

Квантовая спиновая жидкость в антиферромагнетике с четырехспиновым взаимодействием

© С.С. Аплеснин

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

(Поступила в Редакцию 26 августа 1996 г.)

Квантовым методом Монте-Карло исследуется анизотропный антиферромагнетик с четырех-спиновым взаимодействием (K) и со спином $S = 1/2$ на квадратной решетке. Вычислены температурные зависимости теплоемкости, восприимчивости, спиновых корреляционных функций, радиуса корреляции и зависимости намагниченности от поля. Определены фазовые диаграммы основного состояния антиферромагнетика щелевой квантовой спиновой жидкости ($K > 0$) и безщелевой ($K < 0$) на плоскостях анизотропии обмена — константа четырехспинового обмена (K), магнитное поле (H)– K и температура (T)– K для анизотропии обмена 0.1 J.

Открытие высокотемпературных сверхпроводников [1] вызвало широкий интерес к двумерным (2D) квантовым антиферромагнетикам. Теория и эксперимент указывают на существенную роль спиновой динамики в механизме сверхпроводимости [2,3]. В широкой области температур спины ионов меди в Cu–O-плоскости проявляют сильные двумерные антиферромагнитные корреляции, которые претерпевают сильные изменения в зависимости от содержания кислорода. Недостаток или избыток кислорода, возможно, приводит к образованию виртуальных электронов в зоне проводимости и дырки в валентной зоне либо к локальной деформации решетки, что ведет к дополнительному четырехспиновому взаимодействию в спиновом гамильтониане. Возникает вопрос: как это дополнительное взаимодействие отразится на магнитном порядке спинов с $S = 1/2$.

Антиферромагнетики (AF) с четырехспиновым обменом широко исследовались в литературе для случая $S > 1/2$ [4,5]. Для них получены квантовые квадрупольные состояния либо сложные неколлинеарные структуры. Для спина $S = 1/2$ квадрупольное упорядочение отсутствует. В работе Андреева и Грищука [6] в специальной модели (в элементарную ячейку магнетика входят два спина величины S , взаимодействующих друг с другом посредством четырехспинового обмена, и спины из разных ячеек связаны друг с другом билинейным обменом) получено состояние спинового нематика при достаточно большом четырехспиновом обмене. В обычной модели, когда все ближайшие спины связаны билинейным обменом, спин-волновое приближение [7] не приводит к разрушению антиферромагнитного порядка. В одномерной цепочке четырехспиновое взаимодействие приводит к димеризации и щелевым возбуждениям [8].

Цель данной работы состоит в определении области устойчивости дальнего антиферромагнитного порядка, исследовании свойств квантовой спиновой жидкости, включая поведение термодинамических величин в зависимости от величины анизотропии обмена и четырехспинового взаимодействия. Понятие "состояние квантовой спиновой жидкости", введенное Андерсоном [9],

подразумевает существование короткой области сильных антиферромагнитных корреляций без общепринятого коллинеарного упорядочения. Кроме изучения этой фазы в области, где исчезнет дальний магнитный порядок, исследовалась возможность появления димерного состояния, состояния с киральным упорядочением, нарушающего инвариантность относительно обращения времени, и состояния спинового нематика. В работе используется квантовый метод Монте-Карло (МК), использующий траекторный алгоритм [10]. Суть алгоритма состоит в преобразовании квантовой d -мерной задачи к классической $d + 1$ -мерной путем введения "временных" срезов в пространстве мнимого времени $0 < \tau < 1/T$ и реализации МК-процедуры в пространстве "мнимое время–координата".

1. Модель и метод

Рассмотрим гейзенберговский анизотропный AF с четырехспиновым обменом по квадрату на плоской решетке со спином $S = 1/2$, направлены вдоль оси Z , и анизотропией типа "легкая ось". Гамильтониан имеет вид

$$H = - \sum_{i,j=1}^L \left(J_{i,j}^z S_i^z S_j^z + J_{i,j}^{x,y} (S_i^x S_j^x + S_i^y S_j^y) \right) - K \sum_{i=1}^u \mathbf{S}_i \mathbf{S}_{i+x} \mathbf{S}_{i+y} \mathbf{S}_{i+x+y} - h^z \sum_{j,i=1}^N (S_i^z + S_j^z), \quad (1)$$

где $J^\alpha < 0$ ($\alpha = x, y, z$) — антиферромагнитное обменное взаимодействие между ближайшими соседями $J^{x,y}/J^z \leq 1$, K — константа четырехспинового взаимодействия, x и y — единичные векторы вдоль осей X, Y , h^z — внешнее магнитное поле, приложенное вдоль оси Z , L — линейный размер решетки, а N — общее число узлов.

Алгоритм квантового метода МК подробно изложен ранее [8]. Поэтому укажем основные параметры, исполь-

зумы в вычислениях для двумерной решетки. В МК-вычислениях используются периодические граничные условия по троттеровскому направлению и по решетке. Линейный размер решетки $L = 32, 36$ и $m = 12, 16, 24, 32$. Количество МК-шагов из один спин изменялось от $M = 3000$ до 10000 . Один МК-шаг определяется поворотом всех спинов на решетке размером $L \times L \times 4m$. Энергия E , теплоемкость C вычислялись по формулам

$$E = \left\langle \sum_i F_i^r \right\rangle, \quad F_i^r = -\partial/\partial\beta(\ln \rho_i^r), \quad C = dE/dT. \quad (2)$$

Здесь ρ_i^r — матричные элементы локальной матрицы плотности. Сумма берется по $N \cdot m/2$ восьмиспиновым кластерам, и скобки обозначают термодинамическое среднее. Намагниченность M и продольная восприимчивость χ определяются как

$$M = \left\langle \sum_i M_i^r \right\rangle, \quad M_i^r = \frac{1}{4m} \sum_{i=1}^8 S_i, \quad (S_i = \pm 1/2), \quad \chi = M/H. \quad (3)$$

Вычислены продольная спин-спиновая $R(r) = \langle S_0^z S_r^z \rangle$ и четырехспиновая $\langle S_0^z S_1^z S_r^z S_{r+1}^z \rangle$ корреляционные функции и их Фурье-образ на сторонах квадратной решетки

$$\langle S_q S_{-q} \rangle = 1/L \sum_{r=1}^L \exp(-iqr) \langle S_0^z S_r^z \rangle, \quad \langle t_{qt-q} \rangle = 1/L \sum_{r=1}^L \exp(-iqr) \langle S_0^z S_1^z S_r^z S_{r+1}^z \rangle. \quad (4)$$

Корреляционный радиус взаимодействия спинов ξ и предэкспоненциальный показатель степени η определяются соотношением

$$R(r) = A/r^\eta \exp(-r/\xi), \quad (5)$$

где $R(r)$ — нормированная корреляционная функция $R(r) = \langle S^z(0)S^z(r) \rangle - \langle S^z \rangle^2$.

По аналогии с димерным параметром порядка, характеризующим упорядочение синглетно связанных пар, введем параметр порядка синглетно связанных кластеров. Для этого вычислим спин-спиновые корреляционные функции по продольным компонентам восьмого, двенадцатого и шестнадцатого порядков

$$\langle S_i^z S_{i+1}^z \dots S_{i+k}^z S_{i+r}^z S_{i+r+1}^z \dots S_{i+r+k}^z \rangle, \quad k = 1, 3, 5, 7. \quad (6)$$

Сделаем Фурье-преобразование, определим все максимумы $S(q)$ и соответствующие им волновые векторы. Определим векторный параметр киральности по наименьшему треугольнику

$$\mathbf{F}_{ijk} = (\mathbf{S}_i \times \mathbf{S}_j + \mathbf{S}_j \times \mathbf{S}_k + \mathbf{S}_k \times \mathbf{S}_i)$$

и вычислим его z -проекцию F^z

$$F_{ijk}^z = i \left[(S_i^+ S_j^- - S_i^- S_j^+) + (S_j^+ S_k^- - S_j^- S_k^+) + (S_k^+ S_i^- - S_k^- S_i^+) \right]. \quad (7)$$

Вычислим корреляционные функции нормального и аномального типов спиновых операторов $\langle S^+(0)S^-(r) \rangle$, $\langle S^+(0)S^+(r) + S^-(0)S^-(r) \rangle$, используя метод Хирша [11]. Суть этого метода состоит в том, что мировые линии разрываются в троттеровском направлении на расстоянии $r = m$ и на этом расстоянии сравниваются волновые функции в S^z представлении. Вычисление этих корреляций требует проведения новой МК-процедуры со свободными граничными условиями в троттеровском направлении и увеличения времени счета в 2 раза.

Статистическая погрешность при МК-расчете оценивалась стандартным методом. Вычислялось среднее значение, мгновенное значение запоминалось, и после окончания МК-процедуры вычислялось среднеквадратичное отклонение. Величина этой погрешности лежит в интервале 0.1–3%. Системная ошибка образуется за счет конечного числа m и пропорциональна $\sim A/(mT)^2$. Коэффициент A определяется из зависимости вычисляемой величины от m ($m = 12, 16, 24, 32$). При самой низкой температуре $T/J = 0.1$, используемой в вычислениях, системная ошибка минимальна для энергии и максимальна для восприимчивости и находится в интервале 1–8%. В области фазовых переходов по температуре эта погрешность меньше среднеквадратичной ошибки. Основной вклад в погрешность вычислений в магнитоупорядоченной области в окрестности T_c вносят размерные эффекты, которые уменьшаются с ростом величины четырехспинового обмена. Влияние конечных размеров решетки оценивалось из спин-спиновой корреляционной функции и радиуса корреляции.

2. Результаты и обсуждение

Для проверки составленной программы вычислены температурные зависимости энергии восприимчивости, теплоемкости, радиуса корреляции изотропного двумерного антиферромагнетика. Полученные зависимости сравнивались с результатами, полученными на суперкомпьютере с использованием в МК-процедуре 350 000 МК-шагов [12]. Разница в вычисленных значениях энергии составляет $\sim 0.1\%$, теплоемкости $\sim 2\%$, восприимчивости $\sim 15\%$ при $T/J = 0.3$ и уменьшается с ростом температуры до полного совпадения при $T/J = 1$. Температуры перехода анизотропного АФ, вычисленные МК-методом для $1 - J^{x,y}/J^z = 0.1$, равны $T_c = 0.42 \pm 0.016$ и 0.58 ± 0.02 , превышают соответствующие величины, вычисленные в спин-волновом приближении ($T_c = 0.342$ и 0.5), и хорошо согласуются с точными результатами для модели Изинга ($T_c = 0.566$) [13].

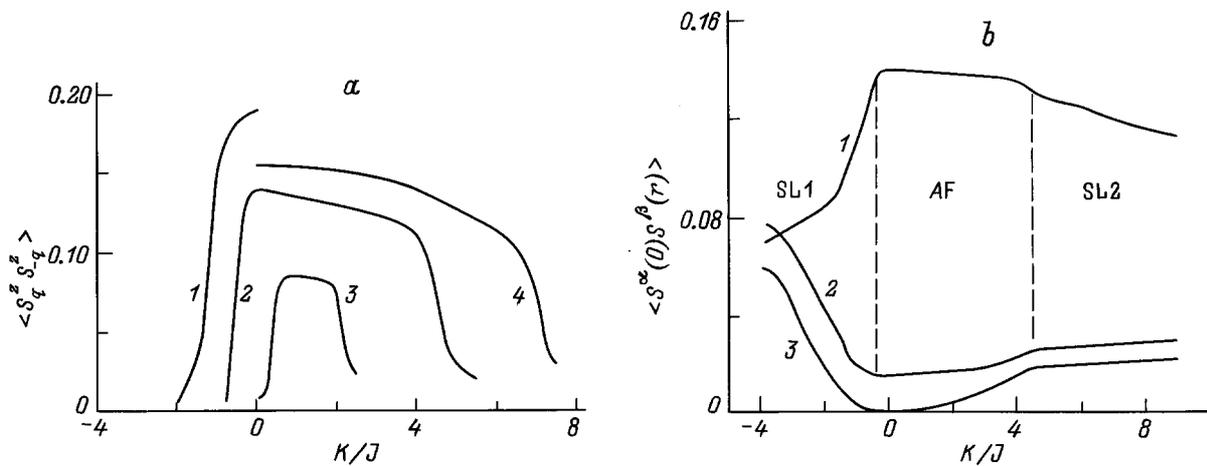


Рис. 1. Зависимости корреляционных функций для $q = \pi$ и констант анизотропии обмена $1 - J^k/J^z = 0.3$ (1), 0.1 (2), 0 (3), 0.2 (4) при $T/J = 0.1-0.2$ (a); а также корреляционной функции для $1 - J^x/J^z = 0.1, r = 1, \alpha, \beta = z$ (1), $\alpha(+), \beta(-)$ (2) и $r = \sqrt{2}, \alpha(\pm), \beta(\pm)$ (3) (b) от величины четырехспинового обмена.

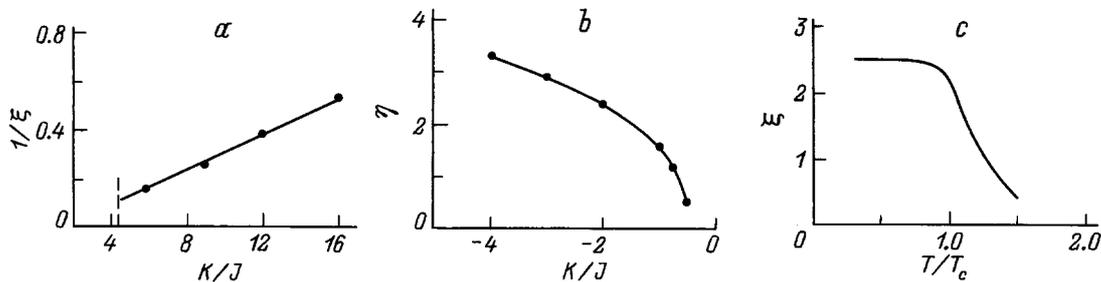


Рис. 2. Зависимости обратного радиуса корреляции основного состояния квантовой спиновой жидкости (SL2) (a) и показателя η степенного поведения корреляционных функций в SL1 (b) при $1 - J^k/J^z = 0.1$ от нормированной величины четырехспинового обмена, а также радиуса корреляции ξ анизотропной спиновой жидкости для $1 - J^x/J^z = 0.1, K/J=12$ от нормированной температуры T/T_c (c).

Определим область устойчивости дальнего антиферромагнитного порядка в зависимости от анизотропии обмена и величины четырехспинового обмена. Для этого вычислим корреляционные функции нормальных и аномальных спиновых операторов по продольным компонентам спина, корреляционный радиус (5) в зависимости от величины четырехспинового обмена для ряда констант анизотропии обмена в области низких температур $T/J = 0.1-0.3$. Некоторые зависимости приведены на рис. 1. Критические константы K_c , соответствующие исчезновению дальнего магнитного порядка, определим из точек перегиба $\langle S^\alpha(0)S^\beta(r) \rangle$ и по изломам зависимости энергии $E(K)$. Переход из антиферромагнитной фазы в новое магнитное состояние по параметру K является фазовым переходом первого рода. Корреляционный радиус в окрестности K_c имеет конечное значение и уменьшается с увеличением анизотропии обмена и с ростом абсолютной величины четырехспинового обмена, как изображено на рис. 2, b для $1 - J^{x,y}/J^z = 0.1$. Для изотропного AF при $K_c/J = 0.5 \pm 0.1$ индуцируется дальний магнитный порядок, который исчезает при $K_c/J = 2 \pm 0.15$. Для $K > K_c$ магнетик имеет ярко

выраженный ближний порядок с экспоненциальным затуханием спин-спиновых корреляций. Данное состояние невозможно описать параметром спиновой нематической фазы [6], для которой необходима полная аксиальная симметрия. В плоскости XY аномальные корреляционные функции спиновых операторов в 4-6 раз меньше $\langle S^z(0)S^z(r) \rangle$ для $K > 0$, и с ростом величины четырехспинового обмена это отношение уменьшается (рис. 1, b). Существование $\langle S^+(0)S^+(r) \rangle$ на расстоянии нескольких постоянных решетки предполагает кубическую анизотропию в базисной плоскости. Когда четырехспиновой обмен конкурирует с билинейным $K < 0$ ближний порядок имеет скошенную структуру, спин-спиновые корреляционные функции по поперечным и продольным компонентам сравнимы между собой по величине (рис. 1, b) и изменяются с расстоянием по степенному закону. Показатель степени η растет с ростом модуля величины четырехспинового обмена и уменьшается с увеличением температуры до $\eta \approx 0.5$ в парамагнитном состоянии (рис. 2, b). Вычисление температурных зависимостей корреляционных функций, восприимчивости, теплоемкости указывает на существование конеч-

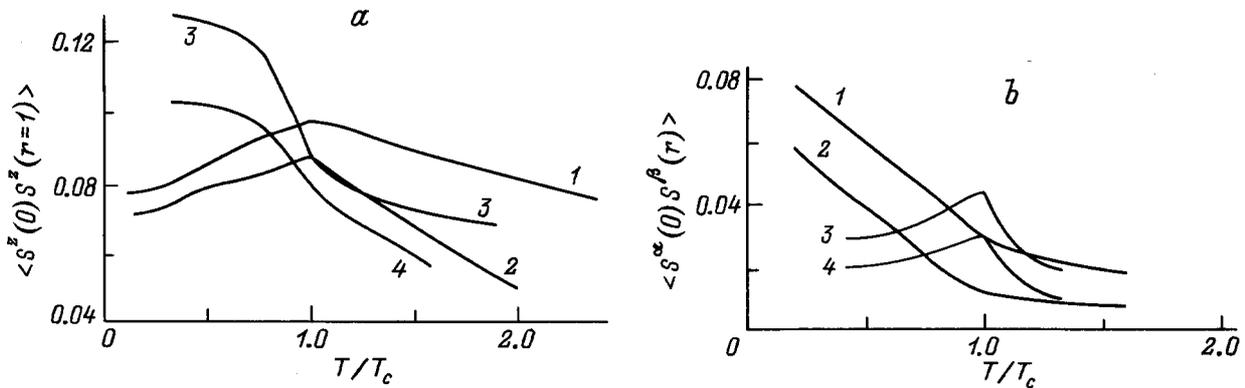


Рис. 3. Зависимость корреляционной функции по продольным компонентам спина при $1 - J^x/J^z = 0.1$, $r = 1$, $K/J = -2.5$ (1), -4 (2), 9 (3), 12 (4) (a), по поперечным компонентам спина на расстояниях $r = 1$, $\alpha(+)$, $\beta(-)$ (1), $r = \sqrt{2}$, $\alpha(\pm)$, $\beta(\pm)$ (2) для $K/J = -4$ и на расстояниях $r = 1$, $\alpha(+)$, $\beta(-)$ (3), $r = \sqrt{2}$, $\alpha(\pm)$, $\beta(\pm)$ (4) для $K/J = 9$ (b) от нормированной температуры.

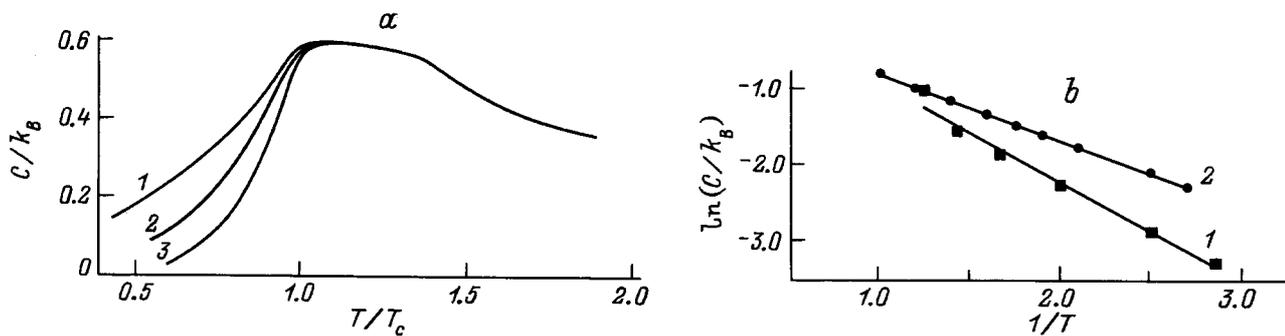


Рис. 4. Зависимости теплоемкости от нормированной температуры для $K/J = 12$ (1), -2.5 (2), -4 (3) (a) и логарифма теплоемкости от обратной температуры для $K/J = 9$ (1), 6 (2) (b).

ной температуры перехода. Это состояние похоже на квантовую спиновую жидкость, понятие которой было введено Андерсоном [9] для треугольной решетки с антиферромагнитным взаимодействием. В данном случае спиновая жидкость (SL2) является анизотропной и в качестве параметра можно выбрать спиновые корреляционные функции $\langle S^\alpha(0)S^\beta(r) \rangle$ на расстояниях $r = 1, \sqrt{2}$ ($\alpha, \beta = z, +, -$). Корреляционные функции нормальных и аномальных спиновых операторов увеличиваются с ростом температуры и максимальны в точке перехода, а продольные спиновые корреляционные функции имеют точку перегиба в точке T_c для $K > 0$ (рис. 3). Корреляционный радиус анизотропной спиновой жидкости практически не меняется с температурой для $T < T_c$ (рис. 2, c). Для $K < 0$ продольные корреляционные функции растут с возрастанием температуры и максимальны в точке T_c , а поперечные — линейно уменьшаются до T_c . В точке T_c степенная зависимость $R(r)$ заменяется на экспоненциальную (5). Термодинамическое значение спина на узле в этом состоянии также равно нулю, однако эта спиновая жидкость (SL1) по своим магнитным свойствам отличается от SL2.

Температурное поведение теплоемкости спиновой жидкости отличается от $C(T)$ в АФ. Для $K > 0$ при $T < T_c$ температурная зависимость $C(T)$ анизотроп-

ной спиновой жидкости (SL2) хорошо аппроксимируется экспонентой $C(T) \cong A \exp(-\Delta/T)$, где Δ — энергетическая щель между основным и возбужденным состояниями. На рис. 4 изображена эта зависимость в логарифмическом масштабе. Величина Δ совпадает с температурой фазового перехода T_c , связанной с изменением симметрии от кубической к спиновой группе $O(3)$. Для фрустрированных констант четырехспинового обмена $K < 0$ температурная зависимость теплоемкости не описывается этим соотношением. Максимум теплоемкости, независимо от знака K лежит выше температуры перехода.

Продольная магнитная восприимчивость в магнитоупорядоченности области с $K > 0$ имеет экспоненциальную малость в широкой области температур по сравнению с одноосным АФ (рис. 5, a). В анизотропной спиновой жидкости поведение восприимчивости в зависимости от нормированной температуры T/T_c инвариантно относительно величины четырехспинового обмена. Для $K < 0$ величина восприимчивости SL1 слабо меняется в температурном интервале $T/T_c = 0-2$ (рис. 5, b).

SL2 имеет ближний порядок, который характеризуется тензорным параметром ближних спиновых корреляционных функций. Возможно, что здесь существует дальний порядок по неизвестному параметру порядка. По

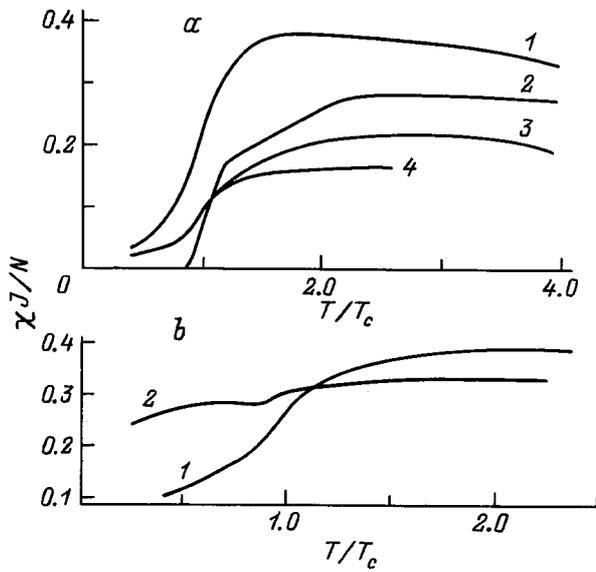


Рис. 5. Зависимость восприимчивости от нормированной температуры для $1 - J^x/J^z = 0.1$, K/J : а) 1 — 0, 2 — 2, 3 — 6, 4 — 9, б) 1 — -0.5, 2 — -2.5.

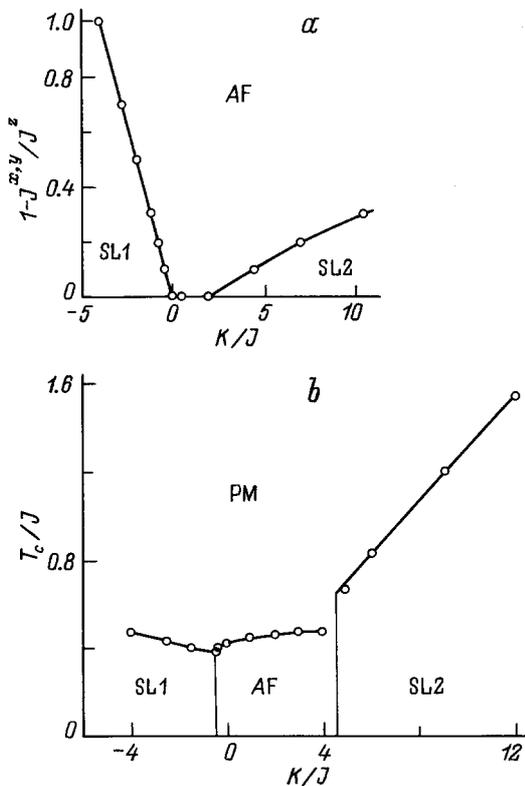


Рис. 6. Фазовая диаграмма основного состояния антиферромагнетика, щелевой квантовой спиновой жидкости (SL2) и безщелевой (SL1) со степеньным затуханием спиновой корреляционной функции на плоскости "анизотропия обмена-константа четырехспиновой обмена" (а) и на плоскости "температура-константа четырехспиновой обмена" для $1 - J^x/J^z = 0.1$ (б).

аналогии с димерным параметром, который здесь отсутствует, вычислялись спиновые корреляционные функции высокого порядка (6) для выявления корреляции между кластерами спинов, находящихся в синглетном состоянии. В широкой области значений K величины этих корреляционных функций при $r > 1$ стремятся к нулю. Отсутствует также и киральный порядок, определяемый соотношением (7). Вычислялся параметр порядка фазы Холдейна [14]

$$Q^{\text{strin}} = \left\langle S_i^z \exp \left(-iq \sum_{k=i+1}^j S_k^z \right) S_j^z \right\rangle. \quad (8)$$

Для $q = \pi, \pi/2, \pi/4, \pi/8$ этот параметр также равен нулю. Итак, квантовая спиновая жидкость не имеет дальнего параметра порядка.

Фазовая диаграмма основного состояния AF, квантовой спиновой жидкости, имеющей щель SL2, и безщелевой SL1 изображена на рис. 6. Для $K < 0$ фазовая граница SL1-AF определяется из соотношения равенства энергии анизотропии обмена четырехспиновому взаимодействию $K_c/J = (1 - J^{x,y}/J^z) \cdot 4$. Для значения анизотропии обмена $1 - J^{x,y}/J^z = 0.1$ сделан разрез на фазовой диаграмме по температуре (рис. 6, б).

Кривые намагничивания $M(H)$ в спиновой жидкости с $K < 0$ изменяются линейно от $H = 0$, что подтверждает бесщелевое состояние SL1 (рис. 7, а). Для $K > 0$ существует критическое значение маг-

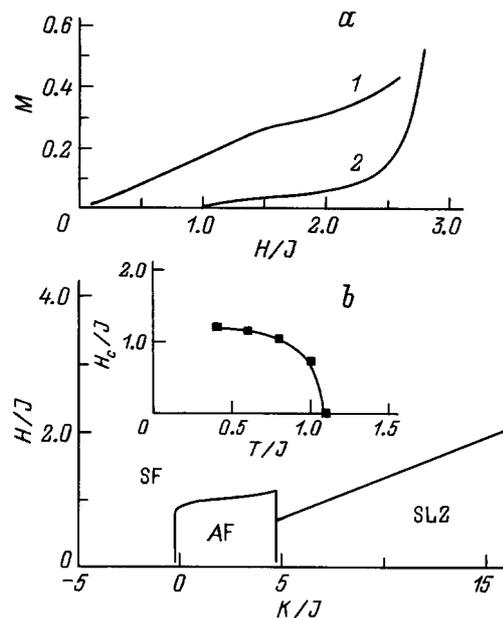


Рис. 7. Зависимость намагниченности от внешнего магнитного поля для $K/J = -2.5$ (1), 8 (2) (а) и фазовая диаграмма основного состояния антиферромагнетика, анизотропной спиновой жидкости (SL2), спин-флоп-фазы (SF) на плоскости "магнитное поле-нормированная константа четырехспиновой обмена" (б). На вставке зависимость критического поля H_c от температуры — для $K/J = 8$ и $1 - J^x/J^z = 0.1$.

нитного поля в SL2, когда образуется дальний порядок. Величина этого поля равна значению щели, определенной из теплоемкости. Фазовая диаграмма на плоскости "магнитное поле–константа четырехспинового обмена" изображена на рис. 7, *b*. Кривые намагничивания $M(H)$ вычислены в области низких температур, когда критическое поле H_c незначительно меняется в зависимости от температуры (вставка на рис. 7, *b*). Фазовая граница SL2–SF (спин-флоп-фаза) изменяется линейно в зависимости от константы четырехспинового обмена. Это удовлетворительно согласуется с оценками H_c в приближении молекулярного поля $H_c = \sqrt{2H_A H_E} = \sqrt{2(1 - J^{xy}/J^z + KS^2)(1 + KS^2)zS} \sim KS^3z$ при $KS^2 > J$, z — координационное число. Если предположить, что в фазе SL2 кластеры из четырех спинов слабо взаимодействуют между собой и попарно связаны, т.е. координационное число $z = 1$, то коэффициент наклона $H_c(K)$, вычисленный методом МК, приблизительно равен 0.1, что неплохо согласуется со значением ≈ 0.125 , вычисленным в приближении молекулярного поля.

Итак, большая положительная величина четырехспинового взаимодействия, зависящая от анизотропии обмена, разрушает дальний порядок в анизотропном двумерном АФ и образует щелевое состояние квантовой спиновой жидкости с нулевым термодинамическим значением спина на узле. Величина щели пропорциональна константе четырехспинового обмена. Отрицательное четырехспиновое взаимодействие также разрушает дальний порядок и приводит к безщелевой спиновой жидкости с сильным затуханием спин-спиновых корреляционных функций по степенному закону.

Список литературы

- [1] J.G. Bendorz, J.A. Muller. Phys. **В 64**, 189 (1986).
- [2] P.W. Anderson. Science **235**, 1196 (1987).
- [3] Y. Endoh, K. Yamada, R.J. Birgenau, D.R. Gable, H.P. Jenssen, M.A. Kastner, C.J. Peters, P.J. Picone. Phys. Rev. **В 37**, 7443 (1988).
- [4] Y. Hasegawa, D. Poliblanс. Phys. Rev. **В 40**, 9035 (1989).
- [5] Э.Л. Нагаев. Магнетики со сложными обменными взаимодействиями. Наука. М. (1988). С. 17–24.
- [6] А.Ф. Андреев, И.А. Гришук. ЖЭТФ. **87**, 467 (1984).
- [7] B. Roessli, P. Fisher, A. Furrer, G. Petrakovskii, K. Sablina, V. Valkov, B. Fedoseev. J. Appl. Phys. **73**, 6448 (1993).
- [8] С.С. Аплеснин. ФТТ **38**, 6, 1868 (1996).
- [9] P.V. Anderson. Matter. Res. Bull. **8**, 153 (1973).
- [10] H.M. Raedt, A. Legendijk. Phys. Rev. **127**, 233 (1985).
- [11] J.E. Hirsch, R.L. Sugar. Phys. Rev. **В 26**, 5039 (1982).
- [12] M.S. Makivic, Ding Hong-Qiang. Phys. Rev. **В 43**, 3562 (1991).
- [13] L. Onsager. Phys. Rev. **65**, 117 (1944).
- [14] F.D.M. Haldane. Phys. Rev. Lett. **50**, 1153 (1983).