

Критическое поведение малых магнитных частиц Cr_2O_3

А. К. Муртазаев, Х. К. Алиев, И. К. Камилов, К. Ш. Хизриев

*Институт физики Дагестанского научного центра РАН,
Россия, 367003, г. Махачкала, ул. 26 Бакинских комиссаров, 94
E-mail: kamilov@physics.sinol.ru*

Статья поступила в редакцию 9 декабря 1997 г.

Методом Монте-Карло исследовано критическое поведение малых магнитных частиц реального антиферромагнетика Cr_2O_3 . Рассчитаны критические индексы α , β , γ и соответствующие критические амплитуды для частиц, содержащих от 286 до 2502 спинов. При этом установлено, что наличие поверхностных спинов расширяет область температур, в которой наблюдается гейзенберговское критическое поведение, и смещает температуру кроссовера к критической точке.

Методом Монте-Карло досліджено критичну поведінку малих магнітних частинок реального антиферомагнетика Cr_2O_3 . Розраховано критичні індекси α , β , γ та відповідні критичні амплітуди для частинок, які містять у собі від 286 до 2502 спінів. При цьому встановлено, що наявність поверхневих спінів розширює область температур, в якій спостерігається гейзенбергівська критична поведінка, та зміщує температуру кросовера до критичної точки.

PACS: 75.40.Cx, 75.40.Mg, 75.50.Ee

Введение

Количественное описание критических явлений в различных решеточных системах до сих пор остается одной из наиболее трудных задач современной теории конденсированного состояния. При этом используются разнообразные методы теоретической физики: метод ренормализационной группы и ϵ -разложение, высоко- и низкотемпературные разложения, метод ашпроксимантов Паде и др. [1–3]. Обычно для описания критического поведения решеточных систем, в которых возможен фазовый переход второго рода, используют модели Изинга и Гейзенберга, а также их различные модификации. На основе этих моделей с помощью вышеупомянутых методов получена обширная информация о поведении различных термодинамических величин в широком диапазоне температур и других физических параметров. Интенсивно изучались эти модели и методами Монте-Карло (МК) [4,5]. Исследования выполнены на решетках различного типа и пространственной размерности, а также при варьировании большого

количества различных параметров с одновременным получением значительного объема сопутствующей информации. В последние годы методами МК успешно исследуется и критическая область с вычислением значений критических индексов (КИ) и критических амплитуд (КА) с достаточно хорошей точностью [6–8].

При этом до сих пор в основном изучались простые ферромагнитные модели с взаимодействием между ближайшими соседями [4]. Значительно менее полно исследованы реальные антиферромагнитные системы с учетом конкретной кристаллографической структуры и при наличии слабых релятивистских взаимодействий различного типа.

Метод расчета и полученные результаты

В настоящей работе методом МК исследованы малые магнитные частицы реального антиферромагнетика Cr_2O_3 с ромбоэдрической решеткой. При этом все кристаллографические, обменные и другие величины соответствуют

реальным образцам Cr_2O_3 и получены из экспериментальных исследований.

Гамильтониан системы может быть представлен в следующем виде [9]:

$$H = -\frac{1}{2} \sum_{i,j} J_1(\boldsymbol{\mu}_i \boldsymbol{\mu}_j) - \frac{1}{2} \sum_{k,l} J_2(\boldsymbol{\mu}_k \boldsymbol{\mu}_l) - D_0 \sum_i (\boldsymbol{\mu}_i^z)^2, \quad (1)$$

$$|\boldsymbol{\mu}_i| = 1.$$

Здесь $\boldsymbol{\mu}_i$ — единичные векторы с непрерывными ориентациями, согласно данным по рассеянию нейтронов и теории спиновых волн в [10]; J_1 — параметр взаимодействия каждого спина с одним ближайшим соседом на расстоянии $r_{ij} = 2,65 \text{ \AA}$, а J_2 — с тремя следующими соседями на расстоянии $r_{ij} = 2,89 \text{ \AA}$ ($J_2 = 0,45J_1$, $J_1 < 0$, $J_2 < 0$). Константы взаимодействия с более далекими соседями значительно меньше, и они не учитываются. Ось Z совпадает с направлением пространственной диагонали ромбоэдрической ячейки [1,1,1]. Релятивистские взаимодействия различного рода аппроксимировались эффективной одноионной анизотропией $D_0 > 0$. Соотношение между анизотропией и обменом полагалось равным $D_0/|J_1| = 0,025$ [11].

Расчеты проводились для частиц сферической формы с диаметрами $d = 24,0; 28,4; 32,8; 34,8; 41,82; 46,4; 48,64 \text{ \AA}$, число спинов в частицах N равнялось соответственно 286; 508; 760; 908; 1 602; 2 170; 2 502. При этом на ЭВМ генерировались марковские цепи длиной от $2 \cdot 10^4$ до 10^5 МКшаг/спин. Для приведения системы в равновесное состояние отсекался неравновесный участок, состоящий из $5 \cdot 10^3$ – $2 \cdot 10^4$ МКшаг/спин (в зависимости от близости к критической области).

Обычно при исследовании критических явлений методами МК стараются уменьшить степень влияния поверхности, и на систему накладываются различные периодические граничные условия [4]. В нашем исследовании рассматриваются системы с открытыми поверхностями, так как вопросы, связанные с критическими явлениями в малых частицах [12], и зависимость КИ и КА от наличия определенной доли поверхностных спинов, находящихся в несколько иных условиях, чем объемные, представляют и определенный самостоятельный интерес [13]. Для изучаемых частиц доля поверхностных спинов изменялась от 46,8% для самой маленькой частицы до 22,8% для частицы с $N = 2 502$. Поскольку общее количество поверхностных спинов в частицах достаточно велико, их влияние на различные

термодинамические параметры должно быть существенным.

Обычный гамильтониан изотропной модели Гейзенберга тщательно исследован различными методами, и значения критических индексов и амплитуд вычислены с хорошей точностью [14]. Для Cr_2O_3 имеются и результаты экспериментальных исследований критического поведения теплоемкости. При этом у разных авторов и по данным, полученным при измерении теплоемкости различными методами, критический индекс α варьируется от 0,14 до $-0,12$ [15].

Для наблюдения за температурным ходом теплоемкости и восприимчивости нами использовались выражения [7]

$$C = (NK^2)(\langle U^2 \rangle - \langle U \rangle^2), \quad (2)$$

$$\chi = (NK)(\langle m^2 \rangle - \langle m \rangle^2), \quad (3)$$

где $K = |J_1|/k_B T$; U — внутренняя энергия; m — подрешеточная намагниченность.

Температурные зависимости C и χ имеют хорошо выраженные максимумы в критической области. Известно, что T_N для малых систем смещается в сторону более низких температур по сравнению с «макросистемами». В наших экспериментах также наблюдается четко

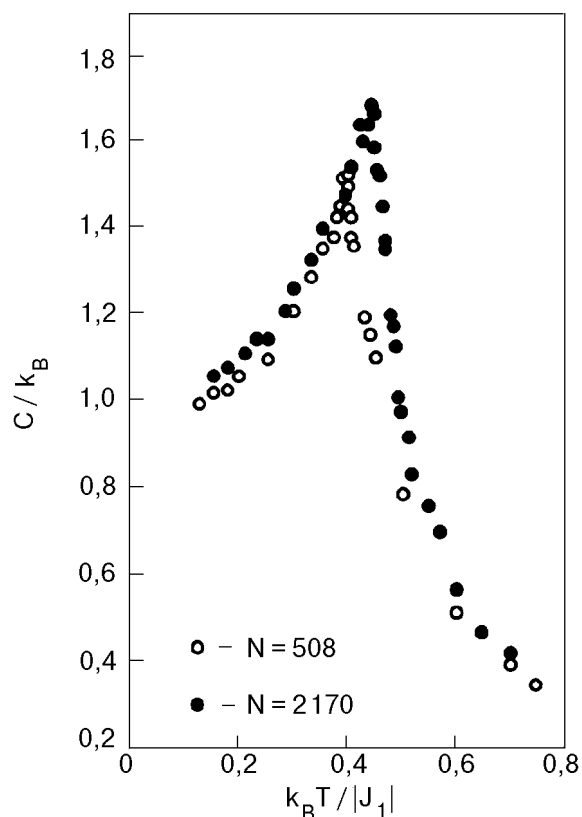


Рис. 1. Зависимость теплоемкости C/k_B от температуры $k_B T/|J_1|$.

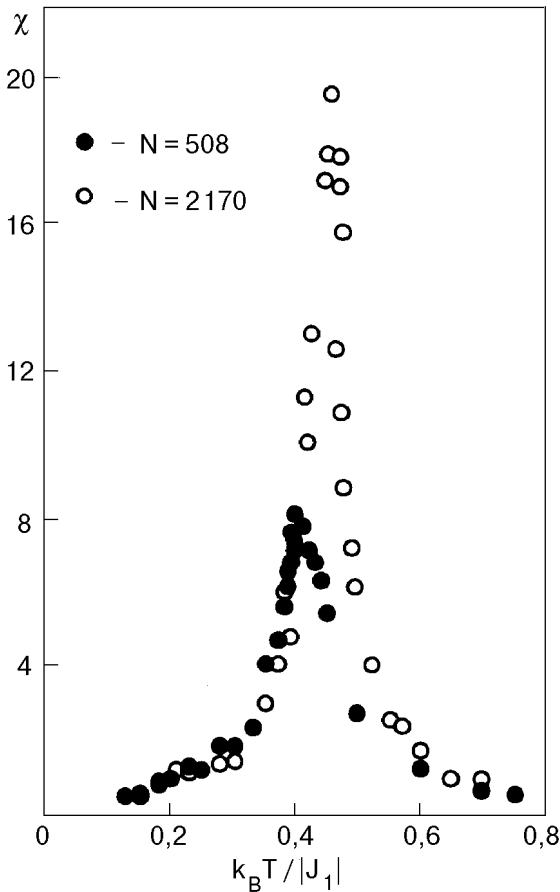


Рис. 2. Зависимость восприимчивости χ от температуры $k_B T/|J_1|$.

выраженное смещение максимумов C и χ с изменением N (рис. 1, 2). На рис. 3 представлены данные о зависимостях критических температур T^C и T^χ от радиуса частиц R , которые определялись по максимумам теплоемкости C и восприимчивости χ . Как видно на рис. 3, с увеличением размера частиц температуры, соответствующие пикам теплоемкости и восприимчивости, смещаются в сторону более высоких, т.е. температура «фазового перехода» возрастает.

Для аппроксимации критического поведения теплоемкости использовалось выражение [16]

$$C = \left[\frac{A}{\alpha} (|t|^{-\alpha} - 1) + D|t|^x \right] + B + Et, \quad (4)$$

где для нашего гамильтониана остаются только члены, находящиеся в квадратных скобках. В этом выражении $t = (T - T_N)/T_N$; α , A , D — соответственно критический индекс теплоемкости, критическая амплитуда и амплитуда коррекции к скейлингу. Эти же величины со штрихами относятся к случаю $T < T_N$. Значение x полагалось равным 0,55 [14]. Обработка МК данных проводилась с

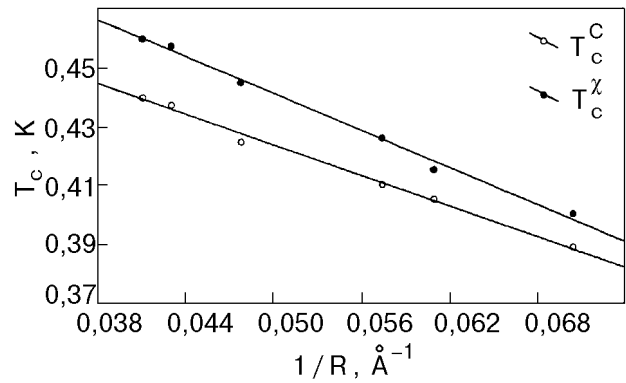


Рис. 3. Зависимость критической температуры от радиуса частицы.

использованием нелинейного метода наименьших квадратов. В качестве оптимальных α , A , D принимались значения, минимизирующие среднеквадратичное отклонение. В качестве T_N при использовании выражения (4) брались значения, соответствующие максимумам теплоемкости.

Полученные данные для α и A представлены в табл. 1. Все α при $T > T_N$ имеют отрицательный знак, характерный для гейзенберговского критического поведения, и практически не зависят от размера частиц. Абсолютные значения α несколько меньше, чем теоретическое $\alpha = -0,126(28)$, полученное для изотропной модели Гейзенберга с короткодействующими силами [14]. Значения A' для $T < T_N$ рассчитаны при обработке данных в предположении, что $\alpha' = \alpha$, согласно предсказаниям статического скейлинга [1–3]. Соотношения между критическими амплитудами A и A' , определенные по указанной схеме, для всех частиц находятся в области $0,95 \leq A/A' \leq 1,10$. Большинство лабораторных исследований теплоемкости Cr_2O_3 [15,17] показывают, что $\alpha < 0$, но абсолютное значение варьируется в широких пределах в зависимости от интервала изменения t , выбора T_N и некоторых других параметров.

Таблица 1

Данные КИ α и КА A для частиц с разным числом спинов N . Значения A' получены в предположении $\alpha' = \alpha$

N	α	A	A'	α'	A	A'
	$5 \cdot 10^{-3} \leq t \leq 7,5 \cdot 10^{-1}$			$2,5 \cdot 10^{-2} \leq t \leq 7,5 \cdot 10^{-1}$		
286	-0,20(3)	0,61	0,61	-0,19(3)	0,60	0,59
508	-0,18	0,57	0,55	-0,17	0,56	0,56
760	-0,20	0,67	0,67	-0,20	0,65	0,66
908	-0,17	0,57	0,58	-0,16	0,55	0,57
1 602	-0,19	0,66	0,60	-0,19	0,64	0,59

2 170	-0,17	0,61	0,64	-0,17	0,60	0,63
2 502	-0,21	0,63	0,68	-0,20	0,62	0,67

Следует отметить, что, поскольку в гамильтониане (1) имеется член, описывающий одноионную анизотропию, в критическом поведении Sr_2O_3 должен наблюдаться кроссовер от гейзенберговского к изинговскому [2,18]. При наших расчетах температура кроссовера составляет $t_{\text{cr}} \approx 0,052$, но значения α , полученные в диапазоне температур $5 \cdot 10^{-3} \leq t \leq 7,5 \cdot 10^{-1}$, не указывают на наличие кроссовера. Возможно, это связано с тем, что поверхностные спины в частицах Sr_2O_3 , как было установлено ранее [9], даже при температурах значительно ниже T_N свободно переориентируются. Такое их поведение расширяет область с гейзенберговским критическим поведением и приводит к смещению температуры кроссовера t_{cr} к точке Нееля. Следовательно, рассмотренная в настоящей работе область приведенных температур может целиком соответствовать гейзенберговскому критическому поведению.

Полученные нами несколько меньшие значения α , чем предсказывает теория [14] и лабораторные эксперименты [15,17], по-видимому, также связаны с наличием значительной доли (22,8%–46,8%) слабо закрепленных поверхностных спинов. Отметим, что при обработке данных в низкотемпературной фазе $T < T_N$ без учета скейлингового предположения $\alpha' = \alpha$ в рассмотренных температурных интервалах для

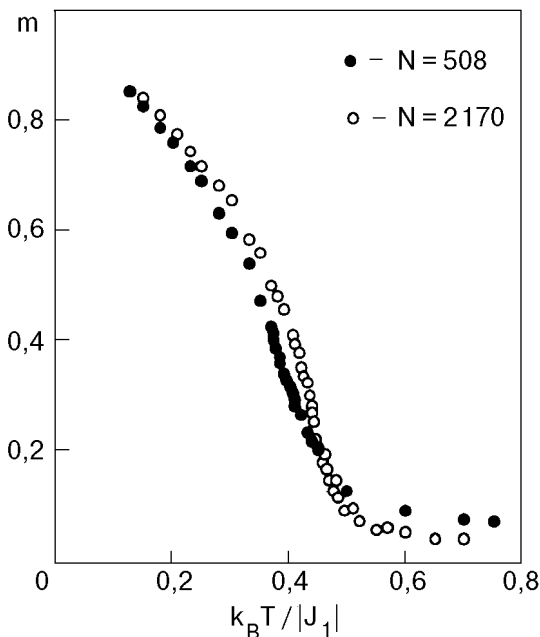


Рис. 4. Зависимость подрешеточной намагниченности m от температуры $k_B T / |J_1|$.

всех частиц $\alpha' \approx 0,03(3)$. Величина отношения A к A' находится при этом в интервале $2,0 \leq A/A' \leq 5,0$.

Для более подробного выяснения закономерности критического поведения частицы следует рассмотреть зависимости подрешеточной намагниченности и восприимчивости от температуры. Сразу заметим, что эти величины являются неудобными для исследования методом МК, так как вблизи T_N намагниченность m имеет высокотемпературные «хвосты», а χ является сильно флуктуирующей величиной.

Температурные зависимости подрешеточной намагниченности для двух частиц с $N = 508$ и 2 170 показаны на рис. 4. Отметим характерные для МК результатов высокотемпературные «хвосты» намагниченности, которые с увеличением N заметно уменьшаются.

Для аппроксимации критического поведения m использовалось выражение

$$m = B|t|^\beta (1 + a_m |t|), \quad (5)$$

где B, a_m — критическая амплитуда и амплитуда коррекции к скейлингу.

Таблица 2

Эффективные значения критического индекса β . Для всех рассмотренных интервалов температур $t_{\text{min}} \leq t \leq t_{\text{max}}$, $t_{\text{max}} = 0,75$

N	β						
	$t_{\text{min}}, a_m = 0$				$t_{\text{min}}, a_m \neq 0$		
	$5 \cdot 10^{-3}$	$1 \cdot 10^{-2}$	$3 \cdot 10^{-2}$	$8 \cdot 10^{-2}$	$1 \cdot 10^{-2}$	$3 \cdot 10^{-2}$	$8 \cdot 10^{-2}$
286	0,18	0,21	0,26	0,31	—	—	—
508	0,22	0,25	0,29	0,32	0,23	0,28	0,34
760	0,25	0,27	0,30	0,33	0,25	0,30	0,36
908	0,25	0,31	0,32	0,36	0,26	0,31	0,38
1 602	0,29	0,31	0,33	0,36	0,28	0,32	0,38
2 170	0,33	0,37	0,39	0,41	0,30	0,35	0,39
2 502	0,33	0,37	0,40	0,43	0,30	0,34	0,40

В табл. 2 представлены данные для β при $a_m = 0$ в некотором диапазоне температур $t_{\text{min}} \leq t \leq t_{\text{max}}$. Отметим, что β , в отличие от других рассмотренных нами критических индексов (α и γ), зависит от числа спинов в частице: абсолютная величина β растет с увеличением N . Для β наблюдается еще одна закономерность: с увеличением t_{min} значения β также увеличиваются. По-видимому, эти особенности связаны с эффектами ближнего порядка, о которых красноречиво

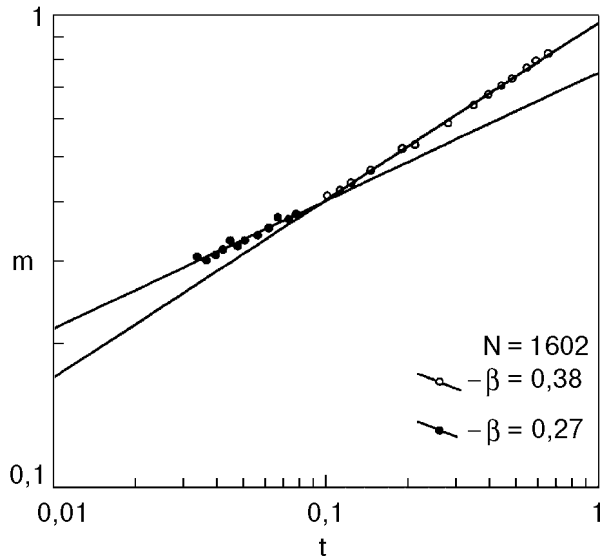


Рис. 5. Двойная логарифмическая зависимость подрешеточной намагниченности m от приведенной температуры t .

свидетельствуют высокотемпературные «хвосты» намагниченности, изображенные на рис. 4. В зависимостях m от t , представленных в двойном логарифмическом масштабе, можно отметить некоторый излом при $t_B = 0,08$. На рис. 5 показана характерная картина с двумя значениями $\beta \approx 0,27$ при $t \leq t_B$ и $\beta \approx 0,38$ при $t > t_B$ для частицы с $N = 1\ 602$. Возможно, эти данные свидетельствуют о наличии кроссовера от гейзенберговского поведения с $\beta \approx 0,38$ (для модели Гейзенберга $\beta = 0,367$ [14]) к изинговскому с $\beta \approx 0,27$ (для модели Изинга $\beta = 0,326$ [14]), что не наблюдалось в поведении теплоемкости.

Характерные данные для восприимчивости, определенные по соотношению (3), показаны на рис. 2. Для обработки этих результатов использовалась простая степенная зависимость χ от t :

$$\chi = \Gamma |t|^{-\gamma}, \quad (6)$$

где γ , Γ — критические индекс и амплитуда восприимчивости. В табл. 3 представлены величины γ , полученные с использованием выражения (6).

Таблица 3

Эффективные значения критических индексов γ и γ' . Для всех рассмотренных интервалов температур $t_{\max} = 0,75$

N	γ		γ'			
	t_{\min}					
	$4 \cdot 10^{-2}$	$8 \cdot 10^{-2}$	$1 \cdot 10^{-1}$	$4 \cdot 10^{-2}$	$8 \cdot 10^{-2}$	$1 \cdot 10^{-1}$
508	0,96(3)	1,14(3)	1,22(3)	0,90(3)	1,15(3)	1,33(3)
760	0,94	1,15	1,20	0,93	1,14	1,30
908	1,02	1,14	1,18	0,91	1,22	1,31
1 602	1,01	1,15	1,19	0,90	1,21	1,30
2 170	1,00	1,13	1,20	0,95	1,20	1,28
2 502	0,98	1,13	1,22	0,96	1,18	1,29

508	0,96(3)	1,14(3)	1,22(3)	0,90(3)	1,15(3)	1,33(3)
760	0,94	1,15	1,20	0,93	1,14	1,30
908	1,02	1,14	1,18	0,91	1,22	1,31
1 602	1,01	1,15	1,19	0,90	1,21	1,30
2 170	1,00	1,13	1,20	0,95	1,20	1,28
2 502	0,98	1,13	1,22	0,96	1,18	1,29

Значения критических индексов γ и γ' находили независимо при температурах выше и ниже T_N , которую определяли по максимуму зависимости χ от температуры. Критические индексы γ и γ' так же, как и α , не зависят от числа спинов в частице, но сильно зависят от t_{\min} : увеличиваются с ростом t_{\min} . Причем по абсолютным значениям γ и γ' нельзя сделать вывод о характере критического поведения восприимчивости как об изинговском ($\gamma = 1,24$ [14]) или гейзенберговском ($\gamma = 1,39$ [14]). В заключение отметим, что при обработке всех данных использовались те же температурные интервалы и различные значения $T'_N = T_N \pm \Delta T$, где ΔT варьировалась в пределах от 1,5 до 2,5% T_N , все величины α , A , A' , γ , γ' изменялись лишь в пределах погрешности. Данные для β изменялись в большей степени, и с ростом T_N значения β увеличивались, а с уменьшением T_N уменьшались, что мы опять связываем с тем, что подрешеточная намагниченность сильнее других величин зависит от эффектов ближнего порядка и наличия свободной поверхности.

Заключение

Критическое поведение теплоемкости малых частиц Sr_2O_3 имеет гейзенберговский характер и не обнаруживает кроссовер к изинговскому сценарию. По данным о восприимчивости трудно судить о характере критического поведения. Отметим, что α и γ в одном и том же температурном интервале в пределах погрешности не зависят от числа спинов в частице, а индекс β довольно сильно зависит от N и обнаруживает тенденцию к росту при увеличении N . В критическом поведении подрешеточной намагниченности m обнаруживаются кроссоверные явления, характерные для перехода от гейзенберговского критического поведения к изинговскому. По-видимому, некоторые отличия значений критических индексов от теоретических [14] и экспериментальных [15,17] связаны в основном с присутствием большой доли слабо закрепленных поверхностных спинов, а характер поведения m и β , кроме того, определяется еще присущими

методу МК особенностями при такого рода исследованиях.

1. А. З. Паташинский, В. Л. Покровский, *Флуктуационная теория фазовых переходов*, Наука, Москва (1982).
2. Ш. Ма, *Современная теория критических явлений*, Мир, Москва (1980).
3. Г. Стенли, *Фазовые переходы и критические явления*, Мир, Москва (1973).
4. К. Биндер, *Методы Монте-Карло в статистической физике*, Мир, Москва (1982).
5. К. Биндер, Д. В. Хеерман, *Моделирование методом Монте-Карло в статистической физике*, Наука, Москва (1995).
6. P. Peczak and D. P. Landau, *Phys. Rev.* **B43**, 1048 (1991).
7. P. Peczak and D. P. Landau, *Phys. Rev.* **B43**, 6087 (1991).
8. P. Peczak and D. P. Landau, *Phys. Rev.* **B47**, 14260 (1993).
9. А. К. Муртазаев, И. А. Фаворский, *ФНТ* **19**, 160 (1993).
10. E. J. Samuelson, M. T. Hutchings, and G. Shirane, *Physica* **48**, 13 (1970).
11. J. O. Altman, J. C. Murphly, and S. Fones, *Phys. Rev.* **138A**, 912 (1965).
12. Ю. И. Петров, *Физика малых частиц*, Наука, Москва (1982).
13. K. Binder and P. C. Hohenberg, *Phys. Rev.* **B9**, 2194 (1974).
14. J. C. Le Guilio and J. Zinn-Justin, *J. Phys. Lett.* **45**, L137 (1985).
15. M. Marinelli, F. Mercuri, U. Zammit, R. Pizzoferrato, F. Scudieri, and D. Dadarlat, *Phys. Rev.* **B49**, 9523 (1994).
16. G. Bednarz, D. J. W. Geldart, and M. A. White, *Phys. Rev.* **B47**, 14247 (1993).
17. R. H. Bruce and D. S. Cannel, *Phys. Rev.* **B15**, 4451 (1997).
18. И. К. Камилов, Х. К. Алиев, *Статические критические явления в магнитоупорядоченных кристаллах*, Изд-во ДНЦ РАН, Махачкала (1993).

Critical behavior of small magnetic particles of Cr_2O_3

A. K. Murtazaev, Kh. K. Aliev,
I. K. Kamilov, and K. Sh. Khizriev

The critical behavior of small magnetic particles of real antiferromagnet Cr_2O_3 is investigated by the Monte-Carlo method. Critical exponents α , β , γ , and appropriate critical amplitudes are calculated for particles containing from 286 up to 2 502 spins. The existence of superficial spins expands the temperature range with the Heisenberg critical behavior and displaces the crossover temperature to the critical one.