

# МЕЗОСКОПИЧЕСКИЕ СПИНОВЫЕ КЛАСТЕРЫ, ФАЗОВОЕ РАЗДЕЛЕНИЕ И ИНДУЦИРОВАННЫЙ ПОРЯДОК В СПИН-ЩЕЛЕВЫХ МАГНЕТИКАХ

*А. И. Смирнов\*, В. Н. Глазков*

*Институт физических проблем им. П. Л. Капицы Российской академии наук  
119334, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 23 апреля 2007 г.

Во многих низкоразмерных спиновых системах с антиферромагнитным взаимодействием магнитное упорядочение нееевского типа отсутствует и такие системы остаются в квантово-разупорядоченном (спин-жидкостном) состоянии вплоть до нулевой температуры. Разупорядоченное состояние оказывается устойчивым к слабым возмущениям, если магнитные возбуждения отделены от основного состояния энергетической щелью. Устойчивость спин-жидкостного основного состояния нарушается в результате введения примесей или достаточно сильного магнитного поля. В данном обзоре представлен ряд экспериментов, направленных на обнаружение и идентификацию мезоскопических спиновых кластеров, возникающих вблизи атомов примеси, а также на определение пространственной структуры индуцированного примесями магнитного порядка в спин-щелевых системах, определение низкочастотного спектра возбуждений индуцированной полем антиферромагнитной фазы.

PACS: 75.10.Jm, 76.50.+g

## СОДЕРЖАНИЕ

<b>1. Введение</b> .....	985	<b>4. Изучение коллективных магнитных мод «триплет–дефект» в халдейновском магнетике</b> .....	993
1.1. Примеры модельных систем, демонстрирующих спин-жидкостное поведение .....	985	<b>5. Исследование стимулированного дефектами магнитного упорядочения</b> .....	994
1.1.1. Цепочки спинов $S = 1/2$ .....	985	<b>6. Микроскопическое разделение фаз при индуцированном примесями антиферромагнитном упорядочении</b> .....	997
1.1.2. Цепочки спинов $S = 1$ .....	985	<b>7. Влияние магнитного поля на микроскопическое фазовое разделение при индуцированном примесями антиферромагнитном упорядочении в спин-пайерлсовском магнетике</b> .....	999
1.1.3. Альтернированные цепочки спинов и димерные магнетики .....	986	<b>8. Резонансные моды димерного спин-щелевого магнетика <math>TiCuCl_3</math>. Исследование стимулированной полем упорядоченной фазы димерного магнетика</b> .....	1001
1.2. Низкоразмерные и спин-щелевые системы в реальных кристаллах .....	986	<b>Литература</b> .....	1003
1.3. Влияние дефектов и магнитного поля на спин-щелевые системы .....	987		
<b>2. Магнитный резонанс спиновых кластеров и триплетных возбуждений в спин-пайерлсовском магнетике</b> .....	988		
<b>3. Магнитный резонанс халдейновского магнетика с дефектами</b> .....	991		

\*E-mail: smirnov@kapitza.ras.ru

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Задача об основном состоянии системы спинов, расположенных на регулярной решетке и связанных антиферромагнитным обменным взаимодействием с гамильтонианом Гейзенберга

$$\hat{H} = \sum_{\langle i,j \rangle} J_{ij} \hat{S}_i \hat{S}_j, \quad J_{ij} > 0, \quad (1)$$

является одной из классических задач теории магнетизма. Неелевское состояние (соответствующее чередованию спинов, направленных «вверх» и «вниз»,  $\psi_N = |\dots \uparrow\downarrow\uparrow\downarrow \dots\rangle$ ) не является собственной функцией гамильтониана (1). Многочисленные эксперименты показывают, что реальные кристаллы с простой геометрией обменных связей (например, в простой кубической решетке) упорядочиваются антиферромагнитным образом при температуре  $T_N \sim J/k_B$ . Упорядоченное состояние такого антиферромагнетика при  $T = 0$  К подобно неелевскому, но отличается от него некоторой перенормировкой (редукцией) среднего значения проекции спина на узле.

Однако помимо таких, «обычных», антиферромагнетиков существует широкий класс систем, остающихся в коррелированном, но разупорядоченном состоянии вплоть до абсолютного нуля температуры. Примеры таких систем будут рассмотрены ниже. Подчеркнем, что речь идет о концентрированном магнетике на регулярной решетке. В таких системах наблюдаются разнообразные и неожиданные с классической точки зрения эффекты, связанные с фундаментальными квантовыми свойствами спинового момента количества движения. В частности, такие спиновые системы с антиферромагнитным обменным взаимодействием демонстрируют так называемое спин-жидкостное поведение, с отсутствием магнитного упорядочения вплоть до абсолютного нуля температуры, что коренным образом отличает их от традиционно изучавшихся в XX веке упорядоченных магнетиков, например ферромагнетиков, антиферромагнетиков, ферримагнетиков.

### 1.1. Примеры модельных систем, демонстрирующих спин-жидкостное поведение

#### 1.1.1. Цепочки спинов $S = 1/2$

Задача об основном состоянии, спектре возбуждений и свойствах однородной антиферромагнитной цепочки спинов  $S = 1/2$  хорошо исследована.

Методика нахождения волновой функции основного состояния однородной антиферромагнитной цепочки спинов  $S = 1/2$  была предложена в 1931 г. Х. Бете (анзац Бете) [1]. Основное состояние однородной антиферромагнитной цепочки спинов  $S = 1/2$  синглетно и в нем отсутствует магнитный порядок, т. е. среднее значение проекции спина на каждом узле равно нулю:  $\langle S_i^z \rangle = 0$ . Энергия основного состояния такой цепочки [2] в расчете на один спин равна  $E_0 = -J(\ln 2 - 0.25) \approx -0.44J$  и оказывается меньше, чем среднее значение энергии, соответствующее неелевскому состоянию ( $\psi_N = |\dots \uparrow\downarrow\uparrow\downarrow \dots\rangle$ ),  $E_N = -0.25J$ .

Спектр возбуждений однородной цепочки спинов  $S = 1/2$  представляет собой бесщелевой континуум [3]. Хотя дальний магнитный порядок отсутствует, длина спин-спиновой корреляции оказывается бесконечной (корреляционная функция убывает по степенному закону) [4], т. е. при температуре абсолютного нуля спиновые цепочки находятся в критической точке.

Поведение намагниченности спиновой цепочки при нулевой температуре рассмотрено в работе [5], а температурная зависимость восприимчивости вычислена Дж. Боннер и М. Фишером [6]. При высоких температурах ( $k_B T \gg J$ ) магнитная восприимчивость следует закону Кюри, а при низких температурах ( $k_B T \lesssim J$ ) слабо зависит от температуры и имеет порядок величины магнитной восприимчивости обычного антиферромагнетика.

#### 1.1.2. Цепочки спинов $S = 1$

В 1983 г. Ф. Д. М. Халдейн указал на принципиальное различие между свойствами однородных цепочек целых и полуцелых спинов [7, 8]. Основное состояние цепочки целых спинов является синглетным и отделено от ближайшего возбуждения энергетической щелью обменного происхождения  $\Delta$  (в пределе  $S \rightarrow \infty$  значение  $\Delta \approx JS^2 \exp(-\pi S)$ ). Существование щели в энергетическом спектре было подтверждено численными методами [9, 10]. Минимум энергии возбуждений достигается на волновом векторе  $k = \pi/a$  ( $a$  — период цепочки) и для  $S = 1$  равен  $\Delta \approx 0.41J$ . Магнитная корреляционная длина при этом конечна и равна примерно семи межузельным расстояниям [11].

Наличие щели в спектре магнитных возбуждений определяет низкотемпературное поведение магнитных свойств цепочки спинов  $S = 1$ . В частности, магнитная восприимчивость обращается в нуль при низкой температуре.

### 1.1.3. Альтернированные цепочки спинов и димерные магнетики

При специальном структурировании цепочки спинов  $S = 1/2$  также демонстрируют появление энергетической щели. Это структурирование предполагает удвоение периода цепочки, при котором значение обменного интеграла между соседними ионами попеременно принимает одно из двух значений  $J + \delta J$  и  $J - \delta J$ , т. е. происходит альтернирование обменного взаимодействия (димеризация цепочки). Гамильтониан для альтернированной цепочки спинов может быть записан в виде

$$\hat{H} = \sum_n J(1 + (-1)^n \delta) \hat{S}_n \hat{S}_{n+1}. \quad (2)$$

Величина возникающей щели в спектре  $\Delta$  определяется параметром альтернирования  $\delta$ , и для  $\delta \ll 1$  она равна [12]  $\Delta = (2/\pi)\delta J |\ln(\delta)|$ . Отметим, что в других модельных подходах получается несколько отличная зависимость  $\Delta(\delta)$  [13]: в ХУ-модели, допускающей точное решение,  $\Delta \sim \delta J$ , в модели Латтинжера  $\Delta \propto (\delta)^{2/3}$ . Как и в случае цепочки спинов  $S = 1$ , появление спиновой щели приводит к конечности длины спин-спиновых корреляций:  $\xi \sim v\hbar/\Delta$  (здесь  $v$  — скорость спиновых возбуждений).

Отметим, что при  $\delta = 1$  альтернированная цепочка разбивается на невзаимодействующие димеры — пары антиферромагнитно связанных спинов. Основное состояние антиферромагнитного димера является немагнитным синглетом, а возбужденное состояние отделено щелью  $\Delta \sim J$ . Включение слабого взаимодействия между димерами сохраняет эту особенность энергетического спектра независимо от геометрии междимерных связей, поэтому димерный магнетик может быть реализован не только в виде одномерной цепочки, но и в виде двумерной или трехмерной сети взаимодействующих димеров. Свойства димерного магнетика аналогичны свойствам альтернированных цепочек: основное состояние синглетно, возбуждения отделены от немагнитного основного состояния щелью обменного происхождения, магнитная корреляционная длина конечна.

Из-за наличия энергетической щели магнитная восприимчивость альтернированной спиновой цепочки и димерного магнетика обращается в нуль при низкой температуре.

### 1.2. Низкоразмерные и спин-щелевые системы в реальных кристаллах

Все реальные кристаллы трехмерны, однако в некоторых случаях обменное взаимодействие магнитных ионов вдоль одного из направлений значительно сильнее, чем в других направлениях. В результате в трехмерном кристалле образуются слабо взаимодействующие низкоразмерные (одно- или двумерные) системы. Такие магнетики называют соответственно квазиодномерными или квазидвумерными.

Слабость обменного взаимодействия в некоторых кристаллографических направлениях может быть связана, например, с тем, что расстояние между магнитными ионами вдоль этих направлений значительно больше, чем в других направлениях. Такая ситуация часто реализуется в органических соединениях, где цепочки магнитных ионов оказываются разделены крупными немагнитными органическими комплексами. В неорганических соединениях обменное взаимодействие обычно возникает не из-за непосредственного перекрытия орбиталей магнитных ионов, а через промежуточный ион (например, через ион кислорода). Согласно известному правилу Гуденафа–Канамори–Андерсона [14], при угле суперобменной связи равном  $90^\circ$  обменный интеграл обращается в нуль. Таким образом, из-за специального расположения кислородного окружения обменное взаимодействие между ионами также может оказаться существенно ослабленным.

Однородная цепочка спинов  $S = 1/2$  при нулевой температуре находится в критической точке. Поэтому в реальных кристаллах, содержащих цепочки спинов  $1/2$ , сколь угодно слабое межцепочечное взаимодействие с обменным интегралом  $J'$  приводит к установлению дальнего магнитного порядка при температуре  $T_N \sim \sqrt{JJ'}$  [15, 16]. Однако низкоразмерные системы со щелью в энергетическом спектре (спин-щелевые системы) оказываются устойчивыми к таким слабым взаимодействиям и сохраняют свои особенности: синглетное неупорядоченное основное состояние, щель в спектре, отделяющую основное состояние от возбуждений, конечную магнитную корреляционную длину, нулевую восприимчивость при низких температурах.

К настоящему времени исследован целый ряд соединений с щелевым спектром магнитных возбуждений. Так, халдейновская щель была обнаружена в кристаллах органических соединений, содержащих цепочки спинов  $S = 1$ :  $\text{Ni}(\text{C}_2\text{H}_8\text{N}_2)_2\text{NO}_2(\text{ClO}_4)$  (сокращенно NENP) [17],  $\text{Ni}(\text{C}_3\text{H}_{10}\text{N}_2)_2\text{NO}_2(\text{ClO}_4)$

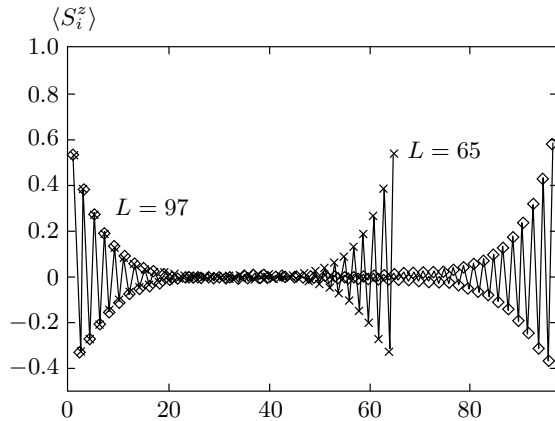


Рис. 1. Спиновая структура фрагмента халдейновской спиновой цепочки с открытыми граничными условиями для нечетного числа спинов и полной проекции  $S_{tot}^z = 1$  (из работы [11]). По горизонтальной оси отложен номер магнитного иона во фрагменте цепочки

(NINO) [18],  $\text{Ni}(\text{C}_3\text{H}_{10}\text{N}_2)_2\text{N}_3(\text{ClO}_4)$  (NINAZ) [19], а также в неорганических соединениях  $\text{Y}_2\text{BaNiO}_5$  [20] и  $\text{PbNi}_2\text{V}_2\text{O}_8$  [21]. Димеризованные цепочки спинов  $S = 1/2$  реализуются, например, в соединении  $(\text{VO})_2\text{P}_2\text{O}_7$  [22]. Также димеризованные цепочки спинов  $S = 1/2$  могут возникать спонтанно, в результате так называемого спин-пайерлсовского перехода [23]. Спин-пайерлсовский переход был обнаружен в ряде органических соединений (TTF-CuBDT [24], MEM(TCNQ)<sub>2</sub> [25], радикальных солях на основе TMTTF [26]) и в неорганическом спин-пайерлсовском магнетике  $\text{CuGeO}_3$  [27]. Существуют и другие неупорядоченные спин-щелевые системы: лестничные спиновые структуры [28], системы связанных спиновых димеров  $\text{SrCu}_2(\text{VO}_3)_2$  [29] и  $\text{TlCuCl}_3$  [30].

Характерной чертой всех этих спин-щелевых систем является исчезающая при низких температурах магнитная восприимчивость. Магнитные возбуждения спин-щелевого кристалла вымерзают при низких температурах  $T \ll \Delta/k_B$ , и концентрированная система магнитных ионов в своем коллективном поведении оказывается немагнитной.

### 1.3. Влияние дефектов и магнитного поля на спин-щелевые системы

Особый интерес представляют дефекты спин-щелевых кристаллов. Вследствие достаточно протяженной длины корреляции отдельные атомы примеси не остаются точечными дефектами, а приво-

дят к образованию мезо- или наноскопических магнитных объектов, разделенных немагнитными при низкой температуре областями спин-щелевой матрицы. Действительно, введение немагнитного иона на место магнитного приводит к обрыву спиновой цепочки и локальному нарушению синглетного спин-жидкостного состояния. В результате вблизи примеси образуется область антиферромагнитно коррелированных ненулевых средних проекций спина, т. е. область локального антиферромагнитного порядка (см. рис. 1). Далее мы будем называть эти антиферромагнитные области кластерами. Подчеркнем, что эти кластеры образованы спинами основной матрицы, ненулевые проекции которых возникают из-за обменного взаимодействия между ними и конечным спином. Количество магнитных ионов в кластере порядка  $\xi/a$  ( $\xi$  — магнитная корреляционная длина,  $a$  — период цепочки), модуль средней проекции спина максимален вблизи конца цепочки и экспоненциально убывает при удалении от конца цепочки. В поперечных направлениях размер кластера определяется соответствующей корреляционной длиной  $\xi_{\perp}$ , отношение корреляционных длин определяется отношением соответствующих обменных интегралов  $\xi_{\perp}/\xi \sim J_{\perp}/J$ . Кластер имеет ненулевой полный спин и магнитный момент. Формирование кластеров с локальным антиферромагнитным упорядочением рассмотрено, например, в теоретических работах [31] для спин-пайерлсовского магнетика и в работе [11] для халдейновского магнетика.

Кроме того, возникновение кластеров приводит к необычному явлению — стимулированию дальнего антиферромагнитного порядка примесями (в том числе и немагнитными), внедренными в спин-щелевую матрицу. Этот эффект был предсказан теоретически в работе [16], а затем был обнаружен в спин-пайерлсовском магнетике [32], халдейновском магнетике [33], димерной спиновой системе [34] и других спин-щелевых системах. Наведение магнитного порядка примесями объясняется тем, что крылья спиновых кластеров перекрываются, а локальные параметры порядка кластеров в соседних цепочках коррелируются за счет слабого межцепочечного взаимодействия, и антиферромагнитный порядок распространяется на весь образец. Естественно, параметр порядка должен быть при этом сильно неоднородным.

Таким образом, введение примесей позволяет контролируемым образом разрушать спин-жидкостное состояние, которое в чистых спин-щелевых магнетиках устойчиво вплоть до нулевой абсолютной температуры.

Магнитные возбуждения, отделенные от основного немагнитного состояния спиновой щелью, представляют собой коллективные состояния с полным спином  $S = 1$  (так называемые триплетные состояния). Возбужденные триплетные состояния расщепляются магнитным полем на три спиновых подуровня, нижний из которых (соответствующий проекции магнитного момента, направленной вдоль поля) понижается с увеличением магнитного поля. Таким образом, с помощью магнитного поля, в принципе, можно «закрыть» спиновую щель и нарушить устойчивость спин-жидкостного состояния. Тогда за счет междолинного или междомерного взаимодействия может возникнуть дальний магнитный порядок. Такое наведение дальнего антиферромагнитного порядка магнитным полем было обнаружено в работе [30] в димерном соединении  $TlCuCl_3$ . Отметим, что в обычных трехмерных антиферромагнетиках магнитное поле, наоборот, разрушает антиферромагнитный порядок, так как магнитное поле поворачивает моменты подрешеток к направлению вдоль поля.

Таким образом, специфика спин-щелевых систем состоит, в частности, в том, что воздействия, разрушающие дальний порядок в обычных антиферромагнетиках (добавление немагнитных примесей, наложение магнитного поля), здесь, напротив, являются источниками дальнего магнитного порядка. В данном обзоре представлен ряд экспериментов, направленных на обнаружение многоспиновых кластеров, формирующихся вблизи атома примеси, а также на исследование индуцированных примесями и магнитным полем антиферромагнитно упорядоченных фаз.

## 2. МАГНИТНЫЙ РЕЗОНАНС СПИНОВЫХ КЛАСТЕРОВ И ТРИПЛЕТНЫХ ВОЗБУЖДЕНИЙ В СПИН-ПАЙЕРЛСОВСКОМ МАГНЕТИКЕ

Удобным объектом для изучения дефектов в спин-щелевой матрице является неорганический спин-пайерлсовский магнетик  $CuGeO_3$ . Образцы можно получить в виде совершенных монокристаллов, а магнитные ионы  $Cu^{2+}$  ( $S = 1/2$ ) можно замещать, например, немагнитными ионами  $Zn$ ,  $Mg$  или магнитными ионами  $Ni$  ( $S = 1$ ). Эти примеси занимают в решетке  $CuGeO_3$  позиции ионов  $Cu^{2+}$ , причем предел растворимости превышает 6% [37, 38].

Магнитные ионы образуют цепочки вдоль оси  $c$  орторомбического кристалла (рис. 2). Ве-

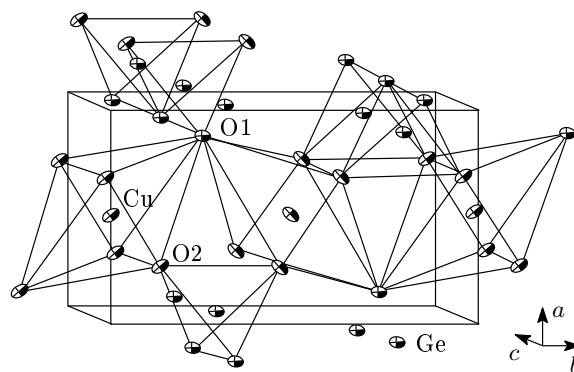


Рис. 2. Кристаллическая структура  $CuGeO_3$  в высокотемпературной фазе (по данным работы [35])

личина внутрицепочечного обменного интеграла  $J_c \approx 120$  К, междолинные обменные интегралы равны  $J_b \approx 0.1J_c$  и  $J_a \approx -0.01J_c$  [39]. Температура спин-пайерлсовского перехода (сопровождающегося удвоением периода решетки и возникновением щели в энергетическом спектре) в чистом веществе составляет  $T_{SP} = 14.5$  К, величина спиновой щели при низкой температуре  $\Delta(0) \sim 25$  К [27, 40]. Спиновая щель возникает при температуре  $T_{SP}$ , а при температуре ниже 7 К уже близка к максимальному значению  $\Delta(0)$ . При замещении ионов меди примесными ионами спин-пайерлсовский переход наблюдается при концентрациях примеси  $x \lesssim 3\%$ , температура перехода в допированных образцах меньше, чем в чистом веществе.

В чистых кристаллах  $CuGeO_3$  при температуре ниже  $T_{SP}$  магнитный резонанс на низких частотах  $f \ll \Delta(0)$  обусловлен переходами между спиновыми подуровнями термически активированных триплетных возбуждений, его интенсивность при понижении температуры убывает вследствие «вымерзания» надщелевых возбуждений, а резонансное поле практически не меняется с температурой и соответствует величине  $g$ -фактора 2.1, характерной для ионов  $Cu^{2+}$  [41].

Мы изучили магнитный резонанс в образцах  $CuGeO_3$ , допированных различными примесями:  $Zn$ ,  $Mg$ ,  $Ni$  [36, 42–45]. При малых концентрациях примеси ( $x \lesssim 3\%$ ) в допированных образцах существует спин-пайерлсовский переход, поэтому наблюдается уменьшение интенсивности магнитного резонанса при охлаждении ниже температуры спин-пайерлсовского перехода. При дальнейшем понижении температуры, в отличие от чистых образцов, возникает интенсивный сигнал магнитного резонанса, обусловленный спинами дефектов, интен-

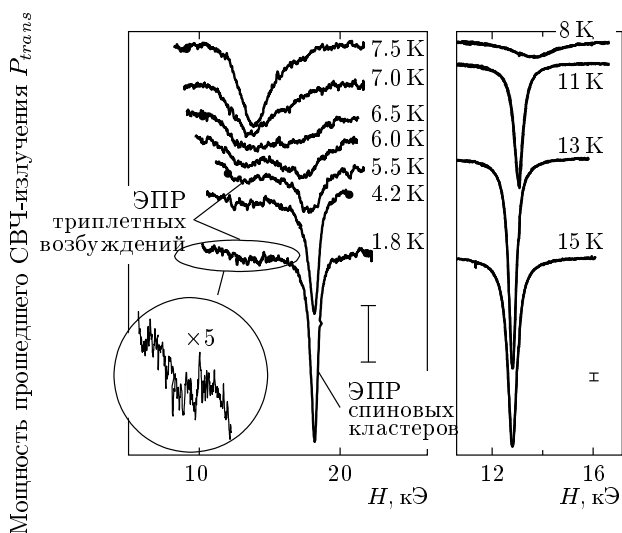


Рис. 3. Эволюция формы линии резонансного поглощения образца  $\text{Cu}_{0.998}\text{Ni}_{0.002}\text{GeO}_3$  при изменении температуры [36],  $f = 36$  ГГц,  $\mathbf{H} \parallel c$ . Вертикальные отрезки на левой и правой панелях соответствуют одинаковой величине поглощения

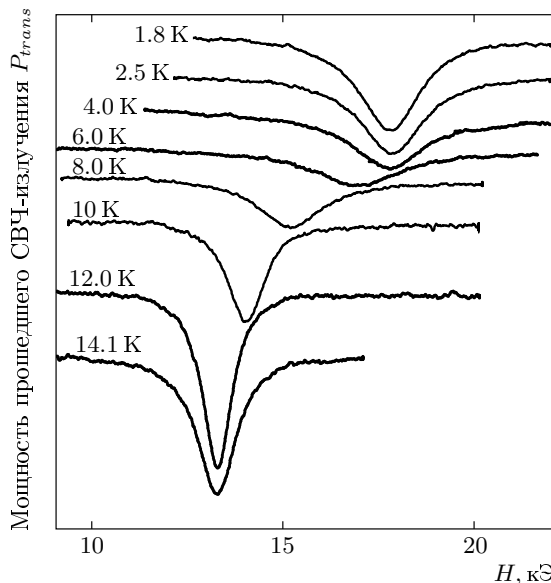


Рис. 4. Эволюция формы линии магнитного резонанса образца  $\text{Cu}_{0.992}\text{Ni}_{0.008}\text{GeO}_3$  при изменении температуры [36],  $f = 36$  ГГц,  $\mathbf{H} \parallel c$

сивность которого подчиняется закону Кюри (см., например, рис. 3).

Нами было обнаружено, что допирование магнитными ионами никеля приводит к существенной особенности наблюдаемых спектров ЭПР: низкотемпературный сигнал магнитного резонанса (связанный с ЭПР многоспиновых кластеров) характеризуется аномально малым значением  $g$ -фактора, достигающим величины 1.4 при  $\mathbf{H} \parallel c$  [45]. Это значение  $g$ -фактора сильно отличается от величины, характерной для ионов  $\text{Ni}^{2+}$  и  $\text{Cu}^{2+}$  (обычно в кристаллах эти ионы имеют  $g$ -фактор в пределах от 2.0 до 2.3). При повышении температуры положение линии магнитного резонанса меняется, и при приближении к  $T_{SP}$  поле магнитного резонанса соответствует типичному ЭПР ионов меди (рис. 3, 4).

Аномальное значение  $g$ -фактора кластера связывается с существованием взаимодействия Дзялошинского–Мория ( $\hat{H}_{DM} = \sum \mathbf{D}_{ij} \cdot [\hat{\mathbf{S}}_i \times \hat{\mathbf{S}}_j]$ ) в окрестности дефекта и с многоспиновой природой кластера, так как в системе, состоящей из более чем двух спинов, взаимодействие Дзялошинского–Мория приводит к сильной анизотропии эффективного  $g$ -фактора и к уменьшению его значения [46]. При  $\mathbf{D} \parallel z$  ( $z$  — направление магнитного поля) коммутатор  $[\hat{H}_{DM}, \hat{S}^z]$  равен нулю, поэтому  $S^z$  является квантовым числом и расщепление основного состояния кластера в магнитном поле описы-

вается обычным  $g$ -фактором магнитных ионов. При  $\mathbf{D} \perp z$  взаимодействие Дзялошинского–Мория смешивает волновые функции многоспинового кластера с различными значениями проекции спина на направление магнитного поля и в слабом магнитном поле среднее значение проекции спина кластера на направление магнитного поля оказывается меньше номинального значения 1/2. Это приводит к уменьшению расщепления основного состояния магнитным полем и, следовательно, к уменьшению эффективного  $g$ -фактора, наблюдаемого в опытах по магнитному резонансу. Наши расчеты на основе модели, включающей шесть спинов, показывают, что взаимодействие Дзялошинского–Мория с энергией, составляющей около 30 % от энергии внутрицепочечного обменного взаимодействия, является достаточным для объяснения величины  $g_c = 1.4$  [45].

Эта аномалия  $g$ -фактора позволяет надежно отличить сигналы магнитного резонанса дефектов, образованных внедрением ионов Ni, от сигнала основной матрицы. В работе [36] изучены образцы  $\text{Cu}_{1-x}\text{Ni}_x\text{GeO}_3$  высокого качества, в которых мы при малых концентрациях наблюдали сигналы изолированных кластеров, не размытые взаимодействием с другими дефектами. Эволюция формы линии магнитного резонанса при охлаждении для образцов с  $x = 0.002$  и  $x = 0.008$  показана на рис. 3, 4. Убывание интенсивности ЭПР при  $T < T_{SP}$  свя-

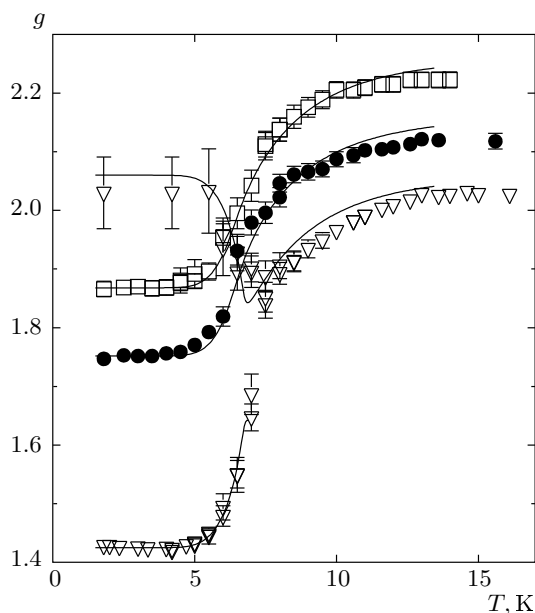
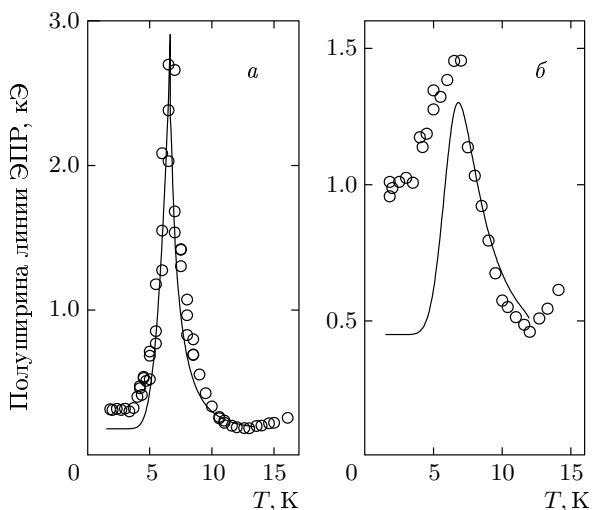


Рис. 5. Зависимость  $g$ -фактора от температуры для образца  $\text{Cu}_{0.998}\text{Ni}_{0.002}\text{GeO}_3$  [36]:  $\bullet$  —  $\mathbf{H} \parallel a$ ,  $\square$  —  $\mathbf{H} \parallel b$ ,  $\nabla$  —  $\mathbf{H} \parallel c$ , сплошные линии — теоретический расчет на основе модели обменного сужения

зано с вымерзанием триплетных возбуждений. Положение линии плавно изменяется с температурой. Зависимость  $g(T)$  показана на рис. 5. Изменение  $g$ -фактора отражает постепенный переход магнитного резонанса с частоты резонанса триплетных возбуждений при высоких температурах на частоту резонанса спиновых кластеров при низких температурах. В образце с малой концентрацией примеси линия резонанса расщепляется при низких температурах на две компоненты (рис. 3), одна из которых соответствует остаточным триплетным возбуждениям, а другая представляет резонанс изолированных кластеров. Плавное изменение резонансного поля означает взаимное влияние указанных мод спиновых колебаний, связанное с обменным взаимодействием возбуждений и кластеров. Изучение магнитного резонанса в диапазоне температур, в котором возбуждается достаточное количество триплетных возбуждений, позволяет установить, что при взаимодействии с кластерами образуется единая коллективная мода спинового резонанса. Такое поведение свидетельствует о том, что распространяющиеся триплетные возбуждения при столкновении с концами оборванных цепочек не разрушают структуры кластеров (при разрушении структуры кластеров их мода спиновой прецессии должна была бы исчезать).

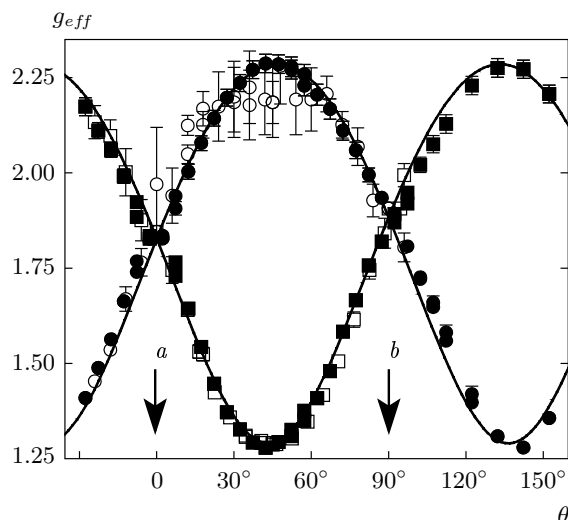
Частоты магнитного резонанса в условиях обменного взаимодействия двух спиновых подсистем можно описать в рамках теории обменного сужения линии ЭПР [47]. При обменном взаимодействии двух спиновых систем наблюдаются либо две линии резонанса (если эффективная частота обменного взаимодействия меньше разности частот спиновой прецессии в двух подсистемах), либо одна общая линия (если эффективная частота обменного взаимодействия больше упомянутой разности). Частоты и ширины резонансных линий зависят от энергии обменного взаимодействия между подсистемами и восприимчивостей каждой из подсистем. В частности, положение центра тяжести спектра магнитного резонанса (и резонансная частота в условиях быстрого обмена) определяется частотами резонансов каждой из подсистем, взятых с весом, пропорциональным восприимчивости. При атомной концентрации примеси, равной  $x$ , на моль вещества приходится  $xN_A$  кластеров, их восприимчивость без учета взаимодействия с триплетами определяется законом Кюри. Количество и восприимчивость триплетных возбуждений рассчитываются с помощью значений, известных для чистого кристалла, с учетом того, что возбуждения могут находиться в областях цепочек, не занятых кластерами, т. е. доступная для них доля объема образца равна  $(1 - xL/a)$ , где  $L$  — эффективный размер кластера. Восприимчивости триплетов и кластеров с учетом взаимодействия между ними определяются в рамках теории молекулярного поля. Эта модель [36] содержит три параметра, которые были определены путем подгонки зависимостей  $g(T)$ : эффективный обменный интеграл взаимодействия кластер–триплет  $J_{eff} = 13 \pm 1 \text{ K}$ , размер кластера  $L = (32 \pm 2)a$  ( $a$  — межатомное расстояние) и эффективная обменная частота  $\omega_e = (2.2 \pm 0.3)10^{12} \text{ c}^{-1}$ . Параметр  $\omega_e$  имеет ту же природу, что и  $J_{eff}$ , и определяет эффективную обменную частоту при наличии триплетного возбуждения на ближайшем к кластеру узле решетки. Полученные параметры находятся в соответствии с этим обстоятельством:  $\hbar\omega_e \sim J_{eff}$ . Результаты подгонки изображены на рис. 5. Для проверки модели с помощью этих же трех параметров вычисляется зависимость ширины линии от температуры (см. рис. 6). Для концентрации  $x = 0.2 \%$  результаты расчета и эксперимента хорошо совпадают. Для большей концентрации примеси имеется качественное соответствие, а причиной небольшого расхождения является взаимодействие кластеров. Таким образом, наблюдение магнитного резонанса кластеров дает оценку размера спинового кластера около  $30a$ .



**Рис. 6.** Зависимость ширины линии ЭПР от температуры для образцов  $\text{Cu}_{1-x}\text{Ni}_x\text{GeO}_3$  с  $x = 0.2\%$  (а) и  $x = 0.8\%$  (б). Сплошные линии — теоретический расчет [36]

В структуре  $\text{CuGeO}_3$  имеются два типа цепочек ионов  $\text{Cu}^{2+}$ , направленных вдоль оси  $c$  кристалла и различающихся наклоном в плоскости  $(ab)$  кислородных октаэдров, окружающих ионы меди (рис. 2). В связи с этим в кластерах, формирующихся в неэквивалентных цепочках, различаются ориентации вектора Дзялошинского–Мория и, следовательно, ориентации осей эффективного  $g$ -тензора кластера. Поэтому при вращении магнитного поля в плоскости  $(ab)$  наблюдается расщепление линии магнитного резонанса (рис. 7) [48, 49]. Это наблюдение свидетельствует о том, что каждый кластер формируется, в основном, магнитными ионами, принадлежащими одной цепочке.

Можно провести оценку размера кластера и более грубым образом, на основании того, что ширина и положение линий ЭПР образцов с  $x = 0.2\%$  и  $x = 0.8\%$  различаются. Эти различия естественно приписать взаимодействию кластеров, которое происходит за счет перекрытия крыльев кластеров. Если ввести длину кластера  $L'$ , то касание кластеров будет происходить, если расстояние между их центрами меньше  $L'$ . Из-за наличия межцепочечного взаимодействия необходимо рассмотреть не только кластеры, находящиеся в одной цепочке, но и кластеры, расположенные в соседних цепочках (о чем свидетельствует и отсутствие описанного выше расщепления линии магнитного резонанса при приложении магнитного поля в плоскости  $(ab)$  для  $x = 0.8\%$  [48]). Если считать рас-



**Рис. 7.** Угловая зависимость эффективного  $g$ -фактора компонент линии поглощения в образце  $\text{Cu}_{1-x}\text{Ni}_x\text{GeO}_3$  с концентрацией примеси  $x = 0.2\%$ , полученная при вращении магнитного поля в плоскости  $(ab)$ ;  $\blacksquare, \bullet$  — данные, полученные на частоте 9.5 ГГц;  $\circ, \square$  — на частоте 36 ГГц

пределение дефектов случайным, то вероятность того, что расстояние  $n$  между двумя дефектами в одной цепочке окажется меньше заданного  $N$ , есть  $P_1(n < N) = 1 - (1 - x)^{2N} \approx 2Nx$  ( $x$  — концентрация примеси), а аналогичная вероятность для двух дефектов, находящихся в соседних вдоль оси  $b$  (направление сильнейшего межцепочечного обменного взаимодействия):  $P_2(n < N) = 1 - (1 - x)^{4N} \approx 4Nx$ . Предполагая, что при  $x = 0.008$  взаимодействует большая часть кластеров, оценим длину кластера  $L'$ , считая  $P_2(n < L'/a) = 2/3$ . Эта оценка дает  $L' \sim 30a$ , что находится в хорошем согласии с расчетом в модели обменного сужения.

### 3. МАГНИТНЫЙ РЕЗОНАНС ХАЛДЕЙНОВСКОГО МАГНЕТИКА С ДЕФЕКТАМИ

Для халдейновского магнетика весьма интересной является проблема эффективного спина, возникающего при обрыве цепочки. Существует гипотеза об эффективном спине  $S = 1/2$ , возникающем вблизи обрыва цепочки [51]. Данная гипотеза наглядно иллюстрируется и подтверждается численным моделированием [11] (см. рис. 1). Ненулевые средние значения проекций спинов в фрагменте цепочки спинов  $S = 1$  сосредоточены вблизи концов фрагмента,



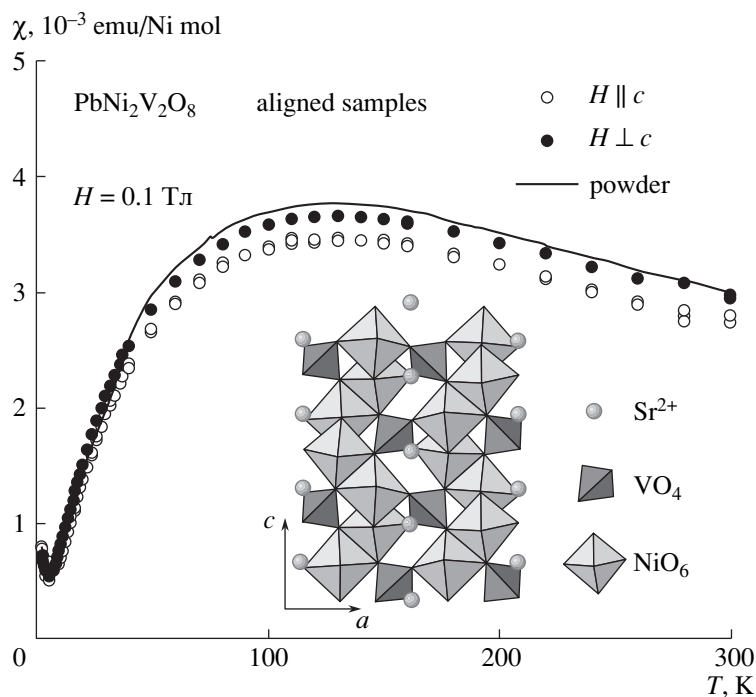


Рис. 8. Температурная зависимость магнитной восприимчивости  $\text{PbNi}_2\text{V}_2\text{O}_8$ . На вставке: схема кристаллической структуры  $(\text{Pb/Sr})\text{Ni}_2\text{V}_2\text{O}_8$ . Из работы [33]

значения проекций спинов вблизи конца практически не зависят от состояния второго конца фрагмента (при достаточно длинной цепочке), и сумма проекций спинов, находящихся вблизи конца фрагмента, составляет  $1/2$ . Вдали от концов среднее значение проекции спина равно нулю. Точная диагонализация гейзенберговского обменного гамильтониана для цепочки спинов  $S = 1$  [52] показывает, что достаточно длинные фрагменты спиновых цепочек обладают двумя близкими уровнями энергии, один из которых синглетный, а второй — триплетный. Расстояние между этими уровнями экспоненциально мало по параметру  $\xi/l$ , где  $l$  — длина фрагмента, а  $\xi$  — магнитная корреляционная длина. Таким образом, как по значениям магнитного момента, так и по кратности вырождения, достаточно длинный отрезок цепочки спинов  $S = 1$  оказывается эквивалентным двум степеням свободы со спином  $S = 1/2$ .

Спектр магнитного резонанса существенно зависит от эффективного спина магнитного объекта, поскольку уровни энергии расщепляются кристаллическим полем для спина  $S = 1$  и не расщепляются для  $S = 1/2$  (см., например, [53]). Поэтому наблюдение магнитного резонанса свободных концов халдейновских цепочек представляет существенный интерес для определения эффективного спина кон-

ца цепочки. Первое наблюдение магнитного резонанса концов оборванных халдейновских цепочек проводилось при малом замещении ионов  $\text{Ni}^{2+}$  ионами  $\text{Cu}^{2+}$  в органическом соединении NENP [51]. Полученные спектры интерпретировались на основе модели трех связанных спинов: двух эффективных спинов  $S = 1/2$  на концах цепочек и спина примесного иона. Слабое (0.5%) допирование образцов NENP немагнитными примесями описано в работе [54]. Здесь после допирования наблюдался сигнал магнитного резонанса, соответствующий эффективным спином  $S = 1/2$  на концах цепочек.

Мы изучили магнитный резонанс диамагнитно-разбавленного неорганического халдейновского магнетика  $\text{Pb}(\text{Ni}_{1-x}\text{Mg}_x)_2\text{V}_2\text{O}_8$  [50]. Кристаллическая структура  $\text{PbNi}_2\text{V}_2\text{O}_8$  и данные по магнитной восприимчивости чистого вещества представлены на рис. 8. Неорганическая природа этого соединения открывает возможность допирования различными примесями в широком интервале концентраций от 0 до 6%. Разбавление образцов  $\text{PbNi}_2\text{V}_2\text{O}_8$  диамагнитными примесями дает возможность не только наблюдать сигнал свободных концов спиновых цепочек, но и проследить эффекты взаимодействия концов цепочек при изучении зависимости формы линии от концентрации. На рис. 9 показаны линии

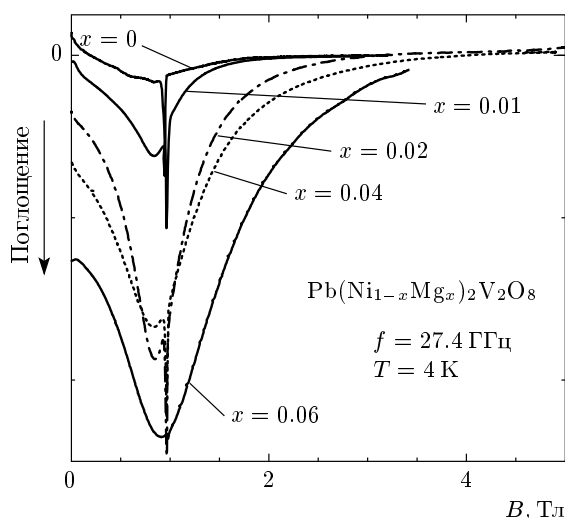


Рис. 9. Линии магнитного резонанса диамагнитно-разбавленного халдейновского магнетика, нормированные на единицу массы [50]. Узкая линия при  $B = 0.98$  Тл — метка дифинилпикрилгидразила:  $g = 2.0$

магнитного резонанса керамического образца халдейновского магнетика  $\text{Pb}(\text{Ni}_{1-x}\text{Mg}_x)_2\text{V}_2\text{O}_8$  при различных значениях  $x$ . Видно, что допирование немагнитными ионами приводит к увеличению интенсивности магнитного резонанса.

Измерение подобных спектров в диапазоне частот 9–110 ГГц позволяет получить зависимость частоты парамагнитного резонанса от магнитного поля. Эта зависимость изображена на рис. 10 темными символами. Зависимость резонансной частоты от поля с хорошей точностью оказывается линейной и проходящей через начало координат. Таким образом, эти данные свидетельствуют об отсутствии расщепления, превышающего 0.5 ГГц. При наличии расщепления в кристаллическом поле резонансные линии керамического образца превратились бы в протяженные полосы поглощения. Расщепление спектра ЭПР изолированного спина  $S = 1$  в кристаллическом поле определяется слагаемым спинового гамильтониана  $D(\hat{S}_i^z)^2$ , где  $D$  — константа одноионной анизотропии. Порядок величины расщепления для изолированного иона Ni можно определить, воспользовавшись величиной  $D = -0.23$  мэВ, определенной из измерений спектра магнитных возбуждений в экспериментах по рассеянию нейтронов [21]. Приведенная величина константы одноионной анизотропии соответствует величине расщепления парамагнитного резонанса 56 ГГц. При таком рас-

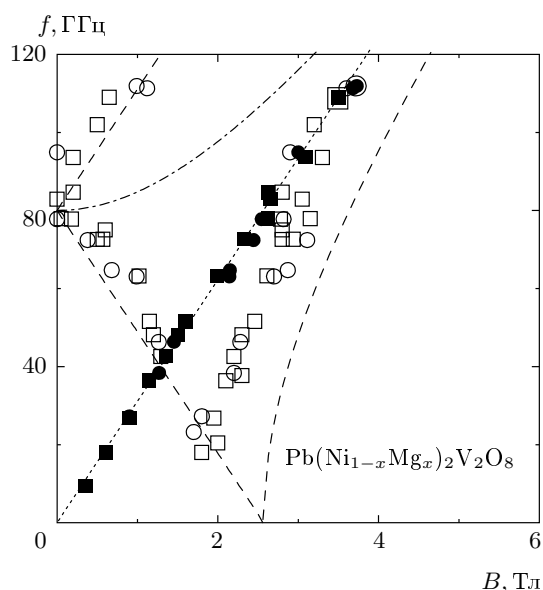


Рис. 10. Зависимость резонансной частоты от магнитного поля керамических образцов  $\text{Pb}(\text{Ni}_{1-x}\text{Mg}_x)_2\text{V}_2\text{O}_8$  в парамагнитной фазе ( $T = 5$  К, темные символы) и в упорядоченной фазе ( $T = 1.3$  К, светлые символы) [50]:  $x = 0.04$  — кружки;  $x = 0.06$  — квадраты. Значение пунктирных и штриховых линий приведено в тексте

щеплении мы должны были бы наблюдать в керамическом образце чрезвычайно широкую полосу поглощения, несовместимую с наблюдаемыми резонансными линиями, показанными на рис. 9. Таким образом, спектр парамагнитного резонанса с отсутствием расщепления свидетельствует об эффективных спинах  $S = 1/2$ , возникающих на концах оборванных спиновых цепочек в  $\text{PbNi}_2\text{V}_2\text{O}_8$ .

Эти данные свидетельствуют также о значительном увеличении ширины линии при увеличении концентрации дефектов: ширина линии при  $x = 0.02$  на 0.5 Тл больше, чем при  $x = 0.01$ . Такое значительное увеличение ширины линии не может быть связано с диполь-дипольным взаимодействием (соответствующие локальные поля имеют порядок величины 0.01 Тл). Принимая во внимание многоспиновый характер магнитных дефектов, это уширение линии можно связать со взаимным касанием кластеров, что позволяет грубо оценить размер кластера в  $\text{PbNi}_2\text{V}_2\text{O}_8$  как  $L \sim 20a$ . Поскольку среднее значение проекции спина уменьшается от максимума до нуля по обе стороны от примеси, естественно ожидать, что  $L \sim 2\xi$ . Эта оценка согласуется с теоретическим значением длины спин-спиновой корреляции  $x = 7a$  в халдейновском магнетике [10].

#### 4. ИЗУЧЕНИЕ КОЛЛЕКТИВНЫХ МАГНИТНЫХ МОД «ТРИПЛЕТ-ДЕФЕКТ» В ХАЛДЕЙНОВСКОМ МАГНЕТИКЕ

Низкотемпературная спиновая динамика допированного халдейновского магнетика характеризуется наличием двух связанных магнитных подсистем: многоспиновых кластеров, рассмотренных выше, и термоактивированных триплетных возбуждений. При температурах  $T \ll \Delta/k_B$  числа заполнения триплетных возбуждений малы. При этом наибольшие числа заполнения будут в области  $k$ -пространства, соответствующей дну энергетического спектра возбужденных состояний. В этой области спектры не демонстрируют широкого континуума собственных частот (см. [10]), что соответствует хорошо определенным возбуждениям спин-волнового типа. Таким образом, возбуждения халдейновского спин-жидкостного состояния можно рассматривать как разреженный газ квазичастиц, каждая из которых несет эффективный спин  $S = 1$ . При взаимодействии с кристаллическим полем и внешним магнитным полем энергетические уровни этих триплетов расщепляются и спин-щелевой магнетик должен демонстрировать спектр магнитного резонанса, характерный для изолированных спинов  $S = 1$ . В обычных магнетиках с магнитным ионом в каждой элементарной ячейке это невозможно, поскольку структура уровней, определяемая кристаллическим полем, нарушается из-за обменного взаимодействия. Однако в спин-щелевых магнетиках при низких температурах благодаря обменно-взаимодействию основная матрица является немагнитной и для разреженного газа триплетных возбуждений должен наблюдаться спектр изолированных спинов  $S = 1$  в кристаллическом поле. Для халдейновского магнетика расщепление спектра низколежащих возбуждений характеризуется эффективной константой анизотропии  $D_{eff} \approx -2D$  [56], здесь  $D$  — константа одноионной анизотропии. Магнитный резонанс коллективных триплетных возбуждений с расщеплением в кристаллическом поле впервые наблюдался в халдейновском магнетике NENP Датэ и Киндо [57]. Таким образом, становится возможным разделить расщепленный кристаллическим полем спектр магнитного резонанса триплетных возбуждений и нерасщепленный спектр кластеров, описанный в предыдущем разделе. Отметим, что в описанном выше магнитном резонансе триплетных возбуждений в спин-пайерлсовском магнетике  $\text{CuGeO}_3$  расщепление триплетных уровней оказыва-

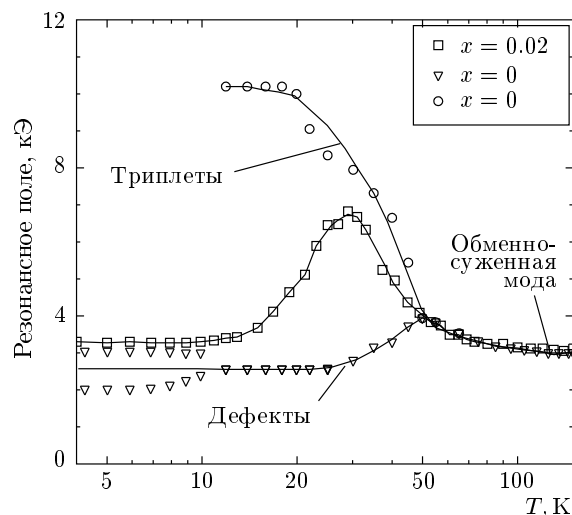


Рис. 11. Зависимость поля магнитного резонанса на частоте 9.5 ГГц от температуры для различных видов спиновой прецессии в допированных образцах халдейновского магнетика  $\text{PbNi}_2\text{V}_2\text{O}_8$  [55]

ется малым, так как для спинов  $S = 1/2$  одноионная анизотропия отсутствует.

Пользуясь возможностью регулируемого введения примесей в образцы халдейновского магнетика  $\text{PbNi}_2\text{V}_2\text{O}_8$ , мы поставили задачу изучить взаимодействие триплетных возбуждений с концами спиновых цепочек с помощью наблюдения спектров магнитного резонанса триплетных возбуждений в допированных образцах. В образцах с малой концентрацией дефектов (номинально чистые образцы,  $x = 0$ ) нами наблюдались спектры термоактивированного магнитного резонанса триплетов (эффективный спин  $S = 1$ ) и дефектов (эффективный спин  $S = 1/2$ ). При увеличении концентрации дефектов ( $x = 0.01$ ) мы наблюдаем единую резонансную моду на промежуточной частоте (см. рис. 11), которую следует интерпретировать как коллективную моду магнитного резонанса, в ней участвуют спины кластеров, образованных обрывами цепочек, и эффективные спины триплетных возбуждений [55, 58].

Описанное наблюдение коллективной моды свидетельствует о том, что при распространении по цепочкам низколежащие триплетные возбуждения доходят до концов цепочек, однако не разрушают спиновой структуры коллективного состояния с эффективным спином  $S = 1/2$ , образующейся вблизи обрыва цепочки. Взаимодействие возбуждений с эффективным спином обрыва цепочки приводит к образованию коллективной моды спиновой прецессии на

промежуточной частоте, при этом сигнал магнитного резонанса существует в широком интервале температур, в отличие от наблюдавшегося в другом халдейновском магнетике, NENP, где сигнал магнитного резонанса дефектов быстро исчезает при нагревании [54, 59].

## 5. ИССЛЕДОВАНИЕ СТИМУЛИРОВАННОГО ДЕФЕКТАМИ МАГНИТНОГО УПОРЯДОЧЕНИЯ

При понижении температуры в образцах с примесями происходит переход в антиферромагнитное состояние. Поскольку упорядочение возникает вследствие перекрытия крыльев кластеров, параметр порядка является сильно неоднородным. Тем не менее эксперименты по измерению магнитного момента и рассеянию нейтронов показывают, что этот фазовый переход оказывается хорошо определенным, поведение интегральных характеристик, таких как магнитная восприимчивость, поле опрокидывания магнитных подрешеток, температурная зависимость среднего значения упорядоченной компоненты спина, аналогичны поведению этих величин в обычных трехмерных антиферромагнетиках, по крайней мере для концентраций примеси порядка процента и выше [33, 37, 38]. В этой связи представляет значительный интерес вопрос о том, существуют ли в данном экзотическом неоднородном состоянии элементарные возбуждения типа спиновых волн в традиционных антиферромагнетиках. Для этого были поставлены эксперименты по поиску сигналов антиферромагнитного резонанса в индуцированной примесями упорядоченной фазе спин-пайерлсовского и халдейновского магнетиков. В образцах спин-пайерлсовского магнетика  $\text{CuGeO}_3$ , допированного немагнитными примесями Zn [42], Mg [43] и магнитными примесями Ni [45], нам удалось обнаружить сигналы антиферромагнитного резонанса с зависимостью резонансной частоты от поля, характерной для двуосного антиферромагнетика.

На рис. 12–14 показаны частотно-полевые зависимости для магнитного резонанса в упорядоченных фазах спин-пайерлсовского магнетика  $\text{CuGeO}_3$ , допированного различными примесями, измеренные при низких температурах для направления магнитного поля вдоль трех главных осей кристалла. В работе группы Хазе [61] также сообщается

об обнаружении антиферромагнитного резонанса в допированном спин-пайерлсовском магнетике  $\text{Cu}_{1-x}\text{Zn}_x\text{GeO}_3$ . Экспериментальные данные, представленные на рис. 12–14 различными символами, хорошо соответствуют теоретическим зависимостям, изображенным штриховыми линиями. Эти зависимости получены путем расчета резонансных частот двуосного антиферромагнетика [62]. Таким образом, для допирования на уровне 3% низкочастотный спектр спиновых колебаний оказывается аналогичным спектру обычного антиферромагнетика.

Аналогичный результат получен нами и для упорядоченной фазы допированного халдейновского магнетика  $\text{PbNi}_2\text{V}_2\text{O}_8$  [50]. При охлаждении керамических образцов ниже температуры Нееля  $T_N$  ( $T_N^{(max)} = 3.4$  К при  $x = 0.04$ ) происходит трансформация линии магнитного резонанса в характерную для порошкового образца антиферромагнетика полосу поглощения (рис. 15). Края этой полосы соответствуют частотам антиферромагнитного резонанса для рациональных направлений магнитного поля. Эти данные позволяют оценить среднюю величину параметра порядка. Из величин магнитных полей, в которых наблюдаются края полосы резонансного поглощения, был определен спектр частот антиферромагнитного резонанса (АФМР) для различных направлений магнитного поля относительно кристаллографических осей. Зависимость резонансных частот АФМР от магнитного поля показана на рис. 10, она качественно соответствует спектру резонансных частот антиферромагнетика с анизотропией типа «легкая ось» с щелью в спектре магнитного резонанса равной  $\omega_0/2\pi = 80$  ГГц.

Считая, что анизотропия антиферромагнитного состояния в  $\text{Pb}(\text{Ni}_{1-x}\text{Mg}_x)_2\text{V}_2\text{O}_8$  связана, в основном, с одноионной анизотропией ионов никеля ( $S = 1$ ), мы можем оценить среднюю величину параметра порядка в упорядоченной фазе. В приближении молекулярного поля величина щели определяется средним значением параметра порядка  $\langle\langle\hat{S}_i^z\rangle\rangle$  (усреднение проводится по времени и по узлам решетки) и константами анизотропии и обмена:  $\hbar\omega_0 = 4\sqrt{|D|J}\langle\langle\hat{S}_i^z\rangle\rangle$ . Используя величины  $J = 9$  мэВ,  $D = -0.23$  мэВ, полученные в экспериментах по неупругому рассеянию нейтронов [21], получаем оценку  $\langle\langle\hat{S}_i^z\rangle\rangle \sim 0.06$ . Приведенное значение соответствует максимальной величине среднего значения параметра порядка, достигаемого при  $x = 0.04$ .

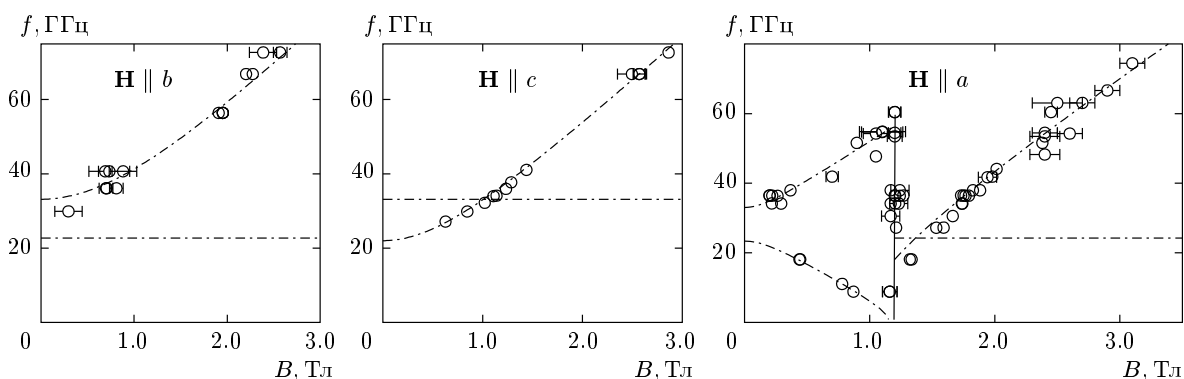


Рис. 12. Зависимости резонансных частот спиновых колебаний в упорядоченной фазе образца  $\text{Cu}_{1-x}\text{Ni}_x\text{GeO}_3$ ,  $x = 0.032$ ,  $T = 1.8$  К [45]

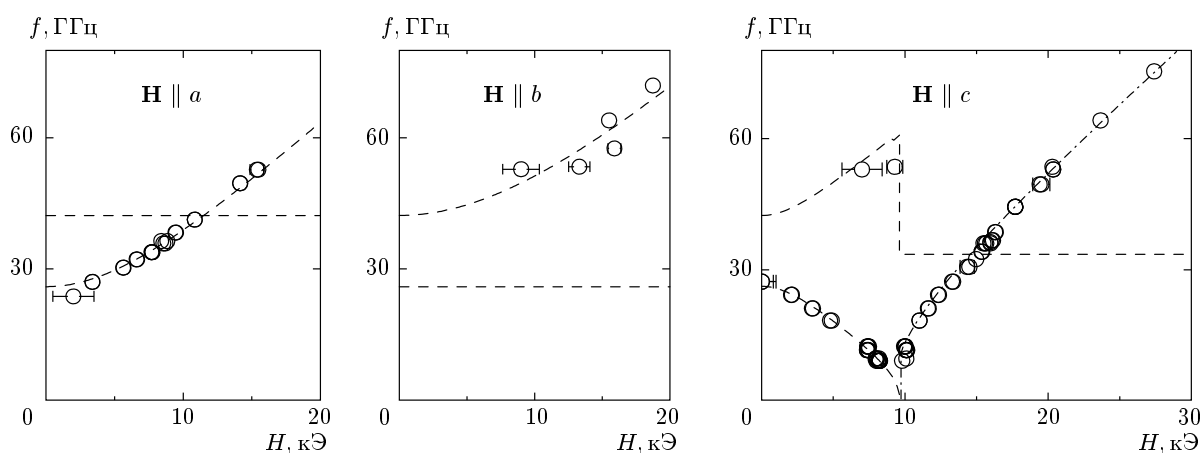


Рис. 13. Зависимости резонансных частот спиновых колебаний в упорядоченной фазе образца  $\text{Cu}_{1-x}\text{Mg}_x\text{GeO}_3$ ,  $x = 0.032$ ,  $T = 1.8$  К [43]

### 6. МИКРОСКОПИЧЕСКОЕ РАЗДЕЛЕНИЕ ФАЗ ПРИ ИНДУЦИРОВАННОМ ПРИМЕСЯМИ АНТИФЕРРОМАГНИТНОМ УПОРЯДОЧЕНИИ

При фазовом переходе в антиферромагнитное состояние сигнал магнитного резонанса обычно трансформируется из сигнала парамагнитного резонанса в сигнал антиферромагнитного резонанса. Частота парамагнитного резонанса определяется свойствами изолированных магнитных ионов, а частота антиферромагнитного резонанса определяется колебаниями параметра порядка. Таким образом, фазовый переход в упорядоченное состояние сопровождается перестройкой спектра магнитного резонанса, и наблюдение этой перестройки позволяет определить температуру перехода и другие характеристики фазового превращения.

В описанных выше опытах с достаточно большой (более 3%) концентрацией примеси примесные ионы расположены друг к другу близко, на расстояниях порядка длины корреляции  $\xi$ . При таких концентрациях переход в антиферромагнитное состояние оказался аналогичным фазовому переходу обычных трехмерных антиферромагнетиков, восприимчивость и спектр магнитного резонанса демонстрируют традиционное для антиферромагнитного перехода поведение. Особый интерес представляют малые концентрации, когда среднее расстояние между примесными атомами в цепочках превышает длину  $\xi$  и спиновые кластеры разделены остатками синглетной матрицы. В таком случае глубина модуляции антиферромагнитного параметра порядка достигает почти 100%.

Нами был исследован магнитный резонанс на серии образцов  $\text{Cu}_{1-x}\text{Mg}_x\text{GeO}_3$  высокого качества

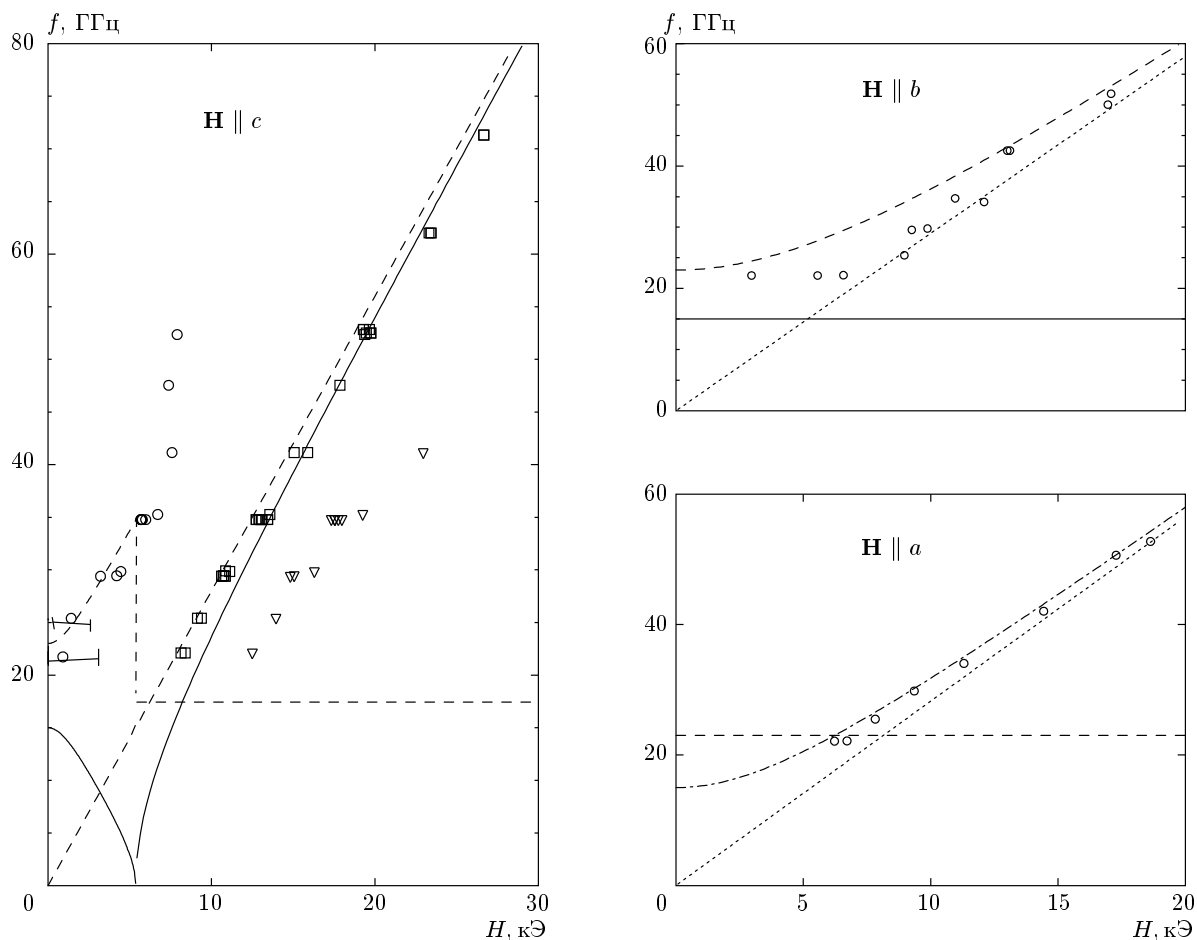


Рис. 14. Зависимости резонансных частот спиновых колебаний в упорядоченной фазе образца  $\text{Cu}_{1-x}\text{Zn}_x\text{GeO}_3$ ,  $x = 0.04$ ,  $T = 1.4 \text{ K}$  [60]

при малых концентрациях примеси [43]. Однородность распределения примеси по образцу и содержание примеси были специально проконтролированы в работе группы Учинокуры [38]. Неоднородность распределения концентрации примеси по образцу не превышала  $10^{-3}$ . На рис. 16 показана эволюция спектра магнитного резонанса при переходе через точку Нееля в допированном спин-пайерлсовском магнетике  $\text{Cu}_{1-x}\text{Mg}_x\text{GeO}_3$  для  $x = 0.017$ . Мы видим, что при понижении температуры линия парамагнитного резонанса расщепляется на две. Одна компонента соответствует парамагнитному резонансу — значение резонансного поля не зависит от температуры и совпадает с резонансным полем парамагнитной фазы. Положение второй компоненты спектра зависит от температуры, зависимость частоты от поля для нее (см. [43]) соответствует спектру дуосного антиферромагнетиков. Существует широкая область температур, в которой одновременно наблюдаются

две линии: антиферромагнитного и парамагнитного резонансов. Однородность распределения примесей по образцу и малый температурный интервал перехода (0.1 K) исключают объяснение сосуществования двух линий магнитного резонанса за счет макроскопической неоднородности образца. Уменьшение интенсивности парамагнитной линии при понижении температуры исключает ее связь с неконтролируемыми дефектами кристалла, однако ее интенсивность значительно превышает интенсивность сигнала магнитного резонанса термоактивированных триплетных возбуждений. Одновременное наличие двух резонансных мод в образце не может быть истолковано в рамках рассмотрения одной фазы, поскольку антиферромагнитной фазе соответствуют колебания параметра порядка, исключающие парамагнитную моду резонанса, а парамагнитная фаза, тем более, не допускает расщепления линии.

Аналогичный эффект наблюдался и для образ-

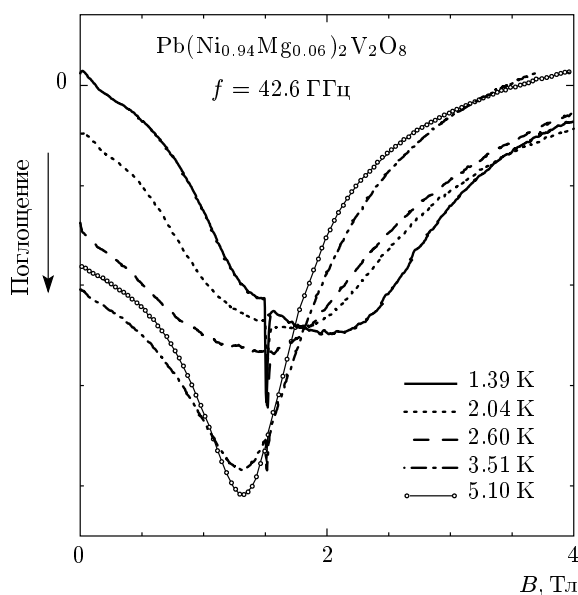


Рис. 15. Зависимость спектра магнитного резонанса от температуры для порошкового образца  $\text{Pb}(\text{Ni}_{1-x}\text{Mg}_x)_2\text{V}_2\text{O}_8$  [50]. Концентрация примеси  $x = 0.06$ ,  $f = 42.6$  ГГц

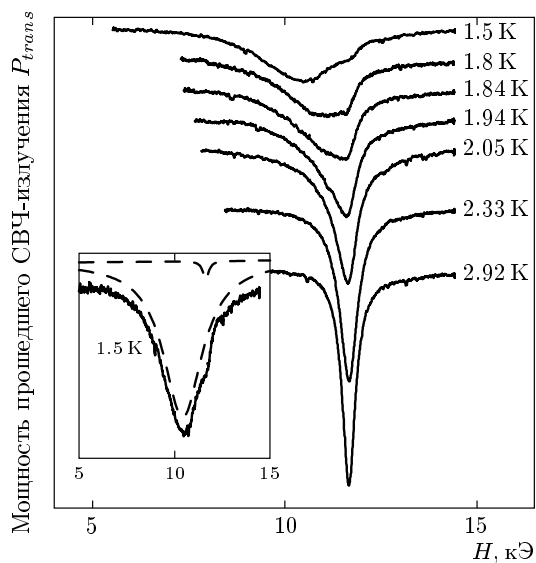


Рис. 16. Изменение формы линии магнитного резонанса в окрестности температуры Нееля в монокристалле  $\text{Cu}_{1-x}\text{Mg}_x\text{GeO}_3$   $x = 0.017$ ,  $\mathbf{H} \parallel b$ ,  $f = 36$  ГГц,  $T_N = 2.25$  К [43]

цов  $\text{Pb}(\text{Ni}_{1-x}\text{Mg}_x)_2\text{V}_2\text{O}_8$  [50]: отличие низкотемпературных спектров образцов с  $x < 0.03$  от спектров образцов с  $x > 0.03$  состоит в том, что для малой концентрации резонансная линия парамагнитного типа

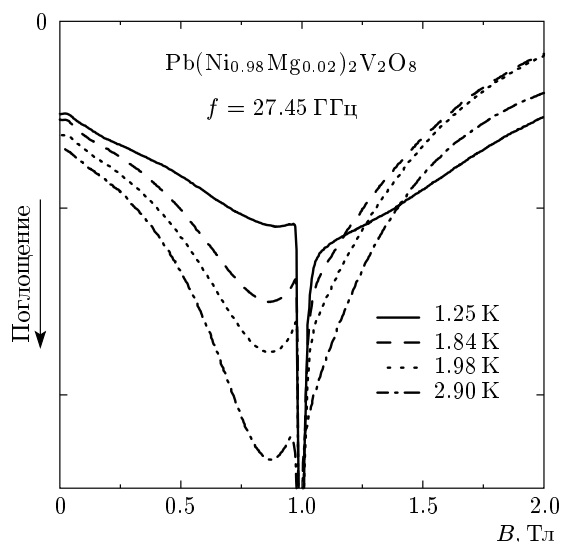


Рис. 17. Изменение формы линии магнитного резонанса в порошковом образце  $\text{Pb}(\text{Ni}_{1-x}\text{Mg}_x)_2\text{V}_2\text{O}_8$  при малой концентрации примеси  $x = 0.02$  [50]

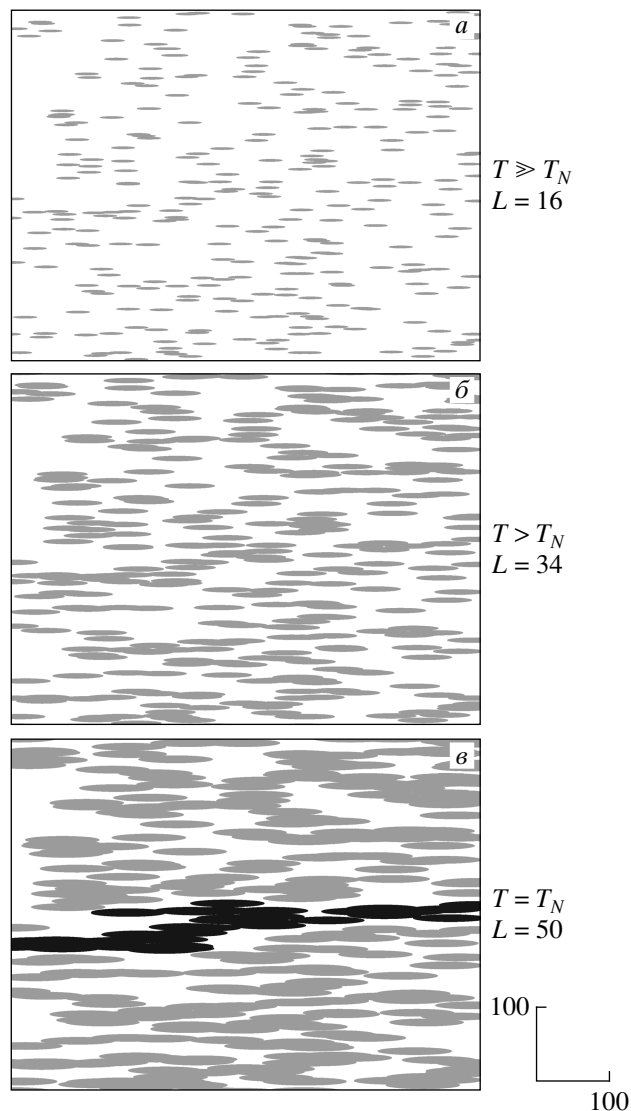
сохраняется вплоть до низких температур (рис. 17). Таким образом, при низких температурах также наблюдается сосуществование двух видов магнитного резонанса.

Возможным объяснением одновременного существования двух резонансных мод является микроскопическое фазовое расслоение образца на парамагнитные и антиферромагнитные области. Действительно, рассмотрим спиновые кластеры, образующиеся вокруг примесных атомов, и будем считать, что когерентный антиферромагнитный порядок существует в области размером  $L^*$ , удовлетворяющим соотношению  $k_B T \approx JS^2 \exp(-2L^*/\chi)$ . Конкретный вид этого соотношения для дальнейшего рассмотрения не важен, так как будет использоваться только очевидное положение об убывании размера области когерентного антиферромагнитного порядка при повышении температуры. На расстояниях, больших чем  $L^*$ , антиферромагнитные корреляции разрушаются благодаря тепловым флуктуациям. В поперечных направлениях антиферромагнитные корреляции распространяются на расстояния, определяемые обменными интегралами в соответствующих направлениях. Так мы приходим к упрощенной модели [43], в которой в окрестности каждого примесного центра существует антиферромагнитная область эллиптической формы. Длина эллипса вдоль цепочек есть  $L^*$ , в поперечных направлениях она уменьшена в соответствии с отношениями обменных интегралов. При высокой температуре области

локального антиферромагнитного порядка малы и не касаются друг друга, параметры порядка в них некоррелированы и дальний порядок отсутствует, а каждый из кластеров дает вклад в восприимчивость образца и в сигнал магнитного резонанса в соответствии с наличием у кластера полного магнитного момента. Поэтому восприимчивость и спектр магнитного резонанса имеют парамагнитный характер. При понижении температуры размер кластеров растет, некоторые из них начинают соприкасаться, что приводит к возникновению более протяженных областей с когерентным антиферромагнитным порядком, охватывающих несколько примесных атомов. Наконец, как показано на рис. 18, возникает область антиферромагнитного порядка, «протекающая» (перколирующая) через весь образец. Возникновение такой области соответствует порогу протекания в задаче о перколяции взаимопроникающих сфер [63]. При этом значении  $L^*$ , а также в окрестности него, в образце еще имеются (см. рис. 18) одиночные кластеры, обладающие магнитным моментом и изолированные от больших антиферромагнитных областей слабо возмущенной синглетной матрицей. Свободные спины этих кластеров продолжают давать сигналы парамагнитного резонанса, как и выше точки перехода.

Таким образом, ниже точки Нееля в образце имеются три типа областей: 1) области с локальным антиферромагнитным порядком достаточно большого размера, дающие сигналы антиферромагнитного резонанса (на рисунке помечены черным), 2) области синглетной матрицы, не имеющие магнитного отклика (помечены белым), 3) одиночные кластеры, отделенные от антиферромагнитных областей синглетной матрицей (серые эллипсы правильной формы).

Неоднородность стимулированной примесями антиферромагнитной фазы была исследована теоретически в работе Ясуды и др. [64]. Методом Монте-Карло для двумерной системы из спин-пайерлсовских или халдейновских спиновых цепочек с дефектами рассчитана спиновая структура основного состояния. В этой структуре имеются ненулевые антиферромагнитно-коррелированные проекции спинов (пики локального параметра порядка) в окрестностях спиновых вакансий, а в промежутках между пиками находится слабо возмущенная синглетная матрица. Существенным результатом моделирования [64] (см. рис. 19), является демонстрация сильной модуляции параметра порядка, которая составляет практически 100%. Допуская, что исчезающе малый параметр порядка



**Рис. 18.** Результат упрощенного моделирования структуры индуцированной примесями упорядоченной фазы [43]: серым отмечены области локального антиферромагнитного порядка, черным — наибольшая из этих областей, белым — неупорядоченные области

в областях между примесями будет разрушен тепловыми флуктуациями при конечных температурах, мы приходим к эквивалентности структуры, представленной на рис. 19, и структуры, предложенной выше на основе сосуществования двух сигналов магнитного резонанса.

Отметим, что в последнее время в физике конденсированного состояния были обнаружены различные системы, демонстрирующие микроскопическое фазовое разделение. Приведем два широко из-



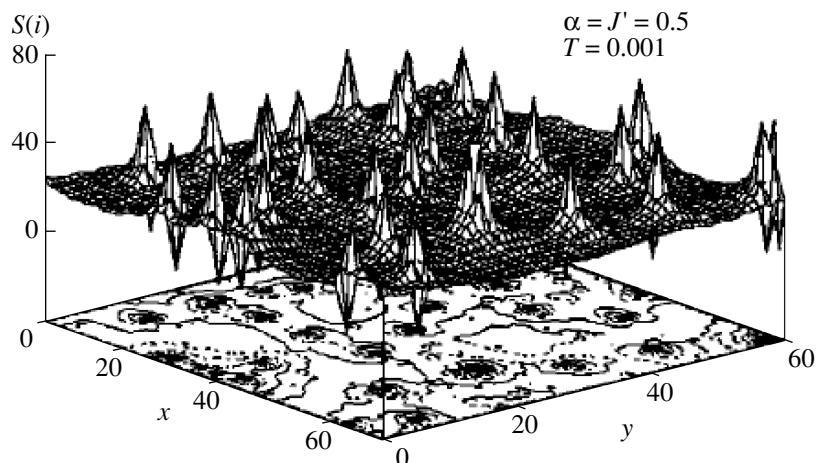


Рис. 19. Результат численного моделирования [64] задачи о средних значениях проекций спинов в узлах двумерной сетки из димеризованных цепочек с межцепочечным взаимодействием

вестных примера из этой области. Первый пример — это разделение на проводящие и антиферромагнитные полосы в слоях  $\text{CuO}$  кристаллов сложных оксидов, демонстрирующих высокотемпературную сверхпроводимость [65]. Второй пример — разделение на ферромагнитные капли и антиферромагнитные области в допированных манганитах [66]. В обоих из описанных примеров разделение фаз связано с перераспределением плотности подвижных носителей заряда. В описываемом нами микроскопическом фазовом разделении при индуцированном примесями антиферромагнитном переходе в спин-щелевых магнетиках разделение магнитных фаз происходит на идеальном диэлектрическом фоне и не связано с носителями заряда.

**7. ВЛИЯНИЕ МАГНИТНОГО ПОЛЯ НА МИКРОСКОПИЧЕСКОЕ ФАЗОВОЕ РАЗДЕЛЕНИЕ ПРИ ИНДУЦИРОВАННОМ ПРИМЕСЯМИ АНТИФЕРРОМАГНИТНОМ УПОРЯДОЧЕНИИ В СПИН-ПАЙЕРЛСОВСКОМ МАГНЕТИКЕ**

Согласно описанной простой модели фазового расслоения, можно предположить, что этим разделением на фазы можно эффективно управлять с помощью внешнего магнитного поля. Действительно, каждый кластер обладает собственным спиновым моментом  $S_{tot} = 1/2$  (и, соответственно, магнитным моментом, равным  $\mu_B$ ). При объединении кластеров в область с когерентным антиферромагнитным порядком в зависимости от четности рассто-

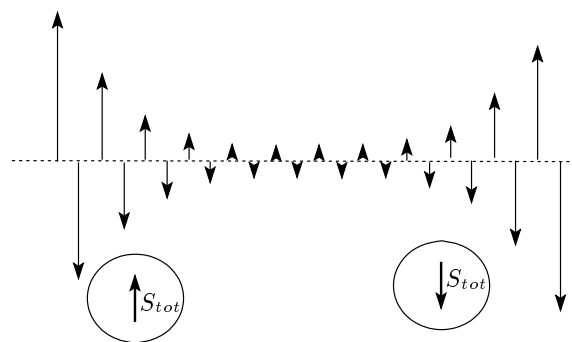


Рис. 20. Схематическое изображение областей локального антиферромагнитного порядка вблизи концов оборванных примесями спиновых цепочек и результирующих магнитных моментов этих областей

яния между примесными ионами собственные спиновые моменты кластеров могут с равной вероятностью оказаться параллельны или антипараллельны. В случае антипараллельности полных моментов, изображенном на схеме рис. 20, внешнее поле будет стремиться развернуть их параллельно, тем самым разрушая пространственную когерентность антиферромагнитного порядка в этих областях. Так как пространственная когерентность устанавливается за счет корреляции на быстро убывающих крыльях кластеров, естественно ожидать, что связанный с этим проигрыш в обменной энергии мал и, соответственно, небольшое внешнее поле приведет к заметному эффекту.

Мы исследовали переход в индуцированное

примесями упорядоченное состояние в образцах  $\text{Cu}_{1-x}\text{Mg}_x\text{GeO}_3$  в различных магнитных полях [44, 67]. При этом обнаружено сильное влияние магнитного поля на разделение магнитных фаз. Различие полей антиферромагнитного и парамагнитного резонансов позволяет разделить соответствующие вклады в наблюдаемый спектр ЭПР-поглощения. Интенсивность парамагнитной компоненты спектра поглощения связана с концентрацией парамагнитной фазы в образце. В частности, отношение интенсивности парамагнитной компоненты линии поглощения при температуре, близкой к  $T_N$  со стороны антиферромагнитной фазы, к полной интенсивности сигнала магнитного резонанса вблизи  $T_N$  в парамагнитной фазе ( $I_{PM}(T \rightarrow T_N - 0)/I_{tot}(T \rightarrow T_N + 0)$ ) непосредственно равно концентрации парамагнитной фазы в точке перехода. Измеренная зависимость концентрации парамагнитной фазы от магнитного поля изображена на рис. 21. Там же показана зависимость концентрации парамагнитной фазы непосредственно ниже точки перехода от концентрации примесей, стимулирующих данный переход.

Наблюдение столь существенного влияния магнитного поля и отсутствие фазового разделения при больших концентрациях подтверждают предложенный выше механизм формирования мезоскопического фазового расслоения, основанный на глубокой модуляции параметра порядка.

## 8. РЕЗОНАНСНЫЕ МОДЫ ДИМЕРНОГО СПИН-ЩЕЛЕВОГО МАГНЕТИКА $\text{TlCuCl}_3$ . ИССЛЕДОВАНИЕ СТИМУЛИРОВАННОЙ ПОЛЕМ УПОРЯДОЧЕННОЙ ФАЗЫ ДИМЕРНОГО МАГНЕТИКА

Кристаллы  $\text{TlCuCl}_3$  обладают димерной магнитной структурой, образованной магнитными ионами  $\text{Cu}^{2+}$ , несущими спин  $S = 1/2$  (рис. 22). Обменные интегралы, соответствующие взаимодействию магнитных ионов внутри димеров, больше, чем обменные интегралы взаимодействия спинов из разных димеров [68]. Величина внутридимерного обменного интеграла составляет 66 К. Такая структура обменных взаимодействий приводит к образованию спиновой щели  $\Delta \approx 8$  К и спин-жидкостному поведению. Магнитные возбуждения являются триплетами со спином  $S = 1$ , их состояния расщепляются магнитным и кристаллическим полями.

Расщепление триплетных состояний кристаллическим полем должно быть значительно меньше, чем в описанных выше халдейновских системах,

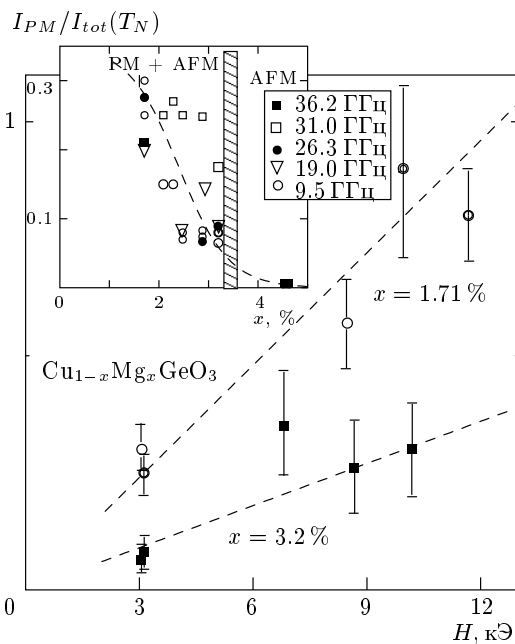


Рис. 21. Зависимость концентрации парамагнитной фазы от магнитного поля при температуре, близкой к точке Нееля со стороны антиферромагнитной фазы. На вставке — зависимость доли парамагнитной фракции, нормированной на поле парамагнитного резонанса, от концентрации примесей [44]. Для  $H = 3$  кЭ нормировочный коэффициент равен единице

поскольку для спинов  $S = 1/2$  одноионная анизотропия отсутствует. Магнитно-резонансная спектроскопия является чувствительным инструментом для определения таких небольших расщеплений. Нами был поставлен ряд экспериментов по измерению спектров магнитного резонанса в  $\text{TlCuCl}_3$  [70]. На рис. 23 приведены записи линий магнитного резонанса в этом кристалле при различных температурах. Видно, что наблюдаемые спектры поглощения демонстрируют термически активированное поведение, что позволяет связать наблюдаемое поглощение с переходами между подуровнями термически активируемых триплетных возбуждений. При низких температурах в спектре поглощения наблюдается несколько компонент (обозначенных  $a$ ,  $b$ ,  $c$ ). Частотно-полевые зависимости этих компонент расщепленного спектра изображены на рис. 24 в области полей до 30 кЭ.

Такое расщепление компонент спектра магнитного резонанса характерно для расщепления уровней спина  $S = 1$  в кристаллическом поле, что позволяет восстановить спиновую часть гамильтониана три-

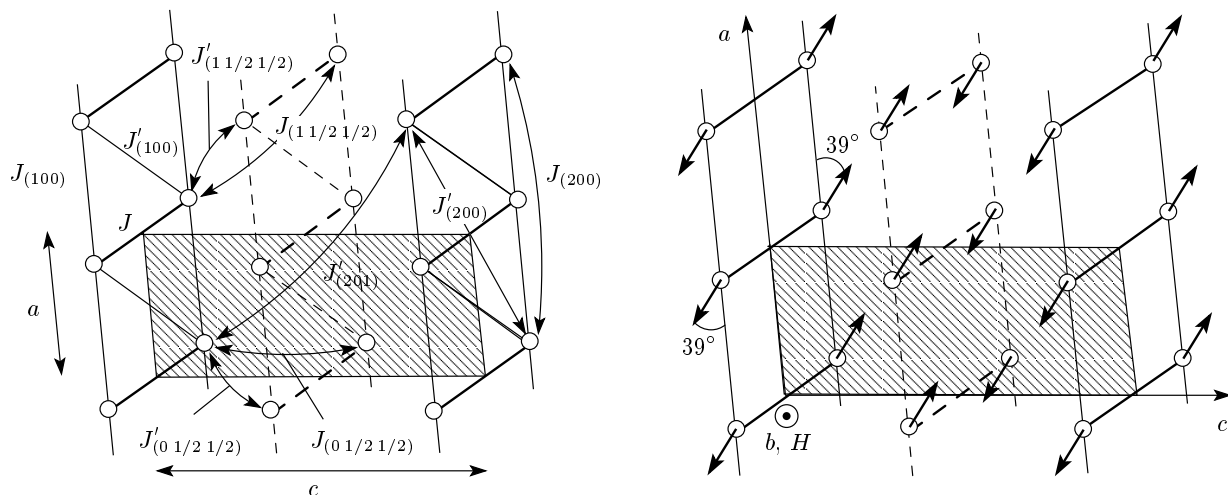


Рис. 22. Структура обменных взаимодействий в димерном магнетике  $\text{TiCuCl}_3$  по данным работы [68] — слева. Определенная в опытах по рассеянию нейтронов [69] спиновая структура индуцированной полем упорядоченной фазы в  $\text{TiCuCl}_3$  ( $T = 1.9$  К,  $\mathbf{H} \parallel b$ ,  $\mu_0 H = 12$  Тл) — справа

плетного возбуждения:

$$\hat{H} = D\hat{S}_z^2 + E(\hat{S}_x^2 - \hat{S}_y^2) + g\mu_B\hat{\mathbf{S}} \cdot \mathbf{H}. \quad (3)$$

Подгонка спектра согласно соотношениям, определяющим спектр магнитного резонанса спина  $S = 1$  в низкосимметричном кристаллическом поле (пунктирные линии на рис. 24), позволяет определить параметры этого спинового гамильтониана:  $D = (8.0 \pm 0.7)$  ГГц,  $E = (5.8 \pm 0.6)$  ГГц.

Таким образом, эксперименты с димерной системой подтверждают триплетный характер коллективных спиновых возбуждений и позволяют определить параметры их взаимодействия с кристаллическим полем. Возможность введения эффективного гамильтониана (3) и наблюдения такого спектра магнитного резонанса означают формирование сильно коррелированного возбужденного состояния на фоне неупорядоченного основного состояния.

Отметим следующую нетривиальность наблюдения расщепленного кристаллическим полем анизотропного спектра. Спектр изолированных ионов  $\text{Cu}^{2+}$  ( $S = 1/2$ ) в принципе не может быть расщеплен и не может быть сильно анизотропным. Основное состояние кристалла является немагнитным и, следовательно, изотропным. Однако триплетные возбужденные состояния, являясь коррелированными коллективными состояниями, проявляют сильно анизотропные свойства, по степени анизотропии аналогичные статическим антиферромагнитно-упорядоченным структурам.

Соединение  $\text{TiCuCl}_3$  вызвало большой интерес

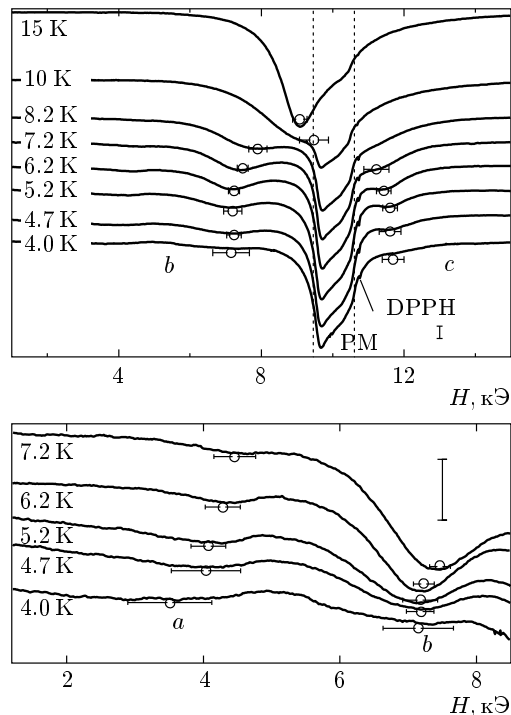
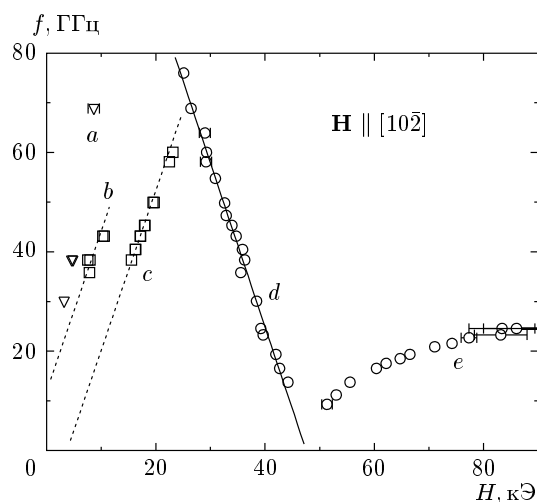


Рис. 23. Линии магнитного резонанса термоактивированных триплетных возбуждений в димерном магнетике  $\text{TiCuCl}_3$  ( $a$ ,  $b$ ,  $c$ ). РМ — линия магнитного резонанса паразитного гидратного соединения, загрязняющего поверхность образца [70]

также в связи с обнаруженным здесь эффектом индуцирования антиферромагнитного порядка силь-



**Рис. 24.** Спектр магнитного резонанса низколежащих триплетных возбуждений (*a*, *b*, *c*), зависимость спиновой щели от магнитного поля (*d*), частота спиновых колебаний в упорядоченной фазе (*e*) [70]

ним магнитным полем (рис. 22), закрывающим энергетическую щель в спектре спиновых возбуждений. Этот квантовый фазовый переход рассматривался как бозе-эйнштейновская конденсация разреженного газа магнитных возбуждений [71]. Данный подход обоснован в обменном приближении, поскольку обменное взаимодействие сохраняет полный спин и, следовательно, число магнонов, а энергетическая щель магнонов и соответствующий химический потенциал зависят от магнитного поля. В этой модели переход в упорядоченное состояние, при котором спиновая щель становится равной нулю и теряется устойчивость спин-жидкостной фазы, эквивалентен образованию бозе-эйнштейновского конденсата, аналогично переходу в сверхтекучее состояние для жидкого гелия. С помощью такого подхода было получено удовлетворительное описание температурной зависимости поля перехода и предсказано наличие бесщелевой голдстоуновской моды в закритической по полю фазе [71]. Мы исследовали этот квантовый фазовый переход с целью изучить спектр возбуждений в упорядоченной фазе и поведение спиновой щели в окрестности перехода. Методика магнитного резонанса обладает здесь большей разрешающей способностью, чем нейтронная спектроскопия. Данные нейтронной спектроскопии спиновых возбуждений в  $\text{TlCuCl}_3$  приведены, например, в работе [72] и на их основе авторы сделали вывод о наличии бесщелевой голдстоуновской моды в полях выше критического.

В ходе экспериментов [70] мы наблюдали, как в точке закрывания спиновой щели происходит обращение в нуль частоты магнитного резонанса, а затем, при дальнейшем повышении магнитного поля, в упорядоченной фазе, эта частота снова растет (см. рис. 24). Таким образом, вывод теории, рассматривающий данный переход как бозе-эйнштейновскую конденсацию магнонов, оказывается приближенным, а в точном смысле — неверным. Наличие анизотропии нарушает осевую симметрию, принятую в теории в обменном приближении, и приводит к формированию энергетической щели другой природы в упорядоченной фазе.

Анализ на основе приближения молекулярного поля [62] показывает, что частота магнитного резонанса пропорциональна индуцированному полю параметру порядка. Таким образом, можно проследить зависимость параметра порядка от поля в области этого квантового фазового перехода. Оказалось, что параметр порядка обращается в нуль в критической точке по закону  $\sqrt{H - H_c}$ , здесь  $H_c$  — критическое поле. Данный анализ может быть справедливым лишь на качественном уровне, так как использует обычные предположения теории молекулярного поля, в которых вычисляются частоты антиферромагнитного резонанса, т. е. параметр порядка предполагается насыщенным и совершающим малые колебания без изменения модуля упорядоченных спиновых моментов.

Более последовательный подход к расчету спектра спиновых возбуждений, учитывающий в теоретико-полевым подходе как обменное взаимодействие, так и взаимодействие с кристаллическим полем, был применен в работе [73]. Здесь получено хорошее соответствие теоретического спектра и спектра, измеренного в работе [70]. Обнаруженные резонансные спиновые осцилляции в упорядоченной фазе вблизи критического поля представляют собой новый вид магнитных возбуждений, в котором, вследствие малой величины упорядоченной компоненты спинов, должны быть представлены не только прецессия спинов, но и продольные колебания параметра порядка. Возникновение щели в энергетическом спектре индуцированной полем антиферромагнитной фазы при наличии анизотропии также описывается в рамках макроскопического гидродинамического подхода [74].

Исследования, представленные в обзоре, были выполнены при финансовой поддержке РФФИ и Фонда содействия отечественной науке. Авторы благодарят А. Ревколевчи, К. Учинокуру, Х. Танаку,

Л. Н. Демьянец и А. Я. Шапиро за предоставленные образцы и В. И. Марченко, А. К. Колежука, М. В. Еремина, Р. М. Еремину и М. Е. Житомирского за постоянный интерес к работе и многочисленные обсуждения.

## ЛИТЕРАТУРА

1. Н. Bethe, *Z. Phys.* **71**, 205 (1931).
2. L. Hulthén, *Arkiv Met. Astron. Fysik* **26A** (1938).
3. J. Cloiseaux and J. J. Pearson, *Phys. Rev.* **128**, 2131 (1962).
4. Л. Н. Булаевский, *ЖЭТФ* **43**, 968 (1962).
5. R. B. Griffiths, *Phys. Rev.* **133**, A768 (1964).
6. J. C. Bonner and M. E. Fisher, *Phys. Rev.* **135**, A640 (1964).
7. F. D. M. Haldane, *Phys. Lett.* **93A**, 464 (1983).
8. F. D. M. Haldane, *Phys. Rev. Lett.* **50**, 1153 (1983).
9. R. Botet and R. Jullien, *Phys. Rev. B* **27**, 613 (1983).
10. S. V. Meshkov, *Phys. Rev. B* **48**, 6167 (1993).
11. S. Miyashita and S. Yamamoto, *Phys. Rev. B* **48**, 913 (1993).
12. Л. Н. Булаевский, *ЖЭТФ* **44**, 1008 (1963).
13. J. C. Bonner and H. W. J. Blöte, *Phys. Rev. B* **25**, 6959 (1982).
14. P. W. Anderson, *Sol. St. Phys.* **14**, 99 (1963).
15. M. J. Hennessy, C. D. McElwee, and P. M. Richards, *Phys. Rev. B* **7**, 930 (1973).
16. E. F. Shender and S. A. Kivelson, *Phys. Rev. Lett.* **66**, 2384 (1991).
17. K. Katsumata, H. Hori, T. Takeuchi, M. Date, A. Yamagishi, and J. P. Renard, *Phys. Rev. Lett.* **63**, 86 (1989).
18. J. P. Renard, M. Verdaguer, L. P. Regnault, W. A. C. Erkelens, J. Rossat-Mignod, J. Ribas, W. G. Stirling, and C. Vettier, *J. Appl. Phys.* **63**, 3538 (1988).
19. A. Zheludev, S. E. Nagler, S. M. Shapiro, L. K. Chou, D. R. Talham, and M. W. Meisel, *Phys. Rev. B* **53**, 15004 (1996).
20. J. Darriet and L. P. Regnault, *Sol. St. Comm.* **86**, 409 (1993).
21. A. Zheludev, T. Masuda, I. Tsukada, Y. Uchiyama, K. Uchinokura, P. Böni, and S.-H. Lee, *Phys. Rev. B* **62**, 8921 (2000).
22. A. W. Garrett, S. E. Nagler, D. A. Tennant, B. C. Sales, and T. Barnes, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 745 (1997).
23. E. Pytte, *Phys. Rev. B* **10**, 4637 (1974).
24. J. W. Bray, H. R. Hart, L. W. Interrante, I. S. Yakobs, J. S. Kasper, G. D. Watkins, S. H. Wee, and J. C. Bonner, *Phys. Rev. Lett.* **35**, 744 (1975).
25. S. Huizinga, J. Kommandeur, G. A. Sawatzky, B. T. Thole, K. Kopinga, W. J. M. de Jonge, and J. Roos, *Phys. Rev. B* **19**, 4723 (1979).
26. C. Coulon, P. Vaca, T. Granier, and B. Gallois, *Synth. Met.* **27**, B449 (1988).
27. Masashi Hase, Ichiro Terasaki, and Kunimutsu Uchinokura, *Phys. Rev. Lett.* **70**, 3651 (1993).
28. E. Dagotto and T. M. Rice, *Science* **271**, 618 (1996).
29. H. Kageyama, K. Yoshimura, R. Stern, N. V. Mushnikov, K. Onizuka, M. Kato, K. Kosuge, C. P. Slichter, T. Goto, and Y. Ueda, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 3168 (1999).
30. A. Oosawa, M. Ishi, and H. Tanaka, *J. Phys.: Condens. Matter* **11**, 265 (1999).
31. H. Fukuyama, T. Tanimoto, and M. Saito, *J. Phys. Soc. Jpn.* **65**, 1182 (1996).
32. L. P. Regnault, J. P. Renard, G. Dhahlenne, and A. Revcolevschi, *Europhys. Lett.* **32**, 579 (1995).
33. Y. Uchiyama, Y. Sasago, I. Tsukada, K. Uchinokura, A. Zheludev, T. Hayashi, N. Miura, and P. Böni, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 632 (1999).
34. A. Oosawa, T. Ono, and H. Tanaka, *Phys. Rev. B* **66**, 020405(R) (2002).
35. M. Braden, G. Wilkendorf, J. Lorenzana, M. Aïn, G. J. McIntyre, M. Behruzi, G. Heger, G. Dhahlenne, and A. Revcolevschi, *Phys. Rev. B* **54**, 1105 (1996).
36. В. Н. Глазков, Р. М. Еремина, А. И. Смирнов, Г. Даленн, А. Ревколевчи, *ЖЭТФ* **120**, 164 (2001).
37. S. Coad, J.-G. Lussier, D. F. McMorrow, and D. M<sup>c</sup>K Paul, *J. Phys.: Condens. Matter* **8**, 6251 (1996).
38. T. Masuda, I. Tsukada, K. Uchinokura, Y. J. Wang, V. Kiryukhin, and R. J. Birgeneau, *Phys. Rev. B* **61**, 4103 (2000).

39. M. Nishi, O. Fujita, and J. Akimitsu, Phys. Rev. B **50**, 6508 (1994).
40. L. P. Regnault, M. Ain, B. Hennion, G. Dhalenne, and A. Revcolevschi, Phys. Rev. B **53**, 5579 (1996).
41. M. Honda, T. Shibata, K. Kindo, S. Sugai, T. Takeuchi, and H. Hori, J. Phys. Soc. Jpn. **65**, 691 (1996).
42. А. И. Смирнов, В. Н. Глазков, А. Н. Васильев, Л. И. Леонюк, С. М. Коад, Д. Мак Пол, Г. Дален, А. Ревколевчи, Письма в ЖЭТФ **64**, 277 (1996).
43. V. N. Glazkov, A. I. Smirnov, K. Uchinokura, and T. Masuda, Phys. Rev. B **65**, 144427 (2002).
44. V. N. Glazkov, A. I. Smirnov, H.-A. Krug von Nidda, A. Loidl, K. Uchinokura, and T. Masuda, Phys. Rev. Lett. **94**, 057205 (2005).
45. V. N. Glazkov, A. I. Smirnov, O. A. Petrenko, D. M<sup>c</sup>K Paul, A. G. Vetkin, and R. M. Eremina, J. Phys.: Condens. Matter **10**, 7879 (1998).
46. М. И. Белинский, Б. С. Цукерблат, А. В. Аблов, ФТТ **16**, 989 (1974).
47. P. W. Anderson, J. Phys. Soc. Jpn. **9**, 316 (1954).
48. В. Н. Глазков, Дисс. . . . канд. физ.-матем. наук, ИФП, Москва (2003).
49. B. Grenier, P. Monod, M. Hagiwara, M. Matsuda, K. Katsumata, S. Clement, J.-P. Renard, A. L. Barra, G. Dhalenne, and A. Revcolevschi, Phys. Rev. B **65**, 094425 (2002).
50. A. I. Smirnov, V. N. Glazkov, H.-A. Krug von Nidda, A. Loidl, L. N. Demianets, and A. Ya. Shapiro, Phys. Rev. B **65**, 174422 (2002).
51. M. Hagiwara, K. Katsumata, I. Affleck, B. I. Halperin, and J. P. Renard, Phys. Rev. Lett. **65**, 3181 (1990).
52. T. Kennedy, J. Phys.: Condens. Matter **2**, 5737 (1990).
53. С. А. Альтшулер, Б. М. Козырев, *Электронный парамагнитный резонанс соединений элементов промежуточных групп*, Наука, Москва (1972).
54. S. H. Glarum, S. Geschwind, K. M. Lee, M. L. Kaplan, and J. Michel, Phys. Rev. Lett. **67**, 1614 (1991).
55. A. I. Smirnov, H.-A. Krug von Nidda, A. Loidl, L. N. Demianets, and A. Ya. Shapiro, J. Magn. Magn. Mat. **272–276**, 880 (2004).
56. O. Golinelli, Th. Jolicœur, and R. Lacaze, Phys. Rev. B **45**, 9798 (1992).
57. M. Date and K. Kindo, Phys. Rev. Lett. **65**, 1659 (1990).
58. A. I. Smirnov and V. N. Glazkov, J. Magn. Magn. Mat. **300**, 216 (2006).
59. P. P. Mitra, B. I. Halperin, and I. Affleck, Phys. Rev. B **45**, 5299 (1992).
60. А. И. Смирнов, В. Н. Глазков, Л. И. Леонюк, А. Г. Веткин, Р. М. Еремина, ЖЭТФ **114**, 1876 (1998).
61. M. Hase, M. Hagiwara, and K. Katsumata, Phys. Rev. B **54**, R3722 (1996).
62. T. Nagamiya, K. Yosida, and R. Kubo, Adv. Phys. **13**, (1955).
63. V. K. S. Shante and S. Kirkpatrick, Adv. Phys. **20**, 325 (1971).
64. C. Yasuda, S. Todo, M. Matsumoto, and H. Takayama, Phys. Rev. B **64**, 092405 (2001).
65. J. M. Tranquada, J. D. Axe, N. Ichikawa, A. R. Moodenbaugh, Y. Nakamura, and S. Uchida, Phys. Rev. Lett. **78**, 338 (1997).
66. E. Dagotto, T. Hotta, and A. Moreo, Phys. Rep. **344**, 1 (2001).
67. V. N. Glazkov, A. I. Smirnov, H.-A. Krug von Nidda, A. Loidl, T. Masuda, and K. Uchinokura, J. Magn. Magn. Mat. **272–276**, E695 (2004).
68. A. Oosawa, T. Kato, H. Tanaka, K. Kakurai, M. Müller, and H.-J. Mikeska, Phys. Rev. B **65**, 094426 (2002).
69. H. Tanaka, A. Oosawa, T. Kato, H. Uekusa, Y. Ohashi, K. Kakurai, and A. Hoser, J. Phys. Soc. Jpn. **70**, 939 (2001).
70. V. N. Glazkov, A. I. Smirnov, H. Tanaka, and A. Oosawa, Phys. Rev. B **69**, 184410 (2004).
71. T. Nikuni, M. Oshikawa, A. Oosawa, and H. Tanaka, Phys. Rev. Lett. **84**, 5868 (2000).
72. Ch. Rugg, N. Cavadini, A. Furrer, H.-U. Gudel, K. Kramer, H. Mutka, A. Wildes, K. Habicht, and P. Vorderwisch, Nature **423**, 62 (2003).
73. A. K. Kolezhuk, V. N. Glazkov, H. Tanaka, and A. Oosawa, Phys. Rev. B **70**, 020403 (2004).
74. А. М. Фарутин, В. И. Марченко, ЖЭТФ **131**, 860 (2007).