

АНОТАЦІЯ

Гутак Т.І. Термодинаміка фрустрованих квантових спінових систем. — Кваліфікаційна наукова праця на правах рукопису.

Дисертація на здобуття наукового ступеня доктора філософії за спеціальністю 104 — Фізика та астрономія. — Інститут фізики конденсованих систем НАН України, Львів, 2021.

Дисертаційна робота присвячена дослідженню термодинаміки квантових фрустрованих спінових систем. Розуміння спостережуваних властивостей магнітоактивних діелектричних кристалів потребує розуміння ґраткових спінових моделей. Якщо обмінні взаємодії між сусідніми магнітними йонами конкурують так, що дуже багато спінових конфігурацій мають однакову енергію і не виникає жодного магнітного порядку, то маємо справу із фрустраціями. Фрустрації разом з квантовими флуктуаціями, а також з тепловими флуктуаціями можуть бути причиною появи несподіваних макроскопічних властивостей. З другого боку, аналіз таких властивостей становить труднощі через нестачу методів обчислень (аналітичних і числових), які належно враховували б особливості фрустрованих квантових спінових систем.

Деякі одновимірні декоровані (фрустровані) моделі Ізинга при певних значеннях модельних параметрів (обмінних взаємодій і магнітних полів) виявляють незвичні для одновимірних систем низькотемпературні властивості [L. Gáliková and J. Strečka, *Phys. Rev. E* **91**, 022134 (2015)]. При певному скінченному значенні температури перші похідні від вільної енергії, такі як внутрішня енергія чи ентропія, мають стрибкоподібну залежність. Водночас другі похідні від вільної енергії — теплоємність чи магнітна сприйнятливність, а також кореляційна довжина сягають аномально великих значень. При цьому вільна енергія і вищезгадані термодинамічні величини залишаються аналітичними функціями температури. Ці низькотемпературні особливості одновимірних декорованих систем в літературі називають псевдопереходами, а температуру, при якій вони спостерігаються — псевдокритичною температурою. Відомо, що у певному інтервалі температур по-

близу псевдокритичної температури (але не у псевдокритичній точці) такі моделі виявляють степеневу поведінку кореляційної довжини, теплоємності чи магнітної сприйнятливості із показниками, які не погоджуються з добре відомими співвідношеннями скейлінгу. У дисертаційній роботі пояснено природу псевдопереходів. Для того, щоб виявити причину цих низькотемпературних особливостей розглянуто декілька декорованих систем: двонога драбинка Ізинга із тримерними шаблонами у нульовому магнітному полі, спін-1/2 Ізинг-XYZ ромбічний ланцюжок, спін-електронний ланцюжок подвійних тетраедрів і спін-1/2 ланцюжок подвійних тетраедрів Ізинга-Гайзенберга.

Застосувавши декораційно-ітераційне перетворення для двонової драбинки Ізинга із тримерними шаблонами, побудовано ефективний гамільтоніан на звичайній двоногій драбинці Ізинга із залежною від температури взаємодією на шаблонах. При певному значенні температури (яке відповідає псевдокритичній температурі) обмінна взаємодія на шаблонах дорівнює нулеві, що приводить до ефективного розщеплення драбинки на два невзаємодіючі ланцюжки Ізинга. Якщо псевдокритична температура є достатньо малою (у одиницях обмінної взаємодії вздовж ланцюжків), тоді спостерігатимуться сліди критичної поведінки простого ланцюжка Ізинга при нульовій температурі та нульовому полі. Показано, що в околі псевдокритичної температури (але не у псевдокритичній точці) модель виявляє квазікритичну поведінку: кореляційна довжина має квазікритичний показник $\alpha = \alpha' = 1$, а теплоємність $\gamma = \gamma' = 3$.

Декораційно-ітераційне перетворення для кількох декорованих класично-квантових ланцюжків приводить до ефективного гамільтоніану ланцюжка Ізинга із залежною від температури обмінною взаємодією і магнітним полем. У псевдокритичній точці ефективно магнітне поле дорівнює нулеві і модель відповідає простому ланцюжку Ізинга у нульовому полі. І у цьому випадку низькотемпературні особливості пов'язані із критичною поведінкою простого ланцюжка Ізинга при нульовій температурі та нульовому полі. Квазікритичні показники декорованих класично-квантових ланцюжків співпадають із отриманими для двонової драбинки Ізинга. Таким чином, встановлено причину виникнення псевдокритичної

поведінки для низки одновимірних декорованих (фрустрованих) моделей Ізинга.

Дослідження впливу геометричної фрустрації на термодинамічну поведінку квантових тривимірних спінових систем проводилося на прикладі ґратки пірохлору, яка є найбільш фрустрованою ґраткою у трьох вимірах. Для цього розглядається феромагнітна і антиферомагнітна квантова $S = 1/2$ модель Гайзенберга на тривимірній ґратці пірохлору. Для обидвох випадків отримані результати порівнювалися із відповідними результатами для нефрустрованої моделі на простій кубічній ґратці. В наближенні середнього поля обидві ґратки еквівалентні (мають однакове число найближчих сусідів $z = 6$). Тому при порівнянні термодинамічних величин вдається проілюструвати вплив геометричної фрустрації при скінченних температурах.

Термодинамічні та динамічні властивості квантового $S = 1/2$ феромагнетика Гайзенберга розглядалися методом двочасових функцій Гріна в наближенні Тяблікова (наближення хаотичних фаз). В цьому наближенні ланцюжок рівнянь руху для двочасових функцій Гріна обривається на першому кроці і відразу ж приходимо до опису, який виходить за межі теорії середнього поля. В рамках такого опису спектр спінових хвиль моделі перенормовується параметром порядку (намагніченістю), для якого отримується самоузгоджене рівняння. З аналізу самоузгодженого рівняння для намагніченості знайдено значення критичної температури T_c і температурну залежність намагніченості у феромагнітній фазі і однорідної магнітної сприйнятливості у парамагнітній фазі. Обчислені результати для намагніченості та теплоємності (для температур нижче критичної) і однорідної магнітної сприйнятливості (для температур вище критичної) порівнювалися із результатами симуляцій методом квантового Монте Карло. Обчислений динамічний структурний фактор порівнювався з експериментом із непружним розсіянням нейтронів для сполуки $\text{Lu}_2\text{Mo}_2\text{O}_5\text{N}_2$. Отриманий в наближенні Тяблікова динамічний структурний фактор якісно правильно описує експериментальні дані.

Термодинаміка квантового $S = 1/2$ антиферомагнетика Гайзенберга на ґратці пірохлору розглядалась в рамках методу ентропії [В. Vernu and С. Lhuillier, Phys. Rev. Lett. **114**, 057201 (2015)]. На основі високотемпературних розвинень

до тринадцятого порядку за оберненою температурою для теплоємності та магнітної сприйнятливості проводилась інтерполяція за припущення про різні сценарії низькотемпературної поведінки. Низькотемпературна поведінка теплоємності залежить від спектру низькоенергетичних збуджень системи. У випадку безщілинного спектру теплоємність має степеневу асимптотику $c \propto T^\alpha$, а у випадку спектру із щілиною — термічно активовану асимптотику $c \propto e^{-\Delta/T}$. У роботі досліджувалась інтерполяція методом ентропії для обидвох випадків. При доступному тринадцятому порядку високотемпературних розвинень самоузгоджена процедура в методі ентропії, побудована на аналізі найбільшої кількості близьких Паде апроксимант, дає підстави вважати, що сценарій безщілинного спектру більш достовірний з можливими значеннями показників степеневої асимптотики теплоємності $\alpha = 3/2, 2, 5/2$. Температурний профіль теплоємності $c(T)$ не містить низькотемпературних особливостей типу додаткового максимуму чи плеча. Однак, максимум теплоємності значно зсунутий в область низьких температур $T \approx 0.25$ (в одиницях обмінної взаємодії J). Така поведінка спостерігається безвідносно до припущень про спектр низькоенергетичних збуджень. Магнітна сприйнятливість $\chi(T)$ має широкий максимум. Для значень $\chi_0 = 0.08, \dots, 0.1$ (χ_0 є значення магнітної сприйнятливості при $T = 0$) результати методу ентропії добре узгоджуються із даними симуляцій методом діаграматичного Монте Карло.

Ключові слова: декоровані ланцюжки Ізинга, псевдокритична поведінка, ґратка пірохлору, метод двочасових функцій Гріна, високотемпературні розвинення, метод ентропії.

ABSTRACT

Hutak T.I. Thermodynamics of frustrated quantum spin systems. — Qualifying scientific work on the rights of the manuscript.

Thesis for the Degree of Doctor of Philosophy on the speciality 104 — Physics and Astronomy. — Institute for Condensed Matter Physics of the National Academy of Sciences of Ukraine, Lviv, 2021.

The thesis is devoted to the study of the thermodynamics of the frustrated quantum spin systems. Understanding of the observable properties of Mott insulators requires understanding of the lattice spin models. When the exchange interactions between the neighboring magnetic ions compete in such a way that a lot of spin configurations have the same energy and there is no magnetic order, one faces frustration. Frustration together with the quantum and thermal fluctuations can lead to appearance of new unexpected macroscopic properties. On the other hand, analysis of such systems is a difficult task due to the absence of reliable analytical and numerical methods for the frustrated quantum spin systems.

Some one-dimensional decorated (frustrated) Ising models show peculiar low-temperature behavior for particular sets of model parameters (intersite exchange interactions and magnetic fields), see e.g., L. Gálisová and J. Strečka, *Phys. Rev. E* **91**, 022134 (2015). At some finite temperature, the values of the first derivatives of the free energy, namely, the internal energy and the entropy, exhibit a very steep rise and fall behavior. At the same time, the second derivatives of the free energy such as the specific heat and the magnetic susceptibility as well as the correlation length reach abnormally large values. However, the free energy and the above mentioned thermodynamic functions remain continuous functions of the temperature. Such an unexpected low-temperature behavior was coined the pseudo-transition and the corresponding temperature was coined the pseudocritical temperature. Such systems show a power-law behavior in the vicinity of the pseudocritical temperature (but not at the pseudocritical point) characterized by quasicritical exponents which contradict well-known scaling relations. To reveal the reason for the emergence

of pseudo-transitions, we consider a number of decorated one-dimensional systems. Namely, the two-leg ladder Ising model with trimer rungs, the spin-1/2 Ising- XYZ diamond chain, the double-tetrahedral chain of localized Ising spins and mobile electrons, and the spin-1/2 Ising-Heisenberg double-tetrahedral chain.

After a decoration-iteration transformation, the effective Hamiltonian for the two-leg ladder Ising model with trimer rungs becomes the simple two-leg rail-road Ising ladder Hamiltonian with the temperature-dependent interactions $J_{\perp}(T)$ for the interleg coupling. At some finite temperature T_p (pseudocritical temperature) $J_{\perp}(T)$ vanishes: $J_{\perp}(T_p) = 0$. Effectively, this corresponds to a splitting of the two-leg ladder into two independent Ising chains. For sufficiently small values of the pseudocritical temperature (in the units of exchange coupling of the chain), the traces of the simple Ising chain criticality at zero temperature and zero field are clearly seen. Around the pseudocritical temperature (but not in the immediate vicinity of the pseudocritical temperature) the model shows pseudo-critical behavior. The correlation length follows a power law with the quasicritical exponent $\alpha = \alpha' = 1$ and the specific heat follows a power law with the quasicritical exponent $\gamma = \gamma' = 3$.

The decoration-iteration transformation for a number of considered decorated classical-quantum chains leads to the simple Ising chain Hamiltonian with the temperature-dependent exchange interaction and magnetic field. The effective magnetic field vanishes at the pseudocritical temperature and, consequently, the model corresponds to the simple Ising chain at zero magnetic field. Therefore, the low-temperature peculiarities of the decorated Ising chains show up from the simple Ising chain criticality at the zero temperature and field. Quasicritical exponents of the decorated classical-quantum chains coincide with the ones obtained for the two-leg Ising ladder. As a result, the reason for the peculiar low-temperature behavior of some spin-1/2 decorated (frustrated) one-dimensional Ising models has been revealed.

To study the influence of geometrical frustration on thermodynamics of a three-dimensional quantum spin systems we consider a pyrochlore lattice. The py-

rochlore lattice is the most frustrated lattice in three dimensions. The results for the ferromagnetic and antiferromagnetic quantum $S = 1/2$ Heisenberg model should be compared to the corresponding results for the unfrustrated model on a simple cubic lattice. Both lattices are indistinguishable at the mean-field level having the same number of nearest neighbor sites $z = 6$. The comparison between thermodynamic observables allows to illustrate the effect of geometrical frustration at finite temperatures.

Thermodynamic and dynamic properties of quantum $S = 1/2$ ferromagnetic Heisenberg model were studied by the double-time temperature-dependent Green functions method within the random phase approximation. The equations of motion were decoupled at the first step. Such approximation yields already a description beyond the mean-field theory level. The spin-wave spectrum is renormalized by the order parameter (magnetization) which in turn satisfies a self-consistent equation. The value of the critical temperature T_c and the temperature dependence of the magnetization in the ferromagnetic phase and the magnetic susceptibility in the paramagnetic phase were found from the analysis of the self-consistent equation for magnetization. We compare the magnetization and the specific heat (for the temperatures below the critical one) and the magnetic susceptibility (for the temperatures above the critical one) with the results of quantum Monte Carlo simulations. The dynamic structure factor was compared with inelastic neutron scattering data for $\text{Lu}_2\text{Mo}_2\text{O}_5\text{N}_2$ material and a satisfactory agreement has been found.

To study the thermodynamics of the quantum $S = 1/2$ antiferromagnetic Heisenberg model we used the entropy method [B. Bernu and C. Lhuillier, Phys. Rev. Lett. **114**, 057201 (2015)]. The interpolation between high temperatures (based on the 13-th order high-temperature expansion for the specific heat and the magnetic susceptibility) and low temperatures according to different scenarios for the low-energy excitation spectrum has been made. The low-temperature dependence of the specific heat is determined by the nature of low-energy excitation spectrum of the system. In the case of gapless spectrum, the specific heat follows a power-law behavior $c \propto T^\alpha$, whereas for the gapped spectrum, the specific heat

is thermally activated, i.e., $c \propto e^{-\Delta/T}$. The interpolation within the framework of the entropy method was made for both cases. We apply a self-consistent procedure within the entropy method based on the largest number of coinciding Pade approximants to analyze the thermodynamic observables. For the available order of the high-temperature expansion, the assumption of the gapless spectrum is more robust with the best results for the exponent $\alpha = 3/2, 2, 5/2$. The specific heat $c(T)$ does not have any extra low-temperature features like a peak or shoulder. However, the location of the main maximum is significantly shifted to lower temperatures $T \approx 0.25$ (in the units of the exchange coupling J). This behavior is independent of the assumed type of low-energy excitations. The magnetic susceptibility $\chi(T)$ has a broad maximum. For the value $\chi_0 = 0.08, \dots, 0.1$ (χ_0 is the susceptibility at $T = 0$) the entropy method results agree well with the diagrammatic Monte Carlo simulations data.

Keywords: decorated Ising chains, pseudo-critical transitions, pyrochlore lattice, double-time Green function method, high-temperature expansion, entropy method.

Список публікацій здобувача

1. The spin-1/2 Heisenberg ferromagnet on the pyrochlore lattice: A Green's function study / T. Hutak, P. Müller, J. Richter, T. Krokhumalskii, O. Derzhko // [Condensed Matter Physics](#). — 2018. — Vol. 21, no. 3(33705). — P. 1–13.
2. Adapting Planck's route to investigate the thermodynamics of the spin-half pyrochlore Heisenberg antiferromagnet / O. Derzhko, T. Hutak, T. Krokhumalskii, J. Schnack, J. Richter // [Phys. Rev. B](#). — 2020. — Vol. 101. — P. 174426.
3. Low-temperature thermodynamics of the two-leg ladder Ising model with trimer rungs: A mystery explained / T. Hutak, T. Krokhumalskii, O. Rojas, S. M. de Souza, O. Derzhko // [Physics Letters A](#). — 2021. — Vol. 387. — P. 127020.
4. Towards low-temperature peculiarities of thermodynamic quantities for decorated spin chains / T. Krokhumalskii, T. Hutak, O. Rojas, S. M. de Souza, O. Derzhko // [Physica A: Statistical Mechanics and its Applications](#). — 2021. — Vol. 573. — P. 125986.
5. Гутак Т. Термодинаміка квантового $S = 1/2$ феромагнетика Гайзенберга на ґратці пірохлору // XVIII Всеукраїнська школа-семінар та Конкурс молодих вчених зі статистичної фізики та теорії конденсованої речовини Львів, 7–8 червня, 2018. Тези доповідей. Львів, 2018. С. 42.
6. Гутак Т. Термодинаміка спінових систем: від високих до низьких температур // XIX Всеукраїнська школа-семінар та Конкурс молодих вчених зі статистичної фізики та теорії конденсованої речовини Львів, 13–14 червня, 2019. Тези доповідей. Львів, 2019. С. 31.
7. T. Hutak, T. Krokhumalskii, O. Derzhko, and J. Richter, Thermodynamics of the $S = 1$ Heisenberg antiferromagnet on kagome lattice // *Statistical Physics: Modern Trends and Applications 3–6 July 2019, Lviv, Ukraine. Book of abstracts*. Lviv, 2019. P. 114.

8. T. Krokhmalkii, T. Hutak, O. Rojas, S. M. de Souza, and O. Derzhko, Low-temperature peculiarities of thermodynamic quantities for decorated spin chains // Statistical Physics: Modern Trends and Applications 3–6 July 2019, Lviv, Ukraine. Book of abstracts. Lviv, 2019. P. 115.
9. Гутак Т. Термодинаміка квантового $S = 1/2$ антиферромагнетика Гайзенберга на ґратці пірохлору // XX Всеукраїнська школа-семінар та Конкурс молодих вчених зі статистичної фізики та теорії конденсованої речовини Львів, 15–16 жовтня, 2020. Тези доповідей. Львів, 2020. С. 30.
10. Гутак Т. Термодинамічні і динамічні властивості $S = 1/2$ моделі Гайзенберга на пилкоподібному ланцюжку // XXI Всеукраїнська школа-семінар та Конкурс молодих вчених зі статистичної фізики та теорії конденсованої речовини Львів, 11–13 жовтня, 2021. Тези доповідей. Львів, 2021. С. 19.