

3.21. ТЕОРИЯ МАГНИТОЭЛЕКТРИЧЕСКИХ ЭФФЕКТОВ В МНОГОКОМПОНЕНТНЫХ АМОРФНЫХ ДИЭЛЕКТРИКАХ

А.А. Борисенко, А.С. Бакай
ІНЦ ХФТИ НАН України



В последние несколько лет было обнаружено странное поведение некоторых многокомпонентных диэлектрических стекол во внешних магнитных полях при сверхнизких температурах. Например, диэлектрическая проницаемость ϵ аморфного $\text{BaO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ (BAS) сложным немонотонным образом зависит от приложенного магнитного поля при $T \leq 1$ К [1]. Более того, наблюдается излом на кривой $\epsilon(T)$ при $T = 5.84$ мК [2], что указывает на переход спин-стекольного типа. В мК-диапазоне температур BAS также проявляет ярко выраженную зависимость амплитуды двухимпульсного поляризационного эха от магнитного поля [3]. Похожие результаты сообщаются и для других многокомпонентных силикатных стекол BK7 [4] и Duran [5]. Теплоемкость этих материалов также зависит от магнитного поля немонотонным образом (см. [5, 6] и приведенные там ссылки).

Надо заметить, что величины этих аномальных эффектов не пропорциональны концентрации магнитных примесей в образцах [4], что позволяет исключить их прямое влияние. Также эти свойства не могут быть интерпретированы как магнитоэффект, характерный для нелинейных диэлектриков, в которых наблюдается квадратичная зависимость $\epsilon(B)$ [7].

На основании перечисленных фактов естественно предположить, что некоторые стекла обладают подсистемой, чувствительной к магнитному полю, и что эта подсистема связана со структурой аморфных диэлектриков.

В нулевом магнитном поле аномальные низкотемпературные свойства аморфных изоляторов, такие как линейный по температуре (в отличие от кубического фононного) вклад в теплоемкость, особенности диэлектрических и акустических свойств, теплопроводности, явление двухимпульсного поляризационного эха и др., успешно объясняются в рамках модели туннелирующих состояний (ТС) (см. [8] и приведенные там ссылки). Хотя микроскопическое строение ТС в стеклах остается неясным, феноменологически оно может рассматриваться как эффективная заряженная частица (ион), заключенная в двухямном (W) потенциале. В этом случае из-за перекрытия волновых функций основных состояний в двух ямах, основной энергетический уровень расщепляется в дублет со щелью $E = \sqrt{\hbar^2 + \Delta^2}$, где Δ – величина щели для симметричного потенциала, \hbar – разность энергий основных состояний в двух ямах без учета туннелирования. ТС вместе со своим локальным окружением образует электрический диполь, ориентация которого зависит от локализации иона (с подавляющей вероятностью) в той или иной яме.

Естественно предположить, что ТС ответственны также и за упомянутые аномальные магнитные свойства аморфных диэлектриков.

В этой работе мы рассматриваем влияние магнитного поля на ТС, предполагая, что оно является электронным парамагнитным центром. Электронный парамагнетизм ТС в аморфных многокомпонентных диэлектриках, не связанный с присутствием магнитных примесей, может вызываться присутствием ненасыщенных ковалентных связей из-за топологического или композиционного локального беспорядка.

Мы рассматриваем парамагнитное ТС (ПТС) с эффективным спином $1/2$. Этот выбор приводит к простейшей возможной алгебре и должен отражать физическую суть нашей идеи. Мы считаем, что туннелирование между двумя конфигурационными состояниями в W -потенциале приводит к несохранению проекции магнитного момента ПТС на внешнее магнитное поле. Это означает, что оси, относительно которых квантуется магнитный момент в разных ямах, непараллельны. Это может объясняться, например, влиянием случайного локального «кристаллического» поля или магнитным диполь-дипольным взаимодействием между ПТС и другим близким парамагнитным центром.

Таким образом, если туннелирование происходит с частотой Δ/\hbar (\hbar – постоянная Планка), можно сказать, что туннелирование с изменением и сохранением проекции магнитного момента происходит с частотами D/\hbar и δ/\hbar соответственно, где

$$D = \Delta \cdot \sin(\alpha/2), \quad \delta = \Delta \cdot \cos(\alpha/2) \quad (1)$$

и $\alpha \in [-\pi; \pi]$ – угол между осями квантования в левой и правой ямах.

Гильбертово пространство ПТС представляет собой произведение подпространств координатных и спиновых состояний. В обоих подпространствах применимо представление с помощью матриц Паули. В этом представлении упрощенный гамильтониан ПТС имеет вид:

$$\hat{H} = -1/2 \cdot (\hbar \hat{\sigma}_z + \delta \hat{\sigma}_x + u_z \hat{t}_z + D \hat{\sigma}_y \hat{t}_y), \quad (2)$$

где операторы $\hat{\sigma}$ и \hat{t} действуют на координатные и спиновые переменные соответственно и u_z – зеемановское расщепление уровней для эффективного спина $1/2$ во внешнем магнитном поле.

Диагонализируя (2), получаем набор собственных значений энергии:

$$E_{S,A} = \mp \frac{1}{2} \sqrt{(u_z + \sqrt{h^2 + \delta^2})^2 + D^2}; \quad E_{1,2} = \pm \frac{1}{2} \sqrt{(u_z - \sqrt{h^2 + \delta^2})^2 + D^2}. \quad (3)$$

Следует отметить, что ненулевая величина параметра D предотвращает кроссовер энергетических уровней $E_{1,2}$. Это свойство является ключевым в нашей модели для объяснения немонотонной зависимости от магнитного поля вклада ПТС в термодинамические величины.

Используя выражения для собственных значений гамильтониана (3), легко получить выражение для свободной энергии ансамбля невзаимодействующих ПТС и его вклад в термодинамические величины, если задать функцию распределения параметров в ансамбле.

Учитывая релаксационные эффекты в динамике ПТС, получены выражения для зависимости вещественной и мнимой частей диэлектрической

восприимчивости от магнитного поля. С их помощью путем подбора соответствующих значений свободных параметров, удалось количественно описать результаты экспериментов для BAS [1]. Экспериментальные данные для боросиликатных стекол BK7 [4] и Duran [5] (полученные в сильно нелинейном режиме) также качественно согласуются с теорией. Излом на кривой $\epsilon(T)$ при $T=5.84$ мК, наблюдаемый для BAS, может являться следствием перехода ансамбля ПТС из парамагнитного состояния в фазу спинового стекла.

- [1] R. Hauelsen and G. Weiss, *Physica B* 316&317 (2002) 555.
- [2] P. Strehlow, C. Enss and S. Hunklinger, *Phys. Rev. Lett.* 80 (1998) 5361; S. Hunklinger, C. Enss and P. Strehlow, *Physica B* 263-264 (1999) 248.
- [3] S. Ludwig, C. Enss, P. Strehlow and S. Hunklinger, *Phys. Rev. Lett.* 88 (2002) 075501-1.
- [4] M. Wohlfahrt, P. Strehlow, C. Enss and S. Hunklinger, *Europhys. Lett.* 56 (2001) 690.
- [5] L. Siebert, Ph.D. Thesis, Universität Heidelberg, 2001.
- [6] G. Jug, *Philos. Mag.* 84 (2004) 3599.
- [7] S. Kettemann, P. Fulde and P. Strehlow, *Phys. Rev. Lett.* 83 (1999) 4325.
- [8] P. Esquinazi (Ed.), *Tunneling Systems in Amorphous and Crystalline Solids*, Springer, Berlin, 1998.



UA0800086

3.22. HYDROGEN BONDS MEDIATED MAGNETISM IN $\text{Cu}(\text{bmen})_2\text{Pd}(\text{CN})_4$

M. Orendáč, J. Hanko, J. Kuchár, A. Orendáčová, J. Černák, A. Feher
Faculty of Natural Sciences, P. J. Šafárik University, Park Angelinum 9, 041 54
Košice, Slovakia Phone: 00421 55 63 348 20; mail : orendac@kosice.upjs.sk

Geometrically frustrated magnets represent objects of intensive theoretical and experimental studies. In these systems the topology of exchange paths prevents from simultaneous minimizing energy of all pairwise interactions [1]. Geometric frustration can cause sufficiently large zero – temperature quantum spin fluctuations which can draw a system into new types of intrinsically quantum - mechanical magnetic ground state without classical equivalent. In the present work structural and thermodynamic quantities of $\text{Cu}(\text{bmen})_2\text{Pd}(\text{CN})_4$ are discussed. The primary target of the work is to decide whether the studied compound can be considered as representative of $S=1/2$ triangular antiferromagnet with spatial anisotropy of exchange coupling [2].

The structure of $\text{Cu}(\text{bmen})_2\text{Pd}(\text{CN})_4$ consists of infinite chains in which octahedrally coordinated Cu(II) ions are linked by $\text{Pd}(\text{CN})_4$ units (Fig. 1). However, apart from the covalent bonds creating the chains, the closer inspection of the structure revealed the presence of hydrogen bonds linking adjacent chains.