

Московский физико-технический институт (государственный университет)
Институт физических проблем им. П. Л. Капицы РАН

Солдатов Тимофей Александрович

Выпускная квалификационная работа (магистерский диплом)

**Особенности магнитного резонанса в квантовом
антиферромагнетике Cs_2CuCl_4 в сильном поле**

Направление подготовки: 03.04.01 – «Прикладная математика и физика»
Магистерская программа: 010911 – «Физика низких температур»

Научный руководитель:
д.ф.-м.н., в.н.с., проф.
Смирнов Александр Иванович

Содержание

Введение и постановка задачи	1
1 Электронный спиновый резонанс в магнетиках	4
1.1 Теоретические основы	4
1.2 Экспериментальные установки и эксперимент	7
1.3 Генераторы СВЧ	9
1.4 Спектрометрические вставки	10
2 Низкоразмерные магнетики со спином $S = \frac{1}{2}$	13
2.1 Гейзенберговская цепочка спинов $S = \frac{1}{2}$	13
2.2 Гейзенберговский $S = \frac{1}{2}$ антиферромагнетик на треугольной решетке . .	18
3 Основные сведения о магнитных свойствах Cs_2CuCl_4	21
3.1 Кристаллическая структура	21
3.2 Магнитные свойства. Обзор предшествующих работ.	21
4 Магнитный резонанс в квантовом антиферромагнетике Cs_2CuCl_4 в сильном поле	27
4.1 Исследуемые образцы и условия эксперимента	27
4.2 Магнитное поле вдоль оси a	27
4.3 Магнитное поле вдоль оси b	35
5 Интерпретация и сравнение с теорией	38
5.1 Исчезновение спионного дублета	38
5.2 Спектр ЭСР в Cs_2CuCl_4 в полях, больших поля насыщения	40
5.3 Выводы	43
Благодарности	44
Приложение	45
Спектр магнонов в ферромагнитной фазе Cs_2CuCl_4 в обменном приближении	45
Список литературы	51

Введение и постановка задачи

Макроскопические квантовые явления занимают важное место в физике низких температур, в частности, в исследованиях магнетизма. Среди магнитных кристаллов можно выделить так называемые квантовые магнетики, магнитные моменты ионов в которых не упорядочиваются вплоть до самых низких температур и находятся в сильно коррелированном спиновом состоянии. Изучение таких магнетиков является одним из ключевых направлений в физике конденсированного состояния.

Магнитные ионы в кристаллах связаны друг с другом диполь-дипольным и обменным взаимодействиями. Энергия последнего на несколько порядков превышает энергию взаимодействия между магнитными диполями ионов, вследствие чего именно обменное взаимодействие ответственно за магнитное состояние магнетика. Гамильтониан Гейзенберга для системы магнитных ионов в кристаллах, связанных обменным взаимодей-

ствием, имеет вид:

$$\hat{\mathcal{H}} = \sum_{\langle i,j \rangle} J_{ij} (\hat{S}_i \cdot \hat{S}_j)$$

где угловые скобки в $\langle i, j \rangle$ обозначают однократное суммирование по каждой паре спинов $i \neq j$, а J_{ij} – обменные интегралы. Гамильтониан Гейзенберга имеет наиболее простой вид, если учитывать взаимодействия только между ближайшими соседями. В этом случае, если $J < 0$, то говорят о ферромагнитном обмене, если $J > 0$ – об антиферромагнитном обмене. Для ферромагнетика волновой функцией основного состояния является собственная волновая функция $|\uparrow\uparrow\uparrow \dots\rangle$ гамильтониана. В случае же антиферромагнетика неелевская волновая функция $|\uparrow\downarrow\uparrow\downarrow \dots\rangle$ не является собственной волновой функцией гамильтониана. Проблема нахождения основного состояния антиферромагнетика является важным вопросом в физике магнитных систем. Задача Гейзенберга решается точно, например, в следующих двух случаях: для одномерной цепочки спинов $S = \frac{1}{2}$ ("анзатц Бете" [1]) и для двумерной системы димеров Шастри-Сазерленда [2].

Согласно теореме Мермина-Вагнера [3], при конечной температуре в одномерных и двумерных изотропных магнитных системах с ограниченным радиусом обменного взаимодействия (ферромагнитного или антиферромагнитного) дальний порядок не устанавливается. Под дальним порядком понимается порядок с ненулевым средним значением проекции спина магнитного иона $\langle S_i^z \rangle \neq 0$. Термины "одномерный" и "двумерный" относятся к размерности решетки обменных связей, определяющих поведение системы. Размерность же спинового пространства равна трем. Следует отметить, что в некоторых низкоразмерных системах дальний порядок не устанавливается даже при температуре $T = 0$. Примером таких систем служит одномерная антиферромагнитная цепочка спинов $S = \frac{1}{2}$. Отсутствие дальнего порядка в одномерных и двумерных системах при низкой температуре – проявление их квантовых свойств. Кроме того, чем меньше величина спина магнитного иона, тем более интенсивными становятся квантовые флуктуации. Сильно коррелированное, но не упорядоченное основное состояние системы называется спиновой жидкостью или коллективным парамагнетиком. В трехмерных антиферромагнетиках, как правило, реализуется неелевское состояние при конечной температуре T_N , называемой точкой Нееля. Однако, при этом величина упорядоченной компоненты спина оказывается редуцированной.

Примером магнетиков с пониженной размерностью могут служить вещества, в которых из-за особенностей кристаллической структуры обменное взаимодействие между магнитными ионами вдоль одного или двух направлений существенно ослаблено. В первом случае вещество называют квазидвумерным магнетиком, во втором случае – квазиодномерным магнетиком. Спин-жидкостные состояния одномерных и двумерных систем, обладающие щелью в спектре возбуждений, устойчивы относительно малых возмущений. В случае же бесщелевого спектра слабые взаимодействия, дополняющие систему обменных связей до трехмерной, приводят к упорядочению квазинизкоразмерного магнетика при малой, но конечной температуре. Однако, в последнем случае имеется обширная область температур от температуры упорядочения до температуры Кюри-Вейсса $T_N < T < \theta_{CW}$, в которой система сильно коррелирована в отсутствие дальнего порядка, то есть находится в слабо возмущенном спин жидкостном состоянии. При этом такое состояние весьма схоже с состоянием соответствующей низкоразмерной магнитной системы по своим термодинамическим свойствам и спектру возбуждений. Спин-жидкостное состояние ожидается как в квазинизкоразмерных системах (например, в димерных сетях [2] и в "спиновых лестницах" [5]), так и во фруст-

рированных системах (например, в ”спиновом льде” с ферромагнитным обменом [4]). Под фрустрацией понимается невозможность минимизации энергии для всех парных взаимодействий между соседними спинами в системе.

Появляющиеся в последние годы модельные квазидвумерные соединения со спином $S = \frac{1}{2}$ являются объектом интенсивного экспериментального изучения. К таким соединениям относится диэлектрический кристалл Cs_2CuCl_4 , представляющий собой квазидвумерную фрустрированную спиновую систему на треугольной решетке с антиферромагнитным обменом. Для него температура Нееля $T_N = 0.62$ К значительно меньше температуры Кюри-Вейсса $T_{CW} = 4$ К. При этом в области температур от температуры упорядочения до температуры Кюри-Вейсса магнитная система находится в сильно коррелированном спин-жидкостном состоянии [6–10]. В работах [9, 10] проводилось исследование Cs_2CuCl_4 методом магнитного резонанса в слабых полях как в упорядоченной, так и в спин-жидкостной фазе. Было обнаружено, что при температурах как выше, так и ниже точки Нееля T_N на частотах выше ”обменной” частоты $\frac{J}{2\pi\hbar} \sim 80$ ГГц наблюдается магнитный резонанс, соответствующий двухспионному континууму изолированной цепочки спинов $S = \frac{1}{2}$ с однородным взаимодействием Дзялошинского-Мории [11, 12] – так называемый спионный резонанс, причем при направлении внешнего магнитного поля \vec{H} вдоль кристаллографических осей a, c наблюдается дублет резонансных линий – спионный дублет, а при $\vec{H} \parallel b$ – щелевая резонансная мода. Поскольку поле насыщения для Cs_2CuCl_4 составляет порядка 8 Т [13], то можно исследовать эволюцию спионного резонанса при увеличении внешнего магнитного поля вплоть до поля насыщения и выше – наблюдать трансформацию спионного резонанса в магнитный (современные сверхпроводящие соленоиды позволяют создавать поля до 12 Т при температурах ниже 4 К). Мы задались целью изучить спектр магнитного резонанса в квантовом антиферромагнетике Cs_2CuCl_4 в спин-коррелированной фазе в сильном поле в условиях подавления квантовых флуктуаций. Было выяснено, что спионный дублет коллапсирует в магнитном поле, равном приблизительно половине поля насыщения. Кроме того, в полях выше поля насыщения была обнаружена слабая резонансная мода, объясняемая теорией спиновых волн и позволяющая определить величины главных обменных интегралов в Cs_2CuCl_4 с высокой точностью по сравнению с погрешностью нейтронных измерений.

Магистерский диплом состоит из пяти глав и одного приложения. Первые три главы представляют собой вводную часть: в первой главе представлены теоретические основы ЭСР и экспериментальная методика, во второй главе описаны свойства гейзенберговской антиферромагнитной цепочки спинов $S = \frac{1}{2}$ и гейзенберговского антиферромагнетика на треугольной решетке со спином $S = \frac{1}{2}$, в третьей главе приведена основная информация о магнитных свойствах Cs_2CuCl_4 . Последние две главы содержат результаты работы и заключение: в четвертой главе детально описаны экспериментальные данные по спиновому магнитному резонансу в этом веществе, полученные в ИФП им. П. Л. Капицы РАН в 2013–2015 годах, в пятой главе обсуждены результаты измерений, представлена их интерпретация и подведены итоги. В приложении рассмотрена задача о нахождении спектра магнонов в насыщенной фазе Cs_2CuCl_4 в обменном приближении в рамках спин-волновой теории. Приложение носит методический характер и не содержит результатов, представляемых к защите.

Изложенные в данной работе результаты исследований Cs_2CuCl_4 методом магнитного резонанса опубликованы в работах [14, 15].

1 Электронный спиновый резонанс в магнетиках

1.1 Теоретические основы

Электронный парамагнитный резонанс является распространенным инструментом в исследовании магнитных явлений. Он был открыт Е. К. Завойским в 1944 году [16]. Суть явления кратко формулируется следующим образом: происходит резонансное поглощение фотона за счет переходов между расщепленными в магнитном поле зеемановскими энергетическими уровнями спиновой системы.

Для системы невзаимодействующих спинов $S = \frac{1}{2}$ в магнитном поле \vec{H} (см. Рис. 1.1) энергия расщепления равна

$$\Delta E = g\mu_B H \Delta S = g\mu_B H \quad (1.1)$$

где μ_B – магнетон Бора, $g = 2$ – g -фактор свободного электрона, $\Delta S = 1$. Поглощение падающего фотона, несущего спин $S = 1$, может происходить при

$$\hbar\omega = g\mu_B H \quad (1.2)$$

Строгое квантовомеханическое описание явления магнитного резонанса, справедливое как для взаимодействующих, так и для невзаимодействующих спиновых систем, сводится к рассмотрению гамильтониана вида

$$\hat{\mathcal{H}} = \hat{\mathcal{H}}_0 - \hat{\mu}_z H - \hat{\mu}_x h \cos(\omega t) \quad (1.3)$$

Здесь $\hat{\mu}$ – оператор магнитного момента, H – величина внешнего постоянного магнит-

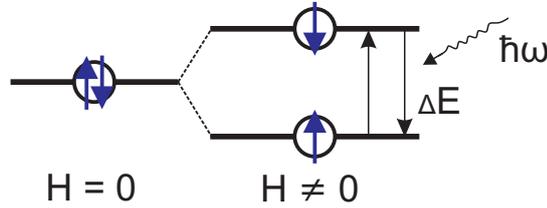


Рис. 1.1: Расщепление спиновых подуровней магнитным полем и переход между ними с поглощением (испусканием) фотона для $S = \frac{1}{2}$.

ного поля, вектор которого направлен вдоль оси z , h – амплитуда внешнего осциллирующего поля, вектор которого направлен вдоль оси x , $\hat{\mathcal{H}}_0$ – гамильтониан невозмущенной системы.

Пусть $|a\rangle$, $|b\rangle$ и E_a , E_b – собственные состояния и соответствующие им собственные значения для гамильтониана $\hat{\mathcal{H}}' = \hat{\mathcal{H}}_0 - \hat{\mu}_z H$ невозмущенной системы, причем $E_b > E_a$. Вероятность перехода ρ_{ab} между стационарными состояниями $|a\rangle$ и $|b\rangle$ в единицу времени для невозмущенного гамильтониана $\hat{\mathcal{H}}'$ в рамках теории возмущений выражается следующим соотношением:

$$\rho_{ab} = \frac{\pi h^2}{\hbar} |\langle a | \hat{\mu}_x | b \rangle|^2 \delta(\Delta E_{ab} - \hbar\omega) \quad (1.4)$$

Здесь $\Delta E_{ab} = E_b - E_a$ – разность между энергиями состояний $|b\rangle$ и $|a\rangle$.

Заселенности состояний в предположении, что система мгновенно достигает теплового равновесия, определяются следующими формулами:

$$n_a = N_0 \frac{1}{1 + e^{-\frac{\Delta E_{ab}}{k_B T}}} \quad (1.5)$$

$$n_b = N_0 \frac{1}{1 + e^{\frac{\Delta E_{ab}}{k_B T}}} \quad (1.6)$$

разность заселенностей:

$$n_a - n_b = N_0 \operatorname{th} \left(\frac{\Delta E_{ab}}{2k_B T} \right) \quad (1.7)$$

и отношение заселенностей:

$$\frac{n_b}{n_a} = e^{-\frac{\Delta E_{ab}}{k_B T}} \quad (1.8)$$

где $n_{a,b}$ – заселенности уровней a и b соответственно, $N_0 = n_a + n_b$ – количество спинов в системе, T – температура системы.

Мощность поглощения W системой падающей на нее электромагнитной волны определяется двумя процессами – излучением и поглощением – и выражается по формуле

$$W = \hbar\omega(n_a - n_b)\rho_{ab} \quad (1.9)$$

Таким образом, из формул (1.4), (1.7) и (1.9) следует, что поглощаемая мощность пропорциональна

$$W \propto \omega h^2 N_0 \operatorname{th} \left(\frac{\Delta E_{ab}}{2k_B T} \right) |\langle a | \hat{\mu}_x | b \rangle|^2 \quad (1.10)$$

Отсюда видно, что поглощаемую двухуровневой магнитной системой мощность можно увеличить за счет увеличения размеров образца, амплитуды постоянного и переменного магнитных полей и уменьшения температуры системы. Благодаря процессам релаксации происходит обратный переход из $|b\rangle$ в $|a\rangle$. При этом энергия поглощенного поля переходит в энергию фононных возбуждений кристаллической решетки.

Характерное магнитное поле, применяемое в эксперименте, составляет примерно 1 Т. Согласно формуле (1.2) характерная частота поглощаемого фотона и соответствующая ей длина волны равны 30 ГГц и 1 см. Таким образом, отношение волнового вектора СВЧ-фотона к волновому вектору обратной решетки есть величина порядка

$$\frac{k_\omega}{k_D} \sim \frac{a_B}{\lambda} \sim 10^{-7} \quad (1.11)$$

Следовательно, при магнитном резонансе изучаются возбуждения спиновой системы практически в центре зоны Бриллюэна $k \sim 0$, что соответствует пространственно однородным колебаниям.

Макроскопически величина потерь, связанных с поглощением СВЧ-мощности в образце, определяется мнимой частью обобщенной восприимчивости образца $\chi''(\omega, k \sim 0) = \chi''(\omega, 0)$. Обобщенное условие резонанса типа (1.2) записывается в виде $H_{res} = H_{res}(\omega, 0)$, тогда в резонансе χ'' для обычного парамагнетика имеет особенность вида

$$\chi''(H) \propto \frac{1}{1 + \left(\frac{H - H_{res}(\omega, 0)}{\Delta H_{1/2}} \right)^2} \quad (1.12)$$

где $\Delta H_{1/2}$ – полуширина на полувывоте кривой, описываемой $\chi''(H)$.

Поглощаемая в образце мощность электромагнитной волны, пронизывающей рассматриваемый образец, определяется следующей формулой:

$$P_{samp} = \frac{1}{2} \chi'' h^2 \omega V_{samp} \quad (1.13)$$

где V_{samp} – объем образца. Для увеличения чувствительности к поглощаемой мощности, образец помещается в резонатор, в котором возбуждается мода колебаний на определенной частоте. Потери в резонаторе без образца записываются в виде

$$P_{res} = \frac{1}{Q_0} \omega \frac{h^2}{8\pi} V_{eff} \quad (1.14)$$

где Q_0 – добротность ненагруженного резонатора, $V_{eff} = \frac{\int h^2(\vec{r})dV}{h^2}$ – эффективный объем резонаторной полости (интеграл берется по объему резонатора). Итак, отношение потерь в объеме образца к потерям в стенках резонатора равно

$$\frac{P_{samp}}{P_{res}} = 4\pi\chi''Q_0\eta, \quad \eta = \frac{V_{samp}}{V_{eff}} \quad (1.15)$$

Для того, чтобы чувствительность была наибольшей, необходимо максимизировать это соотношение. Это достигается, во-первых, увеличением коэффициента заполнения η (то есть увеличением размеров образца и его размещением в области резонатора, где осциллирующее магнитное поле имеет максимальную амплитуду) и, во-вторых, увеличением добротности резонатора.

Эксперимент по ЭСР при измерении "на проход" ставится следующим образом. В резонаторе (часто используемые: прямоугольный, цилиндрический, тороидальный) прорезаются два отверстия связи. Через одно отверстие осуществляется накачка электромагнитной энергии на частоте, соответствующей какой-либо резонансной моде резонатора. С помощью другого отверстия измеряется прошедший сигнал с использованием детектора. Исследуемый образец размещается в пучности магнитного поля колебательной моды резонатора, и резонатор вместе с образцом помещаются во внешнее однородное магнитное поле в среду с определенной температурой. В экспериментах записывается зависимость прошедшего через резонатор сигнала от поля (осуществляются одновременно развертка магнитного поля и запись показания с детектора) – резонансная линия на определенной частоте при заданной температуре.

При измерении "на проход" наблюдаемый на детекторе сигнал связан с χ'' следующим образом [17] (при условии, что $|\chi'| \ll 1$ во всем диапазоне магнитных полей):

$$U = \frac{U_0}{\left(1 + \frac{4\pi\chi''Q_0\eta}{1 + \beta}\right)^2} \quad (1.16)$$

где β – коэффициент связи для ненагруженного резонатора, U_0 – мощность проходящего через резонатор сигнала в отсутствие образца. В случае малого χ'' либо малого размера образца (или, что то же самое, малого коэффициента заполнения) формулу (1.16) можно разложить в ряд Тейлора. В итоге, считая, что связь оптимальная и $\beta = 1$, получим

$$U = U_0(1 - 4\pi\chi''Q_0\eta) \quad (1.17)$$

В таком приближении уменьшение мощности, связанное с поглощением энергии в образце в результате ЭСР, описывается лоренцевой функцией. При интерпретации экспериментальных данных формула (1.17) дает хорошее приближение, но в случае большого размера образца или при сильном поглощении в нем следует пользоваться точной формулой (1.16).

Кроме того, существует общая связь между мнимой и действительной частью восприимчивости спиновой системы. Она выражается соотношением Крамерса-Кронига:

$$\chi'(\vec{k}, \omega) = \frac{1}{\pi} \mathcal{P} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\chi''(\vec{k}, \omega')}{\omega' - \omega} d\omega' \quad (1.18)$$

В случае поглощения на микроволновой частоте в парамагнетике можно считать $\vec{k} = 0$, а частоту поглощения связанной с магнитным полем соотношением (1.2). Тогда уравнение (1.18) преобразуется к более простому виду

$$\chi'(0, 0) = \frac{1}{\pi} \mathcal{P} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\chi''(0, H)}{H} dH \quad (1.19)$$

Таким образом, в случае, когда резонансная линия имеет резкий максимум поглощения, а поглощение энергии образцом мало, и применима формула (1.17), статическая однородная магнитная восприимчивость пропорциональна проинтегрированной линии поглощения ЭСР.

1.2 Экспериментальные установки и эксперимент

Эксперименты по ЭСР осуществлялись при помощи криостата с откачкой ^4He для работы при температурах до 1.3 К и криостата с откачкой ^3He для работы при температурах до 0.45 К. Схема экспериментальной установки с откачкой ^4He представлена на Рис. 1.2. В нем смонтирован сверхпроводящий соленоид, критическое поле которого составляет $H_c = 8$ Т при температуре 1.3 К. Схема экспериментальной установки с откачкой ^3He изображена на Рис. 1.3. Этот криостат оснащен сверхпроводящим соленоидом, позволяющим создавать поле до $H_c = 12$ Т при температуре 4.2 К. Откачка ^3He производится сорбционным насосом. В качестве сорбента используется активированный уголь.

Низкотемпературные спектрометрические измерения производятся с применением двойной модуляции сигнала. Излучение генератора СВЧ модулируется как по амплитуде (меандром с частотой порядка 1 кГц), так и по частоте (синусоидой либо треугольным периодическим сигналом – ”пилой” – с частотой порядка 100 Гц). Глубина частотной модуляции мала относительно частоты излучения:

$$\nu = \nu_0 + \delta\nu \sin(\omega t), \quad \delta\nu \ll \nu_0 \quad (1.20)$$

где частота ν_0 сигнала подбирается соответствующей частоте одной из резонансных мод резонатора, глубина модуляции $\delta\nu \sim 30$ МГц.

Модулированный сигнал от генератора подается по входному волноводу на вход резонатора с образцом, возбуждая в нем колебательную моду. Прошедшее через резонатор СВЧ-излучение через выходной волновод попадает на детектор. Напряжение на детекторе пропорционально мощности падающей на него электромагнитной волны. Источник (генератор СВЧ) и приемник (кристаллический детектор) находятся при комнатной температуре. Образец расположен в резонаторной полости в максимуме осциллирующего магнитного поля. Волноводная ячейка отделена от гелиевой ванны ”вакуумной рубашкой” с небольшим количеством теплообменного газа. Такая конструкция позволяет изменять температуру резонатора вместе с образцом относительно температуры гелиевой ванны с помощью нагревателя. В качестве нагревателя используется

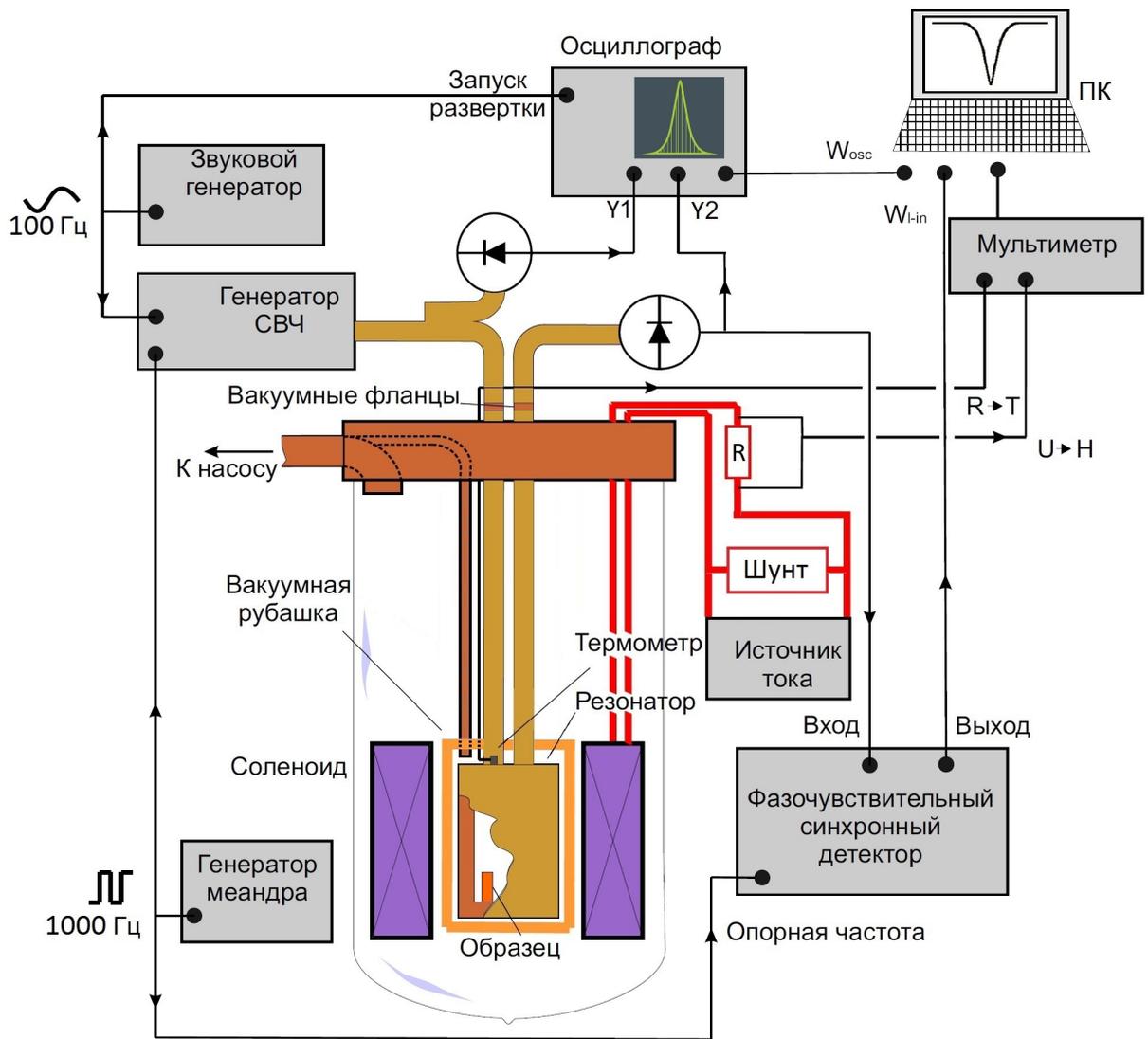


Рис. 1.2: Схема экспериментальной установки с откачкой ^4He для работы при температурах до 1.3 К. Адаптировано из работы [18].

намотанный на резонатор отрезок провода. Температура управляется путем пропускания через него постоянного электрического тока. Спектрометрическая вставка помещена в гелиевую ванну и опущена внутрь соленоида так, чтобы исследуемый образец располагался в центре соленоида (в области наиболее сильного и однородного магнитного поля). В резонатор вместе с образцом также помещается небольшое количество дифенилкрилгидразила (ДФПГ) – парамагнетика с g -фактором $g = 2.00$, используемого для калибровки магнитного поля. Напряжение с детектора подается на вход синхронного детектора, опорным сигналом для которого является сигнал амплитудной модуляции. Постоянная времени синхронного детектирования сигнала много больше периода и частотной, и амплитудной модуляции. Амплитудная модуляция применяется в целях улучшения соотношения "сигнал - шум" путем синхронного детектирования, а частотная модуляция – в целях исключения расстройки резонатора, связанной как с влиянием χ' образца вблизи поля H_{res} , так и со случайным дрейфом частоты генератора, то есть для стабилизации сигнала. Кроме того, напряжение с детектора подается на осциллограф, развертка которого запускается частотно модулирующим сигналом для

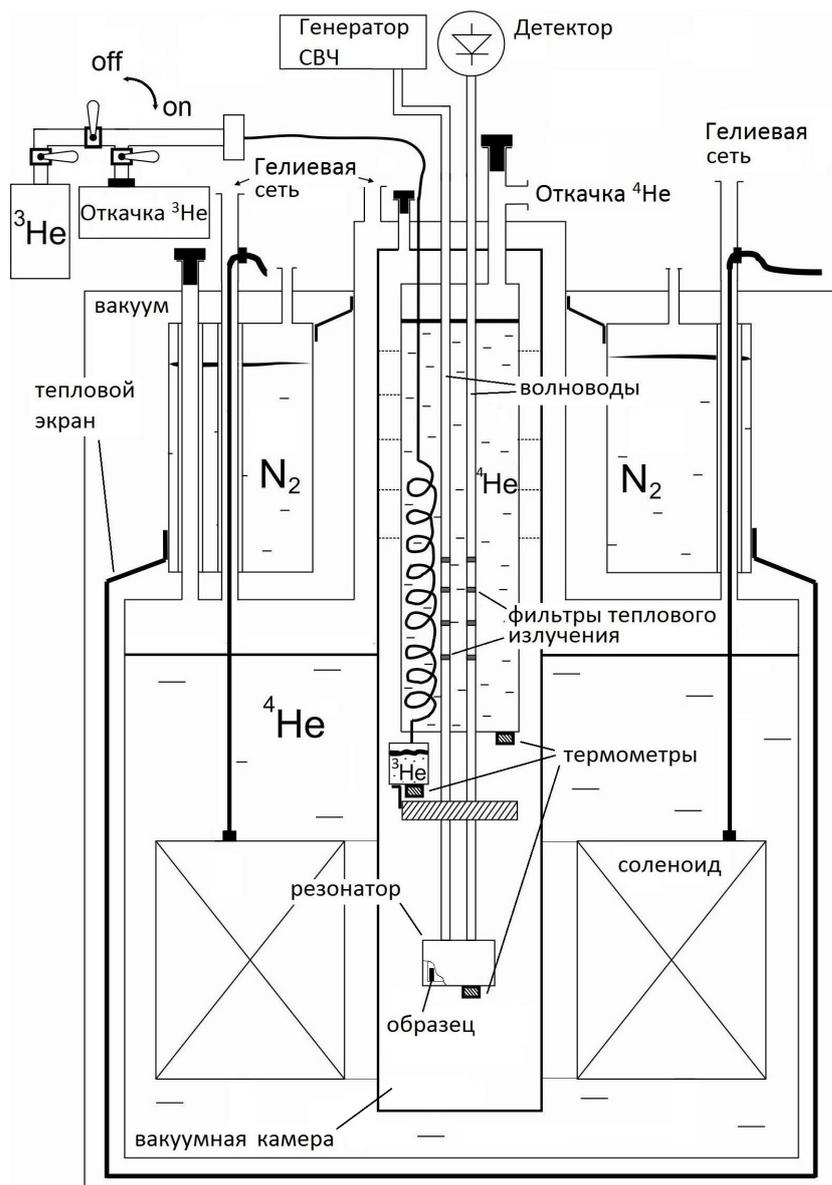


Рис. 1.3: Схема экспериментальной установки с откачкой ^3He для работы при температурах до 0.45 К.

контроля настройки в резонанс. Температура регулируется нагревателем и измеряется с помощью калиброванного термометра сопротивления, приклеенного непосредственно к резонатору. Показания приборов подаются на компьютер, где они обрабатываются при помощи программы, написанной в среде программирования *LabView* (см. Рис. 1.2).

1.3 Генераторы СВЧ

Применялись следующие генераторы – источники СВЧ излучения (форма записи: марка генератора, частотный диапазон, излучающий элемент):

- Г4-156, 25 – 37 ГГц, диод Гана ;
- Г4-141, 36 – 56 ГГц, лампа обратной волны ;
- Г4-142, 56 – 80 ГГц, лампа обратной волны ;

- G3, 78 – 117 ГГц, лампа обратной волны ;
- G4, 120 – 145 ГГц, лампа обратной волны ;
- КИ-2, 120 – 180 ГГц, лампа обратной волны ;
- КИ-1, 180 – 250 ГГц, лампа обратной волны ;
- КИ-0, 250 – 350 ГГц, лампа обратной волны ;

1.4 Спектрометрические вставки

В этом разделе дано описание спектрометрических вставок в криостат с откачкой ^4He (температуры до 1.3 К) и в криостат с откачкой ^3He (температуры до 0.45 К) (см. Рис. 1.2 и Рис. 1.3). Для криостата с откачкой ^4He используются вставки нескольких конструкций, предназначенные для измерений на различных частотных диапазонах: вставка с несъемным прямоугольным резонатором на $\lambda = 1.5$ см, вставка с несъемным прямоугольным резонатором на $\lambda = 3$ см, вставка со съемными квазиторoidalным и спиральным резонаторами. Мы пользовались только вставкой с прямоугольным резонатором на $\lambda = 1.5$ см для ориентирования образцов. Криостат с откачкой ^3He оснащен спектрометрической вставкой со съемными цилиндрическим резонатором и волноводной ячейкой проходного типа с диафрагмой. Основные эксперименты проводились именно со вставкой в криостат с откачкой ^3He с использованием как цилиндрического резонатора, так и волноводного перехода.

Прямоугольный резонатор на $\lambda = 1.5$ см

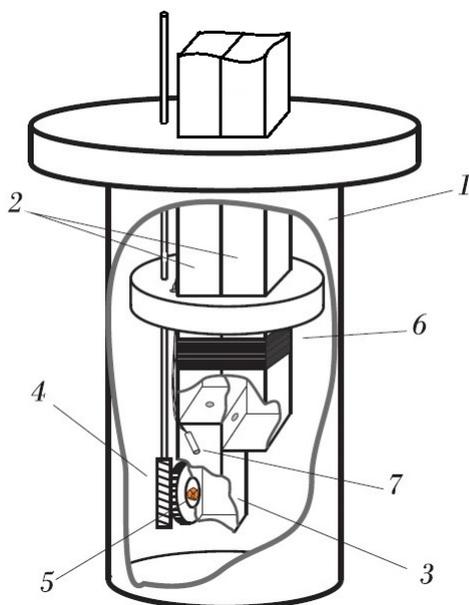


Рис. 1.4: Изображение экспериментальной ячейки с поворотным механизмом в разрезе. Цифрами на рисунке обозначены: 1 – вакуумная рубашка, 2 – волноводы, 3 – резонатор, 4 – вращательный механизм, 5 – образец, 6 – нагреватель, 7 – термометр. Адаптировано из работы [19].

Эскиз экспериментальной ячейки спектрометрической вставки для работы на длине волны $\lambda = 1.5$ см изображен на Рис. 1.4. Применяющийся в качестве измерительной ячейки прямоугольный СВЧ-резонатор расположен внутри "вакуумной рубашки". Образец находится на вращающейся платформе, вставленной в его боковую стенку. Это позволяет с помощью червячной передачи изменять ориентацию образца относительно

внешнего магнитного поля непосредственно во время эксперимента и таким образом исследовать угловую зависимость ЭСР. С помощью нагревателя, помещенного на резонатор, контролируется температура образца, которая определяется калиброванным термометром сопротивления, приклеенным непосредственно к резонатору.

Размеры прямоугольного резонатора составляют $3.5 \times 11 \times 38$ мм, и его главные рабочие моды есть TE_{01n} . Минимальная рабочая частота, соответствующая моде TE_{013} , составляет $\nu \approx 18$ ГГц. Наиболее чувствительной к сигналу ЭПР является мода TE_{016} , имеющая частоту $\nu \approx 27.4$ ГГц. Данный резонатор успешно применяется на частотах вплоть до 150 ГГц.

Цилиндрический резонатор и волноводный переход с диафрагмой

Спектрометрическая вставка в криостат с откачкой ^3He для работы при температурах до 0.45 К оснащена двумя экспериментальными ячейками: цилиндрическим резонатором и волноводным переходом с диафрагмой.

Цилиндрический резонатор имеет съемное дно, куда кладется исследуемый образец. Между дном и цилиндрическими стенками резонатора существует зазор, необходимый для подавления нежелательных мод типа TM , которые совпадают по частоте с рабочими модами типа TE . Диаметр резонатора равен 16 мм, его высота составляет 8 – 12 мм (в зависимости от толщины выбранного для эксперимента съемного дна). Минимальная рабочая частота такой экспериментальной ячейки $\nu \approx 28$ ГГц. С ростом частоты интенсивность возбуждаемых мод уменьшается, и их спектральная плотность растет, поэтому этот резонатор применяется лишь на частотах $\nu \lesssim 250$ ГГц. Поглощаемая образцом мощность пропорциональна мнимой части обобщенной восприимчивости образца χ'' . Так для обычного парамагнетика в случае слабого поглощения СВЧ резонансная линия имеет лоренцеву форму. Если при этом действительная часть обобщенной восприимчивости образца χ' значительно меняется вблизи резонансного поля, то резонатор перестраивается ("уплывает" резонансная частота возбуждаемой моды), и ЭСР-линия получается слегка искаженной (смотреть "Приложение В" в работе [19]).

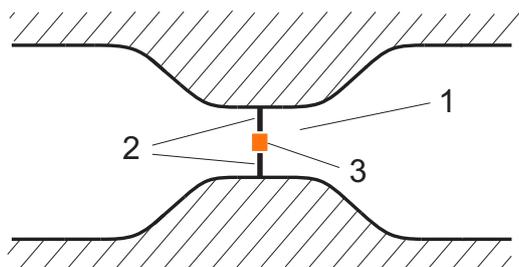


Рис. 1.5: Продольное сечение волноводного перехода с диафрагмой. Цифрами на рисунке обозначены: 1 – волноводное сужение, 2 – диафрагма, 3 – образец.

Волноводный переход представляет собой сужающийся соединительный канал прямоугольного сечения с диафрагмой, в отверстие которой кладется исследуемый образец (см. Рис. 1.5). Таким образом, подаваемый генератором по входному волноводу СВЧ-сигнал напрямую проходит через образец и через выходной волновод попадает на детектор, при этом некоторая доля электромагнитной энергии поглощается образцом. Волноводный переход отличается от резонатора тем, что он не требует подстройки частоты. Однако, теперь мощность проходящего сигнала определяется суперпозицией действительной χ' и мнимой χ'' частей обобщенной восприимчивости образца [20], в связи с чем резонансная линия для парамагнетика уже не является лоренцевой кривой. Волноводный переход с диафрагмой применялся для записи линий на частотах до 350 ГГц.

Экспериментальная ячейка помещается на нижнюю часть платформы, которая соединяется с камерой откачки ^3He медной фольгой для осуществления теплового контакта. Платформа и ячейка находятся в вакуумной камере. Для уменьшения внешнего теплопритока в волноводы вставлены фильтры, поглощающие излучение в инфракрасном диапазоне частот. Волноводы имеют непосредственный контакт с гелием в градусной камере, в которой под откачкой устанавливается температура 1.3 К. Фильтры, как правило, термализованы при температуре между гелиевой 4.2 К и азотной 77 К температурами (см. Рис. 1.3). Откачкой паров ^3He удается понизить рабочую температуру до 0.45 К.

2 Низкоразмерные магнетики со спином $S = \frac{1}{2}$

2.1 Гейзенберговская цепочка спинов $S = \frac{1}{2}$

Статические и динамические свойства

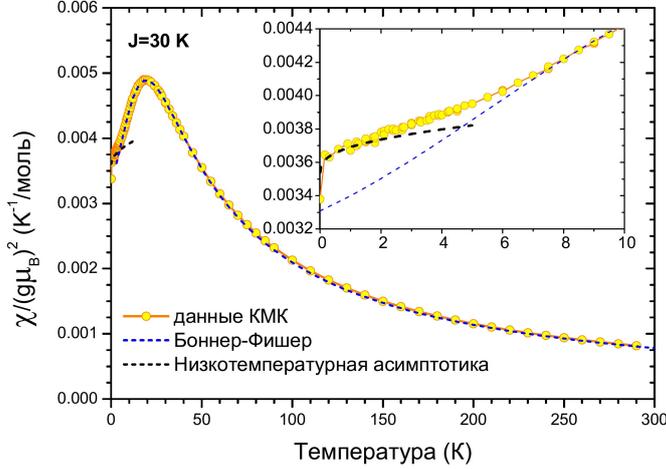


Рис. 2.1: Магнитная восприимчивость антиферромагнитной спиновой $S = 1/2$ цепочки. Синий пунктир – интерполяция Боннер и Фишера [22], черный пунктир – низкотемпературная асимптотика Эггерта, Аффлека и Такахашаши [23], точки – результаты численных симуляций методом квантового Монте-Карло [24]. Рисунок из работы [18].

Задача об основном состоянии гейзенберговской антиферромагнитной $S = \frac{1}{2}$ цепочки имеет точное решение, которое было найдено Бете в 1931 году [1] при помощи рекурсивной процедуры, называемой "анзатц Бете". Энергия основного состояния была вычислена Хультемом в 1938 году [21]. В расчете на узел решетки она составляет

$$E_{ground} = J \left(\frac{1}{4} - \ln 2 \right) \quad (2.1)$$

что меньше энергии состояния неелевского типа, составляющей $-\frac{J}{4}$. Корреляции в такой системе спадают степенным образом

$$\langle S_n^z S_{n+k}^z \rangle = -\frac{\sin(\pi k/2)}{(\pi k)^2} \quad (2.2)$$

Таким образом, при $T = 0$ квантовая спиновая цепочка находится в критическом состоянии: радиус корреляции равен бесконечности, но дальний порядок в виде $\langle S_n^z \rangle \neq 0$ отсутствует.

Восприимчивость спиновой цепочки $S = \frac{1}{2}$ была впервые вычислена Боннер и Фишером в 1964 году [22] на основе анализа конечных спиновых цепочек. Однако, кривая Боннер-Фишера не совсем точно описывает поведение восприимчивости при температурах $T \lesssim 0.1J$. Соответствующая асимптотика была получена Эггертом, Аффлеком и Такахашаши в 1994 году с помощью анзатца Бете и теоретико-полевых методов [23]. На Рис. 2.1 представлены теоретические результаты, а также численные результаты квантовых Монте-Карло симуляций [24]. Кривая намагничивания одномерной $S = \frac{1}{2}$ цепочки при $T = 0$ была рассчитана Гриффитсом в 1964 году на основе анализа конечных цепочек [25]. Поле насыщения составляет $H_{sat} = \frac{2J}{g\mu_B}$, и при $H \rightarrow H_{sat}$ справедлива асимптотика [26]:

$$M(H) = g\mu_B S \left(1 - \frac{4}{\pi} \sqrt{1 - \frac{H}{H_{sat}}} \right) \quad (2.3)$$

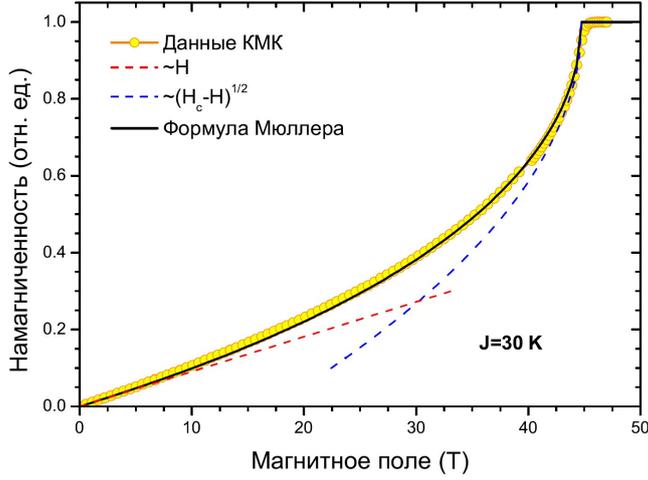


Рис. 2.2: Кривая намагничивания гейзенберговской цепочки спинов $S = \frac{1}{2}$. Точки – результаты численных симуляций методом квантового Монте-Карло, красный пунктир – линейная асимптотика в малом поле $M(H) = \frac{(g\mu_B)^2}{\pi^2 J} H$, синий пунктир – асимптотика вблизи поля насыщения (2.3), черная линия – согласно формуле Мюллера [27]. Рисунок из работы [18].

В работе Мюллера [27] дается также аналитически вычисленная кривая намагничивания цепочки во всем диапазоне магнитных полей. На Рис. 2.2 приведено сравнение численного моделирования квантового Монте-Карло с аналитическими результатами для кривой намагничивания.

Нижняя граница спектра возбуждений для спиновой цепочки $S = \frac{1}{2}$ была вычислена де Клуазо и Пирсоном в 1962 году [28]:

$$\varepsilon_L(k) = \frac{\pi J}{2} |\sin(ka)| \quad (2.4)$$

Это выражение отличается от результата классической спин-волновой теории множителем $\frac{\pi}{2}$ [29].

Фаддеев и Тахтаджан в 1981 году в своей работе [30] сделали вывод о том, что элементарными возбуждениями в такой одномерной модели являются квазичастицы, несущие спин $S = \frac{1}{2}$. Их называют спинонами. Согласно правилам отбора во всех процессах поглощения фотонов и рассеяния нейтронов $\Delta S^z = 0, \pm 1$, и, таким образом, спиноны возбуждаются парами. Поэтому измеряемый экспериментально спектр возбуждений в квазиодномерных магнитных системах является континуумом (каждому волновому вектору k в двухчастичном процессе соответствует некоторый диапазон энергий ε). Нижняя граница континуума соответствует спектру, найденному де Клуазо и Пирсоном (2.4), а верхняя граница есть $\varepsilon_U(k) = 2\varepsilon_L(k/2)$:

$$\varepsilon_U(k) = \pi J \left| \sin\left(\frac{ka}{2}\right) \right| \quad (2.5)$$

Оценка для спектральной плотности такого континуума была получена в работе Мюллера [27]. Динамический структурный фактор определяется следующим соотношением:

$$S(\varepsilon, k) \propto \frac{\theta(\varepsilon - \varepsilon_L(k))\theta(\varepsilon_U(k) - \varepsilon)}{\sqrt{\varepsilon^2 - \varepsilon_L(k)^2}} \quad (2.6)$$

где $\theta(x)$ – функция Хевисайда.

Континуум элементарных возбуждений изображен на Рис. 2.4. Описываемый анзатцем Мюллера континуум является двухчастичным и содержит в себе 73% спектрального веса от интегральной интенсивности, обнаруживаемой в численных симуляциях. Дополнительный учет четырехспиновых состояний позволяет описать 99% спектрального веса [31].

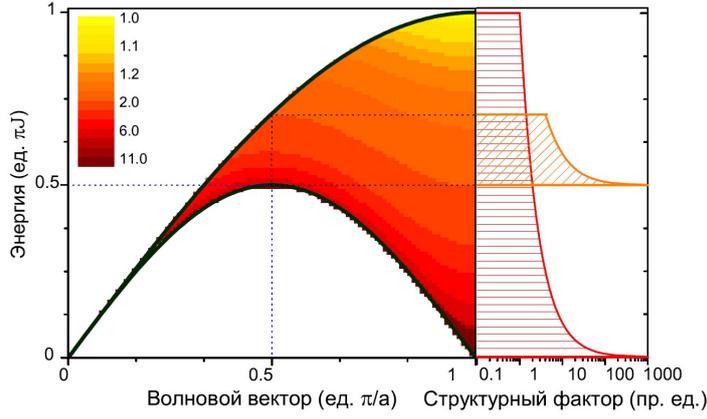


Рис. 2.3: Спионный континуум согласно анзацу Мюллера (2.6). Сплошными линиями показаны границы континуума по де Клуазо и Пирсону и по Мюллеру (2.4, 2.5), цветом представлена величина динамического структурного фактора в данной точке. Также справа показаны сечения континуума для $k = \frac{\pi}{a}$ (красный цвет) и $k = \frac{\pi}{2a}$ (оранжевый цвет). Рисунок из работы [18].

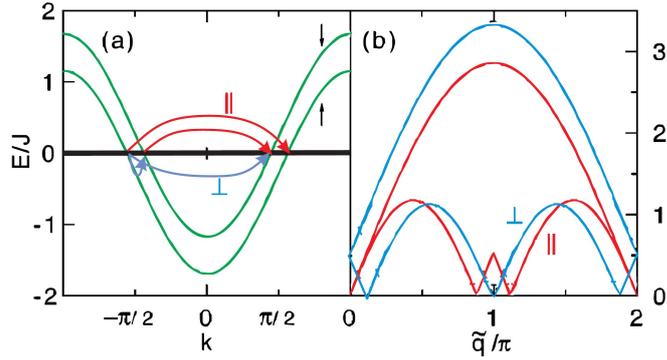


Рис. 2.4: Левый рисунок: Расщепление спионного спектра магнитным полем и возможные переходы с изменением спина (синие стрелки) и без изменения спина (красные стрелки) в представлении спиновых фермионов. Правый рисунок: Континуумы возбуждений, соответствующие этим двум типам переходов. Рисунок из работы [32].

Примечательным является поведение двухспионного континуума в магнитном поле. Магнитное поле снимает вырождение по энергии спионных состояний $|\uparrow\rangle$ и $|\downarrow\rangle$. Переходы с $\Delta S^z = 0$ и $\Delta S^z = \pm 1$ становятся различимы и соответствуют двум типам континуумов возбуждений: $S_{\parallel}(\varepsilon, k)$ и $S_{\perp}(\varepsilon, k)$. В первом случае возникают мягкие моды на несоразмерном волновом векторе вблизи $\frac{\pi}{a}$, во втором – вблизи 0 и $\frac{2\pi}{a}$. Мягкие моды первого типа были экспериментально обнаружены Дендером с соавторами в эксперименте по рассеянию нейтронов [32].

Однородное взаимодействие Дзялошинского-Мории в гейзенберговской цепочке спинов $S = \frac{1}{2}$

Рассмотрим задачу о нахождении спектра возбуждений в гейзенберговской цепочке спинов $S = \frac{1}{2}$ с однородным взаимодействием Дзялошинского-Мории [11, 12] с вектором \vec{D} , где взаимодействие Дзялошинского-Мории является малым возмущением: $|\vec{D}| \ll J$. Эта задача решается в работах [33, 34]. Будем следовать изложению Старых и соавторов [34].

Пусть $\vec{D} = (D_x, D_y, D_z) = (0, 0, D)$, тогда гамильтониан исследуемой системы примет следующий вид:

$$\hat{\mathcal{H}} = \sum_n \left(J(\hat{S}_n^+ \cdot \hat{S}_{n+1}^+ + \hat{S}_n^- \cdot \hat{S}_{n+1}^-) + D[\hat{S}_n^z \times \hat{S}_{n+1}^z]^z \right) \quad (2.7)$$

Переопределив спиновые переменные с помощью унитарного преобразования

$$\hat{S}_n^+ = \hat{S}'_n e^{i\alpha n}, \quad \hat{S}_n^- = \hat{S}'_n e^{-i\alpha n}, \quad \hat{S}_n^z = \hat{S}'_n^z \quad (2.8)$$

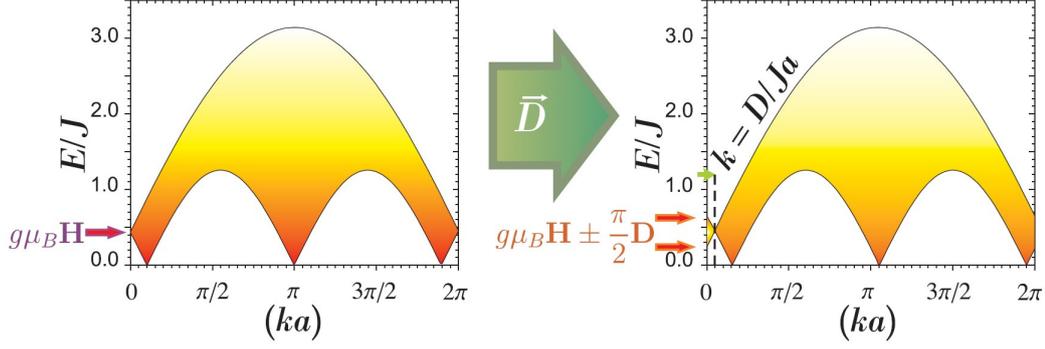


Рис. 2.5: Влияние взаимодействия Дзялошинского-Мории на спектр возбуждений квантовой спиновой цепочки в магнитном поле. Сдвиг спектра на волновой вектор $k_D = \frac{D}{aJ}$ приводит к расщеплению резонансной частоты ($k = 0$). Рисунок из работы [18].

где $\alpha = -\frac{D}{J}$, перепишем гамильтониан в виде

$$\hat{\mathcal{H}}' = J' \sum_n \left(\hat{S}_n^x \hat{S}_{n+1}^x + \hat{S}_n^y \hat{S}_{n+1}^y + \frac{J}{J'} \hat{S}_n^z \hat{S}_{n+1}^z \right) \quad (2.9)$$

где $J' = \sqrt{J^2 + D^2}$, исключив таким образом взаимодействие Дзялошинского-Мории с точностью до членов порядка $\left(\frac{D}{J}\right)^2$.

В итоге, решение задачи сводится к рассмотрению гейзенберговской цепочки с анизотропией легкоплоскостного типа. Величина этой легкоплоскостной анизотропии имеет порядок $\left(\frac{D}{J}\right)^2$, то есть это малый эффект. Основное же следствие возмущения исходной гейзенберговской цепочки взаимодействием Дзялошинского-Мории, линейного по параметру $\frac{D}{J}$, заключается в смещении спектра системы, которое получается введением преобразования (2.8). Вследствие этого преобразования спектр, соответствующий гамильтониану (2.9), оказывается смещенным относительно спектра исходной задачи (2.7) на волновой вектор $k_D = \frac{D}{aJ}$ (a – период спиновой цепочки).

Итак, если пренебречь анизотропными членами второго порядка малости, то спектр гейзенберговской цепочки спинов $S = \frac{1}{2}$ с однородным взаимодействием Дзялошинского-Мории есть спектр гейзенберговской цепочки, смещенный на волновой вектор $k_D = \frac{D}{aJ}$.

Такой же вывод справедлив и для цепочки с однородным взаимодействием Дзялошинского-Мории, помещенной в магнитное поле. Однако теперь сдвиг континуума возбуждений по волновому вектору приводит к тому, что при $k = 0$ возникает конечная ширина континуума порядка D , соответствующего поперечным возбуждениям. Так как спектральная плотность континуума на малых волновых векторах максимальна вблизи его границ, то получаются две резонансные частоты, отстоящие от $\frac{g\mu_B H}{2\pi\hbar}$ на $\pm \frac{D}{4\hbar}$; см. Рис. 2.5. Детальный анализ, проведенный в работе [34], предсказывает для произвольного направления магнитного поля \vec{H} относительно вектора Дзялошинского-Мории \vec{D} и при $T = 0$ К следующие частоты магнитного резонанса:

$$2\pi\hbar\nu = \left| g\mu_B \vec{H} \pm \frac{\pi}{2} \vec{D} \right| \quad (2.10)$$

Случай $\vec{H} \parallel \vec{D}$:

$$2\pi\hbar\nu = \left| g\mu_B H \pm \frac{\pi}{2} D \right| \quad (2.11)$$

Случай $\vec{H} \perp \vec{D}$:

$$2\pi\hbar\nu = \sqrt{(g\mu_B H)^2 + \frac{\pi^2}{4} D^2} \quad (2.12)$$

Важно отметить, что частотно-полевая зависимость резонанса при $\vec{H} \parallel \vec{D}$, выражающаяся по формуле (2.11), верна только в слабых полях, поскольку она предполагает, что ширина континуума, соответствующего поперечным возбуждениям, на волновом векторе $k_D = \frac{D}{aJ}$ остается постоянной при увеличении магнитного поля. В действительности спиновый континуум одномерной гейзенберговской цепочки спинов $S = \frac{1}{2}$ существенно деформируется под действием магнитного поля. Влияние магнитного поля на спектр спиновых возбуждений вплоть до поля насыщения было исследовано Мюллером в работе [27]. К. Ю. Поваров, воспользовавшись результатами Мюллера из работы [27], получил частотно-полевую зависимость для $\vec{H} \parallel \vec{D}$ при $T = 0$ К, которая является следующим приближением к спектру (2.11), полученному Гангадараианом, Саном и Старых в работе [34]. Этот спектр представлен на Рис. 2.6. Для расчета он взял величины обменного интеграла $J = 4$ К, g -фактора $g = 2$ и вектора Дзялошинского-Мории $D = 0.24$ К. Таким образом анализ показывает, что имеющийся при $\vec{H} \parallel \vec{D}$ и $T = 0$ К спиновый дублет коллапсирует в поле насыщения.

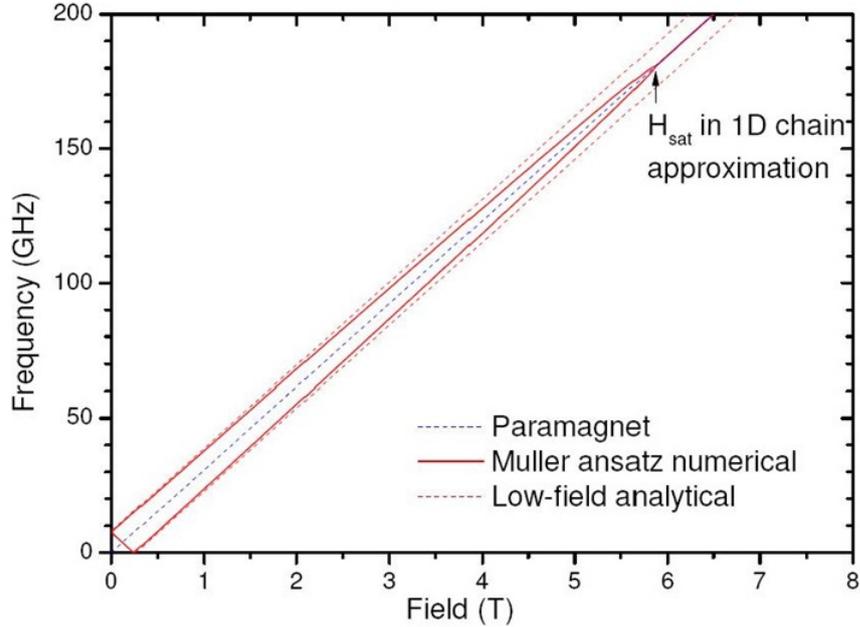


Рис. 2.6: Частотно-полевая зависимость ЭСР в гейзенберговской цепочке спинов $S = \frac{1}{2}$ с однородным взаимодействием Дзялошинского-Мории [34] с вектором \vec{D} при ориентации магнитного поля $\vec{H} \parallel \vec{D}$ и при $T = 0$ К с учетом деформации двухспионного континуума поперечных возбуждений в поле \vec{H} по анзатцу Мюллера [27]. В расчете использовались величины обменного интеграла $J = 4$ К, g -фактора $g = 2$ и вектора Дзялошинского-Мории $D = 0.24$ К.

2.2 Гейзенберговский $S = \frac{1}{2}$ антиферромагнетик на треугольной решетке

Основное состояние

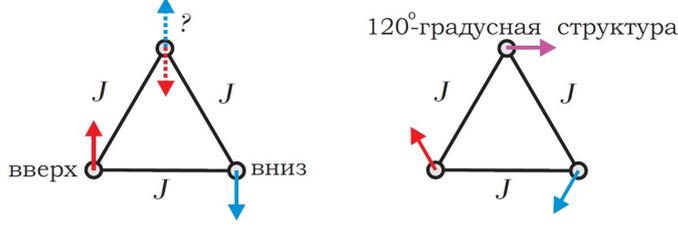


Рис. 2.7: Левый рисунок: Невозможность нееевского порядка вида $|\uparrow\downarrow\uparrow\downarrow \dots\rangle$ в спиновой системе на изотропной треугольной решетке. Правый рисунок: Классическое основное состояние спиновой системы на неискаженной треугольной решетке. Рисунок из работы [18].

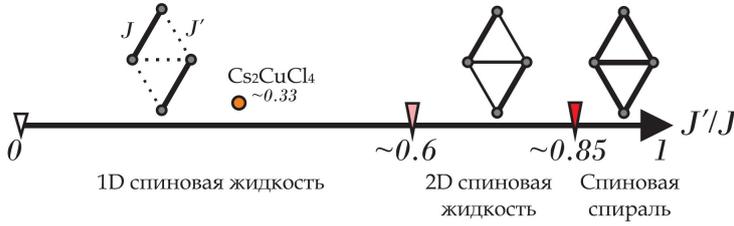


Рис. 2.8: Фазовая диаграмма для описываемой гамильтонианом (2.13) модели при $T = 0$ [40]. Рисунок из работы [18].

Двумерная система спинов $S = \frac{1}{2}$ на треугольной решетке является объектом множества интересных и трудоемких исследований. Нееевский порядок типа $|\uparrow\downarrow\uparrow\downarrow \dots\rangle$ в такой системе не обладает наименьшей энергией даже в классическом случае, поскольку треугольная геометрия приводит к фрустрации обменных связей. Как уже упоминалось во введении, под фрустрацией понимается невозможность минимизации энергии для всех парных взаимодействий между соседними спинами в системе. Так, на Рис. 2.7 слева показано, что при антиферромагнитном упорядочении двух любых спинов (один спин – вниз, другой – вверх) третий спин никак не может быть противоположно направлен этим двум спинам одновременно. Для классического антиферромагнетика (то есть при $S \rightarrow \infty$ или, что то же самое, при замене операторов на средние значения в гамильтониане Гейзенберга) на треугольной решетке основным состоянием в нулевом магнитном поле является планарная структура, в которой спины расположены под углом 120° друг к другу (см. Рис. 2.7). Это решение можно обобщить на случай искаженной треугольной решетки, в которой обмены вдоль "основания" треугольника J и вдоль "боковых сторон" J' различны. Такая система описывается гамильтонианом

$$\hat{\mathcal{H}} = J \sum_n (\hat{S}_n \cdot \hat{S}_{n+1}) + J' \sum_{\langle n,k \rangle} (\hat{S}_n \cdot \hat{S}_k) \quad (2.13)$$

Здесь обмен J связывает спины вдоль одномерных цепочек (суммирование по n), а обмен J' есть диагональная связь между такими цепочками (суммирование по n, k). Такой гамильтониан является интерполяцией между точно решаемой моделью невзаимодействующих цепочек со спином $S = \frac{1}{2}$ ($J' = 0$), изотропной треугольной решеткой ($J = J'$) и квадратной решеткой ($J = 0$). Согласно решению задачи Нагамии [35], в классическом приближении основным состоянием в нулевом магнитном поле является планарная спиральная структура с волновым вектором \vec{q} таким, что

$$\cos(\pi q) = -\frac{J'}{2J} \quad (2.14)$$

где вектор \vec{q} направлен вдоль направления выделенного обмена J . В случае $J = J'$ выражение (2.14) приводит к уже упоминавшейся 120-градусной планарной структуре.

Проблема квантового рассмотрения гейзенберговского антиферромагнетика со спином $S = \frac{1}{2}$ на треугольной решетке связана со сложностью учета квантовых флуктуаций, которые для малого спина являются сильными. В отличие от одномерного случая, для двумерной треугольной решетки способ построения точного решения неизвестен. Соответственно, возникает вопрос, волновыми функциями какого вида следует пользоваться в качестве начального приближения. В 1973 году Андерсон предложил модель "резонансных валентных связей" [29]. Предложенное Андерсоном основное состояние при $T = 0$ является неупорядоченным и представляет собой пример спиновой жидкости. Кроме того, согласно его модели элементарными возбуждениями в системе являются спиноны, о которых уже упоминалось выше.

Более поздние теоретические расчеты [36] и численное моделирование [37–39] показали существование 120-градусного дальнего порядка при $T = 0$ для случая неискаженной треугольной решетки. Однако, этот порядок оказывается слабым – редукция спина на узле достигает 75%. Окончательного согласия по поводу фазовой диаграммы модели с искаженной треугольной решеткой при $T = 0$ до сих пор не существует. Установленными фактами можно считать существование спиновой жидкости в пределе $\frac{J'}{J} \rightarrow 0$, спирального порядка вблизи $\frac{J'}{J} \sim 1$ и порядка неелевского типа при $\frac{J'}{J} \rightarrow \infty$, когда решетка становится эквивалентна квадратной. Численные симуляции, проделанные в работе [40], показывают отсутствие дальнего порядка в широком диапазоне $\frac{J'}{J}$. Согласно этому численному моделированию, изменение параметра $\frac{J'}{J}$ в пределах от 0 до 1 в гамильтониане (2.13) дает два перехода: первый – от одномерных корреляций к двумерным, второй – от неупорядоченного основного состояния к спиральной структуре. Соответствующая фазовая диаграмма изображена на Рис. 2.8. В изучаемом в данной работе соединении Cs_2CuCl_4 магнитные ионы расположены на искаженной треугольной решетке с $\frac{J'}{J} \approx 0.34$. Треугольная система с таким соотношением обменов попадает в область фазовой диаграммы, в которой отсутствует дальний порядок. Таким образом, Cs_2CuCl_4 упорядочивается за счет следующих по малости взаимодействий таких, как межплоскостное взаимодействие и взаимодействие Дзялошинского-Мории между спинами на треугольной решетке (см. гл. 3).

Статические и динамические свойства

Восприимчивость системы с искаженной треугольной решеткой была вычислена в работе [41] как многочлен по степеням $\frac{1}{T}$. Коэффициенты при степенях $\frac{1}{T}$ также являются многочленами от $\frac{J'}{J}$. Восприимчивость реальной спиновой системы на треугольной решетке Cs_2CuCl_4 [13] при не слишком низких температурах находится в согласии с этими вычислениями.

Нулевые квантовые колебания также сильно влияют на спектр спиновых волн. Вычисление квантовых поправок к спектру возбуждений для основного состояния неискаженной треугольной решетки [42], а также получение этого спектра путем численного моделирования [43, 44] показали, что классическая картина спиновых волн оказывается сильно модифицированной. В последних двух работах было показано, что спектр маг-

нонов оказывается не только сильно перенормированным по сравнению с классическим результатом, но также имеет нескольких новых особенностей – ”ротонных минимумов” на границах зоны Бриллюэна, отсутствующих в теории спиновых волн.

3 Основные сведения о магнитных свойствах Cs_2CuCl_4

3.1 Кристаллическая структура

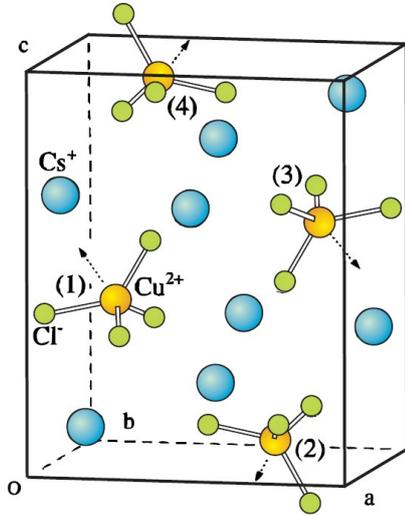


Рис. 3.1: Элементарная ячейка Cs_2CuCl_4 . Ионы Cu^{2+} занимают четыре неэквивалентные позиции, обозначенные на рисунке цифрами (1) – (4). Пунктирными стрелками показаны направления локальных осей симметрии. Рисунок из работы [18].

Cs_2CuCl_4 является диэлектрическим магнитным кристаллом. Соединение Cs_2CuCl_4 принадлежит к орторомбической пространственной группе P_{nma} с параметрами решетки $a = 9.70 \pm 0.02 \text{ \AA}$, $b = 7.60 \pm 0.02 \text{ \AA}$ и $c = 12.35 \pm 0.03 \text{ \AA}$ при комнатной температуре. Структура кристалла изображена на Рис. 3.1. Одна элементарная ячейка содержит четыре иона Cu^{2+} , каждый из которых находится в центре тетраэдра, образованного ионами хлора. Ионы меди обладают электронным спином $S = \frac{1}{2}$. Они упорядочены в слои с искаженной треугольной решеткой в плоскости bc (см. Рис. 3.2). Через одну элементарную ячейку проходят два таких слоя. При выращивании кристаллов Cs_2CuCl_4 из раствора образуются продолговатые прозрачные оранжевые кристаллы, вытянутые в направлении оси b .

3.2 Магнитные свойства. Обзор предшествующих работ.

Первые исследования ЭПР в Cs_2CuCl_4 проводились в 1964 году Шарновым [45, 46]. В этих работах парамагнитный резонанс изучался при температурах $T = 300 \text{ K}$ и $T = 77 \text{ K}$. При таких температурах Cs_2CuCl_4 ведет себя как обычный парамагнетик. Был экспериментально определен анизотропный g -фактор медного иона. Его значение вдоль главных осей составляет $g_a = 2.200 \pm 0.002$, $g_b = 2.083 \pm 0.001$ и $g_c = 2.297 \pm 0.002$.

В 1985 году была измерена магнитная восприимчивость поликристаллических образцов вплоть до температуры $T = 1.1 \text{ K}$ [47]. Обнаруженный широкий максимум при температуре порядка 3 K был проинтерпретирован как признак квазиодномерного антиферромагнетика. Была получена оценка температуры Кюри-Вейсса $\theta_{CW} \approx 5 \text{ K}$ и основного обменного интеграла $J \approx 2 \text{ K}$, исходя из модели Боннер–Фишера для одномерных спиновых цепочек.

В 1996 году Колди и Теннант с соавторами предприняли тщательное нейтронографическое исследование магнитных свойств этого низкоразмерного антиферромагнетика при сверхнизких температурах [48]. Было обнаружено, что в Cs_2CuCl_4 реализуется спиральное упорядочение ниже $T_N \approx 0.62 \text{ K}$ с вектором спиральной структуры $\vec{q} = (0, 0.472 \frac{2\pi}{b}, 0)$, направленным вдоль кристаллографической оси b . Сама же плоскость вращения спинов почти совпадает с плоскостью bc .

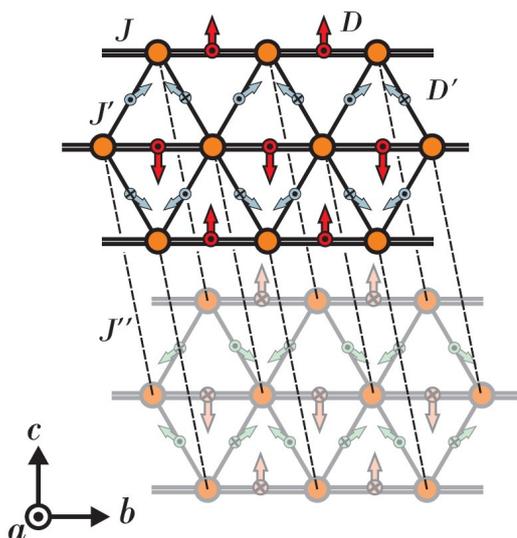


Рис. 3.2: Структура обменных связей в Cs_2CuCl_4 согласно работе [51]. Двойной сплошной, сплошной и пунктирной линией обозначены обмены J , J' и J'' соответственно. Красные стрелки обозначают взаимодействие Дзялошинского-Мории \vec{D} , голубые – \vec{D}' . На рисунке представлены две плоскости, содержащие треугольную решетку; нижняя затенена. Рисунок из работы [18].

В последующих работах Колди, Теннанта и соавторов за 1997 год [6] и 2001 год [7] исследовалась картина нейтронного рассеяния в магнитном поле. Было обнаружено, что с увеличением магнитного поля, приложенного вдоль оси a , происходит постепенная трансформация структуры из спиральной в коническую вплоть до схлопывания в поле насыщения $H_{sat} \approx 8$ Т. Кроме того, вектор спирали \vec{q} также имеет зависимость от магнитного поля. При $\vec{H} \parallel c$ в поле 1.4 Т магнетик переходит в фазу, называемую эллиптической. Особенностью данной фазы является линейная зависимость $q(H)$. В поле 2.1 Т нейтронные рефлексy исчезают, и было высказано предположение, что дальний порядок разрушается, при этом магнетик переходит в спин-жидкостное состояние.

В 2002 году Колди, Теннант с соавторами получили значения основных обменных интегралов в Cs_2CuCl_4 [49]. Поместив систему в магнитное поле $H \approx 12$ Т, большее поля насыщения, они измерили спектр возбуждений в индуцированной полем ферромагнитной фазе с помощью неупругого рассеяния нейтронов. Затем, рассчитав спектр спиновых волн аналитически и сравнив экспериментальные результаты с теоретическим предсказанием, они определили параметры исходного спинового гамильтониана. Найденные таким образом значения не подвержены влиянию квантовых перенормировок, поскольку в насыщенной фазе квантовые флуктуации полностью подавлены, и задача решается точно. Были получены следующие значения обменных интегралов:

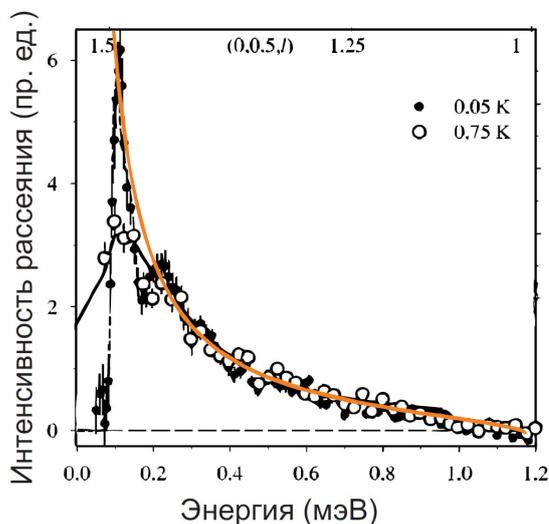


Рис. 3.3: Пример спектра нейтронного рассеяния в Cs_2CuCl_4 при температурах как выше, так и ниже T_N . Сплошная оранжевая линия – расчет в рамках квазиодномерного подхода [50]. Рисунок из работы [8].

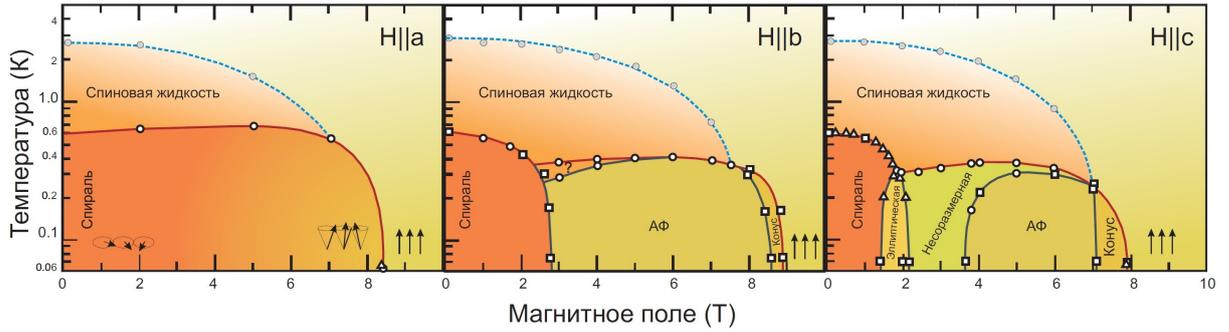


Рис. 3.4: Фазовая диаграмма Cs_2CuCl_4 согласно исследованиям Колди и соавторов [7] и Токивы и соавторов [13]. Интерпретация фаз по работе Старых и соавторов [51]. Δ – данные нейтронного рассеяния, \circ – данные намагничивания и магнитной восприимчивости, \square – данные теплоемкости. Сплошные линии, представляющие границы фаз, проведены для наглядности. Также для наглядности проведена пунктирная линия, обозначающая ”кроссовер” между спин-жидкостной и парамагнитной фазами. Рисунок из работы [18].

главного обмена $J \approx 4.35$ К, диагонального обмена $J' \approx 0.34J \approx 1.48$ К, межплоскостного обмена $J'' \approx 0.05J \approx 0.22$ К. Также удалось зафиксировать величину компоненты взаимодействия Дзялошинского-Мории $D'_a \approx 0.05J \approx 0.24$ К. Полная структура связей в кристалле Cs_2CuCl_4 приведена на Рис. 3.2. Таким образом, было выяснено, что антиферромагнетик Cs_2CuCl_4 является квазидвумерным, а не квазиодномерным, поскольку отношение главных обменных интегралов $\frac{J'}{J} \approx 0.34$ порядка единицы.

В 2003 году Колди, Теннант и Тылчинский опубликовали детальное исследование спектра спиновых возбуждений в первой зоне Бриллюэна в нулевом магнитном поле при различных температурах [8]. Была выявлена особенность спектра при температурах ниже T_N – сосуществование острого пика на малых энергиях, соответствующего рассеянию на магнонах, и широкого континуума, простирающегося в область больших энергий (см. Рис. 3.3). При переходе через точку Нееля T_N острый пик исчезает, а континуум при этом сохраняется и практически не деформируется. Вектор спирали \vec{q} и спектр спиновых волн удастся описать в рамках двумерной модели с искаженной треугольной решеткой с обменов J и J' и с учетом их ренормализации: J – в 1.65 раз, а J' – в 0.92 раза. Однако, для описания существующего как выше, так и ниже T_N континуума традиционной теории спиновых волн оказывается недостаточно. Учет двухмагнонных возбуждений дает континуум иной формы и с существенно меньшей интенсивностью. Правильного описания континуума возбуждений удастся достигнуть при рассмотрении спинов – квазичастиц со спином $S = \frac{1}{2}$, характерных именно для одномерных спиновых систем, что как раз и свидетельствует в пользу одномерной природы магнетизма Cs_2CuCl_4 .

В 2007 году Коно, Балентс и Старых проделали теоретическое исследование континуума возбуждений в слабо связанных спиновых цепочках [50]. Они показали, что спектр возбуждений в Cs_2CuCl_4 , полученный Колди в работах [7, 8] методом неупругого рассеяния нейтронов, можно описать в рамках модели искаженной треугольной решетки на основе представления о связанных спинонах (триплонах) в слабо взаимодействующих соседних цепочках всего с одним единственным подгоночным параметром по интенсивности при известных J и J' . При этом континуум возбуждений для волнового вектора \vec{k} вдоль спиновых цепочек в значительной степени определяется континуумом возбуждений в изолированной спиновой цепочке. Как уже было отмечено выше, численные симуляции, произведенные Хайдерианом и его коллегами в 2009 году в работе [40],

только подтверждают квазиодномерный характер спин-спиновых корреляций в этом веществе (см. Рис. 2.8). Таким образом, в Cs_2CuCl_4 фрустрация обменных связей J' приводит к эффективной расцепленности спиновых цепочек, направленных вдоль оси b , и его магнитные свойства по большей части в основном определяются свойствами изолированных спиновых цепочек, несмотря на двумерный характер обменных связей.

В 2006 году группой Токивы была подробно исследована фазовая диаграмма Cs_2CuCl_4 для всех трех главных направлений магнитного поля [13]. Комбинируя данные термодинамических и магнитных измерений с предыдущими результатами рассеяния нейтронов, им удалось получить полную фазовую диаграмму, приведенную на Рис. 3.4, где поля ферромагнитного насыщения для направления поля вдоль кристаллографических осей a , b и c равны соответственно $H_{sat}^a = 8.44$ Т, $H_{sat}^b = 8.89$ Т, $H_{sat}^c = 8.00$ Т. Предположительная теоретическая интерпретация фазовой диаграммы была дана Старых и соавторами в работе [51] в 2010 году. Было показано, что из-за фрустрации обмена J' являются скомпенсированными, и упорядочение наступает за счет следующих по малости взаимодействий. В Cs_2CuCl_4 такими взаимодействиями являются межплоскостной обмен J'' вдоль направления a , а также взаимодействие Дзялошинского-Мории с векторами \vec{D} и \vec{D}' . Конкуренция между этими малыми добавками к основным обменным интегралам приводит к наблюдаемой столь разнообразной фазовой диаграмме для полей в плоскости bc , в то время как для $\vec{H} \parallel a$ индуцированные полем переходы отсутствуют.

В 2009 – 2012 годах Поваров и Смирнов предприняли детальное исследование Cs_2CuCl_4 методом магнитного резонанса [9, 10, 18, 52]. ЭСР-эксперименты были проделаны в широком диапазоне температур как выше, так и ниже точки Нееля T_N вплоть до температуры 0.1 К, в результате магнитный резонанс был изучен как в упорядоченной, так и в спин-жидкостной фазе. Следует отметить, что первые эксперименты по ЭСР выше температуры T_N были проведены еще в 1998 году Шрамой с соавторами [53]. Они обнаружили, что при понижении температуры до T_N возникает сильная анизотропия спектра поглощения СВЧ: наблюдается значительное смещение линии с открытием щели при приложении поля вдоль спиновых цепочек и превращение линии в дублет при приложении поля перпендикулярно спиновой цепочке.

Наблюдаемый в спин-жидкостной фазе Cs_2CuCl_4 спектр удалось качественно объяснить при помощи теории, построенной Гангадараианом, Саном и Старых в 2008 году [34]. Согласно выводам Смирнова, Поварова и Старых [9], существенная модификация спектра ЭСР в Cs_2CuCl_4 при температурах выше точки Нееля T_N по отношению к спектру ЭПР при температурах, значительно больших температуры Кюри-Вейсса T_{CW} , есть проявление влияния однородного взаимодействия Дзялошинского-Мории с вектором \vec{D} на эффективно развязанные спиновые цепочки вдоль оси b . Результаты теоретического анализа изложены выше в п. 2.1. Таким образом, помимо взаимодействия Дзялошинского-Мории с вектором \vec{D}' на диагональных связях J' , существует однородное взаимодействие Дзялошинского-Мории с вектором \vec{D} на главных обменных связях J (см. Рис. 3.2).

Элементарная ячейка Cs_2CuCl_4 содержит четыре неэквивалентных вида спиновых цепочек, различающихся направлением вектора Дзялошинского-Мории \vec{D} (см. Рис. 3.2). Симметричный анализ кристаллической структуры Cs_2CuCl_4 показывает [51], что вектор Дзялошинского-Мории \vec{D} лежит строго в плоскости ac и, следовательно, он может быть записан в виде $\vec{D} = (\pm D_a, 0, \pm D_c)$. Тогда, согласно формуле (2.10), получаются следующие частоты магнитного резонанса в слабых полях и при $T = 0$ К при направ-

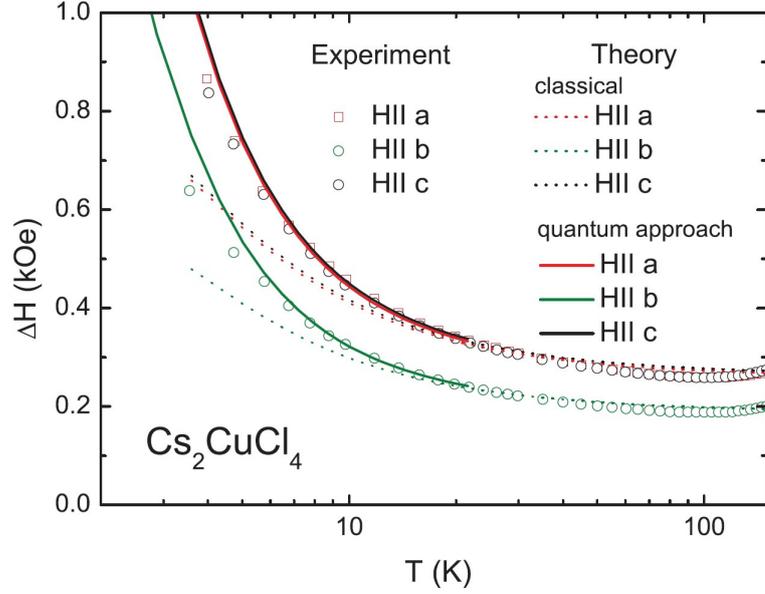


Рис. 3.5: Зависимость ширины резонансной линии ΔH от температуры в Cs_2CuCl_4 при направлении магнитного поля вдоль осей a , b и c . Сплошные линии – квантовомеханический расчет, пунктирные линии – квазиклассический расчет, символы – экспериментальные данные. Рисунок из работы [54].

лении поля вдоль главных осей a , b и c :

$$2\pi\hbar\nu = \sqrt{\left(g_a\mu_B H \pm \frac{\pi}{2}D_a\right)^2 + \frac{(\pi D_c)^2}{4}} \quad (3.1)$$

$$2\pi\hbar\nu = \sqrt{(g_b\mu_B H)^2 + \frac{\pi^2}{4}(D_a^2 + D_c^2)} \quad (3.2)$$

$$2\pi\hbar\nu = \sqrt{\left(g_c\mu_B H \pm \frac{\pi}{2}D_c\right)^2 + \frac{(\pi D_a)^2}{4}} \quad (3.3)$$

Итак, теория предсказывает щелевую моду при $\vec{H}||b$ и дублет при направлениях $\vec{H}||a, c$. В случае спин-жидкостной фазы Cs_2CuCl_4 , существующей при конечных температурах, эта теория может использоваться лишь как приближение, поскольку ее предметом являются невзаимодействующие спиновые цепочки при $T = 0$ К. Следует иметь в виду, что дополнительным различием между спин-жидкостной фазой Cs_2CuCl_4 и теоретической моделью является наличие добавочных взаимодействий (таких, как J' , J'' , D' ; см. Рис. 3.2). Они также могут приводить к неполному количественному соответствию между теорией и наблюдениями.

В 2011 году Смирнов и Поваров с соавторами получили спектры ЭСР при $\vec{H}||a, b, c$ в спин-жидкостной фазе Cs_2CuCl_4 при $T = 1.3$ К в низкочастотном диапазоне, построили угловые зависимости резонансных полей на частоте $\nu = 27$ ГГц при вращении образца в плоскостях ab , ac и bc по отношению к магнитному полю, а также исследовали поляризационную зависимость поглощения СВЧ в нулевом поле. Набор данных находится в согласии с теоретической интерпретацией о влиянии однородного взаимодействия Дзялошинского-Мории на континуум возбуждений спиновых цепочек в Cs_2CuCl_4 . Они сделали количественную оценку компонент вектора \vec{D} при температуре $T = 1.3$ К: $D_a \approx 0.06J \approx 0.25$ К, $D_c \approx 0.08J \approx 0.34$ К. Результаты экспериментов, их обсуждение и интерпретация опубликованы в работах [9, 18].

В 2012 году Смирновым и Поваровым с соавторами были получены экспериментальные данные, касающиеся поведения спектра магнитного резонанса при $\vec{H}||a, b, c$ при температурах ниже точки упорядочения $T_N = 0.62$ К вплоть до $T = 0.1$ К. Как оказалось, спектр ЭСР в упорядоченных фазах Cs_2CuCl_4 на высоких частотах ($\nu \gtrsim 80$ ГГц) соответствует наблюдавшемуся при более высоких температурах в разупорядоченной фазе спионному резонансу, в то время как на низких частотах ($\nu \lesssim 40$ ГГц) – антиферромагнитному резонансу в планарной магнитной структуре с двухосной анизотропией. При этом переход между спин-волновым и спионным резонансом происходит по частоте, и характерная переходная частота составляет $\nu_{ex} \sim \frac{J}{2\pi\hbar} \sim 80$ ГГц. Этот результат согласуется с данными нейтронной спектроскопии [7, 8]: в неупругом рассеянии нейтронов наблюдается характерный для упорядоченной структуры спектр на малых энергиях (узкие спин-волновые пики) и характерный для спин-жидкостной фазы континуум возбуждений при больших энергиях, а характерное значение энергии "кроссовера" от спин-волновых возбуждений к спионному континууму совпадает с величиной внутрицепочечного обменного интеграла J . Кроме того, были идентифицированы некоторые фазовые переходы, индуцированные магнитным полем при $\vec{H}||b, c$, по резкой перестройке спектра магнитного резонанса, причем значения критических полей находятся в согласии с результатами измерений теплоемкости и намагниченности [13]. Также были оценены величины компонент вектора \vec{D} при $T = 0$ К экстраполяцией к нулевой температуре наблюдавшейся в спин-жидкостной фазе зависимости для эффективной щели в поле вдоль оси b : $D_a \approx 0.08J \approx 0.34$ К, $D_c \approx 0.11J \approx 0.46$ К. Результаты экспериментов и их детальный анализ представлены в работах [10, 18].

В 2013 году группой Еремина была исследована ширина резонансной линии в Cs_2CuCl_4 как теоретически, так и экспериментально [54]. Согласно построенной ими теории, при температурах $T \leq 150$ К анизотропия ширины ЭСР-линии обусловлена однородным взаимодействием Дзялошинского-Мории с вектором \vec{D} . Компоненты этого вектора были определены в квазиклассическом приближении теории по измеренным при $\vec{H}||a, b, c$ и $T = 100$ К значениям ширины линии (см. Рис. 3.5): $D_a \approx 0.08J \approx 0.33$ К, $D_c \approx 0.08J \approx 0.36$ К.

4 Магнитный резонанс в квантовом антиферромагнетике Cs_2CuCl_4 в сильном поле

Целью данной работы является исследование магнитного резонанса в Cs_2CuCl_4 в спин-коррелированной фазе в сильном магнитном поле, когда происходит подавление квантовых флуктуаций полем, в частности наблюдение эволюции спионного дублета при увеличении магнитного поля вплоть до поля насыщения.

4.1 Исследуемые образцы и условия эксперимента

Образцы Cs_2CuCl_4 были приготовлены А. Я. Шапиро в Институте кристаллографии им. А. В. Шубникова РАН из водного раствора. Они представляют собой прозрачные кристаллы темно-оранжевого цвета, имеющие вытянутую форму. Направление вытянутости выращенных из раствора кристаллов, как оказывается, соответствует оси b и определялось по внешнему виду образца. Направление осей a и c в кристаллах Cs_2CuCl_4 определялось из ЭСР-экспериментов по вращению образца в криостате с откачкой ^4He с учетом известных значений g -факторов g_a и g_c .

Основные эксперименты проводились с использованием криостата с откачкой ^3He , при помощи которого достигалась температура 0.45 К. Во время проведения измерений происходил небольшой перегрев экспериментальной ячейки СВЧ-излучением. Как правило, в условиях описываемых экспериментов он не превышал 0.05 К. Для работы со спектрометрической вставкой в этот криостат имелись две экспериментальные ячейки: цилиндрический резонатор и волноводный переход с диафрагмой (подробное описание смотреть в п. 1.4). Первая ячейка применялась для записи резонансных линий на частотах 60 – 250 ГГц. Вторая ячейка позволяла получать линии ЭСР в широком частотном диапазоне 60 – 350 ГГц. Исследуемые образцы имели характерный размер ~ 1 мм.

4.2 Магнитное поле вдоль оси a

В работе [10] была изучена температурная эволюция спионного дублета при пере-

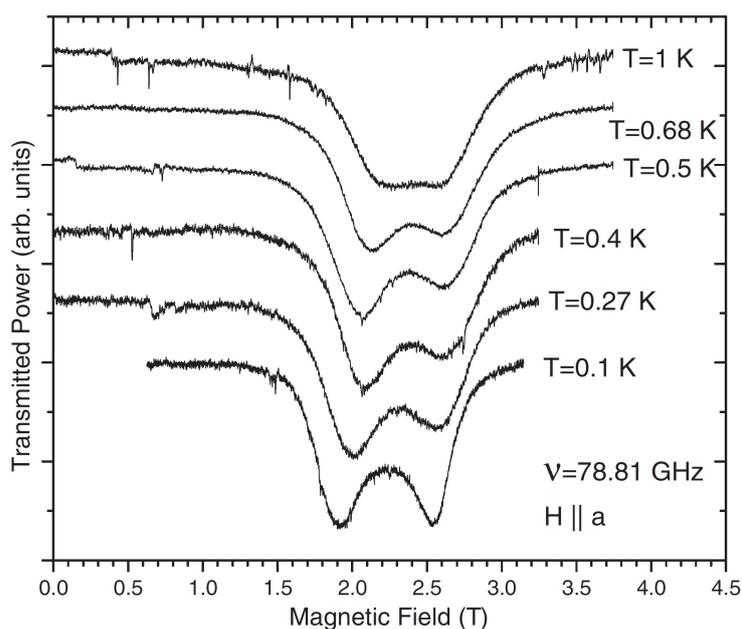


Рис. 4.1: Температурная эволюция резонансной линии в Cs_2CuCl_4 на частоте $\nu = 78.81$ ГГц при ориентации магнитного поля вдоль оси a . Наблюдаемый в спин-жидкостной фазе дублет остается практически неизменным при переходе через T_N . Рисунок из работы [10].

ходе из спин-жидкостной фазы в упорядоченную фазу в слабых полях (дублет наблюдается при $\vec{H}||a, c$; см. формулы (3.1) и (3.3)). Было выяснено, что такой переход не искажает спектра спионного резонанса в Cs_2CuCl_4 на частотах выше 80 ГГц: при понижении температуры ниже 1 К спионный дублет становится лучше разрешим и продолжает формироваться вплоть до температуры 0.1 К. Переход из разупорядоченного состояния в упорядоченное приводит к изменению спектра только на частотах ниже 60 ГГц, при этом возникает спектр магнитного резонанса, соответствующий спектру планарной структуры с двухосной анизотропией. На Рис. 4.1 представлена температурная эволюция дублета на частоте $\nu = 78.81$ ГГц при ориентации магнитного поля вдоль оси a , откуда видно, что дублет не испытывает заметных трансформаций при понижении температуры ниже 1 К. Таким образом, для изучения частотно-полевой зависимости ЭСР была выбрана температура 0.5 К, поскольку при этом компоненты дублета хорошо различимы, а фазовый переход не влияет на форму спектра для частот выше 80 ГГц. Для целей данного исследования допустимым является перегрев образца СВЧ-излучением до температуры 0.7 К, поскольку положение компонент дублета не зависит от температуры в пределах 0.5 – 0.7 К (см. Рис. 4.1).

Исследование спионного дублета в Cs_2CuCl_4 производилось при ориентации внешнего магнитного поля перпендикулярно плоскости треугольной решетки вдоль кристаллографической оси a , поскольку при такой ориентации вплоть до поля насыщения отсутствуют какие-либо фазовые переходы, и изменение структуры под действием внешнего поля сводится к плавной трансформации из плоской спирали в схлопывающийся конус [7, 10, 13].

В экспериментах применялся как цилиндрический резонатор, так и волноводный переход с диафрагмой. Эволюция резонансных линий с изменением частоты показана на Рис. 4.2 и Рис. 4.3.

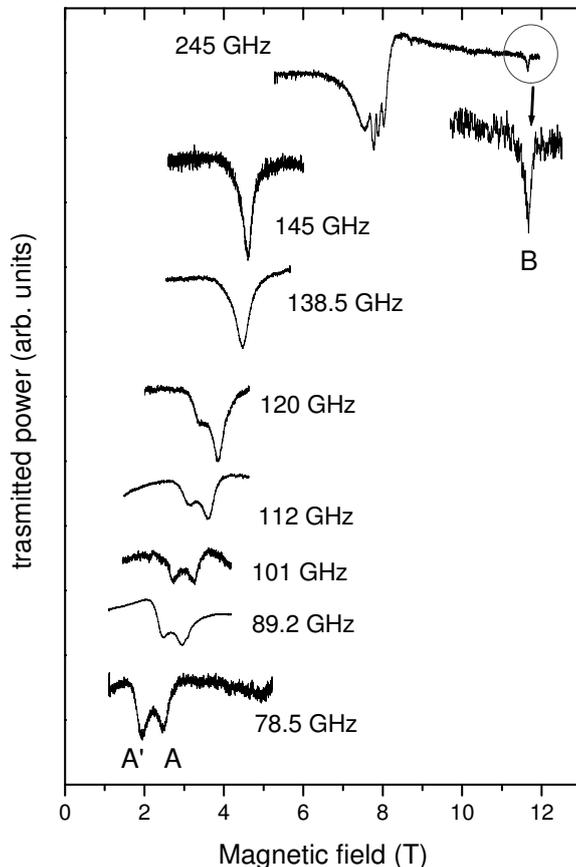


Рис. 4.2: Примеры резонансных линий в Cs_2CuCl_4 , записанные при $\vec{H}||a$ и $T = 0.5$ К на разных частотах с использованием волноводной ячейки проходного типа с диафрагмой. Резонансная линия на частоте 245 ГГц была записана для образца массой 4.6 мг, остальные линии – для образца массой 1.8 мг. Увеличение выделенного окружностью участка резонансной кривой составляет $\times 6$ по вертикали и $\times 3$ по горизонтали.

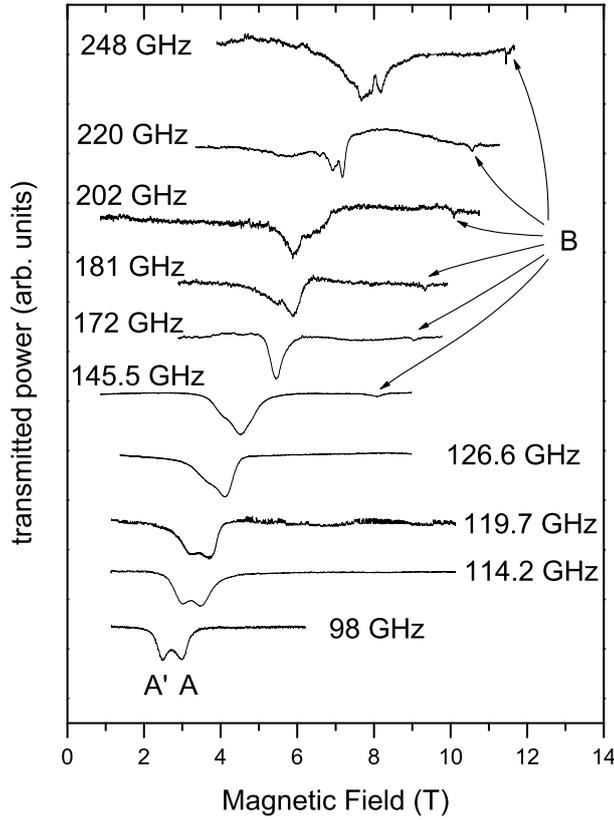


Рис. 4.3: Примеры резонансных линий в Cs_2CuCl_4 , записанные при $\vec{H} \parallel a$ и $T = 0.5$ К на разных частотах с использованием цилиндрического резонатора для образца массой 6 мг. Стрелками показано положение слабой резонансной моды B . Изрезанность линий на частотах выше 170 ГГц обусловлена электродинамическими резонансами, возникающими внутри образца вблизи резонансного поля (см. текст).

ЭСР-линии, изображенные на Рис. 4.2, были получены с использованием волноводной ячейки проходного типа с диафрагмой. Здесь резонансная линия на частоте 245 ГГц была записана для образца массой 4.6 мг. Остальные линии были сняты для образца массой 1.8 мг. На Рис. 4.3 представлены примеры полученных с помощью цилиндрического резонатора ЭСР-линий для образца массой 6 мг.

Записи линий на Рис. 4.2 показывают, что с увеличением магнитного поля низкополевая (высокочастотная) компонента дублета A' постепенно теряет интенсивность по отношению к интенсивности высокополевой (низкочастотной) компоненты A , и в поле $H_{col} \approx 4$ Т (на частоте $\nu_{col} \approx 145$ ГГц) дублет окончательно трансформируется в одиночную линию ЭСР с частотой ν_0 согласно формуле

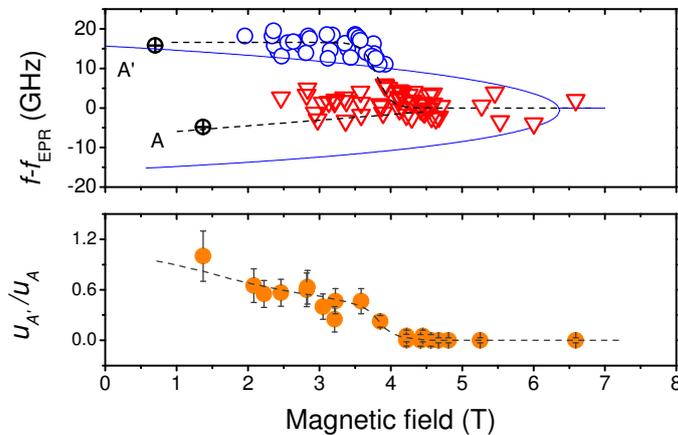


Рис. 4.4: Верхний рисунок: Сдвиг резонансной частоты компонент A и A' дублета относительно частоты ν_0 парамагнитного резонанса в поле $\vec{H} \parallel a$. Данные, отмеченные символом \oplus , соответствуют резонансу на частоте 35 ГГц в спин-жидкостной фазе при $T = 1$ К [10], \circ , ∇ – при $T = 0.5$ К. Сплошная линия – границы двухспионного континуума на волновом векторе q_D (см. п. 2.1, 5.2). Нижний рисунок: Зависимость отношения амплитуд компонент дублета $U_{A'}/U_A$ от резонансного поля компоненты A .

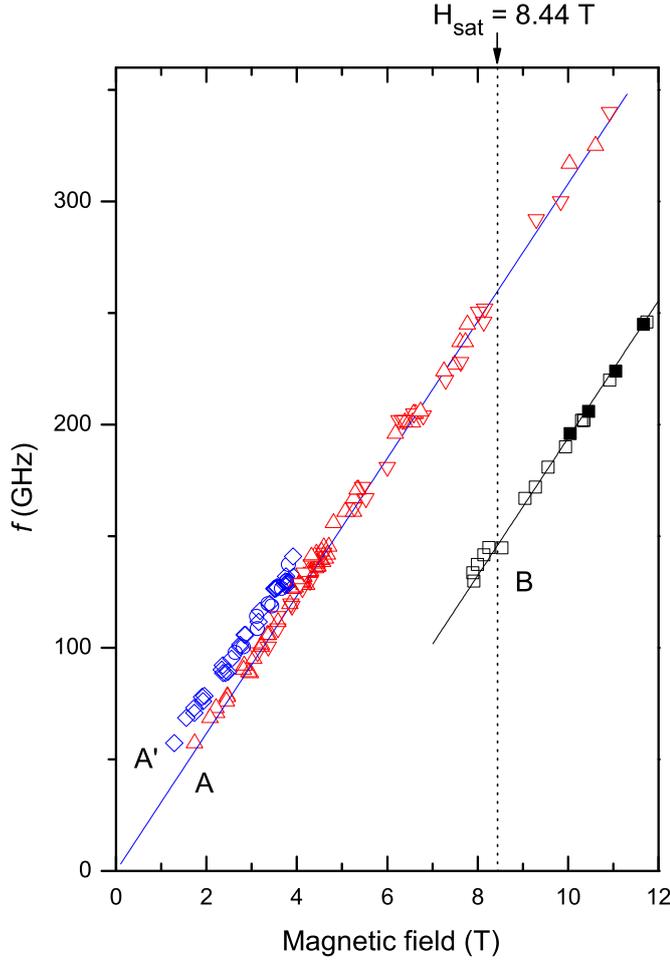


Рис. 4.5: Спектр ЭСР в Cs_2CuCl_4 при $T = 0.5$ К, поле вдоль оси a . Данные на графике, отмеченные символами \triangle , \diamond , \blacksquare , получены при помощи волноводного перехода с диафрагмой, ∇ , \circ , \square – при помощи цилиндрического резонатора. Сплошная линия синего цвета – спектр парамагнитного резонанса на ларморовской частоте ν_0 (см. формулу (4.1)), сплошная линия черного цвета – спектр моды B (см. формулу (5.8)).

$$2\pi\hbar\nu_0 = g_a\mu_B H_0 \quad (4.1)$$

где $g_a = 2.20$ – g -фактор вдоль оси a . При дальнейшем увеличении магнитного поля одиночная резонансная линия продолжает существовать как ниже поля насыщения $H_{sat}^a = 8.44$ Т [13] в разупорядоченном состоянии, так и выше него в состоянии ферромагнитного упорядочения. Кроме того, в магнитных полях выше 8 Т имеется значительно более слабая ЭСР-линия, обозначенная на Рис. 4.2 и Рис. 4.3 как мода B . Отношение интегральной интенсивности I_B моды B к интенсивности I_0 резонансной моды, наблюдаемой в поле H_0 , составляет $\frac{I_B}{I_0} \sim 1.5\%$. Существование этой моды объясняется теорией (см. п. 5.2). Итоговая частотно-полевая зависимость всех резонансных мод при $\vec{H} \parallel a$ и $T = 0.5$ К показана на Рис. 4.5.

Коллапс дублета с увеличением поля наглядно проиллюстрирован на Рис. 4.4. На верхнем рисунке представлена зависимость сдвига резонансной частоты компонент A и A' дублета относительно частоты ν_0 от внешнего магнитного поля, на нижнем – зависимость отношения амплитуды $U_{A'}$ компоненты A' к амплитуде U_A компоненты A от резонансного поля компоненты A . Экспериментальные данные охватывают диапазон частот 80 – 200 ГГц.

Поглощаемая мощность СВЧ-излучения в цилиндрическом резонаторе пропорциональна мнимой части обобщенной восприимчивости χ'' образца, а в волноводной ячейке – линейной комбинации ее действительной χ' и мнимой χ'' части (см. п. 1.4). Форму резонансной линии, получаемой с помощью волноводного перехода с диафрагмой, можно проконтролировать, если разогреть исследуемый образец Cs_2CuCl_4 до температуры

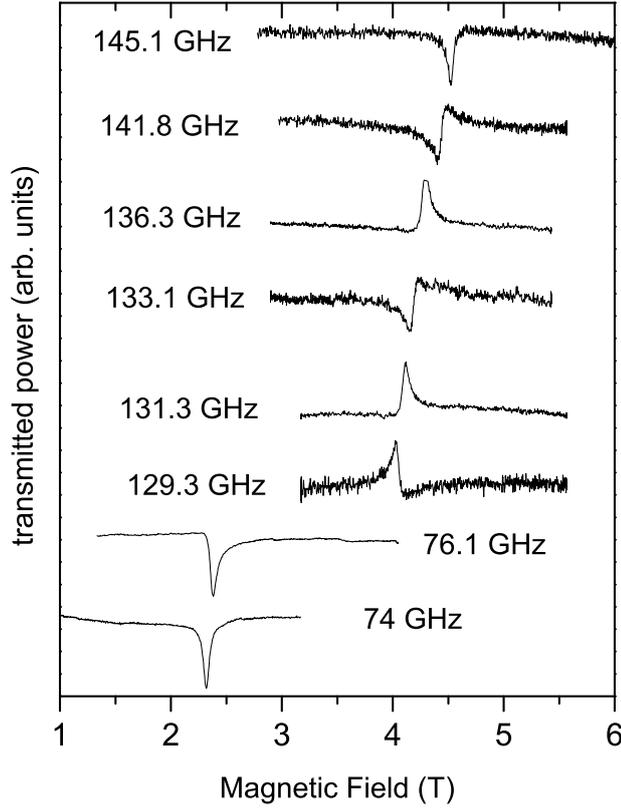


Рис. 4.6: Примеры резонансных линий в Cs_2CuCl_4 , записанные при $\vec{H}||a$ и $T = 30$ К на частотах 74–145 ГГц с использованием волноводного перехода с диафрагмой для образца массой 1.8 мг.

выше 10 К, при которой он находится в парамагнитном состоянии, поскольку тогда мнимая часть χ'' обобщенной восприимчивости является лоренцевой функцией, а действительная часть χ' – функцией дисперсии [55]:

$$\chi''(H) = \frac{C}{1 + \left(\frac{H - H_0}{\Delta H_{1/2}}\right)^2} \quad (4.2)$$

$$\chi'(H) = \frac{H - H_0}{\Delta H_{1/2}} \cdot \frac{C}{1 + \left(\frac{H - H_0}{\Delta H_{1/2}}\right)^2} \quad (4.3)$$

где H – внешнее магнитное поле, H_0 – резонансное магнитное поле, соответствующее частоте ν_0 СВЧ-излучения согласно формуле (4.1), $\Delta H_{1/2}$ – полуширина на полувысоте кривой $\chi''(H)$, C – постоянная, определяющая интенсивность поглощения. Если при температурах выше 10 К форма линии имеет правильную лоренцеву форму, то ЭСР-линия, записанная при низкой температуре, выражает истинную зависимость $\chi''(H)$. Если же при этом линия не имеет лоренцевского вида, то и полученная при низкой температуре линия должна рассматриваться, как искаженная.

Мы изучили магнитный резонанс в образце Cs_2CuCl_4 массой 1.8 мг при $T = 30$ К и $\vec{H}||a$ с использованием волноводной ячейки и выяснили, что форма резонансной линии в самом деле определяется как мнимой χ' , так и действительной χ'' частью обобщенной восприимчивости образца. Записи линий продемонстрированы на Рис. 4.6, из которого следует, что на частотах 74 ГГц, 76.1 ГГц, 145.1 ГГц форма линии получается искаженной. Для остальных частот, отмеченных на этом рисунке, линии искажены, что вносит дополнительную ошибку в определении резонансного поля в пределах полуширины резонансной линии.

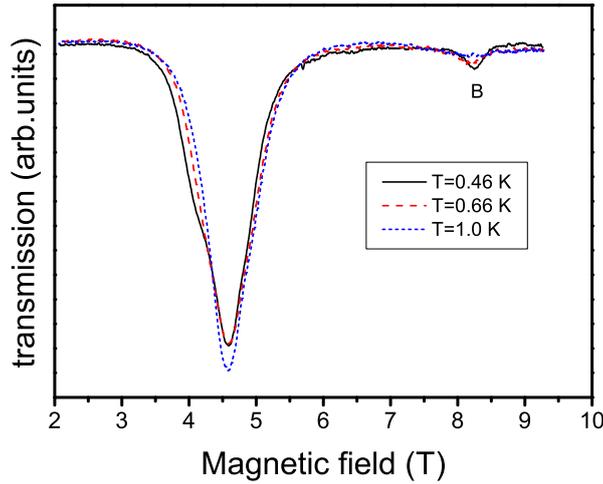


Рис. 4.7: Температурная эволюция резонансной линии в Cs_2CuCl_4 при $\vec{H} \parallel a$ на частоте 142 ГГц, снятая для образца массой 6 мг.

Необходимо отметить, что для образцов с характерными размерами ~ 2 мм (массой 5 – 6 мг) записи резонансных линий на частотах выше 150 ГГц получались сильно искаженными (изрезанными) (смотреть верхнюю кривую, снятую на частоте 245 ГГц, на Рис. 4.2 и кривые, записанные на частотах 181 ГГц, 202 ГГц, 220 ГГц, 248 ГГц, на Рис. 4.3). Изрезанность линий объясняется появлением дополнительных паразитных резонансов в окрестности резонансного поля H_0 образца, где действительная χ' и мнимая χ'' части обобщенной восприимчивости значительно изменяются. Большие значения восприимчивости χ' приводят к электродинамическим резонансам внутри исследуемого диэлектрического магнетика при определенных значениях внешнего магнитного поля, когда половина длины волны λ внутри образца становится сравнимой с

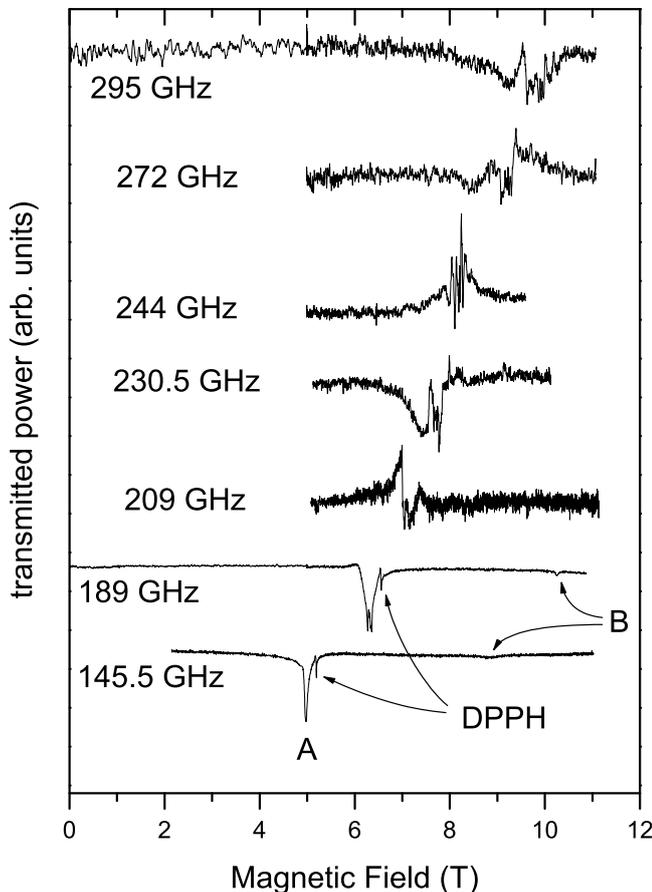


Рис. 4.8: Примеры резонансных линий в Cs_2CuCl_4 , записанные при $\vec{H} \parallel b$ и $T = 0.5$ K на разных частотах с использованием волноводной ячейки проходного типа с диафрагмой для образца массой 1.8 мг. На двух нижних кривых имеется метка ДФПГ (DPPH).

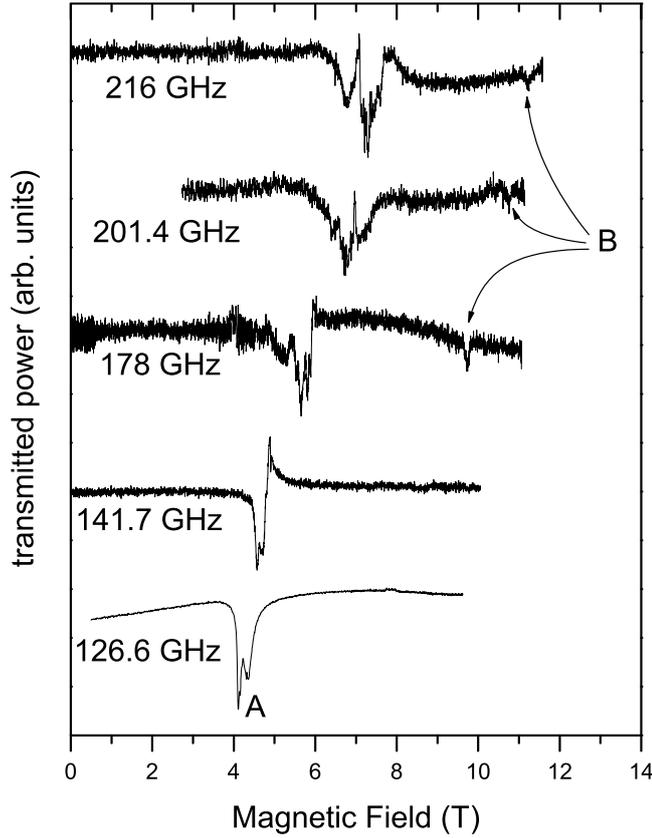


Рис. 4.9: Примеры резонансных линий в Cs_2CuCl_4 , записанные при $\vec{H} \parallel b$ и $T = 0.5$ К на разных частотах с использованием волноводной ячейки проходного типа с диафрагмой для образца массой 14 мг.

его характерным размером d или кратна ему:

$$d \sim n \frac{\lambda}{2}, \quad n = 1, 2, 3, \dots; \quad \lambda = \frac{c}{\nu \sqrt{\varepsilon \mu}}, \quad \varepsilon \approx \text{const}, \quad \mu = 1 + 4\pi\chi' \quad (4.4)$$

Для обычного парамагнетика восприимчивость χ' отрицательна в полях H , меньших резонансного поля H_0 , положительна в полях H , больших резонансного поля H_0 , и принимает максимальное значение в поле $H = H_0 + \frac{1}{2}\Delta H_{1/2}$. В диапазоне полей $H_0 < H < H_0 + \frac{1}{2}\Delta H_{1/2}$ восприимчивость χ' монотонно возрастает от нуля, а в диапазоне полей $H > H_0 + \frac{1}{2}\Delta H_{1/2}$ – монотонно спадает к нулю. Таким образом, на высоких частотах, где длина волны сравнима с размерами образца, несколько электродинамических резонансов может возникать в интервале полей, где χ' увеличивается, и те же резонансы снова появляются в интервале полей, где χ' уменьшается. Поэтому следует ожидать, что электродинамические резонансы будут наблюдаться преимущественно на правом "крыле" резонансной кривой. Чтобы исключить влияние паразитных резонансов, размеры образца необходимо подбирать значительно меньшими половины длины волны.

Для изучения слабой моды B использовались большие образцы размером ~ 2 мм (с массами 4.6 и 6 мг). Для исследования интенсивной линии, наблюдаемой в поле H_0 , брался малый образец размером ~ 0.5 мм (массой 1.8 мг), поскольку большие образцы, как правило, давали сильно искаженную интенсивную линию. ЭСР-линии, полученные для большого образца и представленные на Рис. 4.3, изрезаны для интенсивной линии, однако позволяли наблюдать слабую линию B .

Таким образом, проделывая манипуляции с размерами образца, нам удалось избавиться от дополнительных электродинамических резонансов для интенсивной моды на частотах ниже 250 ГГц. Линии, принадлежащие диапазону частот 250 – 350 ГГц, как правило, все равно получались сильно искаженными вблизи резонансного поля H_0 ,

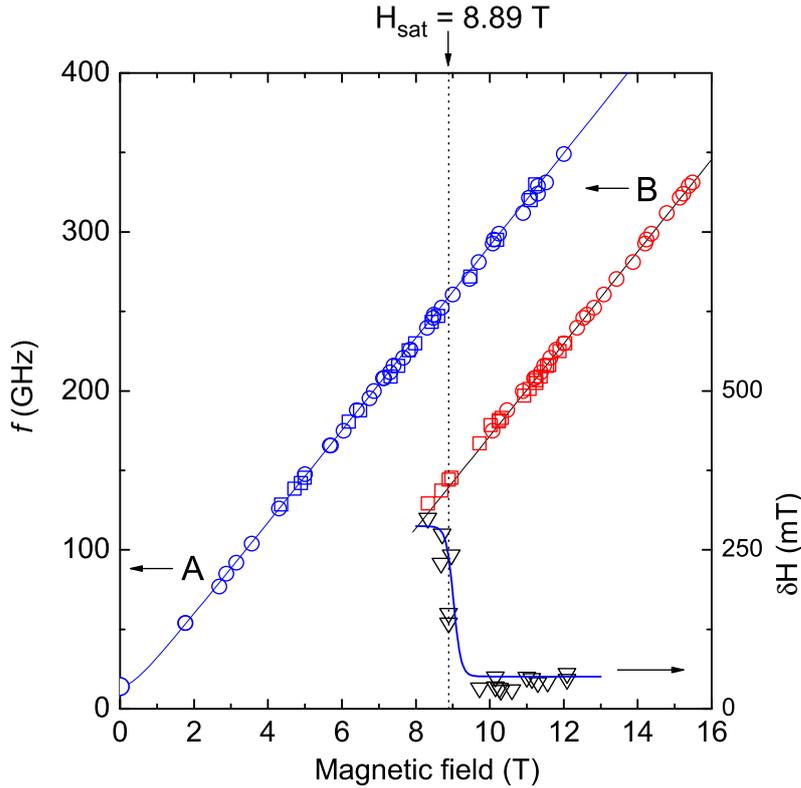


Рис. 4.10: Спектр ЭСР в Cs_2CuCl_4 при ориентации поля вдоль оси b . Символы \square – экспериментальные данные при $T = 0.5$ К (ИФП им. П. Л. Капицы РАН), \circ – при $T = 1.5$ К (Dresden High Magnetic Field Laboratory (HLD)). Сплошная тонкая линия синего цвета – спектр целевой моды (см. формулу (4.5)), сплошная линия черного цвета – спектр моды B (см. формулу (5.8)). Символы ∇ – зависимость полуширины резонансной линии моды B от резонансного поля. Сплошная толстая линия синего цвета – произвольная подгоночная кривая по экспериментальным точкам.

поэтому положение этого резонанса определялось с большой погрешностью в пределах изрезанности линии.

На Рис. 4.7 представлены резонансные линии на частоте 142 ГГц, полученные с помощью цилиндрического резонатора для образца массой в 6 мг при различных температурах. Эти записи линий демонстрируют отсутствие пилообразных искажений, связанных с электродинамическими резонансами внутри образца, как для интенсивной, так и для слабой моды. Как видно из температурной эволюции, слабо выраженная компонента A' дублета и мода B теряют свою интенсивность с повышением температуры, и при $T = 1$ К наблюдаются только линия магнитного резонанса в поле H_0 и едва различимая широкая резонансная линия в сильных полях, соответствующая моде B .

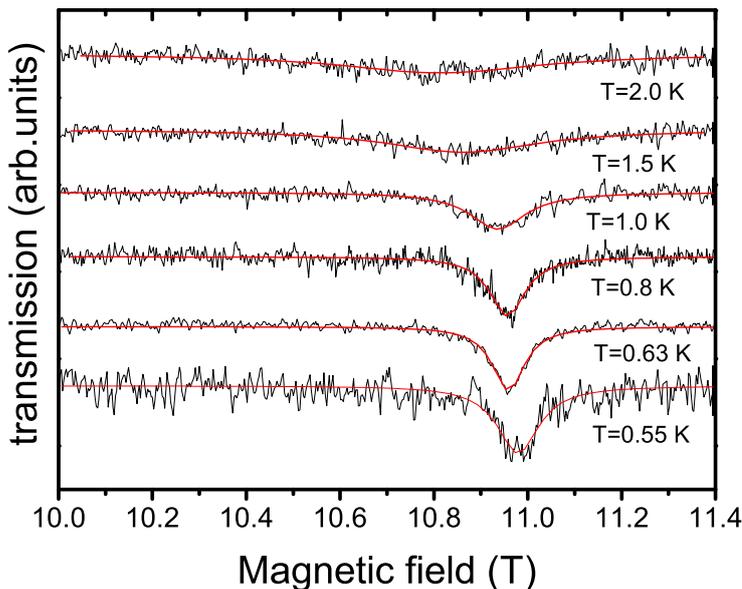


Рис. 4.11: Температурная эволюция моды B в Cs_2CuCl_4 на частоте 197 ГГц при $\vec{H} \parallel b$, полученная в волноводной ячейке для образца массой 14 мг. Сплошные линии красного цвета – подгонки экспериментальных данных лоренцевой функцией, задаваемой формулами (1.12) и (1.17).

4.3 Магнитное поле вдоль оси b

В работе [10] было выяснено, что при $\vec{H}||b$ в слабых полях в спин-жидкостной фазе (при температурах, больших температуры упорядочения 0.62 К и меньших температуры Кюри-Вейсса 4 К) имеется только одиночная резонансная линия, смещенная от парамагнитного резонанса в область меньших полей, – щелевая мода A , резонансная частота ν_A которой выражается по формуле

$$2\pi\hbar\nu_A = \sqrt{(g_b\mu_B H)^2 + \Delta^2} \quad (4.5)$$

где $g_b = 2.08$ – g -фактор вдоль оси b , Δ – щель. Величина щели Δ зависит от температуры (монотонно растет с понижением температуры) и при $T = 0$ К принимает значение $\Delta = \frac{\pi}{2}\sqrt{D_a^2 + D_c^2}$ (см. п. 3.2). При $\vec{H}||b$ в спиральной фазе (при температурах, меньших температуры упорядочения 0.62 К) на частотах ниже 40 ГГц наблюдается антиферромагнитный резонанс, соответствующий планарному антиферромагнетизму с двухосной анизотропией, а на частотах выше 80 ГГц – одиночный спиновый резонанс с частотой, близкой к частоте ν_0 парамагнитного резонанса, определяемой по формуле

$$2\pi\hbar\nu_0 = g_b\mu_B H_0 \quad (4.6)$$

где в области частот от 40 до 80 ГГц отмечается плавный переход между двумя типами ЭСР – ”кроссовер” от спин-волнового спектра к спиновому. Таким образом, аналогич-

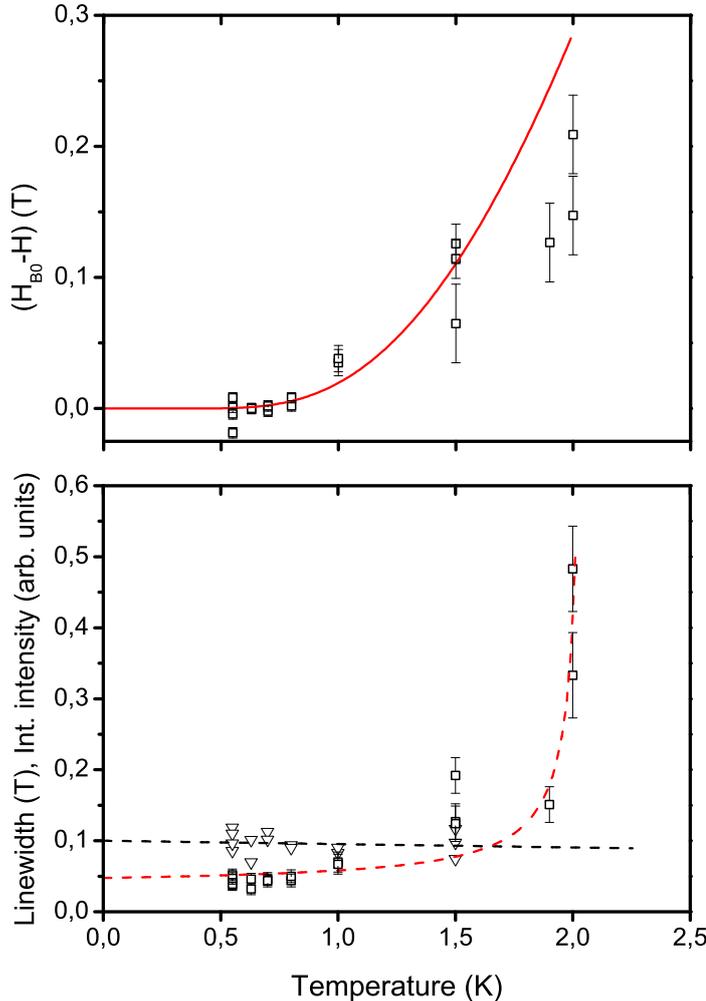


Рис. 4.12: Верхний рисунок: Зависимость сдвига резонансного поля H моды B относительно поля H_{B0} от температуры на частоте 197 ГГц при $\vec{H}||b$ ($H_{B0} = H(T = 0.5 \text{ К}) = 11 \text{ Т}$). Сплошная линия красного цвета – теоретический расчет по формуле (5.12). Нижний рисунок: Температурная зависимость интегральной интенсивности (символы ∇) и полуширины резонансной линии (символы \square) моды B на частоте 197 ГГц при $\vec{H}||b$. Пунктирные кривые красного и черного цвета – произвольные подгоночные кривые по соответствующим экспериментальным точкам.

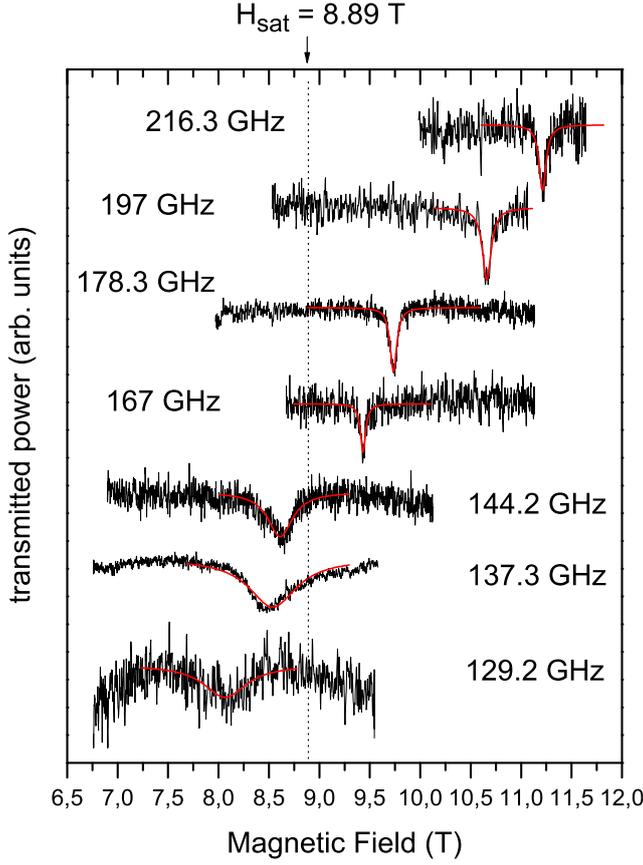


Рис. 4.13: Примеры резонансных линий моды B в Cs_2CuCl_4 , записанные при $\vec{H}||b$ и $T = 0.6$ К на разных частотах с использованием волноводной ячейки проходного типа с диафрагмой. Сплошные линии красного цвета – подгонки экспериментальных данных лоренцевой функцией, задаваемой формулами (1.12) и (1.17).

но случаям $\vec{H}||a, c$, при $\vec{H}||b$ в Cs_2CuCl_4 как в упорядоченной, так и в разупорядоченной фазе в ЭСР-экспериментах на частотах выше 80 ГГц ожидается одиночный спионный резонанс на частоте ν_0 .

Мы исследовали магнитный резонанс в Cs_2CuCl_4 в сильных полях при $T = 0.5$ К. Эксперименты были проведены с использованием волноводной ячейки. Эволюция резонансных линий с увеличением частоты изображена на Рис. 4.8 и Рис. 4.9. ЭСР-линии, продемонстрированные на Рис. 4.8, были получены для образца массой 1.8 мг. Представленные на Рис. 4.9 примеры резонансных линий были записаны для образца массой 14 мг.

Из Рис. 4.8 и Рис. 4.9 следует, что резонансная мода, наблюдаемая в поле H_0 , существует во всем диапазоне магнитных полей как ниже поля насыщения $H_{sat}^b = 8.89$ Т [13], так и выше него. Помимо этого, в полях больше 8 Т имеется слабая резонансная линия, аналогичная моде B для случая $\vec{H}||a$, которую мы тоже обозначаем, как мода B . Частотно-полевая зависимость резонансных мод при $\vec{H}||b$ и $T = 0.5$ К представлена на Рис. 4.10.

Как показывают ЭСР-эксперименты, для малого образца массой 1.8 мг и размером ~ 0.5 мм резонансные линии получаются изрезанными на частотах выше 150 ГГц (см. Рис. 4.8), а для образца массой 14 мг и размером ~ 2 мм – на частотах выше 120 ГГц (см. Рис. 4.9).

Кроме того, была детально изучена температурная и полевая эволюция моды B . Использовалась ориентация внешнего магнитного поля вдоль оси b , поскольку для этой ориентации теоретическая интерпретация имеет наибольшую точность применительно к Cs_2CuCl_4 (см. п. 5.2, 5.3). Измерения проводились для образца массой 14 мг.

Исследование температурной эволюции производилось на частоте 197 ГГц. На Рис. 4.11 приведены примеры резонансных линий моды B на частоте 197 ГГц при различных

температурах. Как видно из рисунка, резонансная линия моды B с увеличением температуры уширяется, а резонансное поле H – смещается в область меньших полей, что свидетельствует о взаимном отталкивании термически активированных магнонов. На верхнем Рис. 4.12 показана зависимость сдвига резонансного поля H моды B относительно поля H_{B0} от температуры, где поле H_{B0} соответствует резонансному полю моды B при $T = 0.5$ К и равно 11 Т. На нижнем Рис. 4.12 представлены температурные зависимости полуширины резонансной линии и интегральной интенсивности моды B .

На Рис. 4.13 показаны записанные на разных частотах ЭСР-линии моды B при $T = 0.6$ К, демонстрирующие полевую эволюцию формы резонансной линии. Была определена зависимость полуширины резонансной линии моды B от резонансного поля. Она помещена на Рис. 4.10. Таким образом, исчезновение моды B при переходе через поле насыщения $H_{sat}^b = 8.89$ Т сопровождается сильным уширением резонансной линии.

5 Интерпретация и сравнение с теорией

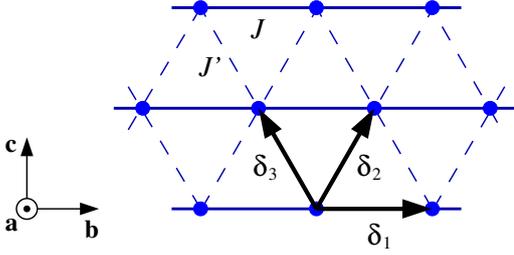


Рис. 5.1: Структура обменных связей в Cs_2CuCl_4 в плоскости bc . Сплошной и пунктирной линией обозначены обмены J и J' соответственно. Вектора δ_{1-3} – вектора трансляции обменной структуры.

В кристаллах Cs_2CuCl_4 система магнитных ионов Cu^{2+} , обладающих электронным спином $S = \frac{1}{2}$ и взаимодействующих друг с другом антиферромагнитным образом, расположена в плоскостях bc с искаженной треугольной решеткой. Обменное взаимодействие соседних ионов Cu^{2+} в bc -плоскостях значительно сильнее обменного взаимодействия ионов Cu^{2+} , принадлежащих соседним bc -плоскостям, поэтому Cs_2CuCl_4 является квазидвумерным антиферромагнетиком (см. Рис. 3.1 и Рис. 3.2).

Симметричный анализ кристаллической структуры Cs_2CuCl_4 показывает [51], что имеется шесть различных векторов Дзялошинского-Мории $\vec{D}_{1,2}$ и \vec{D}'_{1-4} в плоскости bc , характеризующих взаимодействие Дзялошинского-Мории между спинами: $\vec{D}_{1,2} = (D_a, 0, (-1)^{i_c} D_c)$, $\vec{D}'_{1,2} = (D'_a, (-1)^{i_c} D'_b, (-1)^{i_c} D'_c)$, $\vec{D}'_{3,4} = (-D'_a, (-1)^{i_c} D'_b, -(-1)^{i_c} D'_c)$, где i_c – номер b -цепочки вдоль оси c . Эти вектора схематически показаны на Рис. 3.2. Вектора $\vec{D}_{1,2}$ имеют ненулевые a - и c -компоненты D_a и D_c , а для векторов \vec{D}'_{1-4} ни одна из a -, b -, c -компонент $D'_{a,b,c}$ не равна нулю.

Модельный гамильтониан магнитной системы bc -слоя в Cs_2CuCl_4 во внешнем магнитном поле \vec{H} имеет следующий вид [14]:

$$\begin{aligned} \hat{H} = \sum_i \{ & J(\hat{S}_i \cdot \hat{S}_{i+\delta_1}) + J'(\hat{S}_i \cdot \hat{S}_{i+\delta_2} + \hat{S}_i \cdot \hat{S}_{i+\delta_3}) + (\vec{D}_{1,2} \cdot [\hat{S}_i \times \hat{S}_{i+\delta_1}]) + \\ & + (\vec{D}'_{1,2} \cdot [\hat{S}_i \times \hat{S}_{i+\delta_2}]) + (\vec{D}'_{3,4} \cdot [\hat{S}_i \times \hat{S}_{i+\delta_3}]) - g\mu_B(\vec{H} \cdot \hat{S}_i) \} \end{aligned} \quad (5.1)$$

где i – номер спина в bc -плоскости, вектора $\delta_1 = (0, b, 0)$, $\delta_{2,3} = (0, \pm \frac{b}{2}, \frac{c}{2})$ (см. Рис. 5.1), J – обменный интеграл для спинов в цепочках, направленных вдоль оси b , J' – обменный интеграл для спинов, расположенных на диагоналях в соседних цепочках, $\vec{D}_{1,2}$, \vec{D}'_{1-4} – вектора Дзялошинского-Мории.

Главные обменные интегралы J и J' , межплоскостной обменный интеграл J'' , а также значение компоненты D'_a векторов \vec{D}'_{1-4} были получены из экспериментов по неупругому рассеянию нейтронов в насыщенной фазе [49]: $J \approx 4.34 \pm 0.06$ К, $J' \approx 1.48 \pm 0.06$ К, $J'' \approx 0.22$ К, $D'_a \approx 0.24$ К. Значения компонент D_a и D_c векторов $\vec{D}_{1,2}$ были определены как из анализа спектров ЭСР при низких температурах [9,10] – $D_a \approx 0.34$ К, $D_c \approx 0.46$ К, так и из исследования полуширины резонансной линии ЭСР при высоких температурах [54] – $D_a \approx 0.33$ К, $D_c \approx 0.36$ К (см. п. 3.2).

В настоящей работе предлагается еще один подход к определению величин главных обменных интегралов J , J' методом ЭСР. Дополнительно производится оценка значения компоненты D'_b векторов \vec{D}'_{1-4} (см. п. 5.2).

5.1 Исчезновение спионного дублета

В Cs_2CuCl_4 фрустрация обменных связей J' при температурах ниже температуры Кюри-Вейсса $T_{CW} = 4$ К приводит к эффективной расцепленности спиновых цепочек,

направленных вдоль оси b , поэтому магнитные свойства Cs_2CuCl_4 при низких температурах в значительной степени определяются свойствами изолированных спиновых цепочек. Это подтверждается тем, что в экспериментах по неупругому рассеянию нейтронов [6–8] наблюдается континуум элементарных возбуждений, весьма схожий с двухспионным континуумом для гейзенберговской цепочки. Этот континуум удается теоретически описать в рамках модели искаженной треугольной решетки на основе представления о связанных спинонах в слабо взаимодействующих соседних цепочках [50].

Особенностью магнитной структуры Cs_2CuCl_4 является наличие однородного взаимодействия Дзялошинского-Мории между спинами в b -цепочках (с векторами $\vec{D}_{1,2}$; см. Рис. 5.1). Существование этого взаимодействия подтверждается исследованиями Cs_2CuCl_4 методом ЭСР в слабых полях [9, 10, 18]. Спектры ЭСР, угловые зависимости резонансного поля и поляризация зависимости поглощения в нулевом поле находятся в согласии с интерпретацией в рамках теоретической модели изолированной гейзенберговской цепочки с однородным взаимодействием Дзялошинского-Мории.

Из теоретического анализа [34] следует, что однородное взаимодействие Дзялошинского-Мории с вектором \vec{D} в изолированной гейзенберговской цепочке с периодом a и обменом J слабо модифицирует двухспионный континуум возбуждений, смещая спектр на малый волновой вектор $k_D = \frac{D}{aJ}$. Как следствие, при $\vec{H} \parallel \vec{D}$ в ЭСР-экспериментах появляется дублетная линия с резонансными частотами, отстоящими от ларморовской частоты на величину $\pm \frac{D}{4\hbar}$, а при $\vec{H} \perp \vec{D}$ – щелевая мода со щелью $\Delta = \frac{\pi D}{2}$ (см. п. 2.1).

В Cs_2CuCl_4 в экспериментах по магнитному резонансу спионный дублет наблюдается при ориентации поля вдоль осей a , c как в спин-жидкостной фазе, так и в упорядоченной фазе на частотах выше 80 ГГц (см. п. 3.2). В настоящей работе мы провели исследование эволюции дублета при $\vec{H} \parallel a$ с увеличением поля вплоть до поля ферромагнитного насыщения.

Согласно анзатцу Мюллера [27], с увеличением внешнего поля происходит постепенное схлопывание ширины двухспионного континуума гейзенберговской цепочки на волновом векторе $k_D = \frac{D}{aJ}$, которая полностью коллапсирует в поле ферромагнитного насыщения. Таким образом, следует ожидать, что дублет исчезнет по крайней мере в поле насыщения. На верхнем Рис. 4.4 сплошной линией синего цвета показан расчетный спектр ЭСР в дублетной ориентации поля $\vec{H} \parallel \vec{D}$ для гейзенберговской цепочки с обменным интегралом $J = 4.35$ К и однородным взаимодействием Дзялошинского-Мории с вектором \vec{D} таким, что $|\vec{D}| = D_a = 0.34$ К. Следует отметить, что поле насыщения $H_{sat} = 6.3$ Т для изолированной гейзенберговской цепочки отличается от поля насыщения $H_{sat}^a = 8.44$ Т для Cs_2CuCl_4 при $\vec{H} \parallel a$.

Однако, существование континуума возбуждений в Cs_2CuCl_4 и соответствующего ему спионного дублета в слабых полях есть следствие фрустрации обменных связей J' , которая приводит к эффективному развязыванию b -цепочек. Так как с увеличением внешнего поля антиферромагнитные спин-спиновые корреляции сменяются ферромагнитными, то фрустрация связей J' пропадает, в результате чего взаимодействие между b -цепочками в Cs_2CuCl_4 восстанавливается. Таким образом, концепция слабо связанных спиновых цепочек в Cs_2CuCl_4 становится неприменимой в сильных полях, поэтому при возрастании внешнего поля одномерный характер спиновых возбуждений должен сменяться двумерным, а спионный дублет – перестраиваться в одиночную резонансную линию, наблюдаемую на ларморовской частоте.

Мы обнаружили, что дублет коллапсирует в поле $H_{col} \approx 0.5H_{sat}^a \approx 4.2$ Т, что значительно меньше поля насыщения $H_{sat} = 6.3$ Т для изолированной гейзенберговской

цепочки. Несколько более раннее исчезновение дублета при увеличении поля можно, по-видимому, объяснить исчезновением фрустрации связей J' в Cs_2CuCl_4 в сильных полях.

Более того, пропадание высокочастотной компоненты A' спионного дублета согласуется с теоретическим исследованием спектральной плотности двухспионного континуума гейзенберговской цепочки в магнитном поле [56], из которого следует, что интенсивность элементарных возбуждений вблизи верхней границы континуума, соответствующего поперечным возбуждениям, по отношению к интенсивности возбуждений вблизи нижней границы уменьшается с увеличением внешнего поля.

5.2 Спектр ЭСР в Cs_2CuCl_4 в полях, больших поля насыщения

Спектры ЭСР, полученные в Cs_2CuCl_4 при $\vec{H}||a, b$ в спин-коррелированной фазе (при $T = 0.5$ К для $\vec{H}||a$, см. Рис. 4.5; при $T = 0.5$ К и $T = 1.5$ К для $\vec{H}||b$, см. Рис. 4.10) показывают, что в поле \vec{H}_0 , большем поля насыщения, наблюдаются две резонансные моды: интенсивная резонансная линия на частоте ν_0

$$2\pi\hbar\nu_0 = g_{a,b}\mu_B H_0 \quad (5.2)$$

и слабая резонансная мода B на частоте ν_B

$$2\pi\hbar\nu_B = g_{a,b}\mu_B H_0 - \Delta_B \quad (5.3)$$

где величина Δ_B не зависит от ориентации внешнего магнитного поля в пределах погрешности измерений и равна $\Delta_B = 119 \pm 2$ ГГц. Отношение интенсивности I_B моды B к интенсивности I_0 резонансной моды на частоте ν_0 составляет $\frac{I_B}{I_0} \sim 1.5\%$.

Появление слабой моды B в полях, больших поля насыщения, подтверждается теоретическим исследованием Cs_2CuCl_4 , проведенным М. Е. Житомирским с использованием спин-волновой теории и представленным в дополнительном материале [57] работы [14] (см. приложение данной работы). Так как в ферромагнитно упорядоченной фазе квантовые флуктуации полностью подавлены, то спиновую динамику удается описать в рамках магнонных возбуждений, спектр которых определяется при помощи гармонической спин-волновой теории.

Согласно теоретическим выводам [57], частотно-полевая зависимость моды B для поля \vec{H}_0 , направленного вдоль оси b , выражается формулой

$$2\pi\hbar\nu_B = g_b\mu_B H_0 - 4\sqrt{(J')^2 + (D'_b)^2} \quad (5.4)$$

а для поля \vec{H}_0 , направленного вдоль осей a, c – формулами

$$2\pi\hbar\nu_B = g_{a,c}\mu_B H_0 - 4J' + O\left(\frac{(D'_b)^2}{J'}\right) \quad (5.5)$$

Теоретические выкладки показывают [57], что наблюдаемая методом ЭСР резонансная мода B возникает благодаря взаимодействию Дзялошинского-Мории на диагональных связях с векторами \vec{D}'_{1-4} при наличии ненулевой компоненты D'_b (см. Рис. 3.2), причем энергия возбуждения моды B совпадает с энергией возбуждения магнитной системы Cs_2CuCl_4 на границе "обменной" зоны Бриллюэна с точностью до $O\left(\frac{(D'_b)^2}{J'}\right)$. Так как период реальной кристаллической структуры Cs_2CuCl_4 вдоль оси c больше периода

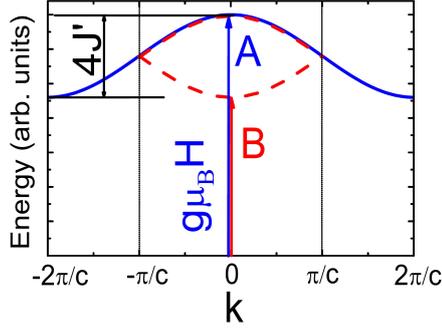


Рис. 5.2: Спектр магнанных возбуждений в Cs_2CuCl_4 в насыщенной фазе с волновым вектором \vec{k} , направленным вдоль оси c . Сплошная линия синего цвета – спектр возбуждений в обменном приближении, пунктирная линия красного цвета – спектр возбуждений для сложной зоны Бриллюэна. Стрелками A и B обозначены наблюдаемые в экспериментах ЭСР-переходы.

структуры обменных связей в два раза, то зона Бриллюэна для магнитной структуры Cs_2CuCl_4 представляет собой вдвое сложенную вдоль оси c зону Бриллюэна для обменной структуры (см. Рис. 3.2). Поэтому становится возможным дополнительное спиновое возбуждение на нулевом волновом векторе, соответствующее возбуждению магнитной системы на границе ”обменной” зоны Бриллюэна (см. Рис. 5.2).

Отношение интенсивности I_B моды B к интенсивности I_0 резонансной моды на частоте ν_0 определяется формулой [57]

$$\frac{I_B}{I_0} \approx \left(\frac{D'_b}{2J} \right)^2 \quad (5.6)$$

Используя значение обменного интеграла $J' \approx 1.48$ К, полученное методом неупругого рассеяния нейтронов группой Теннанта и Колди в работе [49], и оценку отношения $\frac{I_B}{I_0} \sim 1.5\%$, находим величину компоненты D'_b : $D'_b \approx 2J' \sqrt{\frac{I_B}{I_0}}$, $D'_b \approx 0.08J \approx 0.36$ К.

Раскладывая формулу (5.4) в ряд Тейлора по малому параметру D'_b , имеем:

$$2\pi\hbar\nu_B = g_b\mu_B H_0 - 4\sqrt{(J')^2 + (D'_b)^2} \approx g_b\mu_B H_0 - 4J' \left(1 + \frac{1}{2} \left(\frac{D'_b}{J'} \right)^2 \right), \quad \frac{1}{2} \left(\frac{D'_b}{J'} \right)^2 \sim 3\% \quad (5.7)$$

Отсюда следует, что вклад D'_b в частотно-полевую зависимость моды B мал, и поэтому сдвиг резонансной частоты ν_B моды B относительно ларморовской частоты ν_0 практически изотропен по отношению к направлению внешнего магнитного поля, с чем согласуются экспериментальные данные. Таким образом, спектр ЭСР слабой моды B для поля \vec{H}_0 , направленного вдоль трех кристаллографических осей a , b , c , можно выразить формулами

$$2\pi\hbar\nu_B \approx g_{a,b,c}\mu_B H_0 - 4J' \quad (5.8)$$

Из формул (5.3) и (5.8) независимым образом определяем величину диагонального обменного интеграла J' : $J' \approx \frac{\Delta_B}{4}$, $J' = 1.43 \pm 0.07$ К.

Поля насыщения $H_{sat}^{b,a,c}$ при ориентации внешнего магнитного поля вдоль осей b , a , c определяются следующими формулами [57]:

$$g_b\mu_B H_{sat}^b = 2J \left(1 + \frac{J'}{2J} \right)^2 + \frac{(D'_b)^2}{2J} \quad (5.9)$$

$$g_{a,c}\mu_B H_{sat}^{a,c} = 2J \left(1 + \frac{J'}{2J} \right)^2 + O\left(\frac{(D'_b)^2}{J} \right) \quad (5.10)$$

Так как величина $\left(\frac{D'_b}{2J}\right)^2 \sim 1\%$, то вкладом D'_b в формулы (5.9) и (5.10) можно пренебречь и записать следующие выражения для полей насыщения $H_{sat}^{a,b,c}$:

$$g_{a,b,c}\mu_B H_{sat}^{a,b,c} \approx 2J\left(1 + \frac{J'}{2J}\right)^2 \quad (5.11)$$

Поле насыщения вдоль оси b находим из полевой зависимости ширины резонансной моды B . С уменьшением внешнего магнитного поля резонансная линия моды B значительно уширяется, что свидетельствует о переходе через поле насыщения (см. Рис. 4.10). Таким образом, получаем $H_{sat}^b = 8.9 \pm 0.1$ Т, что совпадает с известным значением для поля насыщения вдоль оси b $H_{sat}^b = 8.89$ Т, измеренным по зависимости намагниченности от поля группой Токивы в работе [13]. Используя найденное выше значение диагонального обменного интеграла $J' \approx 1.43$ К, определяем величину главного обменного интеграла J из формулы (5.11): $J \approx \left(\frac{g_b\mu_B H_{sat}^b}{4} - \frac{J'}{2}\right) \left(1 + \sqrt{1 - \frac{(J')^2}{\left(g_b\mu_B H_{sat}^b/2 - J'\right)^2}}\right)$, $J = 4.7 \pm 0.2$ К.

Итак, установленные в данной работе значения обменных интегралов J и J' находятся в согласии со значениями, полученными в работе [49], в пределах погрешности измерений.

Как показывают записи ЭСР-линий на Рис. 4.11, при нагревании образца резонансное поле моды B сдвигается в область слабых полей, что означает возрастание собственной частоты магнонов при термическом возбуждении дополнительных магнонов. Это наблюдение объясняется тем, что при увеличении в магнитной системе концентрации магнонов, осуществляющемся подогревом образца, возникает положительная добавка к энергии магнонов, связанная с их отталкиванием друг от друга: чем больше концентрация магнонов в системе, тем больше энергия отталкивающего взаимодействия, а значит, и энергия их резонансного возбуждения. Отталкивание магнонов легко понять, если заметить, что в ферромагнитно поляризованной магнитной системе двум перевернутым спинам невыгодно находиться в соседних позициях, поскольку взаимодействие между спинами является антиферромагнитным.

В ЭСР-экспериментах мода B практически полностью исчезает при разогревании образца до температуры $T = 2$ К (при этом резонансная линия моды B сильно уширяется; см. Рис. 4.11). Это связано с тем, что резонансная частота моды B определяется энергией магнонных возбуждений на волновом векторе \vec{k} , направленном вдоль оси c , дисперсия которых обеспечивается диагональными обменными связями с обменом $J' \approx 1.45$ К. Поэтому магнонные возбуждения, соответствующие резонансной моде B , должны пропадать при температуре $T \sim J' \sim 2$ К, что подтверждается экспериментальными данными.

Кроме того, М. Е. Житомирским была вычислена температурно-зависимая поправка к спектру магнонных возбуждений в насыщенной ферромагнитной фазе для Cs_2CuCl_4 в обменном приближении при помощи ангармонической спин-волновой теории (см. приложение данной работы). Поправка $\delta E(T)$ к энергии магнонных возбуждений, соответствующих моде B , выражается следующей формулой:

$$\delta E(T) = \frac{8J'}{N} \sum_{\vec{q}} \frac{1 - \cos\left(\frac{q_x a}{2}\right) \cos\left(\frac{\sqrt{3}q_y a}{2}\right)}{e^{\frac{E_{\vec{q}}}{k_B T}} - 1} \quad (5.12)$$

где суммирование по \vec{q} производится в первой зоне Бриллюэна обменной структуры Cs_2CuCl_4 (см. нижний Рис. 5.3). Здесь $E_{\vec{k}}$ – магنونный спектр в обменном приближении [57]:

$$E_{\vec{k}} = g\mu_B H - 2(J + J') + 2J \cos^2\left(\frac{k_x a}{2}\right) + 2J' \cos\left(\frac{k_x a}{2}\right) \cos\left(\frac{\sqrt{3}k_y a}{2}\right) \quad (5.13)$$

Результаты численного расчета выражения (5.12) представлены на верхнем Рис. 4.12. Вычисление было выполнено для поля $H = 11$ Т, направленного вдоль оси b , что соответствует резонансной частоте 197 ГГц моды B . Для расчета использовались значения обменных интегралов J и J' , полученные в данной работе. Интегрирование производилось в среде функционального программирования *Wolfram Mathematica*. Как видно из верхнего Рис. 4.12, экспериментальные данные находятся в удовлетворительном согласии с теоретическим расчетом как по знаку температурного эффекта сдвига резонансной частоты, так и по значению сдвига.

5.3 Выводы

Был детально изучен спектр ЭСР в спин-коррелированной фазе Cs_2CuCl_4 на частотах больше ”обменной” частоты $\frac{J}{2\pi\hbar} \sim 80$ ГГц и в полях как выше, так и ниже поля насыщения при $\vec{H}||a, b$.

1) Было выяснено, что наблюдаемый при $\vec{H}||a$ дублет ЭСР-линий, резонансные частоты которых соответствуют границам двухспионного континуума гейзенберговской цепочки спинов $S = \frac{1}{2}$ на волновом векторе k_D (см. п. 2.1), коллапсирует в поле, равном примерно половине поля насыщения, причем исчезновение дублета сопровождается постепенным пропаданием его высокочастотной компоненты. Такая эволюция качественно согласуется с перестройкой двухспионного континуума гейзенберговской цепочки спинов $S = \frac{1}{2}$ в поле [27, 56].

2) Было обнаружено, что в полях выше поля насыщения при $\vec{H}||a, b$ имеется слабая мода помимо интенсивной резонансной линии на ларморовской частоте. Ее резонансная частота на 119 ГГц меньше ларморовской частоты. Частотно-полевая зависимость и величина интенсивности слабой моды соответствуют гармонической спин-волновой теории в насыщенной фазе [57]. Согласно этой теории слабая мода имеет обменное происхождение.

3) Была экспериментально получена зависимость сдвига резонансного поля слабой моды от температуры, обнаруживающая взаимное отталкивание магнонов. Явление сдвига резонансного поля этой моды находится в согласии с ангармонической спин-волновой теорией как по знаку эффекта, так и по величине сдвига (см. приложение данной работы).

4) Были вычислены значения главных обменных интегралов J и J' : $J = 4.7 \pm 0.2$ К, $J' = 1.43 \pm 0.07$ К, а также произведена оценка компоненты D'_b векторов \vec{D}'_{1-4} (см. п. 5.1): $D'_b \approx 0.36$ К – в рамках гармонической спин-волновой теории в насыщенной фазе [57] на основе полученных экспериментальных данных. Величина J' определялась по значению сдвига резонансной частоты слабой моды относительно ларморовской частоты, величина J – по вычисленным значениям поля насыщения при $\vec{H}||b$ и диагонального обмена J' , величина D'_b – из отношения интенсивности слабой резонансной моды к интенсивности моды, возбуждаемой на ларморовской частоте.

Благодарности

Автор работы благодарит Смирнова Александра Ивановича за научное руководство, за требовательность, за подробные и поучительные обсуждения, Глазкова Василия Николаевича – за обсуждение ряда теоретических вопросов, за помощь в освоении программного комплекса *SolidWorks* и за руководство по практической работе с рентгеновским дифрактометром *Smart APEX II*, Свистова Леонида Евгеньевича и Сосина Сергея Сергеевича – за дискуссии по некоторым вопросам, за доверие использовать экспериментальную установку, Прозорову Людмилу Андреевну – за поддержание теплой атмосферы в коллективе и всех сотрудников группы – за помощь в проведении множества экспериментов и за благожелательное отношение.

Автор также считает необходимым поблагодарить Житомирского Михаила Евгеньевича за полезные дискуссии, за проделанный им теоретический анализ с использованием теории спиновых волн, Поварова Кирилла Юрьевича – за многочисленные важные обсуждения, за аналитический вывод спектра гейзенберговской цепочки с однородным взаимодействием Дзялошинского-Мории в дублетной ориентации согласно анзатцу Мюллера, Марченко Владимира Ивановича – за внимательное прочтение дипломной работы и разбор выявленных недочетов, а также Шапиро Аркадия Яковлевича – за приготовление образцов Cs_2CuCl_4 , без которых работа не могла бы быть выполнена.

Приложение

Спектр магнонов в ферромагнитной фазе Cs_2CuCl_4 в обменном приближении

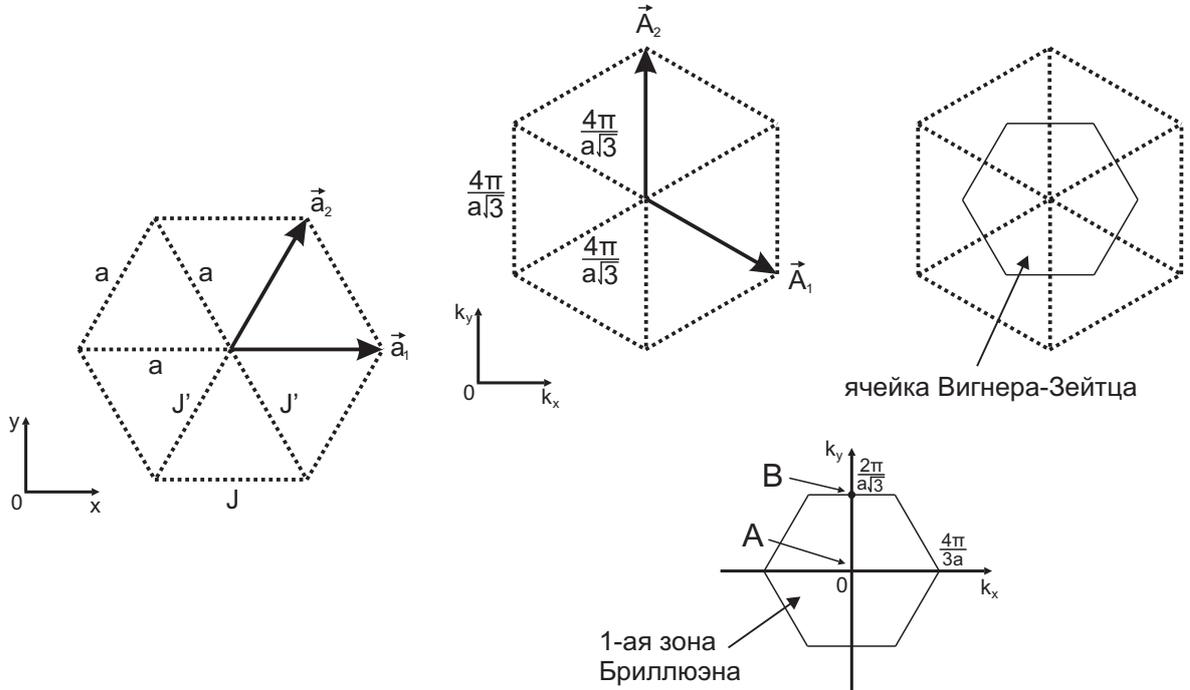


Рис. 5.3: На рисунке слева: Треугольная решетка с ионами Cu^{2+} в узлах, выражающая магнитную структуру плоскости bc в кристалле Cs_2CuCl_4 . Вектора \vec{a}_1 и \vec{a}_2 – вектора примитивных трансляций (см. текст работы). На рисунке справа: Обратная решетка к прямой кристаллической решетке на левом рисунке. Вектора \vec{A}_1 и \vec{A}_2 – вектора примитивных трансляций (см. текст работы). На рисунке снизу: первая зона Бриллюэна. Точками A и B обозначены наблюдаемые в ЭСР-экспериментах магнонные возбуждения.

Рассмотрим двумерную систему антиферромагнитно взаимодействующих спинов $S = \frac{1}{2}$ на треугольной решетке, показанной на Рис. 5.3 слева, где a – длина стороны треугольника, J – обмен вдоль основания треугольника, J' – обмен вдоль его боковых ребер. Такая спиновая система моделирует структуру взаимодействий в Cs_2CuCl_4 в обменном приближении.

Пусть a_1 и a_2 – вектора примитивных трансляций треугольной решетки: $a_1 = (a, 0)$, $a_2 = \left(\frac{a}{2}, \frac{\sqrt{3}}{2}a\right)$, тогда вектора A_1 и A_2 примитивных трансляций обратной решетки: $A_1 = \left(\frac{2\pi}{a}, -\frac{2\pi}{a\sqrt{3}}\right)$, $A_2 = \left(0, \frac{4\pi}{a\sqrt{3}}\right)$. Построив обратную решетку на векторах A_1 и A_2 и выделив в ней примитивную ячейку Вигнера-Зейтца, получим первую зону Бриллюэна, представленную на Рис. 5.3 снизу.

Поместим спиновую систему во внешнее магнитное поле $\vec{H} \perp xy$, большее поля насыщения. Гамильтониан \hat{H} спиновой системы будет иметь вид:

$$\hat{H} = \sum_{j,\delta} J_\delta (\hat{S}_j \cdot \hat{S}_{j+\delta}) - g\mu_B H \sum_j \hat{S}_j^z \quad (5.14)$$

где j – номер спина в решетке, $\delta = \delta_1, \delta_2, \delta_3$, $J_{\delta_1} = J$, $J_{\delta_{2,3}} = J'$ (см. Рис. 5.1).

Поскольку в ферромагнитной фазе квантовые флуктуации полностью подавлены, и основное состояние системы – упорядоченное состояние, когда магнитные моменты расположены вдоль оси z , то спиновыми возбуждениями в такой системе являются магноны. Наша задача – получить спектр магнонных возбуждений.

Гамильтониан $\hat{\mathcal{H}}$ содержит по три компоненты $\hat{S}_j^x, \hat{S}_j^y, \hat{S}_j^z$ каждого спина \hat{S}_j . Эти компоненты не независимы, а связаны тождеством $(\hat{S}_j \cdot \hat{S}_j) = S(S+1)$. Удобнее работать с двумя операторами, которые являются независимыми. Преобразование Холштайна-Примакова позволяет перейти от спиновых операторов к операторам рождения и уничтожения a_j^+ и a_j согласно соотношениям

$$\hat{S}_j^+ = \hat{S}_j^x + i\hat{S}_j^y = \sqrt{2S} \sqrt{1 - \frac{a_j^+ a_j}{2S}} a_j \quad (5.15)$$

$$\hat{S}_j^- = \hat{S}_j^x - i\hat{S}_j^y = \sqrt{2S} a_j^+ \sqrt{1 - \frac{a_j^+ a_j}{2S}} \quad (5.16)$$

где полагается выполнение условий $[a_j, a_l^+] = \delta_{jl}$, $[a_j, a_l] = 0$ для того, чтобы операторы \hat{S}_j^+ и \hat{S}_j^- удовлетворяли перестановочным соотношениям.

Напишем преобразование для оператора S_j^z , опуская индекс j :

$$\begin{aligned} (\hat{S}^z)^2 &= S(S+1) - (\hat{S}^x)^2 - (\hat{S}^y)^2 = S(S+1) - \frac{1}{2}(\hat{S}_j^+ \hat{S}_j^- + \hat{S}_j^- \hat{S}_j^+) = S(S+1) - \\ &- S \left[\sqrt{1 - \frac{a^+ a}{2S}} a a^+ \sqrt{1 - \frac{a^+ a}{2S}} + a^+ \left(1 - \frac{a^+ a}{2S}\right) a \right] \end{aligned} \quad (5.17)$$

Воспользовавшись тем, что $[a^+ a, a^+ a] = 0$, $[a^+ a, a] = -a$, получим:

$$(\hat{S}^z)^2 = S(S+1) - S \left[2a^+ a \left(1 - \frac{a^+ a}{2S}\right) + \left(1 - \frac{a^+ a}{2S}\right) + \frac{a^+ a}{2S} \right] = (S - a^+ a)^2 \quad (5.18)$$

Откуда видим, что $\hat{S}_j^z = S - a_j^+ a_j$.

Перейдем от атомных операторов a_j^+, a_j к магнонным $b_{\vec{k}}^+, b_{\vec{k}}$, определив их разложениями:

$$b_{\vec{k}} = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_j e^{i\vec{k}\vec{r}_j} a_j, \quad b_{\vec{k}}^+ = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_j e^{-i\vec{k}\vec{r}_j} a_j^+ \quad (5.19)$$

где N – полное число спинов в системе, \vec{r}_j – радиус-вектор j -ого спина, \vec{k} – волновой вектор магнонного возбуждения. Также имеют место обратные соотношения:

$$a_j = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\vec{k}} e^{-i\vec{k}\vec{r}_j} b_{\vec{k}}, \quad a_j^+ = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\vec{k}} e^{i\vec{k}\vec{r}_j} b_{\vec{k}}^+ \quad (5.20)$$

Дискретные значения \vec{k} , по которым ведутся все суммирования, получаются из периодических граничных условий. Для операторов $b_{\vec{k}}, b_{\vec{k}}^+$ тоже справедливы бозевские перестановочные соотношения:

$$[b_{\vec{k}}, b_{\vec{k}'}^+] = \frac{1}{N} \sum_{l,j} e^{i\vec{k}\vec{r}_l - i\vec{k}'\vec{r}_j} [a_l, a_j^+] = \frac{1}{N} \sum_l e^{i(\vec{k}-\vec{k}')\vec{r}_l} = \delta_{\vec{k}\vec{k}'}, \quad [b_{\vec{k}}, b_{\vec{k}'}] = 0 \quad (5.21)$$

Физический смысл операторов $b_{\vec{k}}$ и $b_{\vec{k}}^{\dagger}$ очень простой: оператор $b_{\vec{k}}^{\dagger}$ "создает" магنون с волновым вектором \vec{k} , а оператор $b_{\vec{k}}$ "уничтожает".

Мы рассматриваем возбужденные состояния системы, близкие к основному, то есть такие, в которых число перевернутых спинов мало, что выражается условием

$$\frac{\langle a_j^{\dagger} a_j \rangle}{S} = \frac{\langle n_j \rangle}{S} \ll 1 \quad (5.22)$$

поэтому можно записать

$$\hat{S}_j^{\dagger} \approx \sqrt{2S} \left(a_j - \frac{a_j^{\dagger} a_j a_j}{4S} \right), \quad \hat{S}_j^{-} \approx \sqrt{2S} \left(a_j^{\dagger} - \frac{a_j^{\dagger} a_j^{\dagger} a_j}{4S} \right) \quad (5.23)$$

Выше мы получили, что

$$\hat{S}_j^z = S - a_j^{\dagger} a_j \quad (5.24)$$

Также отметим, что $b_{\vec{k}}^{\dagger} b_{\vec{k}}$ является оператором чисел заполнения магنونного состояния с волновым вектором \vec{k} :

$$b_{\vec{k}}^{\dagger} b_{\vec{k}} = \frac{1}{e^{\frac{E_{\vec{k}}}{k_B T}} - 1} \quad (5.25)$$

где $E_{\vec{k}}$ – спектр магненов, T – температура системы.

Подставим в гамильтониан $\hat{\mathcal{H}}$ формулы (5.23) и (5.24) и сгруппируем слагаемые:

$$\begin{aligned} \hat{\mathcal{H}} &= \sum_{j,\delta} J_{\delta} \left[\hat{S}_j^z \hat{S}_{j+\delta}^z + \frac{1}{2} \left(\hat{S}_j^+ \hat{S}_{j+\delta}^- + \hat{S}_j^- \hat{S}_{j+\delta}^+ \right) \right] - g\mu_B H \sum_j \hat{S}_j^z \approx \\ &\approx \sum_{j,\delta} J_{\delta} \left[(S - a_j^{\dagger} a_j) (S - a_{j+\delta}^{\dagger} a_{j+\delta}) + S \left\{ \left(a_j - \frac{a_j^{\dagger} a_j a_j}{4S} \right) \left(a_{j+\delta}^{\dagger} - \frac{a_{j+\delta}^{\dagger} a_{j+\delta}^{\dagger} a_{j+\delta}}{4S} \right) + \right. \right. \\ &+ \left. \left. \left(a_j^{\dagger} - \frac{a_j^{\dagger} a_j^{\dagger} a_j}{4S} \right) \left(a_{j+\delta} - \frac{a_{j+\delta}^{\dagger} a_{j+\delta} a_{j+\delta}}{4S} \right) \right\} \right] - g\mu_B H \sum_j (S - a_j^{\dagger} a_j) = NS^2(J + 2J') - \\ &- g\mu_B HNS + \left[g\mu_B H \sum_j a_j^{\dagger} a_j + S \sum_{j,\delta} J_{\delta} (a_{j+\delta}^{\dagger} a_j + a_j^{\dagger} a_{j+\delta} - a_j^{\dagger} a_j - a_{j+\delta}^{\dagger} a_{j+\delta}) \right] + \\ &+ \sum_{j,\delta} J_{\delta} \left[a_j^{\dagger} a_j a_{j+\delta}^{\dagger} a_{j+\delta} - \frac{1}{4} (a_{j+\delta}^{\dagger} a_{j+\delta}^{\dagger} a_{j+\delta} a_j + a_{j+\delta}^{\dagger} a_j^{\dagger} a_j a_j + a_j^{\dagger} a_{j+\delta}^{\dagger} a_{j+\delta} a_{j+\delta} + \right. \\ &\left. + a_j^{\dagger} a_j^{\dagger} a_j a_{j+\delta}) \right] = NS^2(J + 2J') - g\mu_B HNS + \hat{\mathcal{H}}_0 + \hat{\mathcal{H}}_1 \quad (5.26) \end{aligned}$$

Выразим операторы $\hat{\mathcal{H}}_0$ и $\hat{\mathcal{H}}_1$ через спин-волновые переменные, воспользовавшись формулами (5.20). Начнем с упрощения оператора $\hat{\mathcal{H}}_0$, откуда получим магنونный спектр в нулевом приближении.

$$\begin{aligned} \hat{\mathcal{H}}_0 &= \frac{g\mu_B H}{N} \sum_{\vec{k}, \vec{k}', j} e^{i(\vec{k}-\vec{k}')\vec{r}_j} b_{\vec{k}}^{\dagger} b_{\vec{k}'} + \frac{S}{N} \sum_{j,\delta} J_{\delta} \left[\sum_{\vec{k}, \vec{k}'} e^{i\vec{k}\vec{r}_{j+\delta} - i\vec{k}'\vec{r}_j} b_{\vec{k}}^{\dagger} b_{\vec{k}'} + \sum_{\vec{k}, \vec{k}'} e^{i\vec{k}\vec{r}_j - i\vec{k}'\vec{r}_{j+\delta}} b_{\vec{k}}^{\dagger} b_{\vec{k}'} - \right. \\ &- \left. \sum_{\vec{k}, \vec{k}'} e^{i(\vec{k}-\vec{k}')\vec{r}_j} b_{\vec{k}}^{\dagger} b_{\vec{k}'} - \sum_{\vec{k}, \vec{k}'} e^{i(\vec{k}-\vec{k}')\vec{r}_{j+\delta}} b_{\vec{k}}^{\dagger} b_{\vec{k}'} \right] = g\mu_B H \sum_{\vec{k}} b_{\vec{k}}^{\dagger} b_{\vec{k}} + S \left[2J \sum_{\vec{k}} \cos(\vec{k}\vec{\delta}_1) b_{\vec{k}}^{\dagger} b_{\vec{k}} + \right. \\ &+ 2J' \sum_{\vec{k}} \cos(\vec{k}\vec{\delta}_2) b_{\vec{k}}^{\dagger} b_{\vec{k}} + 2J' \sum_{\vec{k}} \cos(\vec{k}\vec{\delta}_3) b_{\vec{k}}^{\dagger} b_{\vec{k}} - (2J + 4J') \sum_{\vec{k}} b_{\vec{k}}^{\dagger} b_{\vec{k}} \left. \right] = \sum_{\vec{k}} \left[g\mu_B H + \right. \\ &+ 2JS \cos(k_x a) + 4J'S \cos\left(\frac{1}{2}k_x a\right) \cos\left(\frac{\sqrt{3}}{2}k_y a\right) - (2J + 4J')S \left. \right] b_{\vec{k}}^{\dagger} b_{\vec{k}} = \sum_{\vec{k}} E_{\vec{k}} b_{\vec{k}}^{\dagger} b_{\vec{k}} \quad (5.27) \end{aligned}$$

где $E_{\vec{k}} = g\mu_B H + 2JS \cos(k_x a) + 4J'S \cos\left(\frac{1}{2}k_x a\right) \cos\left(\frac{\sqrt{3}}{2}k_y a\right) - (2J + 4J')S$ – спектр магновов в гармоническом приближении. Отметим, что $E_{\vec{k}}$ не зависит от температуры.

Найдем теперь температурно-зависимую поправку к магнонному спектру, упростив оператор $\hat{\mathcal{H}}_1$. Для этого воспользуемся методом усреднения:

$$\begin{aligned} a_j^+ a_j a_{j+\delta}^+ a_{j+\delta} &\approx \langle a_j^+ a_j \rangle a_{j+\delta}^+ a_{j+\delta} + \langle a_{j+\delta}^+ a_{j+\delta} \rangle a_j^+ a_j + \langle a_{j+\delta}^+ a_j \rangle a_j^+ a_{j+\delta} + \langle a_j^+ a_{j+\delta} \rangle a_{j+\delta}^+ a_j, \\ a_{j+\delta}^+ a_{j+\delta}^+ a_{j+\delta} a_j &\approx 2\langle a_{j+\delta}^+ a_{j+\delta} \rangle a_{j+\delta}^+ a_j + 2\langle a_{j+\delta}^+ a_j \rangle a_{j+\delta}^+ a_{j+\delta}, \\ a_{j+\delta}^+ a_j^+ a_j a_j &\approx 2\langle a_j^+ a_j \rangle a_{j+\delta}^+ a_j + 2\langle a_{j+\delta}^+ a_j \rangle a_j^+ a_j, \\ a_j^+ a_{j+\delta}^+ a_{j+\delta} a_{j+\delta} &\approx 2\langle a_{j+\delta}^+ a_{j+\delta} \rangle a_j^+ a_{j+\delta} + 2\langle a_j^+ a_{j+\delta} \rangle a_{j+\delta}^+ a_{j+\delta}, \\ a_j^+ a_j^+ a_j a_{j+\delta} &\approx 2\langle a_j^+ a_j \rangle a_j^+ a_{j+\delta} + 2\langle a_j^+ a_{j+\delta} \rangle a_j^+ a_j \end{aligned}$$

Введем следующие обозначения:

$$\begin{aligned} n &= \langle a_j^+ a_j \rangle = \frac{1}{N} \sum_j a_j^+ a_j = \frac{1}{N^2} \sum_{\vec{q}, \vec{q}', j} e^{i(\vec{q}-\vec{q}')\vec{r}_j} b_{\vec{q}}^+ b_{\vec{q}'} = \frac{1}{N} \sum_{\vec{q}} b_{\vec{q}}^+ b_{\vec{q}} = \langle a_{j+\delta}^+ a_{j+\delta} \rangle, \\ \alpha_\delta &= \langle a_j^+ a_{j+\delta} \rangle = \frac{1}{N} \sum_j a_j^+ a_{j+\delta} = \frac{1}{N^2} \sum_{\vec{q}, \vec{q}', j} e^{i\vec{q}\vec{r}_j - i\vec{q}'\vec{r}_{j+\delta}} b_{\vec{q}}^+ b_{\vec{q}'} = \frac{1}{N} \sum_{\vec{q}} e^{-i\vec{q}\vec{\delta}} b_{\vec{q}}^+ b_{\vec{q}}, \\ \beta_\delta &= \langle a_{j+\delta}^+ a_j \rangle = \frac{1}{N} \sum_{\vec{q}} e^{i\vec{q}\vec{\delta}} b_{\vec{q}}^+ b_{\vec{q}} \end{aligned}$$

Суммирование по \vec{q} ведется в первой зоне Бриллюэна (см. Рис. 5.3).

Оператор $\hat{\mathcal{H}}_1$ перепишем в следующем виде:

$$\begin{aligned} \hat{\mathcal{H}}_1 &= \sum_{j,\delta} J_\delta \left[n(a_j^+ a_j + a_{j+\delta}^+ a_{j+\delta} - a_j^+ a_{j+\delta} - a_{j+\delta}^+ a_j) + \alpha_\delta a_{j+\delta}^+ a_j + \beta_\delta a_j^+ a_{j+\delta} - \right. \\ &\quad \left. - \frac{1}{2}(\alpha_\delta + \beta_\delta)(a_{j+\delta}^+ a_{j+\delta} + a_j^+ a_j) \right] = \sum_{j,\delta} n J_\delta (a_j^+ a_j + a_{j+\delta}^+ a_{j+\delta} - a_j^+ a_{j+\delta} - a_{j+\delta}^+ a_j) - \\ &\quad - \frac{1}{2} \sum_{j,\delta} J_\delta (\alpha_\delta + \beta_\delta) (a_j^+ a_j + a_{j+\delta}^+ a_{j+\delta}) + \sum_{j,\delta} J_\delta (\alpha_\delta a_{j+\delta}^+ a_j + \beta_\delta a_j^+ a_{j+\delta}) = \\ &= \hat{\mathcal{H}}_1' + \hat{\mathcal{H}}_1'' + \hat{\mathcal{H}}_1''' \end{aligned} \quad (5.28)$$

Воспользовавшись формулами (5.20), упростим каждый из операторов $\hat{\mathcal{H}}_1'$, $\hat{\mathcal{H}}_1''$, $\hat{\mathcal{H}}_1'''$, опустив промежуточные выкладки:

$$\begin{aligned} \hat{\mathcal{H}}_1' &= \sum_{\vec{k}} \left[2n(J + 2J') - 2nJ \cos(k_x a) - 4nJ' \cos\left(\frac{1}{2}k_x a\right) \cos\left(\frac{\sqrt{3}}{2}k_y a\right) \right] b_{\vec{k}}^+ b_{\vec{k}}, \\ \hat{\mathcal{H}}_1'' &= - \sum_{\vec{k}} \left[J(\alpha_{\delta_1} + \beta_{\delta_1}) + J'(\alpha_{\delta_2} + \beta_{\delta_2} + \alpha_{\delta_3} + \beta_{\delta_3}) \right] b_{\vec{k}}^+ b_{\vec{k}}, \\ \hat{\mathcal{H}}_1''' &= \sum_{\vec{k}, \delta} J_\delta \left[\alpha_\delta e^{i\vec{k}\vec{\delta}} + \beta_\delta e^{-i\vec{k}\vec{\delta}} \right] b_{\vec{k}}^+ b_{\vec{k}} \end{aligned}$$

Проделав несложные преобразования, окончательно получим:

$$\begin{aligned} \hat{\mathcal{H}}_1 &= \sum_{\vec{k}} \left[2J(A_c - n)(1 - \cos(k_x a)) + 4J'(n - A_{cc}) \left(1 - \cos\left(\frac{1}{2}k_x a\right) \cos\left(\frac{\sqrt{3}}{2}k_y a\right) \right) \right] b_{\vec{k}}^+ b_{\vec{k}} = \\ &= \sum_{\vec{k}} \delta E_{\vec{k}} b_{\vec{k}}^+ b_{\vec{k}} \end{aligned} \quad (5.29)$$

где $\delta E_{\vec{k}}(T) = 2J(A_c - n)(1 - \cos(k_x a)) + 4J'(n - A_{cc})\left(1 - \cos\left(\frac{1}{2}k_x a\right) \cos\left(\frac{\sqrt{3}}{2}k_y a\right)\right)$ – искомая добавка к магнонному спектру $E_{\vec{k}}$ в ангармоническом приближении. Температурная зависимость этой поправки заключена в коэффициентах n , A_c , A_{cc} , которые определяются по следующим формулам:

$$n = \frac{1}{N} \sum_{\vec{q}} b_{\vec{q}}^+ b_{\vec{q}},$$

$$A_c = \frac{1}{N} \sum_{\vec{q}} \cos(q_x a) b_{\vec{q}}^+ b_{\vec{q}},$$

$$A_{cc} = \frac{1}{N} \sum_{\vec{q}} \cos\left(\frac{1}{2}q_x a\right) \cos\left(\frac{\sqrt{3}}{2}q_y a\right) b_{\vec{q}}^+ b_{\vec{q}}$$

Таким образом, получаем спектр магнонных возбуждений в ферромагнитной фазе Cs_2CuCl_4 в обменном приближении в рамках нелинейной спин-волновой теории (с учетом ангармонических членов в гамильтониане $\hat{\mathcal{H}}$ в первом приближении):

$$E_{\vec{k}}^{full}(T) = E_{\vec{k}} + \delta E_{\vec{k}}(T) \quad (5.30)$$

Детальный теоретический анализ магнитной структуры на треугольной решетке с учетом взаимодействия Дзялошинского-Мории с векторами \vec{D}' на диагональных связях

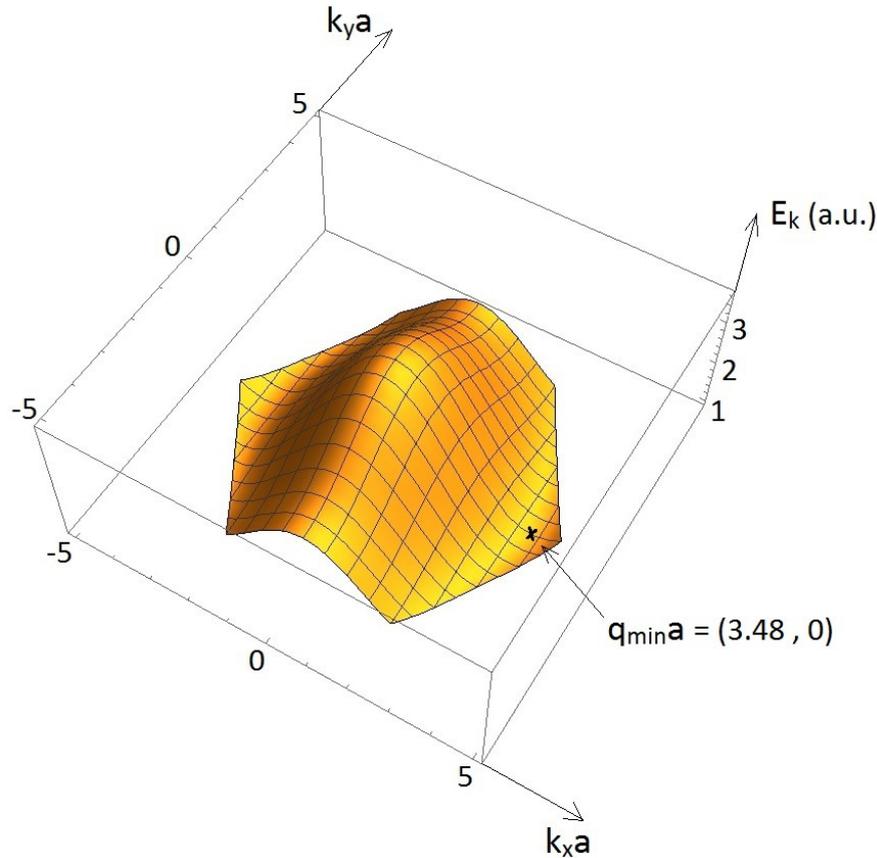


Рис. 5.4: Спектр магнонов спиновой системы на треугольной решетке в поле выше поля насыщения в первой зоне Бриллюэна (см. Рис. 5.3). Крестиком отмечена точка минимума этого спектра. График построен в среде функционального программирования *Wolfram Mathematica*.

показывает [57], что мода B , возбуждаемая в экспериментах по магнитному резонансу в Cs_2CuCl_4 на волновом векторе $q_0 = 0$, эквивалентна магнонной моде на волновом векторе $\vec{q}^* = \left(0, \frac{2\pi}{a\sqrt{3}}\right)$, причем резонансная частота моды B определяется по формуле (5.30) с точностью до членов порядка $\frac{(D'_b)^2}{J'} \ll J', J$. Кроме того, наибольшая точность теоретического расчета достигается при направлении поля вдоль оси b , поскольку при этом все спины ориентируются строго параллельно внешнему магнитному полю, и параметры D_a, D'_a, D_c, D'_c не вносят вклада в спектр магнонных возбуждений в гармоническом приближении теории спиновых волн.

Итак, имеются следующие частоты магнитного резонанса в Cs_2CuCl_4 в поле \vec{H} , большем поля насыщения, согласно формуле (5.30):

основная резонансная мода: $2\pi\hbar\nu_0(T) = E_{q_0}^{full}(T) = g\mu_B H$,

мода B : $2\pi\hbar\nu_B(T) = E_{\vec{q}^*}^{full}(T) = g\mu_B H - 4J' + \frac{8J'}{N} \sum_{\vec{q}} \frac{1 - \cos\left(\frac{q_x a}{2}\right) \cos\left(\frac{\sqrt{3}q_y a}{2}\right)}{e^{\frac{E_{\vec{q}}}{k_B T}} - 1}$

Помимо этого определим поле ферромагнитного насыщения в обменном приближении из условия: $\min_{\vec{k}}\{E_{\vec{k}}\} = 0$. Нетрудно проверить, что $\min_{\vec{k}}\{E_{\vec{k}}\}$ достигается при $\vec{q}_{min} = \left(\frac{2\pi}{a} - \frac{2}{a} \arccos\left(\frac{J'}{2J}\right), 0\right)$, откуда получим, что $g\mu_B H^{sat} = 2(J + J') + \frac{(J')^2}{2J}$ (см. Рис. 5.4).

Список литературы

- [1] H. Bethe
Zur Theorie der Metalle. I. Eigenwerte und Eigenfunktionen der linearen Atomkette
Z. Physik **71**, 205 (1931).
- [2] B. S. Shastry, B. Sutherland
Exact ground state of a quantum mechanical antiferromagnet
Physica B+C **108**, 1069 (1981).
- [3] N. D. Mermin, H. Wagner
Absence of Ferromagnetism or Antiferromagnetism in One- or Two-Dimensional Isotropic Heisenberg Models
Phys. Rev. Lett. **17**, 1133 (1966).
- [4] D. Sherrington, S. Kirkpatrick
Solvable Model of a Spin-Glass
Phys. Rev. Lett. **35**, 1792 (1975).
- [5] E. Dagotto, T. M. Rice
Surprises on the Way from One- to Two-Dimensional Quantum Magnets: The Ladder Materials
Science **271**, 618 (1996).
- [6] R. Coldea, D. A. Tennant, R. A. Cowley, D. F. McMorrow, B. Dorner, Z. Tylczynski
The Quasi-1D $S = \frac{1}{2}$ Antiferromagnet Cs_2CuCl_4 in a Magnetic Field
Phys. Rev. Lett. **79**, 1, 151 (1997).
- [7] R. Coldea, D. A. Tennant, A. M. Tsvelik, Z. Tylczynski
Experimental Realization of a 2D Fractional Quantum Spin Liquid
Phys. Rev. Lett. **86**, 7, 1335 (2001).
- [8] R. Coldea, D. A. Tennant, Z. Tylczynski
Extended scattering continua characteristic of spin fractionalization in the two-dimensional frustrated quantum magnet Cs_2CuCl_4 observed by neutron scattering
Phys. Rev. B **68**, 134424 (2003).
- [9] K. Yu. Povarov, A. I. Smirnov, O. A. Starykh, S. V. Petrov, A. Ya. Shapiro
Modes of magnetic resonance in the spin liquid phase of Cs_2CuCl_4
Phys. Rev. Lett. **107**, 037204 (2011).
- [10] A. I. Smirnov, K. Yu. Povarov, S. V. Petrov, A. Ya. Shapiro
Magnetic resonance in the ordered phases of the 2D frustrated quantum magnet Cs_2CuCl_4
Phys. Rev. B **85**, 184423 (2012).
- [11] И. Е. Дзялошинский
Термодинамическая теория «слабого» ферромагнетизма антиферромагнетиков
ЖЭТФ **32**, 1547 (1957).

- [12] T. Morya
Anisotropic Superexchange Interaction and Weak Ferromagnetism
Phys. Rev. **120**, 1, 91 (1960).
- [13] Y. Tokiwa, T. Radu, R. Coldea, H. Wilhelm, Z. Tylczynski, F. Steglich
Magnetic phase transitions in the two-dimensional frustrated quantum antiferromagnet Cs_2CuCl_4
Phys. Rev. B **73**, 134414 (2006).
- [14] S. A. Zvyagin, D. Kamenskyi, M. Ozerov, J. Wosnitzer, M. Ikeda, T. Fujita, M. Hagiwara, A. I. Smirnov, T. A. Soldatov, A. Ya. Shapiro, J. Krzystek, R. Hu, H. Ryu, C. Petrovic, and M. E. Zhitomirsky
Direct Determination of Exchange Parameters in Cs_2CuBr_4 and Cs_2CuCl_4 : High-Field Electron-Spin-Resonance Studies
Phys. Rev. Lett. **112**, 077206 (2014).
- [15] A. I. Smirnov, T. A. Soldatov, K. Yu. Povarov, A. Ya. Shapiro
High-field magnetic resonance of spinons and magnons in a triangular lattice $S = \frac{1}{2}$ antiferromagnet Cs_2CuCl_4
Phys. Rev. B **91**, 174412 (2015).
- [16] Е. К. Завойский
Парамагнитная абсорбция в растворах при параллельных полях
ЖЭТФ **15**, 253 (1945).
- [17] Ч. Пул
Техника ЭПР спектроскопии
М.: Мир (1970).
- [18] К. Ю. Поваров
Электронный спиновый резонанс в квазидвумерных антиферромагнетиках на треугольной и квадратной решетках
Диссертация на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук, ИФП им. П. Л. Капицы РАН (2013).
- [19] В. Н. Глазков
Экспериментальное исследование спин-пайерлсовского магнетика с дефектами
Диссертация на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук, ИФП им. П. Л. Капицы РАН (2003).
- [20] А. Г. Гуревич, Г. А. Мелков
Магнитные колебания и волны
М.: Физматлит (1994).
- [21] L. Hulthen
Über das Austauschproblem eines Kristalles
Arkiv Mat. Astron. Fysik **26A**, 1 (1938).
- [22] J. C. Bonner, M. E. Fisher
Linear Magnetic Chains with Anisotropic Coupling
Phys. Rev. **135**, A640 (1964).

- [23] S. Eggert, I. Affleck, M. Takahashi
Susceptibility of the spin 1/2 Heisenberg antiferromagnetic chain
Phys. Rev. Lett **73**, 332 (1994).
- [24] B. Bauer, L. D. Carr, H. G. Evertz, A. Feiguin, J. Freire, S. Fuchs, L. Gamper, J. Gukelberger, E. Gull, S. Guertler, A. Hehn, R. Igarashi, S. V. Isakov, D. Koop, P. N. Ma, P. Mates, H. Matsuo, O. Parcollet, G. Pawłowski, J. D. Picon et al
The ALPS project release 2.0: open source software for strongly correlated systems
J. Stat. Mech. P05001 (2011).
- [25] R. B. Griffiths
Magnetization Curve at Zero Temperature for the Antiferromagnetic Heisenberg Linear Chain
Phys. Rev. **133**, A768 (1964).
- [26] J. B. Parkinson, J. C. Bonner
Spin chains in a field: Crossover from quantum to classical behavior
Phys. Rev. B **32**, 4703 (1985).
- [27] G. Muller, H. Thomas, H. Beck, J. C. Bonner
Quantum spin dynamics of the antiferromagnetic linear chain in zero and nonzero magnetic field
Phys. Rev. B **24**, 1429 (1981).
- [28] J. Cloizeaux, J. J. Pearson
Spin-Wave Spectrum of the Antiferromagnetic Linear Chain
Phys. Rev. **128**, 2131 (1962).
- [29] P. W. Anderson
An Approximate Quantum Theory of the Antiferromagnetic Ground State
Phys. Rev. **86**, 694 (1952).
- [30] L. D. Faddeev, L. A. Takhtajan
What is the spin of a spin wave?
Phys. Lett. A **85**, 375 (1981).
- [31] J. S. Caux, R. Hagemans
The four-spinon dynamical structure factor of the Heisenberg chain
J. Stat. Mech. **2006**, P12013 (2006).
- [32] D. C. Dender, P. R. Hammar, D. H. Reich, C. Broholm, G. Aeppli
Direct Observation of Field-Induced Incommensurate Fluctuations in a One-Dimensional $S = 1/2$ Antiferromagnet
Phys. Rev. Lett. **79**, 1750 (1997).
- [33] Hamed Karimi, Ian Affleck
Transverse spectral functions and Dzyaloshinskii-Moriya interactions in XXZ spin chains
Phys. Rev. B **84**, 174420 (2011).

- [34] S. Gangadharaiah, J. Sun, O. A. Starykh
Spin-orbital effects in magnetized quantum wires and spin chains
Phys. Rev. B **78**, 054436 (2008).
- [35] T. Nagamiya, K. Nagata, Y. Kitano
Magnetization Process of a Screw Spin System
Progress of Theoretical Physics **27**, 1253 (1962).
- [36] A. V. Chubukov, S. Sachdev, T. Senthil
Large- S expansion for quantum antiferromagnets on a triangular lattice
J. Phys.: Condens. Matter **6**, 8891 (1994).
- [37] S. R. White, A. L. Chernyshev
Neel Order in Square and Triangular Lattice Heisenberg Models
Phys. Rev. Lett. **99**, 127004 (2007).
- [38] B. Bernu, P. Lecheminant, C. Lhuillier, L. Pierre
Exact spectra, spin susceptibilities, and order parameter of the quantum Heisenberg antiferromagnet on the triangular lattice
Phys. Rev. B **50**, 10048 (1994).
- [39] L. Capriotti, A. E. Trumper, S. Sorella
Long-Range Neel Order in the Triangular Heisenberg Model
Phys. Rev. Lett. **82**, 19, 3899 (1999).
- [40] D. Heidarian, S. Sorella, F. Becca
Spin- $\frac{1}{2}$ Heisenberg model on the anisotropic triangular lattice: From magnetism to a one-dimensional spin liquid
Phys. Rev. B **80**, 012404 (2009).
- [41] W. Zheng, R. R. P. Singh, R. H. McKenzie, R. Coldea
Temperature dependence of the magnetic susceptibility for triangular-lattice antiferromagnets with spatially anisotropic exchange constants
Phys. Rev. B **71**, 134422 (2005).
- [42] A. L. Chernyshev, M. E. Zhitomirsky
Spin waves in a triangular lattice antiferromagnet: Decays, spectrum renormalization, and singularities
Phys. Rev. B **79**, 144416 (2009).
- [43] W. Zheng, J. O. Fjerestad, R. R. P. Singh, R. H. McKenzie, R. Coldea
Anomalous Excitation Spectra of Frustrated Quantum Antiferromagnets
Phys. Rev. Lett. **96**, 057201 (2006).
- [44] W. Zheng, J. O. Fjerestad, R. R. P. Singh, R. H. McKenzie, R. Coldea
Excitation spectra of the spin-1/2 triangular-lattice Heisenberg antiferromagnet
Phys. Rev. B **74**, 224420 (2006).
- [45] M. Sharnoff
Electron Paramagnetic Resonance and the Primarily 3d Wavefunctions of the Tetrachlorocuprate Ion
J. Chem. Phys. **44**, 10, 3383 (1964).

- [46] M. Sharnoff
Electron Paramagnetic Resonance in Tetrahedrally Coordinated Copper⁺⁺: The Tetrachlorocuprate Ion
J. Chem. Phys. **44**, 10, 3383 (1964).
- [47] R. L. Carlin, R. Burriel, F. Palacio, R. A. Carlin, S. F. Keij, D. W. Carnegie
Linear chain antiferromagnetic interactions in Cs₂CuCl₄
J. Appl. Phys. **57**, 3351 (1985).
- [48] R. Coldea, D. A. Tennant, R. A. Cowley, D. F. McMorrow, B. Dorner, Z. Tylczynski
Neutron scattering study of the magnetic structure of Cs₂CuCl₄
J. Phys.: Condens. Matter **8**, 7473 (1996).
- [49] R. Coldea, D. A. Tennant, K. Habicht, P. Smeibidl, C. Wolters, Z. Tylczynski
Direct Measurement of the Spin Hamiltonian and Observation of Condensation of Magnons in the 2D Frustrated Quantum Magnet Cs₂CuCl₄
Phys. Rev. Lett. **88**, 13, 137203 (2002).
- [50] M. Kohno, O. A. Starykh, L. Balents
Spinons and triplons in spatially anisotropic frustrated antiferromagnets
Nature Physics **3**, 790 (2007).
- [51] O. A. Starykh, H. Katsura, L. Balents
Extreme sensitivity of a frustrated quantum magnet: Cs₂CuCl₄
Phys. Rev. B **82**, 014421 (2010).
- [52] A. I. Smirnov, K. Yu. Povarov, O. A. Starykh, A. Ya. Shapiro, S. V. Petrov
Low Energy Dynamics in Spin-Liquid and Ordered Phases of S = 1/2 Antiferromagnet Cs₂CuCl₄
Journal of Physics: Conference Series **400**, 032091 (2012).
- [53] J. M. Schrama, A. Ardavan, A. V. Semeno, P. J. Gee, E. Rzepniewski, J. Suto, R. Coldea, J. Singleton, P. Goy
Spin resonance studies of the quasi-one-dimensional Heisenberg antiferromagnet Cs₂CuCl₄
Physica B **256-258**, 637 (1998).
- [54] M. A. Fayzullin, R. M. Eremina, M. V. Eremin, A. Dittl, N. van Well, F. Ritter, W. Assmus, J. Deisenhofer, H.-A. Krug von Nidda, and A. Loidl
Spin correlations and Dzyaloshinskii-Moriya interaction in Cs₂CuCl₄
Phys. Rev. B **88**, 174421 (2013).
- [55] А. Абрагам, Б. Блини
Электронный парамагнитный резонанс переходных ионов
М.: Мир (1973).
- [56] M. Kohno
Dynamically Dominant Excitations of String Solutions in the Spin-1/2 Antiferromagnetic Heisenberg Chain in a Magnetic Field
Phys. Rev. Lett. **102**, 037203 (2009).

- [57] S. A. Zvyagin, D. Kamenskyi, M. Ozerov, J. Wosnitza, M. Ikeda, T. Fujita, M. Hagiwara, A. I. Smirnov, T. A. Soldatov, A. Ya. Shapiro, J. Krzystek, R. Hu, H. Ryu, C. Petrovic, and M. E. Zhitomirsky
Supplemental Material: Direct Determination of Exchange Parameters in Cs_2CuBr_4 and Cs_2CuCl_4 : High-Field Electron-Spin-Resonance Studies
Phys. Rev. Lett. **102**, 037203 (2009).
See Supplemental Material at
<http://link.aps.org/supplemental/10.1103/PhysRevLett.112.077206>
for details of calculations.