

ПРИМЕСИ В СИНГЛЕТНЫХ МАГНЕТИКАХ

Е.Ф. Шендер:

Показано, что легирование некоторых синглетных магнетиков малым количеством магнитных примесей резко меняет состояние магнитной системы матрицы. В частности, может возникнуть ферромагнитный порядок в веществах, которые в отсутствие примесей парамагнитны даже при нулевой температуре. Рассмотрен также переход из ферромагнитного состояния в парамагнитное, индуцированный примесями.

В настоящее время интенсивно изучаются редкоземельные магнетики типа Pr_2 , Pr_3Tl , в которых основное состояние f -уровня в кристаллическом поле является немагнитным синглетом [1 — 5]. Магнитный порядок в таких системах имеет место лишь если обменное взаимодействие является достаточно сильным. Тогда это взаимодействие, "смешивая" волновые функции подуровней, индуцирует момент в системе. В рамках синглет-синглетной модели, в которой возбужденные состояния заменяются одним синглетом, гамильтониан рассматриваемых магнетиков можно привести к модели Изинга с поперечным магнитным полем [4]:

$$\mathcal{H} = -\Delta \sum_i S_i^z - \sum_{i,j} V(r_{ij}) S_i^x S_j^x.$$

Здесь S — операторы псевдоспина $1/2$, действующие на волновые функции подуровней, Δ — разность энергий подуровней, $V(r)$ пропорционально обменному интегралу.

В рамках синглет-синглетной модели операторы полного момента атома I_i связаны с S_i соотношениями $I_i^x = I_i^y = 0$, $I_i^z = a S_i^x$ (a — численный коэффициент). Метод молекулярного поля приводит к результату, что в таких системах возможен ферромагнетизм лишь если $\eta = V(k=0)/\Delta > 1$ ($V(k)$ — фурье-образ $V(r)$). При $\eta < 1$ $\langle I_i^z \rangle \sim \langle S_i^x \rangle = 0$ и система парамагнитна даже при нулевой температуре $T = 0$. Подробный анализ описанной выше модели имеется, например, в [3].

Сейчас известен ряд синглетных магнетиков (Pr_2 , Pr_3Tl и др.), для которых $|\eta - 1| \ll 1$ [1, 2]. Например, для Pr_3Tl $\eta - 1 = 0,06$. В настоящей работе будет показано, что легируя такие вещества небольшим количеством примесей, можно существенно менять свойства матрицы: переводить ее из ферромагнитного состояния в парамагнитное и наоборот, в несколько раз менять намагниченность.

Мы рассмотрим лишь примеси, не меняющие кристаллическое поле на атомах матрицы. Такими свойствами обладают примеси редких земель, использованные в [1, 5]. Основное состояние f -уровня иона примеси будем считать магнитным (что наверняка имеет место если полный момент примеси I полуцелый), поэтому расщепление f -уровня при-

меси для нас несущественно. Пользуясь связью операторов J и S гамильтониан взаимодействия таких примесей с матрицей можно записать в виде

$$\mathcal{H}_{imp} = -\sum_{i,j} U(r_i - r_j) S_i^x I_j^z.$$

Рассмотрим сначала случай парамагнетика. В первом порядке теории возмущений по $U(k=0)/\Delta \ll 1$ ($U(k)$ — фурье-образ $U(r)$) можно получить следующее выражение для распределения магнитного момента матрицы на расстоянии r от примеси

$$M^z(r) = I^z a \mu_h \int U(k) \chi(k) e^{i k r} \frac{d^3 k}{(2\pi)^3}.$$

Здесь μ_h — магнитный момент атома матрицы, а функция $\chi(k)$ отличается от восприимчивости матрицы лишь отсутствием множителя $(\mu_h)^2$. Согласно [3], при $T \ll \Delta \sqrt{1-\eta}$

$$\chi(k) = [\Delta - V(k)]^{-1}.$$

Разлагая $V(k)$ в ряд при малых k : $V(k) = V(0) [1 + k^2 a^2]$, получим:

$$M^z(r) = I^z a \mu_h \frac{U(0)}{4\pi \Delta a^2} \frac{1}{r} \exp\left(-\frac{r}{R}\right). \quad (1)$$

Здесь величина $R = a(1-\eta)^{-1/2}$ имеет смысл радиуса корреляции идеальной матрицы вблизи точки фазового перехода по параметру η . Эффективный магнитный момент примеси μ_{eff} вычисляется интегрированием выражения (1) и оказывается равным

$$\mu_{eff} = \mu_i \left(1 + \frac{a \mu_h}{\mu_i} \frac{U(0)}{\Delta(1-\eta)} \right) \quad (2)$$

μ_i — магнитный момент примеси.

Если параметр связи с матрицей $U(0)/\Delta$ не слишком мал, то, как видно из (2), $\mu_{eff} \gg \mu_i$. Медленное убывание $M^z(r)$ и наличие "гигантского" эффективного момента примеси связаны с большим значением радиуса корреляции вблизи точки фазового перехода по η .

Перекрытие областей поляризации, локализованных вблизи примесей, приводит к появлению косвенного обменного взаимодействия примесных спинов (его можно также трактовать как косвенный обмен парамагнетиками матрицы). Эффективный гамильтониан этого взаимодействия имеет вид

$$\mathcal{H}_{eff} = -V_0 \sum_{ij} I_i^z I_j^z \frac{1}{r_{ij}} \exp\left(-\frac{r_{ij}}{R}\right),$$

где $V_0 = U^2(0) \Omega_0 / 4\pi \Delta a^2$, Ω_0 — объем элементарной ячейки. Так как $V_0 > 0$, это взаимодействие приводит к возникновению примесного фер-

ромагнетизма с моментом насыщения, равным $M = \mu_e / n$ (n — концентрация примесей). Все полученные выше формулы справедливы лишь при малых концентрациях $c \ll 1 - \eta$ ($c = n\Omega_0$), когда относительная поляризация матрицы мала.

Термодинамика неупорядоченных ферромагнетиков с экспоненциально спадающим обменным потенциалом изучалась в [6]. Показано, в частности, что температура Кюри T_K зависит от концентрации примесей по закону:

$$T_K \sim \exp(-0,89/n^{1/3}R),$$

а температурные зависимости намагниченности и теплоемкости имеют ряд аномалий по сравнению с привычными зависимостями, имеющимися в пространственно упорядоченных ферромагнетиках.

При $c \gtrsim 1 - \eta$ матрица поляризована полностью. T_K и M зависят от n слабее, чем при малых концентрациях.

Введение немагнитных примесей в синглетный ферромагнетик с $1 \gg \eta - 1 > 0$ приводит к уменьшению намагниченности вблизи примесей, которое спадает с расстоянием аналогично [1]. При $c \ll c_1 = \eta - 1$ относительное уменьшение намагниченности насыщения $-\delta M/M = c/2c_1$. При $c = c_c \sim c_1$, когда $-\delta M = M$, система становится парамагнитной.

Введение магнитных примесей в наиболее реальном случае $|\frac{U(0)}{\Delta}| \sim 1$ приводит к тому, что при $c \gtrsim c_1$ магнитный момент атомов матрицы "размораживается" и намагниченность увеличивается в $(\eta - 1)^{-1/2}$ раз.

Исчезновение магнитного порядка в синглетных ферромагнетиках при их легировании немагнитными примесями наблюдалось в [1, 5]. R_3Tl становится парамагнетиком при введении 6 — 8% атомов La [1]. Такое значение c_c хорошо коррелирует с величиной c_1 равной для R_3Tl 0,06. К сожалению, в [1] недостаточно данных для детального сравнения теории с экспериментом.

Для изучения рассмотренных выше явлений кроме макроскопических измерений были бы весьма желательны эксперименты по упругому рассеянию нейтронов, которые по пику рассеяния вперед позволяют определить распределение намагниченности вблизи примеси.

Изучение синглетных магнетиков с примесями кроме возможности существенно менять свойства матрицы было бы полезно для определения параметров синглетных систем. Этому способствует наличие довольно своеобразных концентрационных и температурных зависимостей.

Полученные результаты не меняются качественно при уточнении модели, так как они связаны лишь с близостью к точке фазового перехода по η .

Литература

- [1] K.Andres, E.Bucher, S.Darach, E.Mattia. Phys. Rev., B6, 2716, 1974.
 - [2] B.R.Cooper. In "Magnetic properties of rare-earth metals" (R.Y.Elliott eds) Plenum Press, London - N.Y., 1972, p. 40.
 - [3] Е.Ф.Шендер. ЖЭТФ, 66, 2198, 1974; Phys. Lett., 49A, 367, 1974.
 - [4] Y.L.Wang, B.R.Cooper. Phys. Rev., 172, 539, 1968.
 - [5] B.R.Cooper, O.Vogt. Phys. Rev., B1, 1211, 1970.
 - [6] И.Я.Коренблит. Е.Ф.Шендер. ЖЭТФ, 62, 1949, 1972; И.Я.Коренблит, Е.Ф.Шендер, Б.И.Шкловский. Phys. Lett., 46A, 275, 1973.
-