрическим. С другой стороны, при $u < 3.4$ соединения $(V_{1-x}Ti_x)_2O_3$ при $t = 0$ — это либо слэтеровский изолятор,

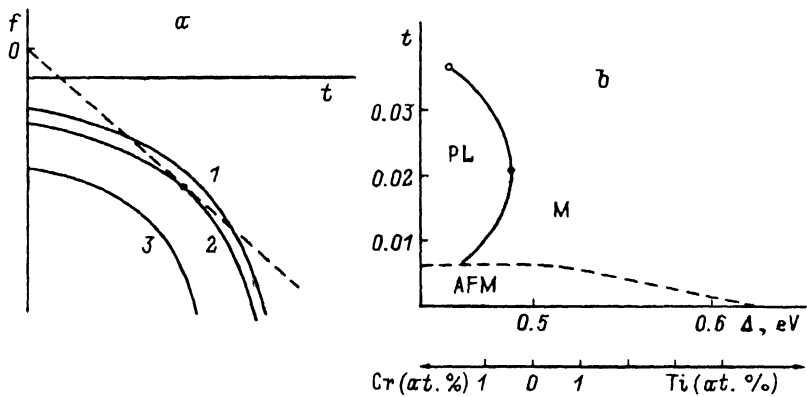


Рис. 1. а) Зависимость свободной энергии парамагнитного изолятора от t (штриховая линия) и свободная энергия ПЛФЖ при различных u (сплошные кривые): увеличение номера кривой соответствует уменьшению u ; критическая точка показана темным кружком. б) Фазовая диаграмма соединений $(V_{1-x}M_x)_2O_3$ ($M = Cr, Ti$): PL — парамагнитный изолятор, M — коррелированный металл, AFM — АФМ-изолятор, темный кружок — критическая точка, светлый кружок — высокотемпературная критическая точка [1,3] (в данной работе не обсуждается).

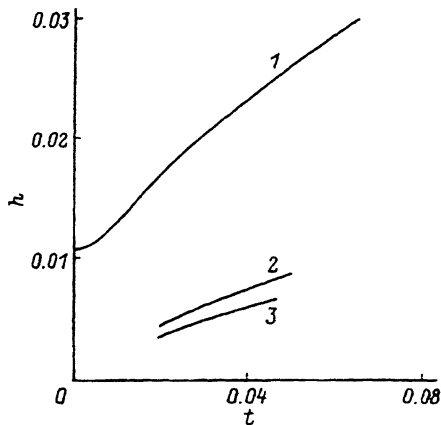
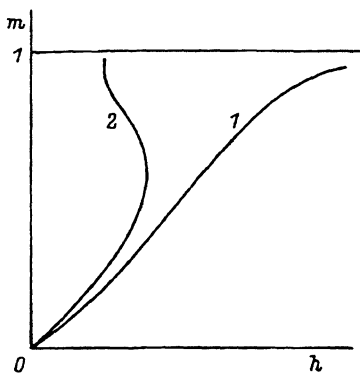


Рис. 2. Схематичный вид зависимостей $m(h)$ для различных u и t . 1 — при малых u , 2 — при больших u и малых t .

Рис. 3. Линия перехода из условия (6) 1 — $(V_{0.955}Ti_{0.045})_2O_3$ ($u = 3.03$), 2 — чистый V_2O_3 ($u = 3.7$), 3 — $(V_{0.995}Cr_{0.005})_2O_3$ ($u = 3.82$).

либо металл, т.е. основное парамагнитное состояние этих веществ является металлическим.

4. Из спектра (1) вычислим магнитный момент ПЛФЖ

$$m(t/q, \nu) = \int_{-\Delta/2}^{\Delta/2} \rho(\xi) [n_{\sigma} - n_{-\sigma}] d\xi = m(0, \nu) - \frac{2}{3} \pi \left(\frac{t}{q} \right)^2 \frac{\nu}{(1 - \nu^2)^{1/2}}, \quad (11)$$

где $m(0, \nu) = \frac{2}{\pi} [\nu(1 - \nu^2)^{1/2} + \arcsin \nu]$. При помощи (11) можно выразить свободную энергию ПЛФЖ из (7) через m . Для описания состояния ПЛФЖ в магнитном поле необходимо дополнить уравнение (8) следующим выражением:

$$h = \frac{\partial f_c}{\partial m}. \quad (12)$$

Общий вид зависимостей $m(h)$ при различных t и u показан на рис. 2. При больших значениях u и низких температурах функция $m(h)$ может оказаться двузначной (кривая 2). Тогда область устойчивости металлического состояния в магнитном поле ограничивается известным термодинамическим неравенством [10], и линия перехода второго рода определяется условием

$$\frac{\partial^2 f}{\partial m^2} = 0. \quad (13)$$

В работе [11] из аналогичного условия для полной энергии определялся переход ПЛФЖ-парамагнитный изолятор при $t = 0$. На рис. 3 показаны решения системы уравнений (8), (12) и (13) для различных значений u . Для чистого V_2O_3 и $(V_{1-x}Cr_x)_2O_3$ (кривые 2 и 3) линии перехода лежат в области температур $t < 0.06$, где в нулевом магнитном поле эти вещества являются АФМ-изоляторами. Магнитное поле перехода при $t = 0$ (для кривой 1) совпадает с результатами работы [11].

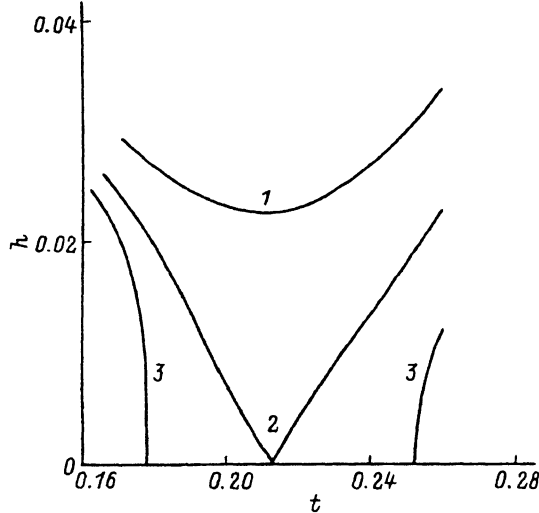


Рис. 4. Линия перехода первого рода.
 1 — чистый V_2O_3 ($u = 3.7$), 2 — $(V_{0.995}Cr_{0.005})_2O_3$
 ($u = 3.82$), 3 — $(V_{0.992}Cr_{0.008})_2O_3$ ($u = 3.9$)

парамагнетика в магнитном поле [3]. Вблизи критической точки имеем $f_c - f_p - \tilde{f} \propto t^2$. С другой стороны, смещение свободной энергии парамагнетика в магнитном поле $\propto h^2$. Отсюда видно, что вблизи критической точки зависимость магнитного поля перехода по температуре имеет вид $h_c \propto t$.

На рис. 4 показаны линии перехода первого рода для различных u . Наклон кривой 2 вблизи критической точки равен $\frac{dH_c}{dT} \approx -0.32 \text{ T/K}$.

Автор признателен В.Н. Павлову за помощь в численных расчетах.

Работа поддержана «Соросовской программой образования в области точных наук» по подпрограмме «Соросовские аспиранты».

Список литературы

- [1] Brinkman W., Rice T.M. Phys. Rev. **B2**, 6, 4302 (1970).
- [2] Spalek J., Kokovski M., Honig J.M. Phys. Rev. **B39**, 7, 4175 (1989).
- [3] Spalek J. J. Sol. Stat. Chem. **88**, 1, 70 (1990).
- [4] Gutzwiller M.C. Phys. Rev. **137**, 6A, 1726 (1965).
- [5] Kudasov Yu.B. Phys. Lett. **A193**, 3, 315 (1994).
- [6] Kotliar G., Ruckenstein A.E. Phys. Rev. Lett. **57**, 11, 1362 (1986).
- [7] McWhan D.B., Remeika J.P. Phys. Rev. **B2**, 9, 3734 (1970).
- [8] Thomas G.A. et al. Phys. Rev. Lett. **73**, 11, 1529 (1994).
- [9] Chao K.A., Berrgren K.-F. Phys. Rev. **B15**, 4, 1656 (1977).
- [10] Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. Электродинамика сплошных сред. М. (1982). С. 168.
- [11] Vollhardt D. Rev. Mod. Phys. **56**, 1, 99 (1984).
- [12] Bonfait G., Puech L. In: Helium Three/ Ed. W.P. Halperin, L.P. Pitaevskii. Elsevier Science Publishers B.V. (1990). P. 881.

5. Поскольку поляризуемость парамагнитного изолятора значительно выше, чем металлической фазы (здесь ситуация аналогична плавлению ^3He в магнитном поле [12]), то в магнитном поле свободная энергия парамагнетика будет понижаться относительно свободной энергии металлической фазы (рис. 1, а). При этом линия перехода первого рода на фазовой диаграмме рис. 1, б будет смещаться вправо.

Магнитное поле, при котором происходит переход, определяется уравнениями (8)

$$\text{и } f_c = f_p + \tilde{f}, \text{ где } f_p = \frac{t}{2} \left[\ln \frac{1-m^2}{4} + m \ln \frac{1+m}{1-m} \right] -$$

свободная энергия парамаг-