

CuGe_{1-x}Ga_xO₃ 的低温磁性质*

杨宏顺¹⁾ 王宇行¹⁾ 李鹏程¹⁾ 柴一晟¹⁾ 侯碧辉¹⁾ 曹烈兆²⁾

¹⁾ 中国科学技术大学物理系, 合肥 230026)

²⁾ 中国科学技术大学结构分析开放实验室, 合肥 230026)

(2000 年 3 月 25 日收到, 2000 年 8 月 14 日收到修改稿)

制备了单相性很好的 CuGa_xGe_{1-x}O₃ ($x=0, 0.01$) 多晶样品, 在不同磁场下对其低温磁化率进行了测量. Ga 的掺杂所产生的 O 空穴导致 CuO₆ 八面体的畸变, 使 b 轴的晶格参数变小. Ga 掺杂抑制了 Spin-Peierls 相变的温度并使自旋单态-三重态之间的能隙减小. 磁场对能隙有抑制作用, 同时使参与 Spin-Peierls 相变的 Cu²⁺ 离子数减少, 另一方面, 磁场能增加不参与双聚化的 Cu²⁺ (即 Cu²⁺ 自由自旋) 的数目.

关键词: CuGeO₃, Spin-Peierls 相变, 低温直流磁化率

PACC: 7510, 7540, 7550

1 引 言

1993 年, Hase 等发现准一维无机材料 CuGeO₃ 中存在 Spin-Peierls 相变^[1]. 它是迄今为止唯一被发现具有 Spin-Peierls 相变的无机材料, 很快成为了理论和实验研究工作的一个焦点.

纯净的 CuGeO₃ 单晶是淡蓝色透明晶体, 具有 ABO₃ 型的类钙钛矿结构^[1], 属正交晶系. Cu-O 呈八面体结构, O²⁻ 占据沿 c 轴的正方形, 邻端的 O²⁻ 又被相邻的八面体沿 b 轴共有. 在这种情况下, Cu-O 八面体所构成的平面在 $a/2$ 间距处为 Ge 原子链所隔开. Ge 原子链平行于 c 轴, 在 a, b, c 三轴上, Cu-Cu 间距分别为 0.4793, 0.425, 0.2924 nm.

在 14.2K 下, 沿 c 轴的 Cu-Cu 准一维反铁磁 (ID-AF) 链沿 c 轴发生双聚化, 形成 Spin-Peierls 相变. 相变后, 体系的能谱结构上以自旋单态为基态, 自旋三重态为激发态, 两者之间存在一个 24K 的能隙^[1]. 在外加磁场下, 相变温度 T_{sp} 不断减小^[2], 并在高场下产生一个新物相——磁性相 (magnetic phase), 简称为 M 相^[3,4].

若用 Heisenberg 模型来描述 CuGeO₃ 中的 Cu-O-Cu 超交换作用, 则 $J_c = 10.4 \text{ meV}$, $J_b \approx 0.1J_c$, $J_a \approx 0.01J_c$. J_b 值比 J_a 大^[5], 这和以前发现的有 Spin-Peierls 相变的有机材料存在着很大的不同.

对 Spin-Peierls 的形成原因, 一般认为是由于一维自旋体系与三维晶格声子相耦合而引起. 70 年代末, Cross 与 Fisher 提出 C-F 理论^[5], 仅考虑最近邻 Cu-O-Cu 的超交换作用 J . 这个模型在解释有机材料的 Spin-Peierls 相变是成功的, 但无法解释 $T > T_{sp}$ 时交流磁化率测量的结果, 并且在 CuGeO₃ 中也没有观察到 Spin-Peierls 相变前的声子预软化. 基于上述事实, Castilla 等提出了 Competing-J-Model^[6], 考虑次近邻相互作用后, 次近邻交换作用和最近邻交换作用的比值 α 与三维晶格声子有关. 理论计算给出 α 有一临界值 α_c , 当 $\alpha > \alpha_c$ 时, 即使没有晶格双聚化也会有单-三重态能隙出现. 但实际测量中 $\alpha = 0.36$, 这可以解释为由于沿 b 向也有很强的链间相互作用存在 ($J_b/J_c \approx 0.1$), 可能改变 α_c 的值, 从而当 $\alpha = 0.36$ 时, 也不会在 U 相 (uniform phase, 均匀相) 中出现能隙^[7]. 而采用 Competing-J-Model 可以对 χ 进行较好的拟合.

对 CuGeO₃ 材料的 Raman 光谱测量和中子衍射的结果都表明^[8-10], 在 14.2K 时, 磁相关常数的倒数 $\xi^{-1} \propto (T - T_{sp})^{1/2}$, 这与 Competing-J-Model 的结果一致. 由 Competing-J-Model 计算出的磁比热与实验结果符合得很好^[11], 可见 Competing-J-Model 所代表的磁交换作用的阻挫对 CuGeO₃ 的 Spin-Peierls 相变的形成起了很大作用. Raman 散射的结果表明在 D 相 (dimerized phase, 双聚相) 中有类反

* 国家重点基础研究专项经费 (批准号: 19990646) 资助的课题.

磁子的磁涨落出现,存在很强的自旋-声子耦合^[12].

也有实验结果认为 Spin-Peierls 相变是由氧的动力学涨落引起,具体表现为掺入杂质后相变温度 T_{sp} 下降,而掺杂正是通过杂质的钉扎作用破坏氧的动力学涨落^[13].

在相变后的区域 ($T < 14.2\text{K}$),根据平均场理论与 BCS 理论, CuGeO_3 材料比热与温度的关系^[14] 可用公式 $C = \beta T^3 + d \exp(-\Delta E/k_B T)$ 来拟合比热数据. 其中第一项是晶格比热,第二项是磁比热. 可见在磁激发能谱上的确有能隙 2Δ 存在. 当垂直 Cu-O-Cu 链加 16T 磁场后,相变后的比热变大,说明磁场对能隙有抑制作用. 非弹性中子衍射的结果表明 $2\Delta = 3.3 - 3.4 k_B T_{\text{sp}}$ ^[15].

掺杂对 CuGeO_3 材料的低温物性同样有很大的改变. 当用 Zn, Ni, Mn 代替 Cu 时, T_{sp} 都有显著下降. 不同自旋的离子所产生的 $|S - S'|$ 对材料的性质有不同影响^[14]. Zn 掺杂的 CuGeO_3 样品在很低的温度下有 Néel 态与 Spin-Peierls 态共存. 对于准一维 Heisenberg 反铁磁链, Spin-Peierls 态与 Néel 态都有可能是基态^[16], 这取决于链间相互作用与链内相互作用的比值. 掺杂代替 Cu 改变了链的长度,也改变了自旋-声子相互作用,从而可能增加链内相互作用与链间相互作用的比值,导致 Néel 态的产生.

如果用 Si 代替 Ge,那么由于 Si-O 之间长度小于 Ge-O 长度,会使 Cu-O-Cu 键角变小,且 Si 与 O $2p_y$ 轨道杂化程度小于 Ge 与 O $2p_y$ 轨道杂化程度,势必影响 bc 平面上两个相邻 Cu^{2+} 链的相互作用,使最近邻的反铁磁作用减弱,会导致 T_{sp} 的减小. Renard 等人的实验^[17]证明了这点. 他们还发现在低温下,掺 Si 的样品由准一维 SP 态转变到一个以 c 轴为晶轴的 3D-AF 态^[17].

Poirier 等人在低温低场下发现 $\text{CuGe}_{0.993}\text{Si}_{0.007}\text{O}_3$ 在 1.1T 时,同样是在 AF 态,但出现了自旋反转,即自旋方向改变了 90° . 这说明 3D-AF 体系中的自旋相互作用并非很强,在磁场不到 1.1T 时, 3D-AF 体系以 c 轴为主晶轴,发生自旋反转后,以 a 轴为难轴 (hard axis)^[18].

基于 CuGeO_3 材料的上述性质,我们用 Ga 部分替代 Ge,试图通过引入空穴载流子和相邻 Cu^{2+} 链的相互作用来改变材料的电子结构与磁结构,从而更进一步对其性质进行研究.

2 样品制备和实验方法

我们采用固相反应法制备了 CuGeO_3 和 $\text{Cu-Ga}_{0.01}\text{Ge}_{0.99}\text{O}_3$ 的多晶样品. 将纯度为 99.9% 的 CuO 粉末、纯度为 99.999% 的 GeO_2 , Ga_2O_3 粉末按化学配比充分混合,研磨均匀后在空气中 950°C 预烧 24 h. 预烧后的粉末重新研磨均匀,再在空气中 1000°C 预烧 24 h. 最后将研磨好的预烧粉末在空气中 1100°C 烧结 72 h. 样品呈淡蓝色,掺 Ga 的样品颜色明显变深.

室温 X 射线衍射的结果表明,两个样品都具有很好的单相性. 不掺杂的样品其晶格常数与文献 [1] 的结果一致. 1% Ga 掺杂的样品依然保持空间群结构为 Pbmnn 的正交结构,其晶胞参数为 $a = 0.4796\text{nm}$, $b = 0.4225\text{nm}$, $c = 0.2936\text{nm}$. Ga^{3+} 的离子半径为 0.062nm , Ge^{4+} 的离子半径为 0.044nm ,可见虽然 Ga^{3+} 的离子半径大于 Ge^{4+} 的离子半径,但是 Ga 离子的掺杂会引入氧空位缺陷. 八面体顶端的 O (1) 原子为两个 GeO_4 四面体和两个 CuO_6 八面体共有,而 O (2) 原子仅为一个 CuO_6 八面体和一个 GeO_4 四面体共有. 因此氧缺陷容易出现在 O (2) 原子位上,导致 CuO_6 八面体的形变,从而使 b 轴的晶格参数减小.

$\text{CuGa}_x\text{Ge}_{1-x}\text{O}_3$ ($x = 0, 0.01$) 样品的低温直流磁化率是在 SQUID 上升温测量的,样品质量分别为 28.9 mg 和 32.5 mg. 4.2K 以下的温度采用液氮减压获得.

3 实验结果和讨论

图 1 所示为 $5-300\text{K}$ 温度范围内,在 1.2 和 4T 的磁场下,两样品的直流磁化率 χ 和温度的关系. 实际上直流磁化率对磁场不敏感,为了清楚起见,图中各 $B = 2\text{T}$ 曲线向上平移 $2 \times 10^{-6}\text{emu/g}$,各 $B = 4\text{T}$ 曲线向上平移 $4 \times 10^{-6}\text{emu/g}$. 在整个温区 $\chi - T$ 的形状基本反映了反铁磁的特征,只是在 T_{sp} 附近不是很尖锐,在高温区,随着温度的下降, χ 变大,而在 $12-14\text{K}$ 附近,磁化率突然下降,显示两个样品都发生了 Spin-Peierls 相变. 虽然在高温部分,样品处于顺磁态,但其 χ 与温度 T 之间的关系并不符合 Curie-Weiss 定律,说明在 Spin-Peierls 相变温度以上, Cu^{2+} 自旋之间就存在准一维关联.

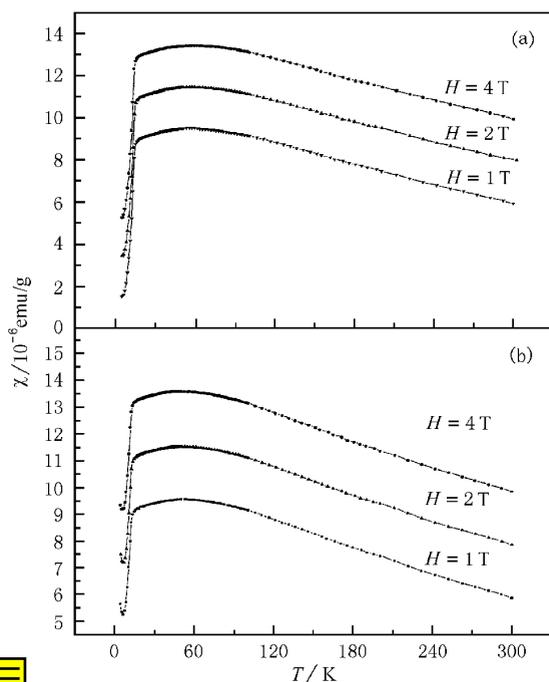


图 1 5—300K 温区范围内,在 1,2,4T 磁场下, $\text{CuGa}_x\text{Ge}_{1-x}\text{O}_3$ 直流磁化率与温度的关系 (a) $x=0$ (b) $x=0.01$ (为清楚起见,图中各 $B=2\text{T}$ 曲线向上平移 $2 \times 10^{-6} \text{emu/g}$,各 $B=4\text{T}$ 曲线向上平移 $4 \times 10^{-6} \text{emu/g}$)

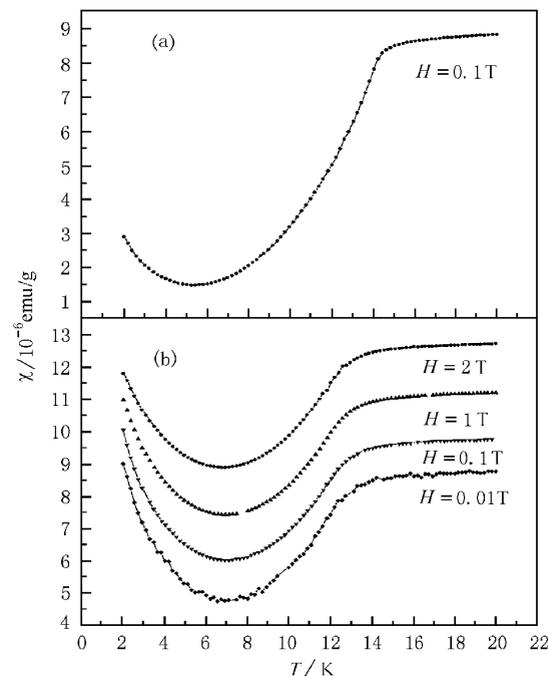


图 2 2—20K 温区范围内,不同磁场下, $\text{CuGa}_x\text{Ge}_{1-x}\text{O}_3$ 直流磁化率与温度的关系 (a) $x=0, H=10^{-1}\text{T}$ (b) $x=0.01$,由下至上依次为 $H=10^{-2}\text{T}, 10^{-1}\text{T}, 1\text{T}, 2\text{T}$ (为清楚起见,除 10^{-1}T 曲线外,其他曲线依次向上平移 $1 \times 10^{-6}, 2.5 \times 10^{-6}, 4 \times 10^{-6} \text{emu/g}$)

图 2 为在 2—20K 温度范围内,不同磁场下 ($10^{-2}\text{T}—4\text{T}$),两个样品的直流磁化率和温度的关系.图中,不掺杂的样品为真实的测量结果,见图 2 (a).对于 $x=0.01$ 掺杂样品,由下至上依次为 $H=0.01, 0.1, 1, 2\text{T}$.为清楚起见,除 0.01T 曲线为真实测量结果外,其他曲线依次向上平移 $1 \times 10^{-6}, 2.5 \times 10^{-6}, 4 \times 10^{-6} \text{emu/g}$,见图 2 (b).

可以看到,所有样品在磁场 $\leq 2\text{T}$ 下均发生了 Spin-Peierls 相变,随磁场的增加,相变的温度有小幅度的减小.在 6K 以后,随温度的降低,磁化率 χ 值增加,在 1% Ga 掺杂的样品中,这一特征尤为显著.对此我们将在稍后进行讨论.随着温度的降低,在相变温度附近磁化率 χ 先有一个缓慢变化,偏离原来的变化趋势,然后又有一个快速降低,为了定准相变温度,我们取 $d\chi/dT$ 为极大值处的温度定义为相变温度,可得各样品在不同磁场下 Spin-Peierls 相变温度 T_{sp} ,如表 1 所示.对于 Spin-Peierls 相变温度以下温区范围内 χ 与 T 的关系,可采用如下公式对其进行很好地拟合:

$$\chi = \chi_0 + \frac{C}{T - \theta} + A \exp\left(-\frac{\Delta'}{T}\right), \quad (1)$$

第一项 χ_0 代表与温度无关的磁化率如 Van Vleck 顺磁项等,第二项为 Curie-Weiss 顺磁贡献,第三项为 Spin-Peierls 贡献.拟合所得结果如表 1 所示.

表 1 $\text{CuGa}_x\text{Ge}_{1-x}\text{O}_3$ ($x=0, 0.01$) 样品在不同磁场下 Spin-Peierls 相变温度和 SP 相变后磁化率的拟合结果

	$x=0$	$x=0.01$			
	$\mu_0 H=0.01\text{T}$	$\mu_0 H=0.01\text{T}$	$\mu_0 H=0.1\text{T}$	$\mu_0 H=1\text{T}$	$\mu_0 H=2\text{T}$
T_{sp}/K	14.2	12.29	12.28	12.27	12.22
$\chi_0/10^{-6} \text{emu/g}$	1.01	1.69	2.52	1.89	1.67
$C/10^{-5} \text{emuK/g}$	0.61	2.17	2.25	2.68	3.12
θ/K	-0.94	-0.37	-0.43	-1.22	-2.04
$A/10^{-5} \text{emu/g}$	17	13	9.48	7.3	6.92
Δ'/K	42.05	40.42	38.65	34.38	31.67

从拟合结果中可以看出,对 $x=0$ 的样品,其低温处 χ 值的增加是由于反铁磁的 Curie-Weiss 项引起的.在 Spin-Peierls 项中, Δ' 是与自旋单态-三重态能隙有关的量.在自旋与晶格的弱耦合近似下,在磁场中自旋三重态 Δ_0 (23.2K) 劈裂为三个单态:

$$\begin{aligned} \Delta_+ &\approx \Delta_0 + g\mu_B H, \\ \Delta &\approx \Delta_0, \\ \Delta_- &\approx \Delta_0 - g\mu_B H. \end{aligned} \quad (2)$$

能隙由 Δ_0 减小为 Δ_- , 由此可得出 $79.6 \times 10^3 \text{ A/m}$ 磁场下能隙大小约为 $23.08 \text{ K}^{[15]}$. 因此 $\Delta' \approx 1.8\Delta_-$. 这可能是由于选择了较大的温区范围进行拟合而造成的, 其他文献也存在这种现象^[19-21].

对 $x=0.01$ 的样品, 随磁场的变化, χ_0 的拟合结果变化无规律, 说明 χ_0 可能与磁场无关, 而其他参数随磁场的变化规律是很有趣的. 从表 1 中可以看到, 掺杂后的 Δ' 值小于未掺杂的 Δ' , 且随着磁场的增加, Δ' 值有明显改变. 可见 Ga 掺杂对能隙有抑制作用, 外场对 Ga 掺杂的样品的 Spin-Peierls 相变温度和能隙也有抑制作用.

对于 $x=0$ 的样品, 由于没有杂质原子的加入, 可认为几乎所有的 Cu^{2+} 离子都参与了 Spin-Peierls 相变(缺陷附近的 Cu^{2+} 粒子可能不参与相变). 令 K_{sp} 表示参加 Spin-Peierls 相变的 Cu^{2+} 离子在所有 Cu^{2+} 离子中所占的比率, 一般情况下我们会认为 $K_{\text{PARA}} + K_{\text{sp}} = 1$. 然而从实验结果来看, 尽管 K_{PARA} 随磁场的增加而增加, K_{sp} 随磁场的增加而减小, 但是 $K_{\text{PARA}} + K_{\text{sp}} < 1$. 这是因为在杂质原子附近 ξ 个自旋范围内, Cu^{2+} 都不能参与 Spin-Peierls 相变, 其中 $\xi \sim 10\Delta(0,0) \Delta(x,H)$, 因此 $K_{\text{sp}} = 1 - \exp(-\xi)$. 所以 K_{sp} 减小的幅度远大于 K_{PARA} 增加的幅度, 那么对于 $x=0$ 的样品, $K_{\text{sp}} \approx 1$, 对于 $x=0.01$ 的样品, 随磁场增加(0.01T, 0.1T, 1T, 2T), 其 K_{sp} 的值为 0.764, 0.557, 0.429 和 0.407. 可见磁场同样减少了参加 Spin-Peierls 相变的自旋数目.

文献报道, 对于 Si 掺杂的样品, 在掺杂浓度较低时, 在 Spin-Peierls 相变之后还会有一个三维反铁磁相变出现, 其相变温度 T_{AF} 一般在 4K 以下^[17,18]. 在 1% Ga 掺杂的样品磁化率测量的结果中, 我们并没有观察到三维反铁磁相变的存在. 但是 Curie-Weiss 项的系数随磁场的增加, 系数 C 和 θ 均有规律地增加. Fukuyama 等通过理论研究认为, 随杂质的掺入, 在 Cu^{2+} 的准一维自旋链上引入了错排的磁矩(staggered moment), 这些错排的磁矩分布在杂质原子的附近, 波及范围为 10 个自旋左右. 错排的磁矩的产生使 Cu^{2+} 自旋除了参加 Spin-Peierls 相变外, 另一部分形成“自由 Cu^{2+} 自旋”, 它们之间存在反铁磁的交换作用^[22]. Ga^{3+} 与 Ge^{4+} 离子半径的巨大差异将导致 Ga 掺入后 CuO_6 八面体的形变波及几个晶胞单元, 从而大大改变材料的磁性质和弹性性质. 因此我们认为 Curie-Weiss 项的贡献正是由于 Cu^{2+} 的自由自旋所产生的. 由于其 T_{N} 很低, 超出了我们所测

量的温区范围, 因此没有观察到反铁磁相变.

顺磁态中的 Curie 常数可由以下公式确定:

$$C = K_{\text{PARA}} N_A \frac{S(S+1)g^2 \mu_B^2}{3k_B}, \quad (3)$$

其中 S 为 Cu^{2+} 离子的自旋, N_A 为阿佛伽德罗常数, k_B 为 Boltzmann 常数, μ_B 为玻尔磁子, g 为郎德因子. K_{PARA} 代表所有 Cu^{2+} 自旋中自由 Cu^{2+} 自旋所占的比率. 由此可得随着磁场的增加(0.01, 0.1, 1, 2T), K_{PARA} 的值分别为 1.00%, 1.05%, 1.25% 和 1.59%. 可见磁场的增加不仅提高了反铁磁-顺磁相变的 Néel 温度, 同时也增加了不参加相变的自由 Cu^{2+} 自旋数目.

Bulaevskii 等根据 Hattree-Fock 理论^[23], Cross 利用 Luther-Peschel 方法处理自旋之间的关联得出磁场下 Spin-Peierls 相变温度与磁场之间的关系为

$$1 - \frac{T_{\text{sp}}(H)}{T_{\text{sp}}(0)} = \alpha \left[\frac{\mu_B H}{k_B T_{\text{sp}}(0)} \right]^2. \quad (4)$$

理论预计 α 值在 0.38—0.44, 对 1% Ga 掺杂的样品我们作出了 $1 - \frac{T_{\text{sp}}(H)}{T_{\text{sp}}(0)}$ 与 $\left[\frac{\mu_B H}{k_B T_{\text{sp}}(0)} \right]^2$ 的关系图如图 3 所示, 可得 α 值为 0.45, 和理论结果符合得非常好.

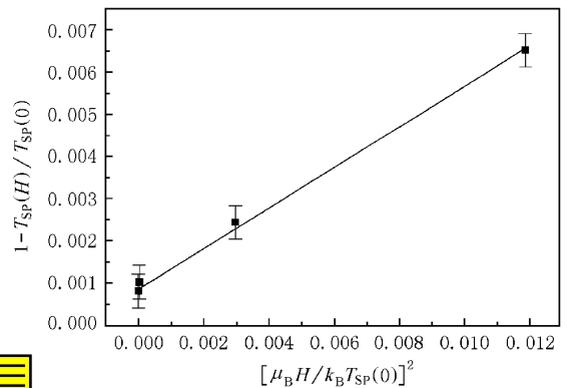


图 3 $[\mu_B H / k_B T_{\text{sp}}(0)]^2$ 与 $1 - T_{\text{sp}}(H) / T_{\text{sp}}(0)$ 的线性关系拟合

图 4 所示为在不同的温度下直流磁化率与磁场的关系. 在发生 Spin-Peierls 相变前后, 随温度的升高, 直流磁化率减小. 相变前的磁化率明显大于相变后的结果. 值得注意的是, 在几个测量温度上, 样品的磁化率在很小的磁场下就达到了饱和. 这很容易让人联想起磁杂质的作用. 经过估算, 在高温下要达到如图 4 所示的磁化率, 杂质含量要达到 0.6% Fe, 而制样所用的高纯原料不会引入这么高的杂质 Fe 含量. 我们认为这可能是材料的一个本征现象, 在

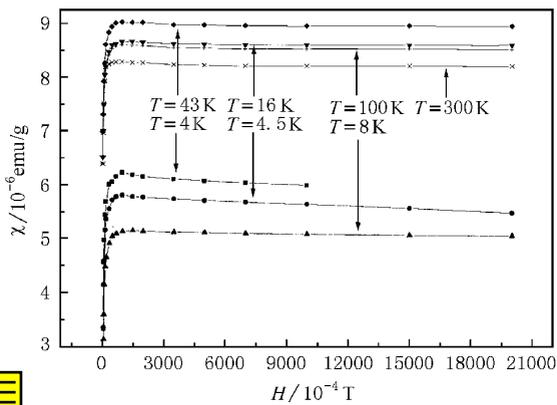


图 4 不同温度下直流磁化率 χ 与磁场的关系 ($x = 0.01$ 的样品 χ 从下至上 温度依次为 8, 4.5, 300, 100, 16 及 43 K)

材料中可能存在微弱的自旋关联, 而磁场会破坏这种关联, 从而使磁化率增加. 值得注意的是, 继续增大磁场时, 特别是在 8 K 以下(极小值以下, 见图 2

(b) 磁场使磁化率略有减少, 很有可能与微弱的自旋关联的本征行为有关. 当然, 这种设想还需要进一步的实验证明.

4 结 论

我们制备出了单相性很好的 $\text{CuGa}_x\text{Ge}_{1-x}\text{O}_3$ ($x = 0, 0.01$) 多晶样品, 并对其低温磁化率进行了测量. Ga 的掺杂所产生的 O 空穴导致 CuO_6 八面体的畸变, 使 b 轴的晶格参数变小. Ga 掺杂抑制了 Spin-Peierls 相变的温度和能隙, 使自旋单态-三重态之间的能隙减小, 并且导致反铁磁态与 Spin-Peierls 态共存. 磁场对能隙有抑制作用, 同时使参加 Spin-Peierls 相变的 Cu^{2+} 的自旋数目减少, 另一方面, 磁场能提高样品的 θ , 并增加 Cu^{2+} 的自由自旋的数目.

[1] M. Hare, I. Teraski, K. Uchinokura, *Phys. Rev. Lett.*, **70** (1993) 3651.
 [2] F. Hamamoto *et al.*, *Physica* **B201**(1994), 171.
 [3] G. Raményi, S. Sahling, J. C. Lasjaunias, N. Hegman, P. Monceau, G. Dhalenne, A. Revcolevschi, *Czechoslovak Journal of Physics* 46-Suppl, Part S4(1995, 1996)
 [4] T. Lorenz, U. Amnerahl, R. Ziemes, B. Büchner, *Phys. Rev.*, **B54**(1996) R15610.
 [5] M. C. Cross, D. S. Fisher, *Phys. Rev.* **B19**(1979) A02.
 [6] G. Castilla, S. Chakravarty, V. J. Enmery, *Phys. Rev. Lett.*, **75**(1995) 1823.
 [7] J. Riera, A. Dotry, *Phys. Rev.* **B50**(1995) 16098.
 [8] H. Kuroe, Jun-ichi Sasaki, T. Sekine, Naokikoide, Yoshitaka Sasago, Kunimitsu Uchinokura, Masashi Hare, *Phys. Rev.*, **B55**(1997) A09.
 [9] M. Nishi, O. Fujita, J. Akimistu, K. Kakurai, Y. Fujii, *Physica*, **B213** 214(1995) 275.
 [10] K. Hirofa, G. Shirane, Q. J. Harris, Q. Feng, K. J. Birgeneau, M. Hase, K. Uchinokura, *Phys. Rev.* **B52**(1995) 15412.
 [11] K. Fabricius, A. Klümper, U. Löw, B. Büchner, T. Lorenz, G. Dhalenne, A. Revcolevschi, *Phys. Rev.* **B57**(1998) 1102.
 [12] S. Jandl, M. Poirier, M. Castonguay, P. Fronzes, J. L. Musfeldt, A. Revcolevschi, G. Dhalenne, *Phys. Rev.* **B54**(1996), 7318.

[13] M. Imada, *J. Phys. Soc. Jpn.* **60**(1995) 1877.
 [14] S. B. Oseroff, S. W. Cheong, B. Aktas, M. F. Hundley, Z. Fisk, L. W. Rupp, Jr. *Phys. Rev. Lett.* **74**(1995) 1450.
 [15] L. P. Regnault, M. Ain, B. Hennion, G. Dhalenne, A. Revcolevschi, *Phys. Rev.* **B53**(1996) 5579.
 [16] S. Inagaki, H. Fukuyama, *J. Phys. Soc. Jpn.* **52**(1993) 2504; **52**(1983) 3620.
 [17] J. P. Renard, K. Le Dang, D. Veillet, G. Dhalenne, A. Revcolevschi, L. P. Regnault, *Europhys. Lett.* **30**(1995) 475-480.
 [18] M. Poirier, R. Beaudy, M. Castonguay, M. L. Plumer, G. Quirion, F. S. Razavi, A. Revcolevschi, G. Dhalenne, *Phys. Rev.* **B52**(1995) R6971.
 [19] L. F. Matthes, *Phys. Rev.* **B49**(1994) 14050.
 [20] S. Oseroff, S. W. Cheong, A. Fondado, B. Aktas, Z. Fisk, *J. Appl. Phys.* **75**(1994) 6819.
 [21] B. Grenier, J. P. Renard, P. Veillet, C. Paulsen, R. Calemezuk, G. Dhalenne, A. Revcolevschi, *Phys. Rev.* **B57**(1998) 3444.
 [22] H. Fukuyama, T. Tanimoto, M. Saito, *J. Phys. Soc. Jpn.* **65**(1996) 1182.
 [23] L. N. Bulaevskii, A. I. Buzdin, D. I. Khomakii, *Solid State Commun.* **27**(1978) 5; M. C. Cross, *Phys. Rev.* **B10**(1974), 4637.

LOW TEMPERATURE MAGNETIC PROPERTIES OF $\text{CuGe}_{1-x}\text{Ga}_x\text{O}_3$ *

YANG HONG-SHUN¹⁾ WANG YU-XING¹⁾ LI PENG-CHENG¹⁾

CHAI YI-SHENG¹⁾ HOU BI-HUI¹⁾ CAO LIE-ZHAO²⁾

¹⁾ *Department of Physics, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China*

²⁾ *Structure Research Laboratory, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China*

(Received 25 March 2000 ; revised manuscript received 14 August 2000)

ABSTRACT

The polycrystalline samples of single-phase $\text{CuGa}_x\text{Ge}_{1-x}\text{O}_3$ ($x = 0, 0.01$) are synthesized. Their low-temperature magnetic susceptibility are measured under different magnetic fields. The oxygen holes generated by Ga doping induce the distortion of the CuO_6 octahedron, and cause b axis of the crystal lattice to become shorter. Ga doping decreases the spin-Peierls transition temperature and also the energy gap between the spin singlet-state and the triplet-state. The magnetic fields have the effectiveness of inhibiting the energy gap, meanwhile, reducing the spin number of Cu^{2+} ions that are involved in the spin-Peierls phase transition. On the other hand, the magnetic field increases the free spin number of Cu^{2+} ions.

Keywords : CuGeO_3 , Spin-Peierls transition, low temperature magnetic susceptibility

PACC : 7510, 7540, 7550

* Project supported by the Ministry of Science and Technology of China (Grant No. 19990646).