

# ИССЛЕДОВАНИЕ МАГНИТНЫХ СВОЙСТВ СЛАБОВЗАИМОДЕЙСТВУЮЩИХ АНТИФЕРРОМАГНИТНЫХ ЦЕПОЧЕК С АЛЬТЕРНИРОВАННЫМ ОБМЕННЫМ ВЗАИМОДЕЙСТВИЕМ СО СПИНОМ $S = 1/2$ ПРИ ПОМОЩИ КВАНТОВОГО МЕТОДА МОНТЕ-КАРЛО

С. С. Аплеснин\*

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

Поступила в редакцию 21 июня 1999 г.

Для слабозаимодействующих ( $J_2$ ) антиферромагнитных цепочек со спином  $S = 1/2$  и альтернированным обменным взаимодействием ( $J_1 \pm \delta$ ) определены аппроксимационная зависимость спонтанного магнитного момента на узле,  $\sigma/\sigma(0) - 1 = 0.71(6)\delta^{2.5(2)}$ , фазовая граница антиферромагнетик — синглетное состояние,  $J_2/J_1 = 0.52(3)\delta$ , квантовым методом Монте-Карло в приближении самосогласованного подрешеточного молекулярного поля. На основании вычисленных корреляционных радиусов двух- и четырехспиновой корреляционной функции, квадрата полного спина по продольным компонентам  $\langle (S^z)^2 \rangle$ , параметра димеризации и корреляционных функций между ближайшими соседями по продольным и по поперечным компонентам спина определены температура Нееля и ряд критических температур, которые, возможно, связаны с энергией заполнения двух синглетных ( $\Delta S^z = 0$ ) и одной триплетной ( $\Delta S^z = 1$ ) спиновых зон, каждая из которых расщепляется подрешеточным полем ( $h^{x,y} \neq h^z$ ) на две подзоны. На основании расчетов по методу Монте-Карло определены критические температуры и возможные энергетические щели в центре зоны как для антиферромагнетиков  $\text{CuWO}_4$ ,  $\text{Bi}_2\text{CuO}_4$ , так и для синглетных соединений  $(\text{VO})_2\text{P}_2\text{O}_7$ ,  $\text{CuGeO}_3$ , которые удовлетворительно согласуются с имеющимися результатами, а также предсказаны новые эффекты.

PACS: 75.10.Jm, 75.50. Dd, 75.40.Cx, 75.40.Mg

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Существует обширный класс магнитных соединений с пространственно-анизотропным распределением обменных взаимодействий и с сильным взаимодействием между магнитной и упругой подсистемами, которое приводит в некоторых случаях к спин-пайерлсовскому переходу. Обычно переход из синглетного состояния в парафазу рассматривается в моделях Хаббарда или Гейзенберга с альтернированными параметрами обмена  $J$  и интеграла перескока  $t$  с привлечением теории среднего поля, либо гриновских функций с применением теории возмущения. Спиновые возбуждения, как правило, не учитываются при рассмотрении этих систем, что приводит к завышенным оценкам температуры

спин-пайерлсовского перехода при учете межцепочечного обмена, а именно, к логарифмической зависимости [1].

Альтернирование обмена также можно добиться за счет геометрии кристаллической решетки, такой как в  $\text{CuWO}_4$  [2],  $\text{Bi}_2\text{CuO}_4$  [3, 4],  $(\text{VO})_2\text{P}_2\text{O}_7$  [5],  $(\text{CH}_3)\text{CHNH}_3\text{CuBr}_3$  [6]. Все эти соединения являются трехмерными магнитными системами с альтернированным обменом, для большинства из них определены величины обменных взаимодействий по трем направлениям соответствующих кристаллических осей. Магнитные свойства антиферромагнетиков  $\text{CuWO}_4$  и  $\text{Bi}_2\text{CuO}_4$  интерпретируется в двухподрешеточной модели Гейзенберга, и остается непонятным существование нескольких ветвей спиновых возбуждений, интенсивность которых становится равной нулю при разных температурах, и наличие энергетической щели в центре зоны при  $\omega = 1.4$  мЭВ

\*E-mail: apl@iph.krasnoyarsk.su

в  $\text{CuWO}_4$  [2] и при  $\omega_i = 0.7, 1.7, 2.3, 3.4, 4$  мЭВ в  $\text{Bi}_2\text{CuO}_4$  [4, 7, 8]. В этих антиферромагнетиках наблюдается немонотонное температурное поведение восприимчивости [9], поля антиферромагнитного резонанса и ширины линии в  $\text{Bi}_2\text{CuO}_4$ , производные которых по температуре имеют несколько максимумов [10] и дополнительный максимум теплоемкости при  $T \simeq 17$  К ( $T_N = 45$  К) в  $\text{Bi}_2\text{CuO}_4$  [11].

В синглетных магнетиках  $\text{CuGeO}_3$ ,  $\text{Na}_2\text{V}_2\text{O}_5$ ,  $(\text{VO})_2\text{P}_2\text{O}_7$  также обнаружено несколько энергетических щелей в спектре спиновых возбуждений, которые не укладываются ни в традиционную теорию спин-пайерлсовского перехода с одной триплетной щелью [12], ни в теорию двухмагнитного спектра возбуждений [13]. Из этих соединений наиболее полно исследован  $\text{CuGeO}_3$ , в котором найдены три области температур,  $T_{c1} \sim (4 \div 7)$  К,  $T_{c2} \simeq 14$  К,  $T_{c3} \sim (20 \div 25)$  К, в которых ширина линии и интенсивность ЭПР имеют аномальное поведение [14, 15], магнитная теплопроводность [16] и магнитострикция [17] имеют максимумы ниже и выше температуры спин-пайерлсовского перехода  $T_N = 14$  К.

Данная работа посвящена исследованию области устойчивости дальнего антиферромагнитного порядка в изотропном  $3D$ -антиферромагнетике с достаточно сильным анизотропным распределением обменных взаимодействий в решетке относительно величины альтернирования обмена, определению величины магнитного момента на узле, температуры Нееля и критических температур, при которых корреляционные радиусы имеют максимальные значения. Согласно гипотезе динамического скейлинга время релаксации  $\tau$  пропорционально корреляционному радиусу,  $\tau \propto \xi^z$ , и указанные выше температуры можно обнаружить по температурной зависимости ширины линии ЭПР, антиферромагнитного резонанса и диффузному рассеянию нейтронов. На основе четырехспиновой корреляционной функции будут предложены дополнительные спиновые возбуждения — спионы [18], имеющие несколько зон возбуждений, благодаря которым можно объяснить приведенные ранее экспериментальные результаты и, используя вычисленные значения критических температур, предсказать существование дополнительных спиновых мод и ряд новых эффектов.

## 2. МОДЕЛЬ И МЕТОД

Рассмотрим модель Гейзенберга с отрицательными взаимодействиями между ближайшими соседями со спином  $S = 1/2$  в направлении  $Z$  внешнего магнитного поля. Альтернированное взаимо-

действие берется по направлению сильной связи  $I = J_1 + \delta$  и  $K = J_1 - \delta$ . Гамильтониан имеет вид

$$H = -J_1 \sum_{i,j} \mathbf{S}_{i,j} \mathbf{S}_{i+1,j} - \sum_{\substack{i,j,\gamma=1, \\ \alpha=x,y,z}} J_2^\alpha(\gamma) S_{i,j}^\alpha S_{i,j+\gamma}^\alpha - \sum_i H_i S_i^z, \quad (1)$$

где  $J_1 < 0$ ,  $J_2 < 0$  — внутри- и межцепочечные взаимодействия,  $H$  — внешнее магнитное поле,  $\gamma$  — суммирование по ближайшим соседям между цепочками ( $z = 4$ ). Преобразуем гамильтониан  $3D$ -системы к одномерной цепочке спинов, взаимодействующих с эффективным полем, с помощью приближения самосогласованного молекулярного поля [19, 20]:

$$H = - \sum_{i=1}^{L/2} I_{2i,2i-1} \mathbf{S}_{2i} \mathbf{S}_{2i-1} - \sum_{i=1}^{L/2} K_{2i,2i+1} \mathbf{S}_{2i} \mathbf{S}_{2i+1} - \sum_{i=1}^L h_i^\alpha S_i^\alpha - \sum_{i=1}^L H_i S_i^z - 2N J_2 m_0^2, \quad (2)$$

где  $m_0, h$  — подрешеточная намагниченность и поле  $\mathbf{h}_i(h^z, h^+, h^-)$ , определенные в [19, 20] как  $m_0 = (1/L) \sum_{i=1}^L (-1)^i \langle S_i^z \rangle$ ,  $h = -4J_2 m_0$ . Чтобы учесть квантовые и температурные флуктуации, определим эти величины из спин-спиновой корреляционной функции, которая имеет степенную зависимость от расстояния в  $1D$ -антиферромагнетике при  $T = 0$ . Предположим, что подобная зависимость выполняется и для поперечных компонент спина в магнитоупорядоченной области квазиодномерного антиферромагнетика, а в парамагнитном и синглетном состояниях мгновенные значения подрешеточного поля пропорциональны величине ближнего порядка, т. е. спин-спиновой корреляционной функции ближайших соседей. Среднее значение  $\langle h_i \rangle \approx 0$ , а  $\langle h_i^2 \rangle \neq 0$  в синглетном состоянии. Учет флуктуаций подрешеточного поля в синглетном состоянии приводит к новым эффектам, о которых будет рассказано ниже. Рассмотрим в синглетном и парамагнитном состояниях два вида подрешеточного поля по поперечным компонентам спина: изотропное  $h^x = h^y = h^z$  и анизотропное, характерное для  $\text{CuGeO}_3$ ,  $h^x = h^y = 1.4h^z$ . Подрешеточные поля в антиферромагнетике имеют вид

$$m_0 = \frac{2}{L} \sum_{i=1}^{L/2} \sqrt{\text{abs}(S_0^z S_i^z)},$$

$$h_i^z = 4J_2 \text{sign}(\langle S_0^z S_i^z \rangle) \sqrt{\text{abs}(S_0^z S_i^z)}, \quad (3)$$

$$b - h_i^{+,-} = 4J_2 (-1)^i \sqrt{\text{abs}(S_0^+ S_1^-)/i}.$$

В работе применяется квантовый метод Монте-Карло, в котором используется траекторный алгоритм мировых линий, основанный на преобразовании  $D$ -мерной квантовой системы в  $(D + 1)$ -мерную классическую путем дискретизации функционального интегрирования в пространстве мнимое время  $0 < \tau < 1/T$  — координата [21, 22]. В вычислениях по методу Монте-Карло используется формула Троттера с параметром  $m = 32, 64, 124, 200$ , периодические граничные условия на цепочке длиной  $L = 100, 200, 400$ . Один шаг Монте-Карло определяется поворотом всех спинов на решетке  $L \times 2m$ . Для достижения равновесия использовалось от 4000 до 7000 шагов Монте-Карло на спин и при усреднении — (2000 ÷ 5000) шагов Монте-Карло на спин. Время автокорреляции  $\tau$ , необходимое для установления термодинамического равновесия, оценивалось из соотношения  $\ln(\tau) = amT/J$  ( $T$  — температура) [23]. Систематическая ошибка, вызванная квантовыми флуктуациями, пропорциональна  $\sim 1/(mT/J)^2$  и составляет порядка 4% для минимальной температуры  $T/J = 0.025$ , используемой в вычислениях. Средние квадратичные погрешности вычисляемых величин лежат в пределах (0.1–0.6)% для энергии, (6–11)% для восприимчивости,  $\sim 10\%$  для корреляционного радиуса. Погрешностями, вызванными конечными размерами решетки, можно пренебречь, так как  $\xi < L/2$ .

Рассмотрим возможные спиновые возбуждения в данной модели. Если схематично представить волновую функцию основного состояния в виде суммы неелевской конфигурации и набора синглетных состояний спинов с разными весовыми соотношениями, то кроме обычных возбуждений типа спиновых волн могут существовать возбуждения на синглетных областях, которые можно разбить на две группы: продольная составляющая вектора спина не меняется, т.е.  $\Delta S^z = 0$  (назовем такие возбуждения синглетными) и продольная составляющая вектора спина меняется на единицу, т.е.  $\Delta S^z = 1$ , что соответствуют триплетным возбуждениям. Согласно теории Андерсона [24] синглетное состояние хорошо описывается обобщенной моделью резонансных валентных связей (RVB), волновая функция которой представлена в виде синглетных пар спинов по всем возможным конфигурациям. При альтернировании обмена обобщенная модель сводится к простой модели RVB, в которой учитывается спаривание ближайших спинов. Так как здесь существуют обменные взаимодействия двух типов, различающиеся по величине, то энергии синглетных пар и соответствующие возбуждения на  $K$ -связях отличаются от энергии на  $I$ -взаимодействиях. Поэтому особенности температурного поведения магнитных харак-

теристик антиферромагнетика с альтернированным обменом можно вычислить и понять на основе четырехспиновой корреляционной функции пар спинов  $\langle \mathbf{S}_0 \mathbf{S}_1 \mathbf{S}_r \mathbf{S}_{r+1} \rangle$  и параметра упорядочения димеров  $q$ :

$$q^\alpha = \frac{4}{L} \sum_{i=2}^{L/4} (\langle S_0^\alpha S_1^\alpha S_{2i-2}^\alpha S_{2i-1}^\alpha \rangle - \langle S_1^\alpha S_2^\alpha S_{2i-1}^\alpha S_{2i}^\alpha \rangle), \quad (4)$$

$$\alpha = x, y, z.$$

Возбужденному состоянию в простой модели RVB с одной нарушенной связью соответствует классическое возбуждение типа кинка, которое в дальнейшем будем называть спиновым возбуждением. Корреляционный радиус спинов  $\xi_4$  и параметр  $\eta_4$  определим из четырехспиновой корреляционной функции

$$\left| \langle S_0^z S_1^z S_{r-1}^z S_r^z \rangle - \langle S_0^z S_1^z S_{L/2-1}^z S_{L/2}^z \rangle \right| = \frac{A}{r^{\eta_4}} \exp\left(-\frac{r}{\xi_4}\right), \quad (5)$$

где  $r = 2i + 1, i = 1, 2, 3, \dots$

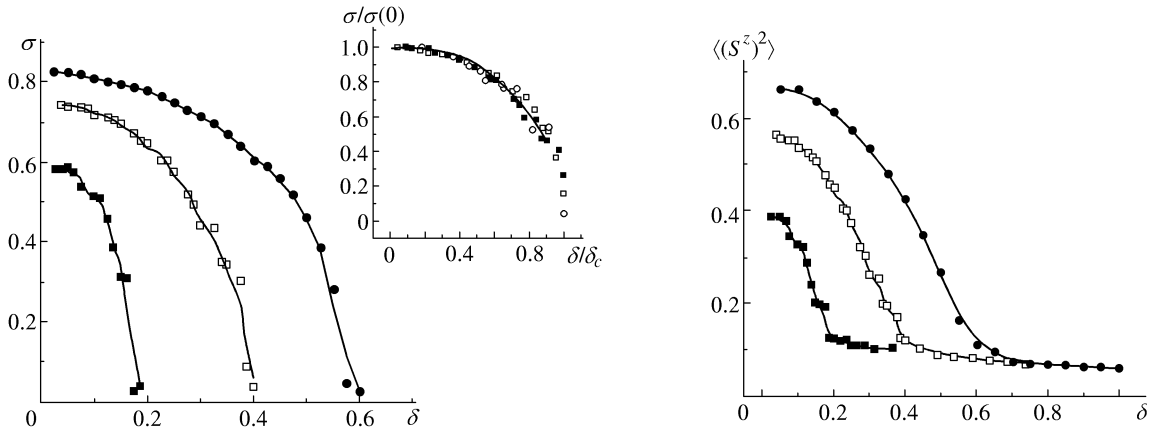
Далее будут вычислены следующие величины: энергия, теплоемкость  $C = dE/dT$ , намагниченность, восприимчивость во внешнем поле  $\chi = M/H$ , спин-спиновая корреляционная функция между продольными  $\langle S^z(0)S^z(r) \rangle$  и поперечными  $\langle S^+(0)S^-(1) \rangle$  компонентами спинов, фурье-спектр  $S(q) = (2/L) \sum_{r=1}^{L/2} \exp(-iqr) \langle S_0^z S_r^z \rangle$  и магнитный структурный фактор. Корреляционный радиус  $\xi_2$  и параметр  $\eta_2$  определим из спин-спиновой корреляционной функции

$$\left| \langle S^z(0)S^z(r) \rangle - \langle S^z(0)S^z\left(\frac{L}{2}\right) \rangle \right| = \frac{B}{r^{\eta_2}} \exp\left(-\frac{r}{\xi_2}\right). \quad (6)$$

Квадрат полного спина будет вычислен по продольной компоненте  $\langle (S^z)^2 \rangle$ ; этот параметр позволяет отличить синглетное состояние от парамагнитного и чувствителен к изменению спектра спиновых возбуждений.

### 3. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Для определения фазовой границы антиферромагнетик — синглетное состояние на плоскости межцепочечные взаимодействия — альтернированный обмен используем ряд критериев: подрешеточная намагниченность равна нулю,  $\sigma \rightarrow 0$ , корреляционные радиусы  $\xi_2$  and  $\xi_4$  при  $\delta_c$  имеют максимальное значение. Синглетное состояние отличается от парамагнитного либо состояния спинового стекла по следующим признакам. В синглет-



**Рис. 1.** Зависимость магнитного момента на узле ( $\sigma$ ) и квадрата продольной компоненты полного спина ( $\langle (S^z)^2 \rangle$ ) антиферромагнетика с  $\lambda = 0.1$  ( $\blacksquare$ ),  $0.2$  ( $\square$ ),  $0.3$  ( $\bullet$ ) от величины альтернирования обмена. На вставке изображены нормированные значения намагниченности для этих же параметров

ном состоянии в модели с альтернированным обменом величина полного спина равна нулю,  $S = 0$ , и собственное значение оператора  $\hat{S}_z^2$  из равенства  $\langle (S^z)^2 \rangle = S(S + 1)/3$  также равно нулю. Параметр упорядочения димеров отличен от нуля,  $q \neq 0$ , и между продольными и поперечными компонентами спинов выполняется соотношение  $\langle S_0^+ S_1^- \rangle \simeq 2 \langle S_0^z S_1^z \rangle$ . Вычислим указанные выше характеристики, часть которых изображена на рис. 1, в области низких температур,  $(0.1-0.2)T_N$ , для ряда параметров межцепочечного обмена  $\lambda = J_2/J_1 = 0.05, 0.075, 0.1, 0.125, 0.15, 0.2, 0.25, 0.3$  в зависимости от величины альтернирования. Нормированные значения подрешеточной намагниченности и энергии хорошо аппроксимируются степенной зависимостью  $\sigma/\sigma(0) - 1 = 0.71(6)\delta^{2.5(2)}$  и  $E/E(0) - 1 = 0.02\delta^{3.6(3)}$ , где  $\sigma(0) = 1.9(1)\sqrt{\lambda}$ , и изображены на вставке рис. 1. В синглетном состоянии абсолютная величина внутренней энергии увеличивается с ростом величины альтернирования обмена,  $(E-0.85) \approx 0.63\delta^{1.2(1)}$ , что неплохо согласуется с результатами для одномерной цепочки,  $\sim \delta^{4/3}$  [25]. Возможно, различие в показателе степени вызвано корреляционными эффектами взаимодействия цепочек, которые учитываются в виде самосогласованных подрешеточных полей  $\mathbf{h}$  (3). Магнитное состояние для  $\delta > \delta_c$  является синглетным, а конечная величина  $\langle (S^z)^2 \rangle$  обусловлена синглетными возбуждениями с  $\Delta S^z = 0$ , так как вычисления по методу Монте-Карло проводятся при конечных температурах. Фазовая граница перехода хорошо аппроксимируется линейной зависимостью  $\lambda = 0.52(3)\delta$ .

Если рассматривать антиферромагнетик с альтернированным обменом в виде двух подрешеток с сильным  $I$  и слабым  $K$  обменными взаимодействиями,

то можно выделить три типа спионных (парных) возбуждений:  $I-I, K-K, I-K$ . В подрешеточном поле ( $h^{+,-} \neq h^z$ ) каждое из этих спионных зон может расщепиться на подзоны с поперечными и продольными спиновыми возбуждениями. Волновые функции этих возбуждений на  $K-K$ -связях можно представить в виде

$$\psi^{s1} \propto c_1(|\dots \uparrow\downarrow\downarrow\dots\rangle - |\dots \downarrow\downarrow\uparrow\dots\rangle) + c_2(|\dots \downarrow\uparrow\uparrow\dots\rangle - |\dots \uparrow\downarrow\downarrow\dots\rangle)$$

и на  $I$ -связях как

$$\begin{aligned} \psi_i^{s2} &\propto (|\dots \uparrow\uparrow\dots \downarrow\downarrow\dots\rangle + |\dots \downarrow\downarrow\dots \uparrow\uparrow\dots\rangle), \\ \psi_t^{s2} &\propto (|\dots \uparrow\downarrow\dots \uparrow\downarrow\dots\rangle + |\dots \downarrow\uparrow\dots \uparrow\downarrow\dots\rangle). \end{aligned} \quad (7)$$

Этот тип возбуждений не приводит к изменению  $z$ -компоненты полного спина ( $\Delta S^z = 0$ ) и не дает вклада в продольную восприимчивость, поэтому минимум на температурной зависимости  $\chi(T)$  при некоторой температуре  $T_{si}$  соответствует заполнению зоны синглетных спионных возбуждений. Возбуждения на  $I-K$ -связях приводят к изменению  $z$ -компоненты спина  $\Delta S^z = 1$  и относятся к спионным, либо спин-волновым, что вызывает максимум на температурной зависимости восприимчивости при  $T_{ti}$ . Заполнение синглетной зоны возбуждений в  $I-I$ -подрешетке приведет к увеличению параметра упорядочения димеров  $q$  (4), а в  $K-K$ -подрешетке — к резкому уменьшению параметра  $q$ . Расщепление на подзоны качественно определим по величине изменения от температуры параметра димеризации  $q^{x,y,z}$  и ближних корреляционных функций  $\langle S_0^\alpha S_1^\beta \rangle$  по продольным и поперечным компонентам спина.

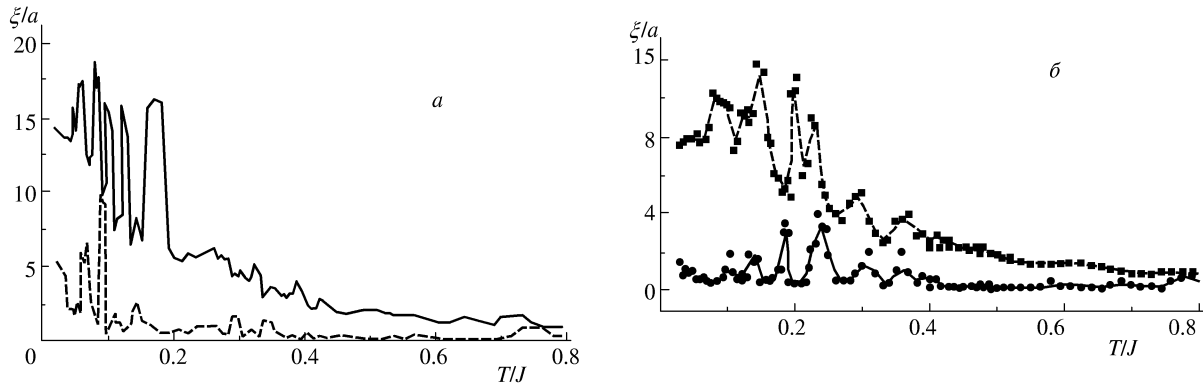


Рис. 2. Температурная зависимость корреляционных радиусов двухспиновой (сплошная линия на рис. а и ■ на рис. б) и четырехспиновой (штриховая линия на рис. а и • на рис. б) корреляционных функций для антиферромагнитного состояния с  $\lambda=0.1$ ,  $\delta=0.15$  (а) и для синглетного состояния с  $\lambda=0.05$ ,  $\delta=0.14$ ,  $h^{+-}=1.4h^z$  (б)

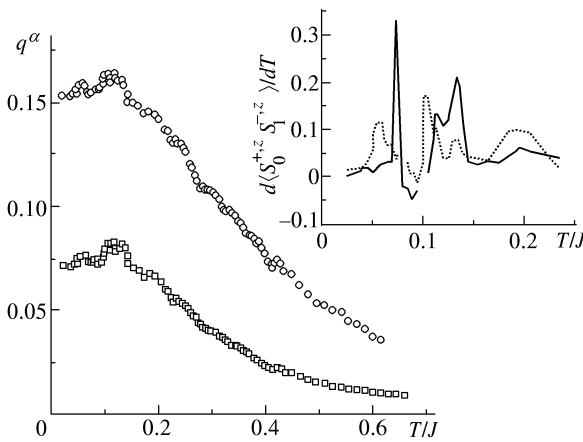


Рис. 3. Зависимость параметра упорядочения димеров  $q^\alpha$  ( $\alpha = z$  ( $\square$ ),  $x, y$  ( $\circ$ )) от температуры в антиферромагнетике с  $\lambda = 0.1$ ,  $\delta = 0.15$ . На вставке изображена зависимость производной  $d\langle S_0^\alpha S_1^\beta \rangle / dT$  с  $\alpha, \beta = z$  (пунктирная линия) и с  $\alpha = +, \beta = -$  (сплошная линия) от температуры

Температурные зависимости указанных выше характеристик вычислены для трех параметров междоцепочечного обмена,  $\lambda=0.05, 0.1, 0.25$ , и соответствующих величин альтернирования обмена,  $\delta = 0.05, 0.075, 0.12, 0.14, 0.2$ ;  $\delta = 0.1, 0.15, 0.2, 0.3, 0.45, 0.6$ ;  $\delta = 0.15, 0.3, 0.45, 0.6, 0.75$ . Значения критических температур определены по максимумам корреляционных радиусов  $\xi_2(T)$ ,  $\xi_4(T)$ , изображенных на рис. 2 для антиферромагнитного и синглетного состояний, по максимальному изменению продольной компоненты квадрата полного спина  $\langle (S^z)^2 \rangle$ , т. е. по максимумам  $d\langle (S^z)^2 \rangle / dT$  и экстремальным точкам температурной зависимости  $q(T)$ , приведенным на рис. 3. На основе анализа температурного поведения восприимчивости  $\chi(T)$  (рис. 4) критические температуры ассоциировались с энергией заполнения три-

плетной ( $\chi = \max$ ) и синглетной ( $\chi = \min$ ) зон спиновых возбуждений. Заполнение этих зон образует три максимума на температурной зависимости теплоемкости (рис. 4).

Качественная оценка соотношения между этими температурами,  $T_{ti} - T_{si} \propto \sqrt{\lambda^2 \pm 2\delta\lambda + \delta^2}$ , где знак минус соответствует  $T_{s1}$ , а плюс —  $T_{s2}$ , по-видимому, будет справедлива и для энергетических щелей между этими зонами возбуждений. Еще более слабым эффектом является расщепление под действием подрешеточного поля предполагаемых спиновых зон, которое проявляется для  $\delta > 0.1$ . Температура, при которой изменение корреляционной функции между ближайшими соседями по продольным компонентам спина значительно превышает это изменение по поперечным (наиболее ярко это проявляется при вычислении  $d\langle S_0^{s,+} S_1^{s,-} \rangle / dT$  (вставка на рис. 3)), относится к энергии возбуждения продольной спиновой моды. В синглетном состоянии на расстоянии порядка корреляционного радиуса подрешеточное поле оказывает воздействие на спиновые возбуждения с длиной волны  $\sim \pi/\xi$  и для  $\delta \gg \delta_c$  эффект взаимодействия цепочек не сказывается на перераспределении плотности спиновых возбуждений (по сравнению с одномерной цепочкой) при  $\lambda \leq 0.01$ . Возможно, что каждая спиновая подзона характеризуется определенным волновым вектором структуры  $Q_i < \pi/a$ , который можно найти из фурье-спектра спиновой корреляционной функции  $S(q)$ , определенного в синглетном состоянии на расстоянии  $k \sim 1/\xi_2$ . Так,  $S(q)$  в синглетном состоянии содержит слабые дополнительные максимумы на  $Q_i$ , количество которых растет с повышением температуры.

Температура Нееля определялась из подрешеточной намагниченности  $\sigma \rightarrow 0$ . В области значений альтернирования связей, близких к крити-

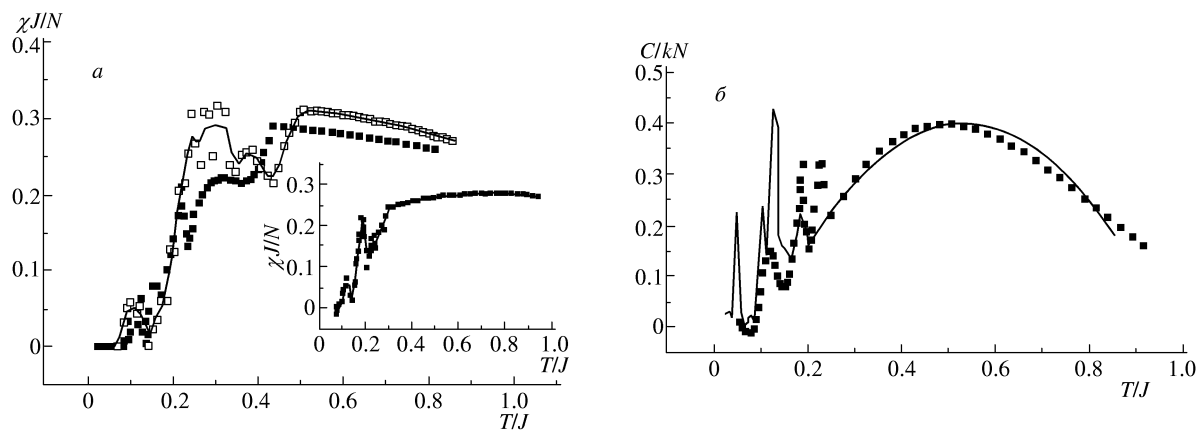


Рис. 4. а) Температурная зависимость восприимчивости, вычисленная в подрешеточном поле  $h^{+, -} = 0$  ( $\square$ ) и  $h^{+, -} \neq 0$  ( $\blacksquare$ ) согласно (3) в антиферромагнетике с  $\lambda = 0.1$ ,  $\delta = 0.15$ . На вставке приведена  $\chi(T)$  в синглетном состоянии с  $\lambda = 0.05$ ,  $\delta = 0.14$ ,  $h^{+, -} = 1.4h^z$ . б) Зависимость теплоемкости от температуры в антиферромагнетике с альтернированным обменом и параметрами  $\lambda = 0.1$ ,  $\delta = 0.15$  (сплошная линия);  $\lambda = 0.05$ ,  $\delta = 0.14$  ( $\blacksquare$ )

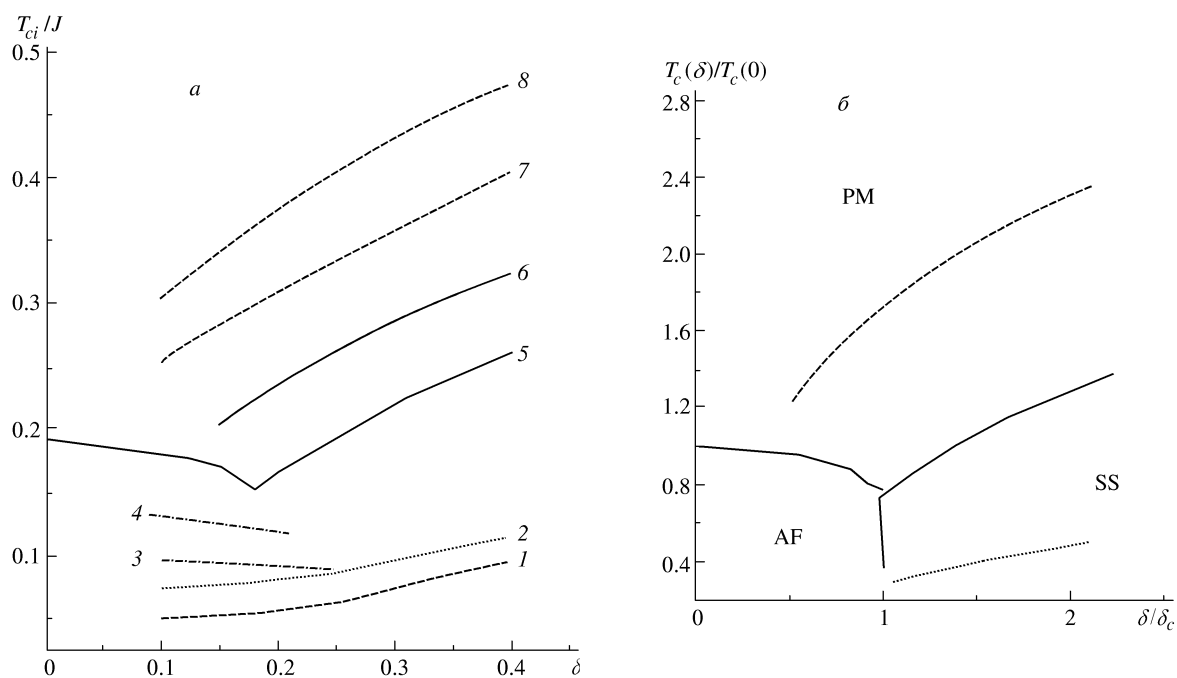


Рис. 5. Критические температуры, связанные с энергией заполнения синглетных (1, 2, 7, 8) и триплетных (3, 4, 5, 6) спиновых зон, в зависимости от величины альтернирования обмена для  $h^{+, -} \neq h^z$  (а). Фазовая диаграмма антиферромагнетика (AF), синглетного состояния (SS) и парамагнетика (PM) на плоскости нормированная температура — нормированная величина альтернирования обмена для  $h^{+, -} = h^z$  (б)

ческим, в температурном поведении намагниченности отчетливо проявляются два резких спада, например для  $\delta = 0.15, \lambda = 0.1$  при  $T_{s1}/J_1 = 0.06$ ,  $T_t/J_1 = 0.11$ , которые ассоциируются с заполнением триплетной спиновой зоны возбуждений в интервале температур  $T_{s1} < T < T_t$  и спин-волновой зоны при  $T > T_t$ . Вычисленные критические температуры для  $\lambda = 0.1$  приведены на рис. 5. Из этой диаграммы становится понятным исчезновение дальнего анти-

ферромагнитного порядка. С ростом альтернирования обмена плотность спин-волновых возбуждений уменьшается и исчезает при  $T_N \sim T_t$ . В случае равенства подрешеточных полей,  $h^{+, -} = h^z$ , расщепление на подзоны исчезает, и для синглетного и парамагнитного состояний существуют только две критические температуры, выше и ниже температуры спин-пайерлсовского перехода, изображенные на рис. 5 штриховыми и пунктирными линиями. С сим-

метричной точки зрения можно выделить три фазы на плоскости температура — альтернирование обмена: область с дальним антиферромагнитным порядком, область, где термодинамическое значение спина равно нулю, т. е. синглетное состояние, и область, где  $\langle S^z \rangle \sim H/k_B T$ , т. е. парамагнитное состояние. Фазовые диаграммы (см. рис. 5б), вычисленные для трех параметров  $\lambda$  в нормированных единицах, совпадают между собой в пределах погрешности вычислений.

На основе полученных результатов можно объяснить ряд непонятных экспериментальных данных в антиферромагнетике  $\text{CuWO}_4$  с альтернированным обменом [2]: существование энергетической щели в центре зоны спектра спиновых возбуждений при  $\omega = 1.4$  мэВ, разные температурные зависимости интенсивности спиновых мод, одна из которых исчезает при  $T = 24$  К, другая — бесщелевая — сохраняется и при  $T = 36$  К [2]. Температурная зависимость восприимчивости в области  $40 < T < 70$  К имеет вогнутый вид [9]. Вычисленные нами параметры внутрицепочечного обмена  $J = 11.6$  мэВ,  $K = 8.9$  мэВ хорошо согласуются с результатами нейтронографических измерений  $J = 11.56$ ,  $K = 9.25$  мэВ [26]. Величина межцепочечного обмена  $J_2 \sim 1$  мэВ неплохо согласуется со средним значением  $J_2 \approx 1.7$  мэВ [2]. Согласно расчетам по методу Монте-Карло в интервале температур  $17 < T < 24$  К заполняется спиновая триплетная зона. Бесщелевая мода при  $T > 24$  К соответствует спин-волновым возбуждениям, которые должны исчезнуть при  $T_c \approx 40$  К. В области температур  $52 < T < 86$  К заполняется зона синглетных возбуждений, которые не дают вклада в магнитную восприимчивость, что обуславливает прогиб в температурном поведении  $\chi(T)$ . Возможно, что при  $T < 12$  К существует еще одна синглетная мода с энергией щели  $\omega \sim 0.7$  мэВ.

Ряд энергетических щелей в центре зоны в  $\text{Bi}_2\text{CuO}_4$  [4, 7] с тетрагональной симметрией  $P4/nsc$  и альтернированным обменом в направлении [111] можно объяснить существованием синглетных и триплетных спиновых возбуждений. Зависимости резонансного поля  $H_0$  и поля анизотропии  $H_a$  от температуры являются немонотонными и их производные  $dH_0/dT$  и  $dH_a/dT$  имеют несколько разных по величине максимумов при соответствующих температурах,  $T_{ci} = 8, 12, 18, 26$  К и  $T_{ci} = 7, 11, 17, 26, 38$  [10]. При выбранных параметрах внутри- и межцепочечного обмена,  $J_1 = 107$  К,  $J_2 = 28$  К, величины альтернирования обмена  $\delta = 0.2$ , а также вычисленные нами критические температуры, связанные с заполнением расщепленных синглетных и триплетной спиновых зон при  $T_{ci}^{MC} \simeq 7, 11, 15, 25, 30, 35$ , неплохо согласуются с эксперименталь-

ными результатами. Возможно, энергетические щели в центре зоны Бриллюэна при  $\omega_{s1} = 0.7$  мэВ и  $\omega_{s2} = 3.4, 4$  мэВ вызваны синглетными возбуждениями продольных и поперечных спиновых мод, а при  $\omega_t = 1, 7, 2.1$  мэВ — триплетными возбуждениями.

Несколько мод спиновых возбуждений существуют и в синглетных магнетиках с альтернированным обменом. Например, в  $(\text{VO})_2\text{P}_2\text{O}_7$  обнаружены две щели при  $\omega = 3.12, 5.75$  мэВ [5]. Возможно, в этом соединении имеется еще одна синглетная мода со щелью в центре зоны при  $\omega \simeq 0.6$  мэВ и со слабой интенсивностью. Для  $\lambda \simeq 0.02$  [5] рассчитанная нами величина альтернирования обмена  $\delta \approx 0.15(2)$  лежит в интервале значений  $\delta_n = 0.12$  и  $\delta_\chi = 0.18$ , определенных соответственно в экспериментах по нейтронному резонансу (н)[5] и из температурной зависимости восприимчивости [27].

Наиболее полно исследовано соединение  $\text{CuGeO}_3$  со спин-пайерлсовским переходом. Согласно нейтронографическим данным отношение обменных взаимодействий составляет  $J_c : J_b : J_a = 100 : 10 : 1$  [28] и по нашим оценкам для  $\delta > \delta_c \simeq 0.1$  магнетик с таким соотношением обменов может находиться в синглетном состоянии. С помощью данных по неупругому рассеянию нейтронов обнаружены три щели в центре зоны при  $\omega_i = 0.8$  мэВ (1.9–2.1) мэВ [29],  $4(\pm 1)$  мэВ [30] и широкий максимум рассеяния нейтронов при  $\omega \simeq 6$  мэВ [29], два значения которых близки к результатам  $\omega = 1.86, 4.74$  мэВ, полученным из ЭПР-измерений [14]. Рассеяние света на границе зоны Бриллюэна также приводит к трем энергетическим щелям  $\omega_i = 2.2, 3.6, 5.8$  мэВ [31, 32]. Магнитная теплопроводность в магнитном поле до  $H = 14$  Тл имеет два максимума при  $T = 5.5, 22$  К [16], ширина линии ЭПР расходится при  $T \simeq 4, 14$  К [15]. В магнитном поле, приложенном вдоль оси  $c$ , температурная зависимость констант магнитострикции имеет три максимума при  $T \simeq 6, 13, 26$  К и в поле  $H \parallel b$  при  $T \simeq 4, 11, 20$  К [17].

Все эти результаты хорошо объясняются при выборе двух параметров внутрицепочечного обмена,  $I = 145$  К и  $K = 109$  К, которые неплохо согласуются с данными, полученными на основе 1D-модели Гейзенберга, в рамках которой вычислена триплетная щель  $\omega \simeq 2$  мэВ [33] и температура спин-пайерлсовского перехода  $T_{sp} = 14$  К. Обнаружение термодинамических аномалий выше и ниже  $T_{sp}$ , дополнительных энергетических щелей, анизотропии критических магнитных полей, которые различаются в пределах  $\sim 10\%$ , когда поле приложено по оси альтернирования обмена  $H_c = 13.9$  Тл и перпендикулярно ей  $H_b = 12.6$  Тл [34], остается необъясненным. Как указывалось ранее, на рас-

стоянии порядка корреляционного радиуса  $\xi_2 \simeq 10c$ , межцепочечное взаимодействие приводит к расщеплению низкоэнергетической зоны синглетных возбуждений относительно ее центра на продольную и поперечную моды возбуждений с энергией щели  $\omega_b \simeq 0.5$  мэВ,  $\omega_c \simeq 0.8$  мэВ и соответствующими критическими температурами  $T_b \simeq 3.7$  К,  $T_c \simeq 6$  К; расщеплению триплетных мод с энергией щелей  $\omega_b \simeq 1.7$  мэВ,  $\omega_c \simeq 2$  мэВ и соответствующими критическими температурами  $T_b \simeq 14$  К,  $T_c \simeq 18$  К, а также расщеплению высокоэнергетических продольных и поперечных синглетных мод с  $\omega_b \simeq 4.5$  мэВ,  $\omega_c \simeq 5.8$  мэВ и соответствующими температурами  $T_b \simeq 30$  К,  $T_c \simeq 39$  К. Однако при  $T > T_{sp}$  в  $\text{CuGeO}_3$  наблюдаются небольшие структурные искажения, которые приводят к изменению величины обмена и его альтернирования. Поэтому в области температур  $20 < T < 26$  К можно говорить о качественном согласии величины температурного интервала  $\Delta T_{ex} = 6$  К с результатами расчетов по методу Монте-Карло  $\Delta T_{MC} = 9$  К. Возможно, в  $\text{CuGeO}_3$  в синглетном состоянии ось квантования направлена по оси  $b$ , и тогда хорошо объясняется анизотропия критического магнитного поля. Таким образом, наши расчеты предсказывают поляризационную зависимость рассеяния света, неупругого рассеяния нейтронов вдоль оси димеризации цепочки. В области низких температур система является нелинейной, поэтому для вычисления резонансных частот поглощения необходимо пользоваться определением нелинейной восприимчивости  $M_\gamma^3 = \chi_{\gamma,\alpha,\beta,\delta} H_\beta H_\alpha H_\delta$ . Возможно, в результате нелинейного взаимодействия поля со спиновой подсистемой происходит переход из основного синглетного в возбужденное синглетное состояние, которое наблюдается при ЭПР-изменениях на частоте  $\omega = 294$  ГГц [14], и переходы между подзонами  $\psi_i^s \rightarrow \psi_i^s$  на частоте  $f = 34$  ГГц в поле  $H \approx 12$  кЭ [15]. Интенсивность обоих резонансов имеет максимум при  $T = 6$  К и исчезает при  $T < 2$  К, что хорошо согласуется с нашими оценками для энергии синглетной щели и критической температуры.

Итак, дальний антиферромагнитный порядок в квазинизкомерном антиферромагнетике с альтернированным обменом сохраняется при  $\lambda \leq 0.52(3)\delta$ . Альтернирование вызывает квантовое сокращение спина на узле  $\sigma/\sigma(0) - 1 = 0.71(6)\delta^{2.5(2)}$ ,  $\sigma(0) = 1.9\sqrt{\lambda}$ . В альтернированном антиферромагнетике и в синглетном состоянии обнаружены несколько температур, при которых корреляционные радиусы максимальны, а термодинамические характеристики имеют особенности, которые интерпретируются в рамках модели дополнительных

спиновых синглетных и триплетных возбуждений. Под действием подрешеточного самосогласованного поля ( $h^{+,-} \neq h^z$ ) спиновые зоны расщепляются на продольные и поперечные моды возбуждений. С помощью динамического скейлинга между временем релаксации и корреляционным радиусом вычислены температуры, соответствующие максимумам производных поля резонанса и ширин линий от температуры в  $\text{Bi}_2\text{CuO}_4$ . Предсказаны возможные спиновые моды возбуждений и энергетические щели в центре зоны в антиферромагнитных состояниях соединений  $\text{CuWO}_4$ ,  $\text{Bi}_2\text{CuO}_4$  и в синглетных состояниях соединений  $(\text{VO})_2\text{P}_2\text{O}_7$ ,  $\text{CuGeO}_3$ . Вычислены температуры, соответствующие максимумам магнитной теплопроводности, константы магнитострикции и расходимости ширины линии ЭПР в  $\text{CuGeO}_3$ . Предсказана поляризационная зависимость рассеяния света и нейтронов вдоль оси димеризации цепочки.

Работа выполнена при финансовой поддержке INTAS (грант № 97-12124).

## ЛИТЕРАТУРА

1. D. Khomskii, W. Geertsma, and M. Mostovoy, *Czech. J. Phys.* **46**, suppl., pt. 56, 3239 (1996).
2. B. Lake, D. A. Tennant, R. A. Cowley, J. D. Axe, and C. K. Chen, *J. Phys. Cond. Mat.* **8**, 8613 (1996).
3. K. Yamada, K. Takada, S. Hosoya, Y. Endoh, and N. Tomonaga, *J. Phys. Soc. Jap.* **60**, 2406 (1991).
4. B. Roessli, P. Fischer, A. Furrer, G. Petrakovskii, K. Sablina, and B. Fedoseev, *J. Apl. Phys.* **73**, 6448 (1993).
5. A. W. Garrett, S. E. Nagler, D. A. Tennant, B. C. Sales, and S. Burnes, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 745 (1997).
6. M. Hirota and Y. Isao, *J. Phys. Soc. Jap.* **66**, 1908 (1997).
7. G. A. Petrakovskii, K. A. Sablina, A. I. Pankrats et al., *JMMM* **140**, 1991 (1995).
8. M. Ain, G. Dhalenne, O. Guiselin, B. Hennion, and A. Revcolevschi, *Phys. Rev. B* **47**, 8167 (1993-I).
9. А. Г. Андерс, А. И. Звягин, М. И. Кобец, Л. Н. Пелих, Е. Н. Хацько, В. Г. Юрко, *ЖЭТФ* **62**, 1798 (1972).
10. A. I. Pankrats, G. A. Petrakovskii, and K. A. Sablina, *Sol. St. Comm.* **91**, 121 (1994).
11. Ю. П. Гайдуков, В. Н. Никифоров, Н. Н. Самарин, *ФНТ* **22**, 920 (1996).



12. L. N. Bulaevskii, A. I. Buzdin, and D. I. Khomskii, *Sol. St. Comm.* **27**, 5 (1978).
13. G. S. Uhrig, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 163 (1997).
14. T. M. Brill, J. P. Boucher, J. Voiron et al., *Phys. Rev. Lett.* **73**, 1545 (1994).
15. А. И. Смирнов, В. Н. Глазнов, Л. И. Леонюк и др., *ЖЭТФ* **114**, 1876 (1998).
16. Y. Ando, J. Takeya, D. L. Sisson, S. G. Doettinger et al., *Phys. Rev. B* **58**, R2913 (1998).
17. Г. А. Петраковский, А. М. Воротынов, Г. Шимчак, Л. Гладчук, *ФТТ* **40**, 1671 (1998).
18. L. D. Fadeev and L. A. Takhtajan, *Phys. Lett. A* **85**, 375 (1981).
19. D. J. Scalapino, Y. Imry, and I. Pencus, *Phys. Rev. B* **11**, 2042 (1975).
20. H. J. Schulz, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 2790 (1996).
21. H. Raedt and A. Lagendijk, *Phys. Rep.* **127**, 233 (1985).
22. С. С. Аплеснин, *ФТТ* **38**, 1868 (1996).
23. N. Kawashima and J. E. Gubernatis, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 1295 (1994).
24. P. W. Anderson, *Mater. Res. Bull.* **8**, 153 (1973).
25. M. C. Gross and D. S. Fisher, *Phys. Rev. B* **19**, 402 (1979).
26. J. P. Doumerc, J. M. Dance, J. P. Chaminade, M. Poucherd, P. Hagemuller, and M. Krussamova, *Res. Bull.* **16**, 985 (1981).
27. G. Barnes, *Phys. Rev. B* **35**, 219 (1987).
28. M. Nishi, O. Fujita, and J. Akimitsu, Technical Report of ISSR ser. A **2759**, 1 (1993).
29. M. Ain, J. E. Lorenzo, L. P. Regnault, and G. Dhalenna, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 1560 (1997).
30. B. Roessli, P. Fischer, J. Schefer, W. Buhner et al., *J. Phys. Cond. Matter* **6**, 8469 (1994).
31. A. Damascelli, Vander Marel, F. Parmigiani, G. Dhalenns, and A. Revcolevschi, *Phys. Rev. B* **56**, R11373 (1997).
32. G. Els, P. H. M. Loostrecht, and P. Lemmens, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 5138 (1997).
33. N. Nishi, O. Fujita, J. Akimitsu, K. Kakurai, and Y. Fujii, *Phys. Rev. B* **52**, R6959 (1995-II).
34. H. Hori, M. Furesocwa, S. Sugai, M. Honda, and T. Takeuchi, *Physica B* **211**, 180 (1995).