

К ВОПРОСУ О КВАНТОВОМ ПЛАТО НАМАГНИЧЕННОСТИ В МЕТАЛЛ-ОРГАНИЧЕСКИХ КВАЗИОДНОМЕРНЫХ ФЕРРИМАГНЕТИКАХ

И. Г. Бострем, А. С. Боярченко, А. А. Коновалов,

А. С. Овчинников, В. Е. Сеницын*

*Уральский государственный университет
620083, Екатеринбург, Россия*

Поступила в редакцию 17 сентября 2002 г.

Теоретически исследована возможность реализации квантового плато намагниченности в металл-органических соединениях $[\text{Mn}(\text{hfac})_2\text{BNO}_R]$. С помощью модели одномерной ферримагнитной цепочки $(5/2, 1)$, рассчитана зависимость намагниченности от внешнего поля методом дискретного континуального интегрирования. Обнаружено сосуществование в рамках этой модели классического и квантового плато намагниченности. Показано, что критическое поле H_{c1} , разрушающее классическое плато (намагниченность основного состояния) определяется величиной оптической щели в нулевом поле, которая оценивается с использованием метода матричных произведений и численного метода прямой диагонализации (рекурсии).

PACS: 75.50.Xx, 75.50.Gg

1. ВВЕДЕНИЕ

Квантование намагниченности — одно из интереснейших явлений в физике низкоразмерных магнетиков. Плато намагниченности наблюдались в сильных магнитных полях в ряде квазиодномерных соединений: в спиновых цепочках спина $S = 1$ [1], органических спиновых лестницах [2] и т. д.

С помощью теоремы Либба–Шульца–Маттиса [3] в работе [4] было получено общее условие существования плато намагниченности

$$\tilde{S} - m \in \mathbb{Z}, \quad (1)$$

где \tilde{S} и m — соответственно сумма спинов по всем узлам элементарной ячейки и намагниченность на период (намагниченность элементарной ячейки).

Ферримагнитные спиновые цепочки занимают особое место среди упомянутых систем. Среди реальных прототипов таких соединений следует отметить биметаллические цепочки $\text{MCu}(\text{pbaOH})(\text{H}_2\text{O})_3\cdot 2\text{H}_2\text{O}$ [5] $M = \text{Mn}$ ($S = 5/2$),

Fe ($S = 2$), Co ($S = 3/2$), Ni ($S = 1$). Методами современного синтеза удалось реализовать новый класс квазиодномерных ферримагнетиков — металл-органические соединения с общей формулой $[\text{Mn}(\text{hfac})_2\text{BNO}_R]$ ($R = \text{H}, \text{F}, \text{Cl}, \text{Br}$) [6].

Одномерные ферримагнетики, в том числе металл-органические, обладают рядом интересных термодинамических свойств. Благодаря существованию оптической щели в спектре возбуждений, они напоминают антиферромагнетики с целым спином при высоких температурах, в то время как благодаря существованию спонтанной намагниченности, при низких температурах они обладают свойствами, типичными для ферромагнетиков [7, 8].

Квантование намагниченности для одномерных ферримагнетиков рассматривалось довольно интенсивно на примере модели $(1, 1/2)$. Модель обнаруживает плато в кривой намагничивания основного состояния. Однако существование этого плато может быть объяснено классическим образом за счет существования оптической щели в спектре элементарных возбуждений (классическое плато) [9]. В работе [7] было отмечено, что в квантовых ферримагнетиках,

*E-mail: alexander.ovchinnikov@usu.ru

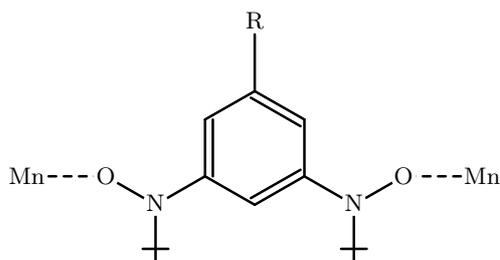


Рис. 1. Структура спиновой цепочки соединения $[\text{Mn}(\text{hfac})_2\text{BNO}_R]$

состоящих из двух сортов спинов (S, s), каждый из которых больше $1/2$, возможно появление плато другого рода (квантовых) с намагниченностью

$$m = S - s + 1, S - s + 2, \dots, S + s - 1,$$

возникновение которых не может быть объяснено ни в классической модели Изинга, ни в классической модели Гейзенберга. Биметаллические соединения $\text{MCu}(\text{pbaOH})(\text{H}_2\text{O})_3 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ не годятся для поиска квантовых плато, так как спин меди $S(\text{Cu}) = 1/2$. Металл-органические соединения — более перспективные объекты для поиска квантовых плато.

Для описания магнитных свойств соединений $[\text{Mn}(\text{hfac})_2\text{BNO}_R]$ (рис. 1) может быть использована модель ферримагнетика, состоящего из двух сортов спинов $(5/2, 1)$. Такое приближение оправдано, когда ферромагнитное взаимодействие между спинами NO-групп ($s = 1/2$) достаточно велико и их можно рассматривать вместе как один спин $s = 1$ [10].

Согласно условию (1) плато намагниченности M реализуется при условии $S_{\text{max}}(1 - M) \in \mathbb{Z}$, где S_{max} — максимальное значение спина на элементарную ячейку ($S_{\text{max}} = 7/2$), а намагниченность M нормирована на значение своего насыщения ± 1 . Таким образом, можно ожидать плато намагниченности при $M = 3/7$, соответствующее основному состоянию (классическое плато), при $M = 5/7$ (частично поляризованное состояние или квантовое плато) и $M = 1$ (полностью поляризованное состояние).

Цель данной работы — исследовать возможность реализации квантового плато намагниченности в рамках модели одномерного квантового ферримагнетика $(5/2, 1)$. Чтобы учесть при расчете намагниченности существование сильно развитых квантовых флуктуаций, во втором разделе будет использован метод дискретного континуального интегрирования (DPIR) [11], который позволяет преобразовать исходный одномерный квантовый спиновый гамильтониан в двумерный классический, согласно

обобщенной формуле Троттера [12], используемой для численных исследований методом Монте-Карло. В работе [7] было показано, что именно классическая картина (спин-волновые возбуждения на фоне нееевского упорядочения), а не возбуждения с разрушением синглетных связей (VBS-состояний) [13] более подходит для объяснения природы начального плато. С точки зрения спин-волновой теории намагниченность основного состояния на ячейку ($m = 3/2$) как функция приложенного поля h увеличивается на единицу, когда поле достигает значения щели антиферромагнитных возбуждений Δ . Поэтому в третьем и четвертом разделах будет проведен расчет этой величины численным методом рекурсии [14, 15] и методом матричных произведений [16].

2. РАСЧЕТ НАМАГНИЧЕННОСТИ

Одномерная квантовая ферримагнитная цепочка, состоящая из двух сортов спинов $S = 5/2$ и $s = 1$, помещенная во внешнее магнитное поле h , описывается гейзенберговским гамильтонианом

$$H = J \sum_{i=1}^N [(\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{s}_i) + (\mathbf{s}_i \cdot \mathbf{S}_{i+1})] + h \sum_{i=1}^N [S_i^z + s_i^z], \quad (2)$$

где N — полное число элементарных ячеек в системе, $J > 0$ — интеграл антиферромагнитного обменного взаимодействия. В связи с выбором гамильтониана (2) отметим, что главной особенностью одномерных ферримагнетиков является наличие дальнего порядка при нулевой температуре, существующего при сильно развитых квантовых флуктуациях. Применительно к этим системам спин-волновое описание свойств основного состояния дает достаточно хорошие результаты, которые, однако, могут быть уточнены вариационным методом матричных произведений, учитывающим образование VBS-состояний [10]. Это определяет разницу между одномерными ферримагнетиками и антиферромагнетиками, в которых флуктуации разрушают дальний порядок и спин-волновая теория становится неприемлемой. С теоретической точки зрения для антиферромагнетиков с целым спином, прежде всего $S = 1$, удобнее рассматривать обобщение гейзенберговского гамильтониана, учитывающее биквадратичный обмен,

$$H = \sum_i [(\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_{i+1}) - \beta (\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_{i+1})^2]. \quad (3)$$

Такое рассмотрение, являясь менее реалистичным, наиболее явно демонстрирует возможность реализа-

ции в качестве основного состояния антиферромагнетика VBS-состояния с синглетными связями (например, АКЛТ-модель при $\beta = -1/3$), не нарушающего трансляционной симметрии и характеризуемого экспоненциальным поведением корреляционных функций и энергетической щелью над основным состоянием. Кроме того, при значении $\beta = 1$ такая модель может быть решена точно [17]. Качественная картина эволюции основного состояния модели антиферромагнетика со спином $S = 1$ с биквадратичным обменом, предложенная Аффлеком [18], была подтверждена численным исследованием методом Монте-Карло [19], расчетом спектра низколежащих возбуждений методом матричных произведений [20] и кривых намагничивания, обнаруживающих особенность типа «излом» в промежуточных полях [21].

Поскольку при изучении свойств основного состояния ферримагнитной цепочки указанные принципиальные трудности не возникают, ее описание в рамках гейзенберговского гамильтониана оказывается приемлемым и реалистичным.

Отметим, что разбиение взаимодействий на внутриблочные ($H_{i,i}$) и межблочные ($H_{i,i+1}$) является искусственным, поэтому для дальнейшего рассмотрения удобно переписать исходный гамильтониан в следующей форме:

$$H = \sum_{i=1}^{2N} \frac{1}{2} (s_i^+ S_{i+1}^- + s_i^- S_{i+1}^+) + s_i^z S_{i+1}^z + \frac{h}{2} (s_i^z + S_{i+1}^z) = \sum_{i=1}^{2N} H_{i,i+1},$$

где исходный гамильтониан (2) представлен в виде суммы «двухчастичных» операторов $H_{i,i+1}$. Когда гамильтониан (2) становится суммой операторов $H_{i,i+1}$, два таких оператора содержатся в одной элементарной ячейке.

Оценим статистическую сумму исходной системы:

$$Z = \text{Tr} (e^{-\beta H}) = \sum_u \langle u | \exp(-\beta H) | u \rangle,$$

где $\beta = 1/k_B T$. Поскольку прямая диагонализация гамильтониана — нереализуемая задача, мы используем так называемое представление дискретного континуального интегрирования (DPIR). Основная идея этого метода — перевод квантового спина каждого узла в p -компонентный вектор $\mathbf{u} = (u^1, u^2, \dots, u^p)$, где $p \rightarrow \infty$. Каждая компонента u^t ($t = 1, 2, \dots, p$) есть классическая спиновая переменная — собственные значения соответствующих

операторов, т.е. $u = 0, \pm 1$ для s^z и $u = \pm 5/2, \pm 3/2, \pm 1/2$ для S^z . Введение дополнительной размерности, определяемой параметром p , представляет квантовую неопределенность созданием реплик исходной переменной. Квантовый спиновый гамильтониан трансформируется в классический, тогда

$$Z = \sum_u \langle u | \left[\prod_{i=1}^{2N} \exp \left(-\beta \frac{H_{i,i+1}}{p} \right) \right]^p | u \rangle = \sum_{u^{(1)}} \sum_{u^{(2)}} \dots \sum_{u^{(p)}} \prod_{t=1}^p \prod_{i=1}^{2N} \langle u_i^{(t)} u_{i+1}^{(t)} | \times \exp \left(-\beta \frac{H_{i,i+1}}{p} \right) | u_i^{(t+1)} u_{i+1}^{(t+1)} \rangle.$$

Матрица

$$Q = \langle u_i^{(t)} u_{i+1}^{(t)} | \exp \left(-\beta \frac{H_{i,i+1}}{p} \right) | u_i^{(t+1)} u_{i+1}^{(t+1)} \rangle$$

разбивается на подблоки, связывающие состояния с одинаковой полной проекцией $u_i^{(t)} + u_{i+1}^{(t)}$ на ячейку. Вычисляя собственные значения этих матриц, получаем в пределе $p \rightarrow \infty$

$$\lambda_1 = 1 + 7sz - 5yz, \quad \lambda_2 = 1 - 7sz - 5yz,$$

$$u_i^{(t)} + u_{i+1}^{(t)} = \pm \frac{7}{2},$$

$$\lambda_3 = 1 - 5sz - 5yz, \quad \lambda_4 = 1 - 5sz + 2yz,$$

$$u_i^{(t)} + u_{i+1}^{(t)} = \frac{5}{2},$$

$$\lambda_5 = 1 + 5sz - 5yz, \quad \lambda_6 = 1 + 5sz + 2yz,$$

$$u_i^{(t)} + u_{i+1}^{(t)} = -\frac{5}{2},$$

$$\lambda_7 = 1 - 3sz - 5yz, \quad \lambda_8 = 1 - 3sz + 2yz,$$

$$\lambda_9 = 1 - 3sz + 7yz, \quad u_i^{(t)} + u_{i+1}^{(t)} = \frac{3}{2},$$

$$\lambda_{10} = 1 + 3sz - 5yz, \quad \lambda_{11} = 1 + 3sz + 2yz,$$

$$\lambda_{12} = 1 + 3sz + 7yz, \quad u_i^{(t)} + u_{i+1}^{(t)} = -\frac{3}{2},$$

$$\lambda_{13} = 1 - sz - 5yz, \quad \lambda_{14} = 1 - sz + 2yz,$$

$$\lambda_{15} = 1 - sz + 7yz, \quad u_i^{(t)} + u_{i+1}^{(t)} = \frac{1}{2},$$

$$\lambda_{16} = 1 + sz - 5yz, \quad \lambda_{17} = 1 + sz + 2yz,$$

$$\lambda_{18} = 1 + sz + 7yz, \quad u_i^{(t)} + u_{i+1}^{(t)} = -\frac{1}{2},$$

где $s = \beta h/4$, $y = \beta/2$, $z = 1/p$. Поскольку исходная квантовая модель свелась к классической двумерной модели, можно использовать приближение двойных цепочек (DCA) [22], когда двумерная система представляется в виде параллельных двойных цепочек во внешнем эффективном поле \tilde{h} . При этом статистическая сумма считается точно вдоль «фиктивного» направления p и в приближении среднего поля вдоль направления в реальном пространстве

$$Z = Z_{DCA}^{2N}, \quad Z_{DCA}^{2N} = \lim_{p \rightarrow \infty} \sum_{i=1}^{18} \lambda_i^p.$$

Непосредственное вычисление дает

$$\begin{aligned} Z_{DCA} = & \left(\exp\left(-\frac{5}{2T}\right) + \exp\left(\frac{1}{T}\right) + \exp\left(\frac{7}{2T}\right) \right) \times \\ & \times \left(\operatorname{ch}\left(\frac{\tilde{h}}{4T}\right) + \operatorname{ch}\left(\frac{3\tilde{h}}{4T}\right) \right) + \\ & + \left(\exp\left(-\frac{5}{2T}\right) + \exp\left(\frac{1}{T}\right) \right) \operatorname{ch}\left(\frac{5\tilde{h}}{4T}\right) + \\ & + \exp\left(-\frac{5}{2T}\right) \operatorname{ch}\left(\frac{7\tilde{h}}{4T}\right). \end{aligned}$$

Свободная энергия на ячейку $f = F/N = -2T \times \ln Z_{DCA}$. Намагниченность на ячейку определяется выражением

$$\begin{aligned} m = -\frac{\partial f}{\partial h} = & \frac{1}{2} \left[\left(\exp(-5/2T) + \exp(1/T) + \right. \right. \\ & + \exp(7/2T) \left. \right) \left(\operatorname{sh}\left(\frac{\tilde{h}}{4T}\right) + 3 \operatorname{sh}\left(\frac{3\tilde{h}}{4T}\right) \right) + \\ & + 5 \left(\exp(-5/2T) + \exp(1/T) \right) \operatorname{sh}\left(\frac{5\tilde{h}}{4T}\right) + \\ & + 7 \exp(-5/2T) \operatorname{sh}\left(\frac{7\tilde{h}}{4T}\right) \left. \right] \times \\ & \times \left[\left(\exp(-5/2T) + \exp(1/T) + \exp(7/2T) \right) \times \right. \\ & \times \left(\operatorname{ch}\left(\frac{\tilde{h}}{4T}\right) + \operatorname{ch}\left(\frac{3\tilde{h}}{4T}\right) \right) + \\ & + \left(\exp(-5/2T) + \exp(1/T) \right) \times \\ & \left. \times \operatorname{ch}\left(\frac{5\tilde{h}}{4T}\right) + \exp(-5/2T) \operatorname{sh}\left(\frac{7\tilde{h}}{4T}\right) \right]^{-1} \quad (4) \end{aligned}$$

Соответствующие зависимости $m(h)$, рассчитанные по формуле (4) при различных температурах, приведены на рис. 2. Как и следовало ожидать, расчет показывает сосуществование в рассматриваемой модели классического и квантового плато.

Можно предложить следующую качественную интерпретацию полученной зависимости, опираясь на результаты исследований основного состояния смешанных ферримагнитных цепочек для общего (S, s) [23] и частных случаев $(3/2, 1)$ и $(2, 1)$ [24], где каждый спин больше $1/2$, в зависимости от внешнего поля h , а также используя анализ основного состояния цепочки $(5/2, 1)$ [10]. Процесс насыщения намагниченности соответствует схеме, представленной на рис. 3. Начальное плато с $m = 3/2$ соответствует состоянию с нарушенной трансляционной симметрией с двумя синглетными связями и нескомпенсированным спином $S = 3/2$, который отвечает за возникновение спин-волновой «ферромагнитной» ветви возбуждений [8] (рис. 3а). Начальное плато начинает разрушаться при некотором критическом значении поля H_{c1} за счет разрыва одной синглетной связи в блоке с образованием триплета. Это приводит к частично поляризованной фазе с одной синглетной связью, которой соответствует плато намагниченности $m = 5/2$ (рис. 3б). Переход к намагниченности насыщения $m = 7/2$ происходит при полном разрушении оставшихся синглетных связей (рис. 3в).

Такая эволюция основного состояния позволяет объяснить успех линейной спин-волновой теории в объяснении свойств основного состояния и низколежащих возбуждений. Классическая картина — спин-волновые возбуждения над нееевским упорядочением — оказывается адекватной [25], в то же время она становится неприемлемой для описания оптической моды возбуждений, где определяющую роль играют локальные синглет-триплетные возбуждения. Величина оптической щели $\Delta = 3J$ оказывается сильно заниженной по сравнению с численным результатом и значением, полученным методом матричных произведений, учитывающим локальные квантовые флуктуации. Оптическая мода возбуждений, именуемая далее антиферромагнитной, формируется так же, как в одномерных антиферромагнетиках целого спина (в частности $S = 1$) с халдейновской щелью, отличающихся от антиферромагнетиков полуцелого спина с бесщелевыми возбуждениями и линейной k -зависимостью [20].

Таким образом, с теоретической точки зрения исследование кривой намагничивания оказывается очень важным, поскольку кривая $m(h)$, отражая строение основного состояния в конечных полях, со-

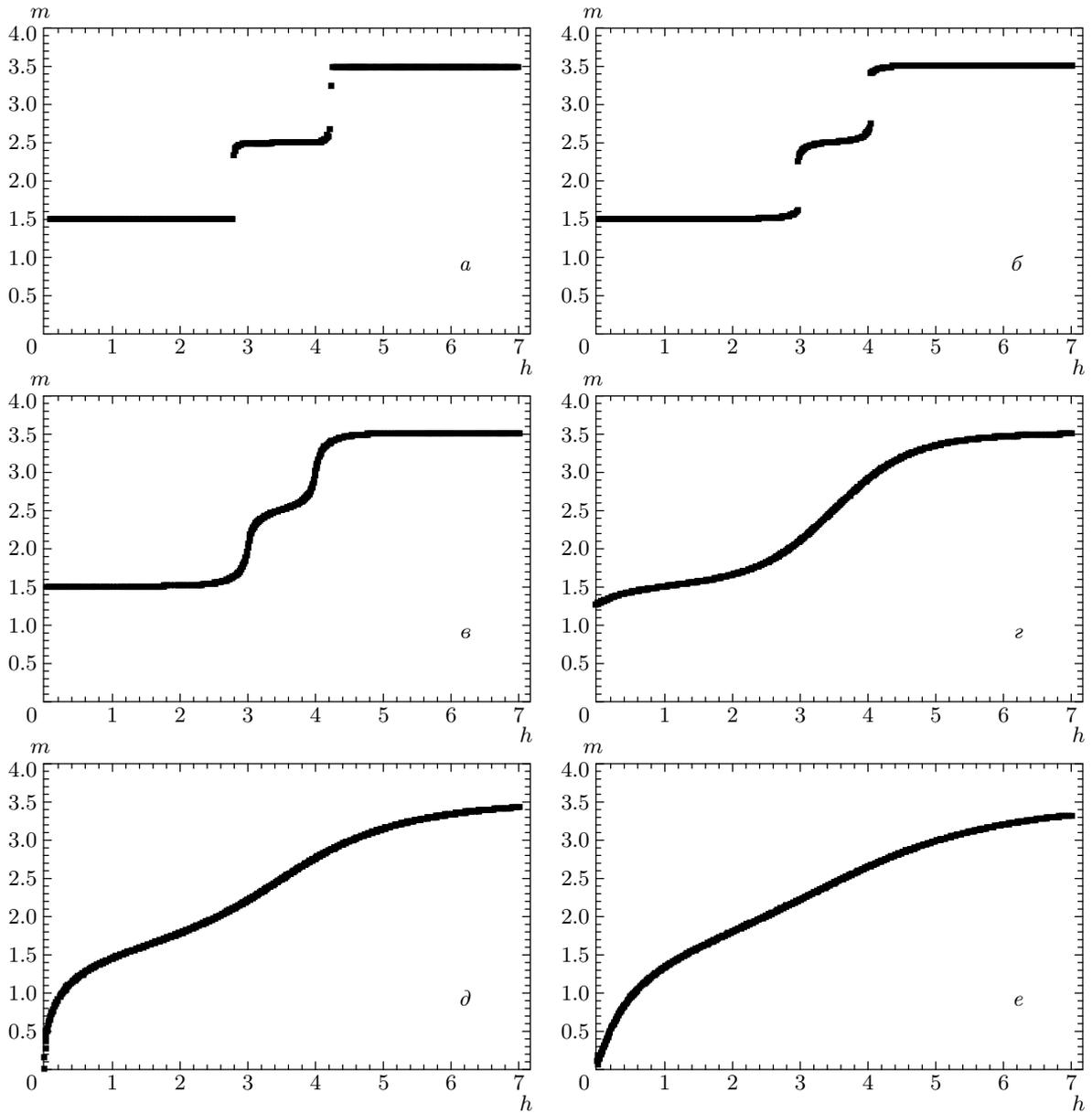


Рис. 2. Кривые намагниченности m цепочки $(5/2, 1)$ в зависимости от приложенного внешнего поля h при разных температурах T : $0.05J$ (а), $0.1J$ (б), $0.15J$ (в), $0.4J$ (г), $0.7J$ (д), $1.0J$ (е)

держит информацию о возбужденных состояниях в нулевом поле.

3. ЧИСЛЕННЫЙ РАСЧЕТ

Чтобы получить акустическую и оптическую ветви возбуждений в нулевом внешнем поле, рассчитаем динамический структурный фактор

$$S^{-+}(k, \omega) = \sum_n |\langle n | S_k^- + s_k^- | 0 \rangle|^2 \delta(\omega - (E_n - E_0)),$$

$$S^{+-}(k, \omega) = \sum_n |\langle n | S_k^+ + s_k^+ | 0 \rangle|^2 \delta(\omega - (E_n - E_0))$$

соответственно для ферро- и антиферромагнитной ветвей возбуждений. Здесь $|n\rangle$ — собственное состояние гамильтониана, отвечающее энергии E_n , и E_0 — энергия основного состояния, имеющего, согласно теореме Либба–Маттиса [26], спин $(S - s)N$. Для получения этого состояния необходимо диагонализиро-

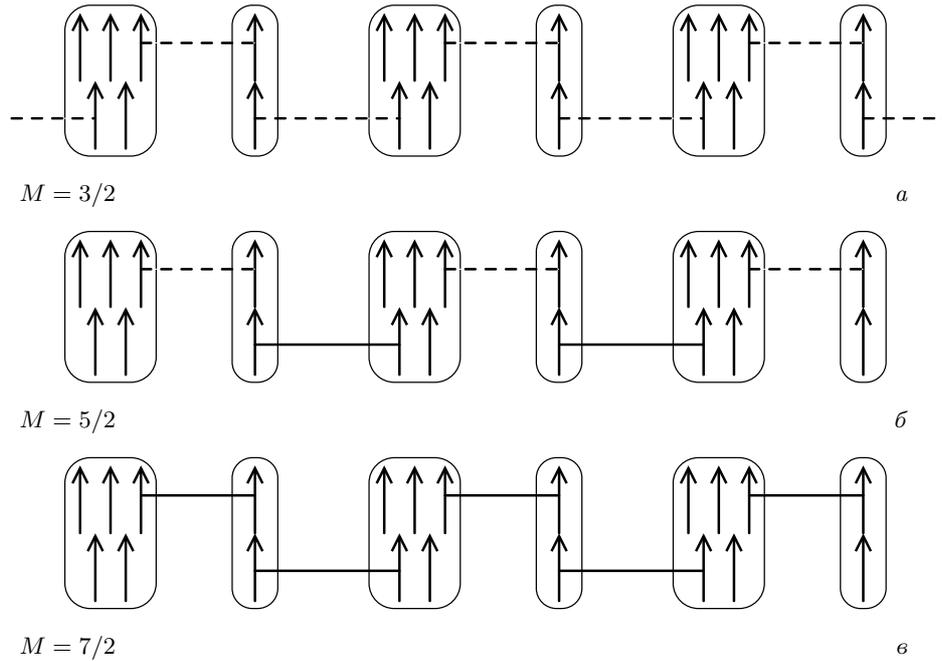


Рис. 3. Схематическое представление основного состояния спиновой ферромагнитной цепочки (5/2, 1) в зависимости от внешнего магнитного поля. Стрелка обозначает спин 1/2. Штриховая (сплошная) линия соответствует образованию синглетной (триплетной) пары. Овалами представлена операция построения спина 5/2 или 1 путем симметризации пяти (одного) спинов внутри

вать исходный гамильтониан (2) конечной цепочки с периодическими граничными условиями, используя, например, рестартовый метод Ланцоша.

Поскольку полная намагниченность $M = \sum_j S_j^z + s_j^z$ является сохраняющейся величиной, можно диагонализировать гамильтониан (2) в каждом подпространстве с фиксированным значением M . Так, при работе с основным состоянием цепочки длиной $N = 7$ узлов, вместо приблизительно $6.12 \cdot 10^8$ состояний полного гамильтониана мы имеем дело с состояниями подпространства $N(S - s)$ размерности приблизительно $5.54 \cdot 10^6$. Подпространство, соответствующее акустической моде возбуждений, имеет намагниченность $M = N(S - s) - 1$, оптической моде соответствует полная намагниченность цепочки $M = N(S - s) + 1$.

Выражаем динамический структурный фактор через соответствующую функцию Грина,

$$S^{\sigma\bar{\sigma}}(k, \omega) = -\frac{1}{\pi} \text{Im} G^{\sigma\bar{\sigma}}(k, \omega),$$

$\sigma = \pm 1$ и $\bar{\sigma} = -\sigma$, которая определяется как цепная дробь

$$G^{\sigma\bar{\sigma}}(k, \omega) = \frac{\langle 0 | (S_{-k}^{\bar{\sigma}} + s_{-k}^{\bar{\sigma}}) (s_k^{\sigma} + S_k^{\sigma}) | 0 \rangle}{\omega - a_0 - \frac{b_1^2}{\omega - a_1 - \frac{b_2^2}{\omega - a_2 - \dots}}},$$

и где коэффициенты $a_n = \langle f_n | H | f_n \rangle / \langle f_n | f_n \rangle$, $b_n^2 = \langle f_n | f_n \rangle / \langle f_{n-1} | f_{n-1} \rangle$, $b_0 = 0$ определяются через набор ортогональных состояний

$$|f_{n+1}\rangle = H |f_n\rangle - a_n |f_n\rangle - b_n^2 |f_{n-1}\rangle,$$

$$|f_0\rangle = (s_k^{\sigma} + S_k^{\sigma}) |0\rangle.$$

При реализации метода начальное состояние выбиралось как состояние низшей энергии с квантовым числом $M = N(S - s)$. Фурье-образы спиновых операторов определяются соотношениями $S_k^{\pm} = N^{-1/2} \sum_j e^{ik(j-1/4)} S_j^{\pm}$, $s_k^{\pm} = N^{-1/2} \sum_j e^{ik(j+1/4)} s_j^{\pm}$.

Энергия элементарных возбуждений находилась по положению максимума спектральной интенсивности. Результаты метода рекурсии представлены на рис. 4 для выделенных значений волнового вектора $k = 2\pi m/N$, $m = 0, 1, \dots, n - 1$. Представленные точки получены на цепочках длиной $N = 4, 5, 6, 7$.

Зависимость энергии основного состояния на элементарную ячейку E_0/JN от длины цепочки N в методе рекурсии

N	3	4	5	6	7
E_0/J	-5.9281	-5.9161	-5.9141	-5.9135	-5.9133

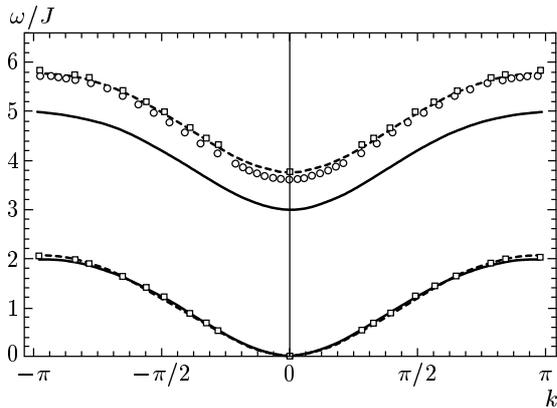


Рис. 4. Дисперсионные кривые ферромагнитной и антиферромагнитной ветвей элементарных возбуждений. Результаты спин-волновой теории без учета взаимодействия спиновых волн [25] и с учетом их взаимодействия [27] изображены соответственно сплошной и штриховой линиями. Расчет методом матричных произведений на базисе 2×2 показан кружками, квадратами отмечены значения, полученные методом рекурсии

Для данной системы метод рекурсии обнаруживает очень быструю сходимость к термодинамическому пределу. В таблице приведены результаты для энергии основного состояния на элементарную ячейку как функции числа элементарных ячеек N . Причина такой быстрой сходимости — малая корреляционная длина, порядка постоянной решетки, ее оценки в различных приближениях приводятся в работе [10]. В численном расчете форма плотности состояний спиновых возбуждений достаточно быстро стабилизируется уже при небольших значениях n . Величина оптической щели оказывается равной $\Delta \approx 3.793J$, что значительно превышает результат спин-волновой теории, но находится в отличном согласии с ее вариантом, учитывающим спин-волновое взаимодействие [27].

4. МЕТОД МАТРИЧНЫХ ПРОИЗВЕДЕНИЙ

Метод ренормгруппы матрицы плотности (DMRG), предложенный Уайтом [28], оказался чрезвычайно плодотворным при исследовании свойств одномерных квантовых систем. Основанный на идее ренормгруппы в реальном пространстве метод DMRG позволяет построить квантовые состояния бесконечной цепочки с наложенными периодическими условиями в виде произведений специального вида (матричных произведений), составленных из состояний элементарной ячейки. В ходе численной реализации DMRG-алгоритма итерационным образом строится проектор из состояний отдельной ячейки на базис новых низших эффективных состояний ячейки, расчет наблюдаемых на которых дает результаты термодинамического предела. Позже в работах [20] было показано, что эти состояния могут быть получены через простой вариационный анзац без использования ренормгрупповой процедуры. В этом состоит идея метода матричных произведений.

Применительно к квантовым ферромагнетикам метод использовался в основном для спиновой цепочки $(1, 1/2)$. К сожалению, эта модель не позволяет проиллюстрировать возможности метода матричных произведений ввиду относительно небольшого количества квантовых состояний в магнитной ячейке. Это касается, например, проблемы выбора числа эффективных состояний. В этой связи вначале будет подробно рассмотрен расчет энергии основного состояния спиновой цепочки $(5/2, 1)$ с использованием матричных произведений различной размерности.

4.1. Энергия основного состояния

Трансляционно-инвариантная волновая функция основного состояния цепочки длиной N с циклическими граничными условиями может быть записана в виде [16]

$$|\Omega\rangle = \text{Tr} \left(\hat{g}_1^{jj} \hat{g}_2^{jj} \dots \hat{g}_N^{jj} \right).$$

Узельные матрицы \hat{g}_i^{jj} строятся следующим образом:

$$\hat{g}_i^{jj} = \sum_k C_j^{ks} \sum_{q,M} \begin{bmatrix} k & s & j \\ q & M & j \end{bmatrix} \hat{X}_q^k |SM\rangle_i,$$

где [...] — коэффициенты Клебша–Гордана; $|SM\rangle_i$ — спиновая функция i -й магнитной ячейки; $\hat{X}_q^k = (\hat{T}_q^k)^\dagger$ — базисные матрицы. Матрицы \hat{T}_q^k представляют собой матричное представление неприводимых тензорных операторов группы вращения ранга k . Величина j — «гиперспин» i -й магнитной ячейки в «расширенном» пространстве, представляющем собой прямое произведение мат-

ричного пространства и гильбертова пространства ячейки. Его величина при построении $|\Omega\rangle$ должна быть задана. Если все ячейки считать одинаковыми, $j = S - s$, или $3/2$ в нашем случае. Вариационные коэффициенты C_j^{ks} определяются из условия минимальности энергии основного состояния. Волновые функции магнитной ячейки строятся стандартным образом:

$$|SM\rangle \equiv \left| \frac{5}{2} 1SM \right\rangle = \sum_{M_1 M_2} \begin{bmatrix} 5/2 & 1 & S \\ M_1 & M_2 & M \end{bmatrix} \left| \frac{5}{2} M_1 \right\rangle |1M_2\rangle,$$

где возможные значения $S = 3/2, 5/2, 7/2$. Проблема выбора матричного базиса \hat{X}_q^k не имеет однозначного решения. Ранг базисных матриц размерности $(N + 1) \times (N + 1)$ может принимать значения от 0 до N . По-видимому, оптимальный размер матриц должен определяться для каждой конкретной задачи. Нами был выполнен расчет энергии основного состояния спиновой цепочки $(5/2, 1)$ с использованием базиса матриц размерностей 2×2 и 3×3 . На базисе матриц 2×2 [10]

$$\hat{g}^{\frac{3}{2} \frac{3}{2}} = \begin{pmatrix} \left(\left(u - \sqrt{\frac{3}{5}} v \right) \left| \frac{3}{2} \frac{3}{2} \right\rangle - \frac{2}{\sqrt{15}} \omega \left| \frac{5}{2} \frac{3}{2} \right\rangle \right) & \frac{2}{\sqrt{3}} \omega \left| \frac{5}{2} \frac{5}{2} \right\rangle \\ -\frac{2}{\sqrt{5}} v \left| \frac{3}{2} \frac{1}{2} \right\rangle - \sqrt{\frac{2}{15}} \omega \left| \frac{5}{2} \frac{1}{2} \right\rangle & \left(u + \sqrt{\frac{3}{5}} v \right) \left| \frac{3}{2} \frac{3}{2} \right\rangle + \frac{2}{\sqrt{15}} \omega \left| \frac{5}{2} \frac{3}{2} \right\rangle \end{pmatrix}, \quad (5)$$

где введены обозначения $u = C_{3/2}^{0,3/2}$, $v = C_{3/2}^{1,3/2}$, $w = C_{3/2}^{1,5/2}$. При таком выборе базиса мы учитываем только состояния магнитной ячейки $|\frac{3}{2}M\rangle$ и низшее $|\frac{5}{2}M\rangle$.

Определяя трансфер-матрицу $\hat{G} = (\hat{g}^{\frac{3}{2} \frac{3}{2}})^\dagger \otimes \hat{g}^{\frac{3}{2} \frac{3}{2}}$, энергию основного состояния на элементарную ячейку можно представить в виде

$$\frac{E_0}{JN} = \frac{\text{Tr} \left[\left(\hat{g}^{\frac{3}{2} \frac{3}{2}} \otimes \mathbf{S}_1 \mathbf{S}_2 \hat{g}^{\frac{3}{2} \frac{3}{2}} \right) \hat{G}^{N-1} \right] + \text{Tr} \left[\left(\hat{g}^{\frac{3}{2} \frac{3}{2}} \otimes \mathbf{S}_2 \hat{g}^{\frac{3}{2} \frac{3}{2}} \right) \left(\hat{g}^{\frac{3}{2} \frac{3}{2}} \otimes \mathbf{S}_1 \hat{g}^{\frac{3}{2} \frac{3}{2}} \right) \hat{G}^{N-2} \right]}{\text{Tr} \left[\hat{G}^N \right]}, \quad (6)$$

где знак \otimes обозначает внешнее произведение матриц. Поскольку в выражении (6) участвуют степени матрицы \hat{G} , удобно привести ее к жордановой форме (\hat{G} — несимметричная матрица). К счастью, жорданова форма \hat{G} оказывается диагональной, что заметно упрощает вычисления и позволяет аналитически представить энергию основного состояния в термодинамическом пределе $N \rightarrow \infty$. Из соотношения (6) также видно, что число независимых варьируемых параметров равно двум. Численная минимизация выражения для энергии симплекс-методом дает следующий результат:

$$E_0/N \approx -5.806J$$

с вариационными коэффициентами

$$\frac{v}{u} = -0.5798, \quad \frac{w}{u} = -0.9131.$$

Полученное значение энергии оказывается несколько выше, чем следует из метода рекурсии. В базисе матриц 3×3 матрица \hat{g} имеет вид

$$g^{\frac{3}{2}\frac{3}{2}} = \begin{pmatrix} \left(\begin{aligned} &\left(1 - \sqrt{\frac{3}{10}}\alpha + \frac{1}{\sqrt{30}}\gamma\right) \left| \frac{3}{2} \frac{3}{2} \right\rangle + \\ &+ \left(-\sqrt{\frac{2}{15}}\beta + \sqrt{\frac{2}{35}}\delta\right) \left| \frac{5}{2} \frac{3}{2} \right\rangle + \\ &+ \frac{1}{\sqrt{42}}\eta \left| \frac{7}{2} \frac{3}{2} \right\rangle \end{aligned} \right) & \left(\begin{aligned} &\left(-\frac{1}{\sqrt{5}}\alpha + \frac{1}{\sqrt{5}}\gamma\right) \left| \frac{3}{2} \frac{1}{2} \right\rangle + \\ &+ \left(-\frac{1}{\sqrt{10}}\beta + \frac{3}{\sqrt{70}}\delta\right) \left| \frac{5}{2} \frac{1}{2} \right\rangle + \\ &+ \frac{1}{\sqrt{35}}\eta \left| \frac{7}{2} \frac{1}{2} \right\rangle \end{aligned} \right) & \left(\begin{aligned} &\sqrt{\frac{2}{5}}\gamma \left| \frac{3}{2} - \frac{1}{2} \right\rangle + \\ &+ \frac{2}{\sqrt{35}}\delta \left| \frac{5}{2} - \frac{1}{2} \right\rangle + \\ &+ \frac{1}{\sqrt{70}}\eta \left| \frac{7}{2} - \frac{1}{2} \right\rangle \end{aligned} \right) \\ \left(\begin{aligned} &\left(\frac{1}{\sqrt{3}}\beta - \frac{1}{\sqrt{7}}\delta\right) \left| \frac{5}{2} \frac{5}{2} \right\rangle - \\ &- \frac{1}{\sqrt{7}}\eta \left| \frac{7}{2} \frac{5}{2} \right\rangle \end{aligned} \right) & \left(\begin{aligned} &\left(1 + \frac{2}{\sqrt{30}}\gamma\right) \left| \frac{3}{2} \frac{3}{2} \right\rangle - \\ &- \frac{2\sqrt{2}}{\sqrt{35}}\delta \left| \frac{5}{2} \frac{3}{2} \right\rangle - \\ &- \frac{2}{\sqrt{42}}\eta \left| \frac{7}{2} \frac{3}{2} \right\rangle \end{aligned} \right) & \left(\begin{aligned} &\left(-\frac{1}{\sqrt{5}}\alpha - \frac{1}{\sqrt{5}}\gamma\right) \left| \frac{3}{2} \frac{1}{2} \right\rangle + \\ &+ \left(-\frac{1}{\sqrt{10}}\beta - \frac{3}{\sqrt{70}}\delta\right) \left| \frac{5}{2} \frac{1}{2} \right\rangle - \\ &- \frac{1}{\sqrt{35}}\eta \left| \frac{7}{2} \frac{1}{2} \right\rangle \end{aligned} \right) \\ \frac{1}{2}\eta \left| \frac{7}{2} \frac{7}{2} \right\rangle & \left(\begin{aligned} &\left(\frac{1}{\sqrt{3}}\beta + \frac{1}{\sqrt{7}}\delta\right) \left| \frac{5}{2} \frac{5}{2} \right\rangle + \\ &+ \frac{1}{\sqrt{7}}\eta \left| \frac{7}{2} \frac{5}{2} \right\rangle \end{aligned} \right) & \left(\begin{aligned} &\left(1 + \sqrt{\frac{3}{10}}\alpha + \frac{1}{\sqrt{30}}\gamma\right) \left| \frac{3}{2} \frac{3}{2} \right\rangle + \\ &+ \left(\sqrt{\frac{2}{15}}\beta + \sqrt{\frac{2}{35}}\delta\right) \left| \frac{5}{2} \frac{3}{2} \right\rangle + \\ &+ \frac{1}{\sqrt{42}}\eta \left| \frac{7}{2} \frac{3}{2} \right\rangle \end{aligned} \right) \end{pmatrix}.$$

Хотя матрица содержит гораздо большее число варьируемых параметров

$$\alpha = \frac{C_{3/2}^{1,3/2}}{C_{3/2}^{0,3/2}}, \quad \beta = \frac{C_{3/2}^{2,3/2}}{C_{3/2}^{0,3/2}}, \quad \gamma = \frac{C_{3/2}^{1,5/2}}{C_{3/2}^{0,3/2}},$$

$$\delta = \frac{C_{3/2}^{2,5/2}}{C_{3/2}^{0,3/2}}, \quad \eta = \frac{C_{3/2}^{2,7/2}}{C_{3/2}^{0,3/2}},$$

но теперь в выражение для $g^{\frac{3}{2}\frac{3}{2}}$ входит все семейство волновых функций магнитной ячейки.

Попытка расчета энергии основного состояния с помощью приведения матриц \hat{G} к жордановой форме в данном случае приводит к неправильному результату. Исследование матрицы \hat{G} показывает, что она имеет два почти совпадающих собственных значения, и это приводит к вырождению матрицы преобразования, приводящей \hat{G} к жордановой форме. Альтернативой является прямой расчет по формуле (6) для цепочки конечной длины ($N \approx 200$) без приведения матрицы \hat{G} к диагональной форме. Это дает для энергии основного состояния значение, близкое к полученному методом рекурсии,

$$E_0/N \approx -5.903J.$$

Значения варьируемых коэффициентов

$$\alpha \approx 1.90, \quad \beta \approx 1.32, \quad \gamma \approx 0.84, \quad \delta \approx 0.12, \quad \eta \approx 0.72.$$

Отметим, что вклад состояния $|\frac{5}{2}1\frac{7}{2}M\rangle$ нельзя считать пренебрежимо малым. Было также рассчитано значение энергии основного состояния в базисе матриц 3×3 , но без учета состояния $|\frac{5}{2}1\frac{7}{2}M\rangle$ (коэффициент η полагался равным нулю, а по остальным параметрам проводилась минимизация). Оно оказалось равным

$$E_0/N \approx -5.840J,$$

что ближе к значению, полученному на базисе матриц 2×2 . Можно сделать вывод, что размер базисных матриц должен быть таким, чтобы максимально учесть все семейство волновых функций магнитной ячейки. Для активно рассматривавшихся в литературе цепочек $(1, 1/2)$ базис матриц 2×2 вполне достаточен. Для рассматриваемой нами цепочки $(5/2, 1)$ его выбор позволяет относительно просто получать вполне разумные результаты. Использование же расширенного базиса 3×3 позволяет получить энергию основного состояния с точностью, сравнимой с численным расчетом, правда, за счет существенного усложнения вычислений.

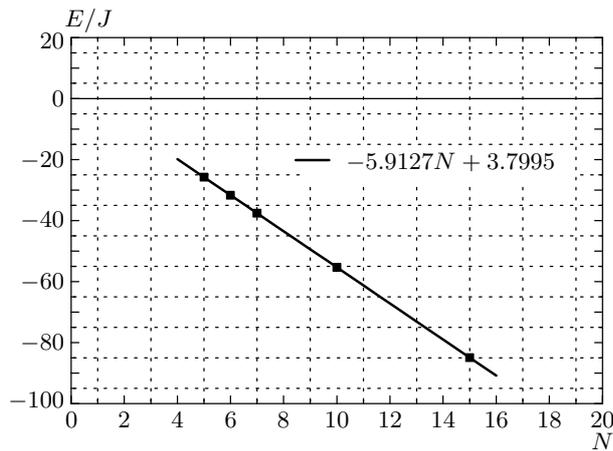


Рис. 5. Полная энергия спиновой цепочки $(5/2, 1)$ с возбуждением $E_{k=0}$ как функция ее длины N , рассчитанная методом матричных произведений на базе матриц 3×3 . Сплошной линией показана линейная аппроксимация полученных значений

4.2. Расчет величины оптической щели

Простейший вид волновой функции оптического магнона с импульсом k был предложен в работе [29]:

$$|k\rangle = \sum_n e^{ikn} |n\rangle,$$

$$|n\rangle = \text{Tr} \{g_1 \dots g_{n-1} \tilde{g}_n g_{n+1} \dots g_N\}.$$

Матрица \tilde{g} строится для состояния магнитной ячейки с гиперспином $j+1$ ($\frac{5}{2}$ в нашем случае).

Полная энергия цепочки с возбуждением определяется выражением

$$E_k = \frac{\langle k | \hat{H} | k \rangle}{\langle k | k \rangle}, \quad (7)$$

а величина оптической щели

$$w(0) = E_{k=0} - NE_0, \quad (8)$$

где E_0 — энергия основного состояния. Подробно техника расчета энергии в одномагнитном возбуждении описана в работах [20]. Выполненный нами расчет на базе матриц размерности 2×2 дает значение оптической щели $w(0) \approx 3.61527$ (в термодинамическом пределе $N \rightarrow \infty$).

Расчет антиферромагнитной щели на базе матриц 3×3 проводился на цепочках длиной от 5 до 15 элементарных ячеек. Полученные результаты представлены на рис. 5. Линейная зависимость полной энергии $E_{k=0}$ от N , следующая из (7), хорошо выполняется уже на длинах цепочек больше 5 узлов.

Обработка линейной зависимости методом наименьших квадратов дает для оптической щели значение

$$w(0) \approx 3.7995J,$$

совпадающее с методом рекурсии с точностью до третьего знака.

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Как и предсказывалось в ряде работ, проведенный анализ подтверждает, что металл-органические соединения являются подходящими объектами для поиска квантового плато намагниченности. Модель квантовой ферримагнитной цепочки $(5/2, 1)$, предложенная для их описания, обнаруживает сосуществование классического и квантового плато. Значение первого критического поля H_{c1} , при котором происходит переход с плато основного состояния на плато с намагниченностью $5/2$, полученное методом дискретного континуального интегрирования в приближении двойных цепочек, ближе к результату линейной спин-волновой теории ($3J$) и меньше, чем значение оптической щели, найденной методом рекурсии ($3.793J$) и матричных произведений ($3.7995J$). Значения последних величин лежат ближе к центру квантового плато (примерно $3.5J$ – $3.6J$).

В заключение отметим, что поля, при которых возможно наблюдать квантовое плато намагниченности, достаточно велики, порядка обменного интеграла, и составляют примерно 10^6 – 10^7 Э.

Авторы выражают признательность отделу параллельных вычислений Института математики и механики УрО РАН и лично С. Шарфу за предоставленную возможность проведения численных расчетов. Выражаем также признательность Н. В. Баранову и К. Иноуе за обсуждение ряда вопросов, рассмотренных в статье. Работа выполнена в рамках программы «Университеты России» (грант УР.01.01.005), а также при финансовой поддержке одного из авторов (Синицына В. Е.) фондами некоммерческих программ «Династия» и Международного центра фундаментальной физики в Москве.

ЛИТЕРАТУРА

1. M. Hagiwara, K. Kobayashi, and T. Chihara, J. Phys. Soc. Jpn. **66**, 1702 (1997).
2. K. Katoh, Y. Hosokoshi, K. Inoue, and T. Goto, J. Phys. Soc. Jpn. **66**, 1702 (1997); T. Goto, M. I. Bar-

- tashevich, Y. Hosokoshi, K. Kato, and K. Inoue, *Physica B* **294–295**, 43 (2001).
3. E. Lieb, T. Schultz, and D. Mattis, *Ann. Phys.* **16**, 407 (1961).
 4. M. Oshikawa, M. Yamanaka, and I. Affleck, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 1984 (1997).
 5. D. J. Van Koningsbruyjnggen, O. Kahn, K. Nakatani, Y. Pei, J. P. Renard, M. Drillon, and P. Leggol, *Inorg. Chem.* **29**, 3325 (1990).
 6. K. Inoue, F. Iwahori, A. S. Markosyan, and H. Iwamura, *Coord. Chem. Rev.* **198**, 219 (2000).
 7. S. Yamamoto, *Phys. Rev. B* **61**, 842 (2000).
 8. A. S. Ovchinnikov, I. G. Bostrem, V. E. Sinitsyn, A. S. Boyarchenkov, N. V. Baranov, and K. Inoue, *J. Phys.: Condens. Matter* **14**, 6188 (2002).
 9. T. Sakai and S. Yamamoto, *J. Phys.: Condens. Matter* **12**, 9787 (2000).
 10. A. S. Ovchinnikov, I. G. Bostrem, V. E. Sinitsyn, N. V. Baranov, and K. Inoue, *J. Phys.: Condens. Matter* **13**, 5221 (2001).
 11. R. M. Strat, *Phys. Rev. B* **33**, 1921 (1986); Z. Y. Li and Q. Jiang, *Phys. Lett. A* **138**, 247 (1989); X. Y. Chen, Q. Jiang, and Y.-Z. Wu, *Sol. St. Comm.* **121**, 641 (2002).
 12. M. Suzuki, *Prog. Theor. Phys.* **56**, 1454 (1976).
 13. I. Affleck, T. Kennedy, E. H. Lieb, and H. Tasaki, *Phys. Rev. Lett.* **59**, 799 (1987).
 14. S. Haas, J. Riera, and E. Dagotto, *Phys. Rev. B* **48**, 3281 (1994).
 15. E. R. Gagliano and C. A. Balseiro, *Phys. Rev. Lett.* **59**, 2999 (1987).
 16. A. K. Kolezhuk, H. J.-Mikeska, and S. Yamamoto, *Phys. Rev. B* **55**, R3336 (1997).
 17. L. A. Takhtajan, *Phys. Lett.* **87A**, 479 (1982); H. M. Babujian, *Nucl. Phys. B* **215**, 317 (1983).
 18. I. Affleck, T. Kennedy, E. H. Lieb, and H. Tasaki, *Comm. Math. Phys.* **115**, 477 (1988).
 19. M. Uchinami, *Phys. Rev. B* **39**, 4554 (1989).
 20. S. Östlund and S. Rommer, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 3537 (1995); S. Rommer and S. Östlund, *Phys. Rev. B* **55**, 2164 (1997).
 21. K. Okunichi, *Phys. Rev. B* **60**, 4043 (1999).
 22. J. A. Plascak and N. A. Siwa, *Phys. Stat. Sol. (b)* **110**, 669 (1982).
 23. S. Yamamoto and T. Sakai, *Phys. Rev. B* **62**, 3795 (2000).
 24. T. Sakai and S. Yamamoto, *J. Phys.: Condens. Matter* **12**, 9787 (2000).
 25. S. Brehmer, H.-J. Mikeska, and S. Yamamoto, *J. Phys.: Condens. Matter* **9**, 3921 (1997).
 26. E. Lieb and D. Mattis, *J. Math. Phys.* **3**, 749 (1962).
 27. S. Yamamoto, T. Fukui, and T. Sakai, *Eur. Phys. J. B* **15**, 211 (2000).
 28. S. R. White, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 2863 (1992); *Phys. Rev. B* **48**, 10345 (1993).
 29. A. K. Kolezhuk, H.-J. Mikeska, K. Maisinger, and U. Schollwöck, *Phys. Rev. B* **59**, 13565 (1999).