

Московский физико-технический институт (государственный университет)

Кафедра физики и техники низких температур

Институт физических проблем им. П. Л. Капицы РАН

Поваров Кирилл Юрьевич

Магнитный резонанс в квазидвумерном антиферромагнетике

на треугольной решетке Cs_2CuCl_4

Выпускная квалификационная работа

(магистерская диссертация)

Направление: 511600 — Прикладные математика и физика

Магистерская программа: 511611 — Физика низких температур

Научный руководитель:

д.ф.-м.н., в. н. с. Смирнов Александр Иванович

Москва – 2010

Содержание

Введение	3
Глава 1. Антиферромагнетики на треугольной решетке	7
1.1. Теоретические подходы	7
1.1.1. Классическое рассмотрение	7
1.1.2. Квантовое рассмотрение	9
1.2. Экспериментальные и теоретические исследования магнитных явлений в Cs_2CuCl_4	10
Глава 2. Электронный спиновый резонанс в Cs_2CuCl_4	16
2.1. Электронный парамагнитный резонанс	16
2.2. Методика и оборудование	20
2.2.1. Эксперимент	20
2.2.2. Образцы	23
2.3. Результаты для неупорядоченной фазы	25
2.3.1. Парамагнитный резонанс	25
2.3.2. Спектры магнитного резонанса при $H \parallel b$	28
2.3.3. Спектры магнитного резонанса при $H \parallel a$	34
2.3.4. Спектры магнитного резонанса при $H \parallel c$	37
2.3.5. Температурная зависимость щели	39
2.4. Обзор результатов для упорядоченной фазы	42
2.4.1. Переход в упорядоченную фазу	43
2.4.2. Спектр в упорядоченной фазе	45
Глава 3. Обсуждение результатов	47
3.1. Модель спиновых кластеров	47
3.1.1. Качественная модель	47
3.1.2. Сравнение с экспериментом	48
3.1.3. Недостатки модели	49
3.2. Наведение порядка магнитным полем: термодинамический подход	50
3.2.1. Сопоставление с экспериментом	52

3.3. Цепочка спинов $S = 1/2$: микроскопический подход	53
3.3.1. Альтернированное взаимодействие Дзялошинского–Мория	53
3.3.2. Цепочка с анизотропией	55
3.3.3. Сопоставление с экспериментом	56
3.4. Резонансные моды при $T = 0$	60
3.5. Выводы	62
Заключение	63
Литература	65

Введение

Большой интерес для современной физики представляет изучение таких систем, в которых квантовые взаимодействия определяют макроскопические свойства тела. Одним из примеров подобных систем могут служить квантовые магнетики, находящиеся в сильно коррелированном, но неупорядоченном состоянии при низких температурах. Под магнетиком здесь и далее мы понимаем систему обладающих магнитным моментом ионов, находящихся в узлах решетки диэлектрического кристалла. Такие ионы могут взаимодействовать друг с другом во-первых, посредством магнитных дипольных моментов, и, во-вторых, посредством обменных связей [1]. Обменное взаимодействие связано с *принципом Паули*, согласно которому волновая функция системы частиц с полуцелым спином должна быть антисимметричной относительно перестановок. Это приводит к тому, что распределение плотности заряда оказывается зависимым от взаимной ориентации спинов электронов. Таким образом, электростатический вклад в энергию оказывается различным для разных спиновых состояний. Заметим, что этот вклад, как правило, на несколько порядков превышает энергию диполь-дипольного взаимодействия между магнитными ионами. Именно обменное взаимодействие обычно является ответственным за магнитное упорядочение диэлектрических кристаллов.

Системы магнитных ионов, связанных обменным взаимодействием, описываются гамильтонианом Гейзенберга, имеющим следующий вид¹

$$\hat{H} = \sum_{\langle i,j \rangle} J_{ij} \hat{\mathbf{S}}_i \hat{\mathbf{S}}_j \quad (1)$$

Простейший вариант гамильтониана Гейзенберга учитывает взаимодействия только между ближайшими соседями. В этом случае, если $J < 0$, то говорят о ферромагнитном обмене, если $J > 0$ — об антиферромагнитном. Основным состоянием ферромагнетика является волновая функция вида $|\uparrow\uparrow\uparrow\dots\rangle$. Однако в случае антиферромагнитного обмена неелевская волновая функция вида $|\uparrow\downarrow\uparrow\dots\rangle$, предлагаемая на основе классического рассмотрения, собственной не является. Проблема основного состояния антиферромагнетика является важным вопросом современной физики. Точное решение задачи Гейзенберга известно только для двух случаев: для одномерной цепочки спинов $S = 1/2$ — так называемый «анзац Бете» [2] и для двумерной системы димеров

¹ Угловые скобки в $\langle i, j \rangle$ обозначают однократное суммирование по каждой паре $i \neq j$

Шастри–Сазерленда [3].

Для гейзенберговской системы с ограниченным радиусом взаимодействия (то есть $J_{ij} \rightarrow 0$ при $r_{ij} \rightarrow \infty$)² справедлива теорема Мермина–Вагнера [4]: *при конечной температуре одно- или двумерная изотропная гейзенберговская система спинов S с ограниченным радиусом взаимодействия не может находиться в упорядоченном состоянии.* Под упорядочением системы здесь понимается наличие ненулевой средней проекции спина на узле. Размерностью системы мы называем количество пространственных направлений, в которых существует взаимодействие между спинами (но не размерность спинового пространства!). Так, например, в спиновой цепочке ионы расположены одномерным образом, но спин каждого иона при этом может иметь проекцию на любое из трех пространственных направлений. Отсутствие дальнего порядка в одно- и двумерных системах при низкой температуре — проявление их квантовых свойств. Физическая причина отсутствия дальнего порядка в низкоразмерной системе заключается в разрушении параметра порядка длинноволновыми возбуждениями. В трехмерных антиферромагнетиках, как правило, реализуется неелевская волновая функция, но 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 вдоль одного или двух направлений сильно ослаблено. О таких веществах мы говорим как о квазидвумерных и квазиодномерных магнетиках. При очень низких температурах наличие малых, но ненулевых трехмерных взаимодействий может приводить к тому, что упорядоченное состояние все-таки возникает. Кроме трехмерных взаимодействий, нарушением условий теоремы Мермина–Вагнера также является наличие анизотропии.

Двумерная система спинов $S = 1/2$ на треугольной решетке является интересным объектом для исследования. Неелевский порядок типа $|\uparrow\downarrow\uparrow\downarrow\dots\rangle$ в такой системе заведомо не обладает наименьшей энергией даже в классическом случае, поскольку треугольная геометрия приводит к фрустрации обменных связей. В квазиклассическом пределе $S \rightarrow \infty$ основным состоянием такой модели является 120° -градусная спиновая структура с тремя подрешетками. В 1973 году Андерсон предположил, что в случае $S = 1/2$ дальний порядок отсутствует даже при $T = 0$ [5]. Последние результаты,

² Что всегда выполняется в реальных системах, так как величина обменного интеграла связана с перекрытием экспоненциально спадающих с расстоянием электронных волновых функций

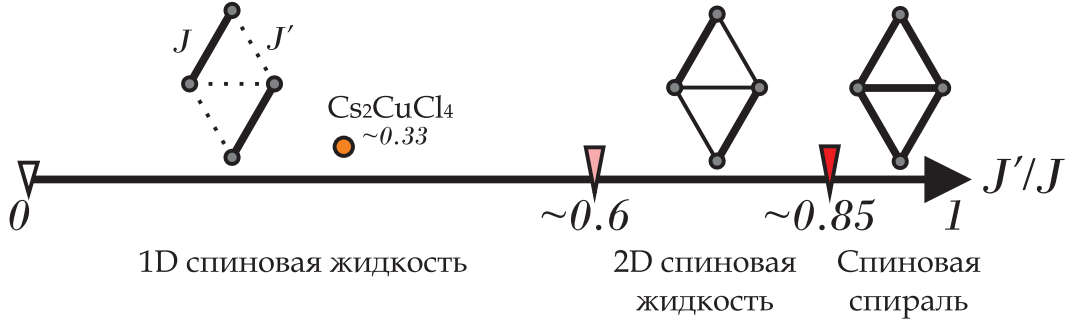


Рис. 1. Фазовая диаграмма для описываемой гамильтонианом (2) модели при $T = 0$ [8]. Треугольниками отмечены переходы, оранжевая точка — положение Cs_2CuCl_4 на данной фазовой диаграмме.

полученные путем численного моделирования [6], [7], показывают, что это не так, и 120-градусная структура существует и в квантовом случае $S = 1/2$. Однако, при этом наблюдается сильная (около 80%) редукция упорядоченной компоненты спина на узле. Это свидетельствует о сильном влиянии нулевых колебаний на основное состояние, и, следовательно, о возможности реализации в подобной системе существенно квантовых магнитных состояний. Изменением параметров системы, приводящим к изменению основного состояния, может являться искажение обменных связей треугольной решетки. Случай искаженной треугольной решетки описывается гамильтонианом вида

$$\hat{\mathcal{H}} = J \sum_i \hat{\mathbf{S}}_i \hat{\mathbf{S}}_{i+1} + J' \sum_{\langle i,k \rangle} \hat{\mathbf{S}}_i \hat{\mathbf{S}}_k \quad (2)$$

Здесь существует два типа обменных связей (см. рис. 1): обмен J связывает магнитные ионы вдоль одномерных цепочек (суммирование по i), а обмен J' есть диагональная связь между такими цепочками (суммирование по i, k). Такой гамильтониан является интерполяцией между точно решаемой моделью невзаимодействующих цепочек со спином $S = 1/2$ ($J' = 0$), изотропной треугольной решеткой ($J' = J$) и квадратной решеткой ($J = 0$). Исследование свойств такой модели представляет большой интерес, поскольку она охватывает большой класс магнетиков и допускает сравнение с точными аналитическими результатами. Очень важной является область параметров модели $J'/J \lesssim 1$. Согласно численному моделированию [8], изменение параметра J'/J в пределах от 0 до 1 в гамильтониане (2) дает два фазовых перехода: первый — от одномерных корреляций к двумерным, второй — от неупорядоченного основного состояния к спиральной структуре. Соответствующая фазовая диаграмма изображена на рисунке 1.

На данный момент известно не так много соединений, в качестве основы для опи-

сания которых подходит гамильтониан (2) с параметрами J и J' такими, что $J'/J \lesssim 1$. Одним из таких соединений является Cs_2CuCl_4 (соотношение обменных интегралов $\frac{J'}{J} \simeq 0.33$), исследованию которого методом электронного спинового резонанса посвящена данная работа.

Данная работа состоит из трех глав. Первая глава носит обзорный характер и посвящена описанию свойств гейзенберговских антиферромагнетиков на треугольной решетке, а также обзору имеющихся на данный момент экспериментальных данных по Cs_2CuCl_4 . Вторая глава посвящена описанию экспериментов по спиновому магнитному резонансу в Cs_2CuCl_4 , проводимых в 2008 – 2010 годах в ИФП им. П. Л. Капицы РАН и содержит оригинальные результаты. Третья глава посвящена обсуждению результатов и их интерпретации.

Антиферромагнетики на треугольной решетке

1.1. Теоретические подходы

1.1.1. Классическое рассмотрение

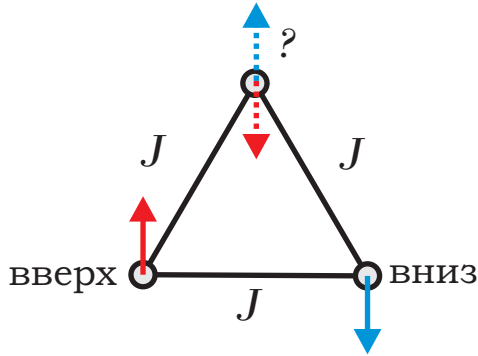


Рис. 1.1. Невозможность неелевского порядка вида $|\uparrow\downarrow\uparrow\downarrow\dots\rangle$ в спиновой системе на изотропной треугольной решетке.

120°-градусная структура

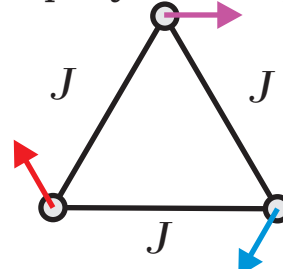


Рис. 1.2. «Классическое» основное состояние спиновой системы на изотропной треугольной решетке — 120-градусная планарная структура.

Антиферромагнетик на треугольной решетке является примером фрустрированной спиновой системы. Геометрическая особенность решетки приводит к тому, что минимизация энергии для всех парных взаимодействий невозможна (рис. 1.1). Таким образом, неелевский порядок $|\uparrow\downarrow\uparrow\downarrow\dots\rangle$ заведомо не является минимизирующим энергию даже в классическом пределе. Для классического (то есть при $S \rightarrow \infty$, или, что то же самое, при замене операторов на средние значения в гамильтониане Гейзенберга (1)) антиферромагнетика на треугольной решетке основным состоянием в нулевом магнитном поле является планарная структура, в которой спины расположены под углом 120° друг к другу — рисунок 1.2. Такое основное состояние является сильно вырожденным, поскольку система спинов допускает вращение с сохранением взаимной ориентации (как и в любой системе с изотропным обменом).

Задача Нагамии [9] об обменно связанных ферромагнитных плоскостях, рассматриваемых классически в рамках теории молекулярного поля, отображается на задачу об антиферромагнетике на искаженной треугольной решетке, и таким образом мож-

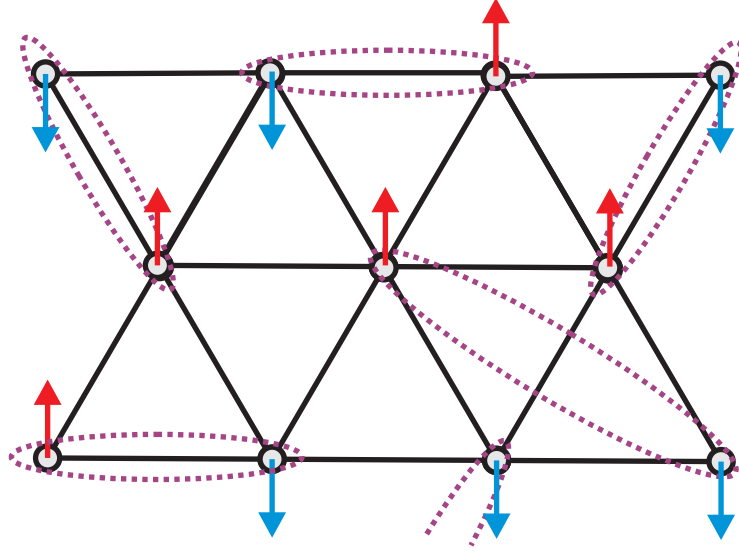


Рис. 1.3. Резонансные валентные связи. Волновая функция основного состояния является суперпозицией всех возможных комбинаций димеров.

но получить фазовую диаграмму последней в магнитном поле. Точный гамильтониан такой задачи об антиферромагнетике есть

$$\hat{\mathcal{H}} = J \sum_i \hat{\mathbf{S}}_i \hat{\mathbf{S}}_{i+1} + J' \sum_{\langle i,k \rangle} \hat{\mathbf{S}}_i \hat{\mathbf{S}}_k + \mu_B g \sum_j \hat{S}_j^z H \quad (1.1)$$

Согласно результатам Нагамии, в классическом приближении основным состоянием в нулевом поле является спиральная структура

$$\mathbf{S}(\mathbf{r}) = S \begin{pmatrix} \cos(\pi \mathbf{q} \mathbf{r} + \phi) \\ \sin(\pi \mathbf{q} \mathbf{r} + \phi) \\ 0 \end{pmatrix} \quad (1.2)$$

с волновым вектором \mathbf{q} , направленным вдоль направления выделенного обмена J , таким, что

$$\cos(\pi q) = -\frac{J'}{2J} \quad (1.3)$$

Радиус-вектор \mathbf{r} здесь пробегает все значения в узлах кристаллической решетки.

В случае $J = J'$ выражения (1.2) и (1.3) приводят нас к уже упоминавшейся 120° -градусной планарной структуре. Фазовый параметр ϕ в выражении (1.2) связан с вырожденностью спиновой структуры относительно однородных поворотов.

1.1.2. Квантовое рассмотрение

Проблема квантового рассмотрения гейзенберговского антиферромагнетика со спином $S = 1/2$ на треугольной решетке связана со сложностью учета квантовых флуктуаций, которые для малого спина являются сильными. В отличие от одномерного «анзаца Бете» [2], для двумерной треугольной решетки точного решения не существует. Соответственно, возникает вопрос, волновыми функциями какого вида следует пользоваться в качестве начального приближения. В 1973 году Андерсон [5] предложил модель «резонансных валентных связей»¹, которая схематично изображена на рисунке 1.3. В этой модели волновая функция основного состояния составлена из произведений волновых функций отдельных димеров, то есть

$$\Psi = \prod_{\langle i,j \rangle} \frac{|\uparrow_i \downarrow_j\rangle - |\downarrow_i \uparrow_j\rangle}{\sqrt{2}} \quad (1.4)$$

Очевидно, что для получения волновой функции вида (1.4) можно выбрать набор димеров бесконечным числом способов, следовательно, основное состояние оказывается сильно вырожденным. Элементарные возбуждения в такой модели возникают при изменении конфигурации димеров на решетке, то есть при переходе между разными волновыми функциями вида (1.4). Такое элементарное возбуждение можно представить как неспаренный спин, перемещающийся между узлами решетки (см. рис. 1.4). Эти возбуждения называются спинонами и имеют спин $S = 1/2$ [10], [11]. Заметим, что точное решение для одномерной цепочки устроено аналогичным образом [5]. Предложенное Андерсоном основное состояние при $T = 0$ является неупорядоченным и представляет пример квантовой спиновой жидкости. Отдельный интерес представляет существование в такой системе элементарных возбуждений с дробными квантовыми числами (поскольку спиноны имеют спин $S = 1/2$, в то время как в обычном антиферромагнетике с неелевским порядком элементарными возбуждениями являются магноны, имеющие спин $S = 1$).

Более поздние теоретические расчеты [12] и численное моделирование [13], [14], [7], показали существование 120° -градусного дальнего порядка (1.2) при $T = 0$. Однако этот порядок оказался сильно перенормированным — редукция спина на узле достигает здесь 80%. Нулевые колебания также сильно влияют на спектр спиновых волн. Вычисление квантовых поправок к спектру возбуждений для такого основного состояния [15],

¹ Далее — PBC

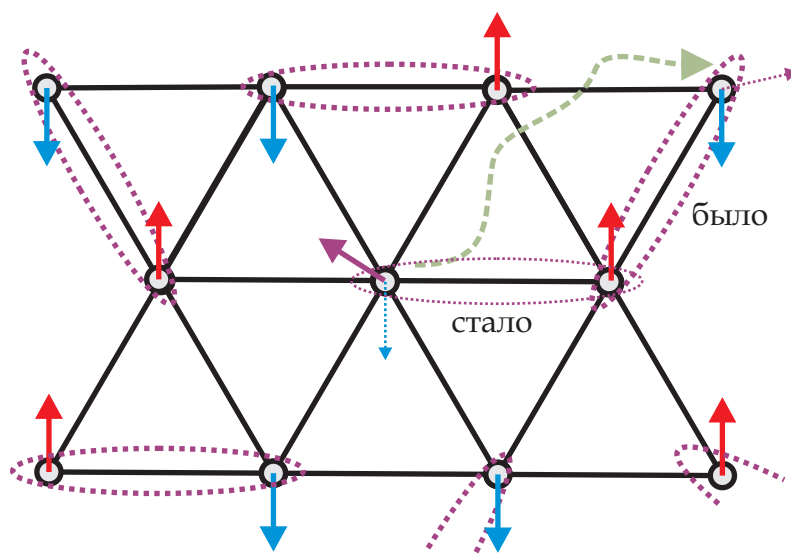


Рис. 1.4. Элементарное возбуждение в модели РВС — неспаренный спин, путешествующий между узлами решетки при изменении конфигурации димеров.

а также получение этого спектра путем численного моделирования [6], показали, что классическая картина спиновых волн оказывается весьма сильно модифицированной. Так, полученный путем численного моделирования спектр магнонов, приведенный на рисунке 1.5, оказывается не только сильно перенормированным по сравнению с классическим результатом, но также обнаруживает наличие нескольких новых особенностей — «ротонных минимумов» на границах зоны Бриллюэна, совершенно отсутствующих в классической теории спиновых волн. Все это говорит о том, что свойства квантового антиферромагнетика на треугольной решетке сильно отличаются от свойств классического. В уже упоминавшейся ранее работе [8] показано, что для $S = 1/2$ внесение искажения в треугольную решетку ($J' \neq J$) может привести к исчезновению дальнего порядка.

1.2. Экспериментальные и теоретические исследования магнитных явлений в Cs_2CuCl_4

Кристалл Cs_2CuCl_4 имеет орторомбическую группу симметрии P_{nma} . Одна элементарная ячейка содержит четыре иона Cu^{2+} . Ионы меди со спином $S = 1/2$ упорядочены в слой с искаженной треугольной решеткой в плоскости bc ; одна элементарная ячейка содержит два таких слоя (рисунок 1.6).

Первые исследования ЭПР в Cs_2CuCl_4 проводились в 1964 году М. Шарновым

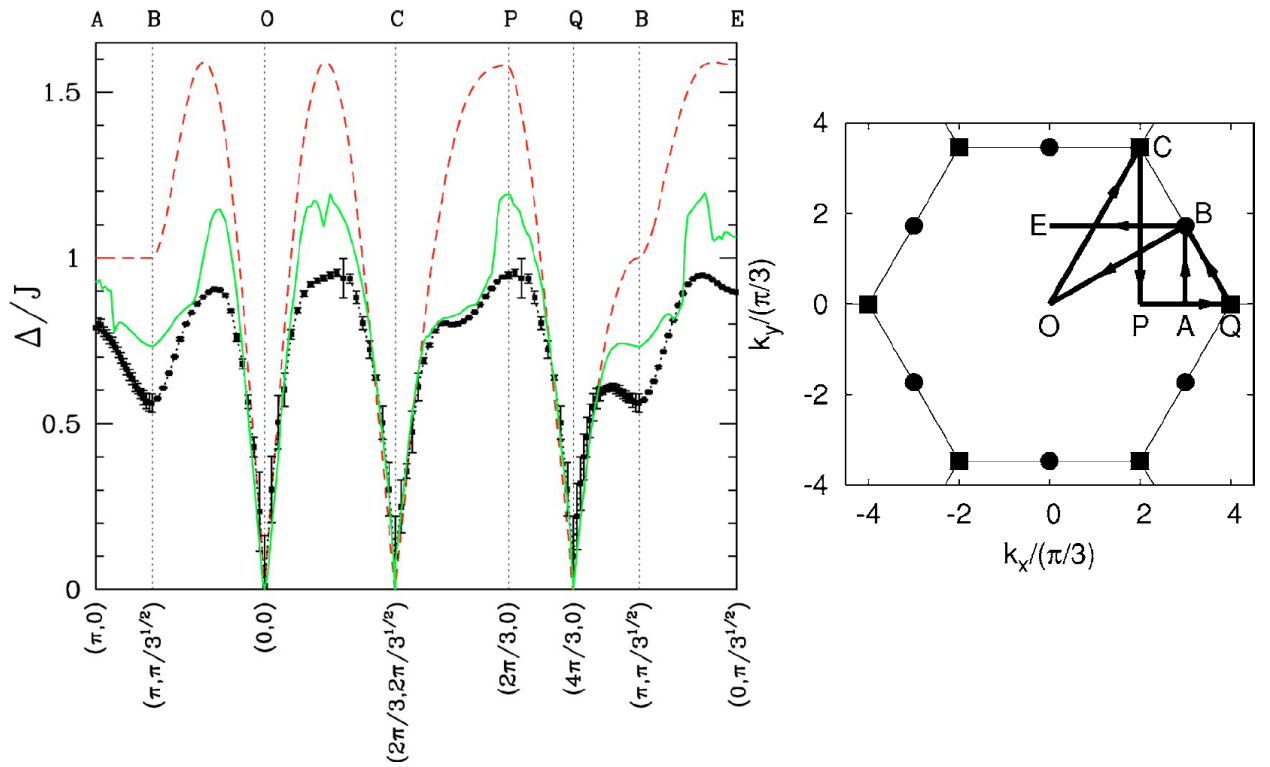


Рис. 1.5. Сечение спектра элементарных возбуждений в модели с неискаженной треугольной решеткой вдоль траектории АВОСРQВЕ в зоне Бриллюэна (показана справа). Красный пунктир — классический расчет по теории спиновых волн, зеленая линия — поправки порядка $1/S$ к теории спиновых волн, точки — результат численного моделирования. Из работы [6].

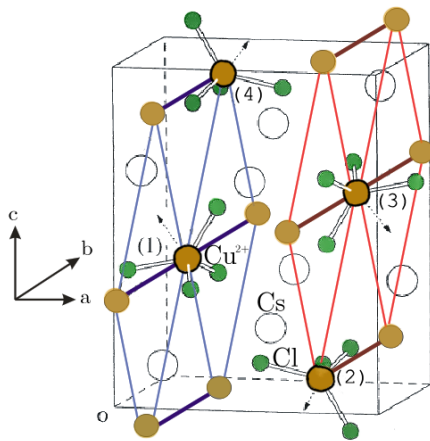


Рис. 1.6. Элементарная ячейка Cs_2CuCl_4 . Красным и синим показаны два содержащие треугольную решетку слоя, проходящие через ячейку. Четыре иона Cu^{2+} , относящиеся к данной ячейке, обведены черным.

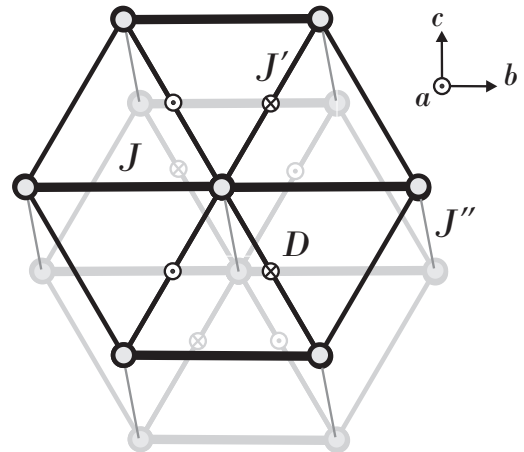


Рис. 1.7. Полная структура обменных связей в Cs_2CuCl_4 согласно [22]. Межцепочечный обмен $J' \sim \frac{1}{3}J$, межплоскостной обмен J'' и взаимодействие Дзялошинского-Мория $D \sim 0.01J$.

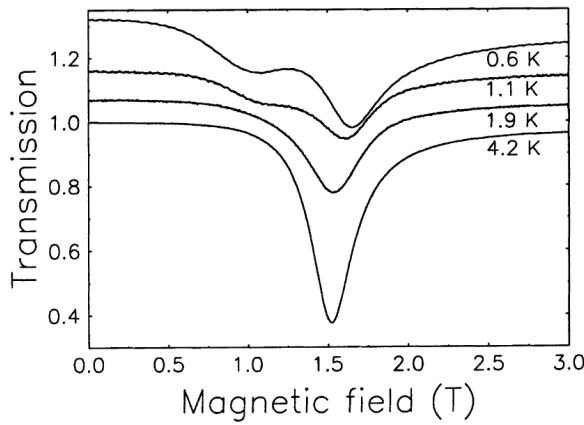


Рис. 1.8. Эволюция линии ЭПР в Cs_2CuCl_4 с понижением температуры. Частота $f = 48.5$ ГГц, магнитное поле вдоль оси c . Из работы [21].

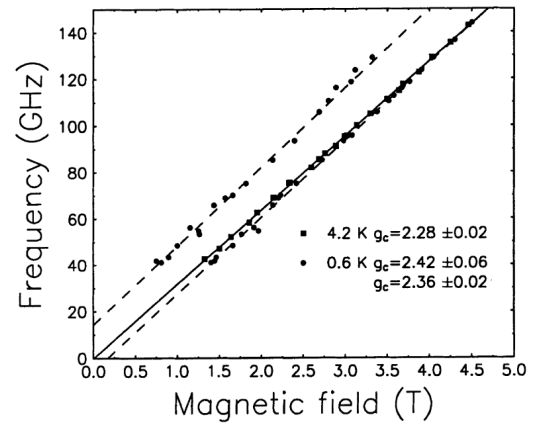


Рис. 1.9. Частотно-полевого спектра в Cs_2CuCl_4 при $T = 0.6$ К и $T = 4.2$ К, магнитное поле направлено вдоль оси c . Из работы [21].

[16], [17]. В этих работах парамагнитный резонанс изучался при температурах $T = 300$ К и $T = 77$ К. При таких температурах Cs_2CuCl_4 вел себя как обычный парамагнетик с $g_a = 2.200 \pm 0.002$, $g_b = 2.083 \pm 0.002$ и $g_c = 2.297 \pm 0.002$. Первое исследование этого вещества при низких температурах было проведено в 1996 году Р. Колди с коллегами [18]: методом упругого рассеяния нейтронов изучалась магнитная структура. Было обнаружено, что при $H = 0$ магнитный порядок наступает при $T_N = 0.62$ К. По температурной зависимости интенсивности магнитного брэгговского рефлекса был определен критический индекс $\beta = 0.31 \pm 0.025$, связанный с ростом параметра порядка. Магнитная структура ниже T_N представляет собой спираль с волновым вектором $q = 0.472$, направленным вдоль оси b . Сама спираль слегка отклоняется от плоскости bc (примерно на 17°), причем направление отклонения чередуется для четных и нечетных b -цепочек. Дальнейшие исследования [19], [20] показали, что в магнитном поле картина нейтронного рассеяния существенно меняется. При поле, направленном вдоль оси a , происходит постепенная трансформация структуры из спиральной в коническую, вплоть до схлопывания в поле насыщения. Кроме того, вектор спирали q также имеет зависимость от магнитного поля. При $H||c$ в поле 1.4 Т возникает новая фаза, идентифицированная как «эллиптическая». Необычной особенностью данной фазы является линейная зависимость $q(H)$. В поле 2.1 Т было обнаружено исчезновение нейтронных рефлексов, соответствующих несоразмерной структуре.

Также в 1998 году был проведен эксперимент по электронному спиновому резонан-

су выше T_N [21]. Было обнаружено, что при понижении температуры возникает сильная анизотропия спектра поглощения СВЧ, а также возникает добавочная линия при некоторых ориентациях внешнего магнитного поля. Температурная эволюция линии ЭПР изображена на рисунке 1.8, частотно–полево́й спектр резонанса изображен на рисунке 1.9.

В 2002 году был поставлен эксперимент, позволивший непосредственно определить параметры обменного гамильтониана. Поместив систему в магнитное поле $H \simeq 12$ Т, большее поля насыщения, авторы [22], [23] измерили спектр возбуждений в индуцированной полем ферромагнитной фазе с помощью неупругого рассеяния нейтронов. Поскольку ферромагнитное основное состояние позволяет рассчитать спектр спиновых волн аналитически, сравнивая экспериментальные результаты с теоретическим предсказанием, мы можем определить параметры исходного гамильтониана. Таким образом были определены обменные интегралы $J = 0.37$ мэВ, $J' = 0.13$ мэВ, $J'' = 0.02$ мэВ. Кроме того, было обнаружено небольшое расщепление спектра, объясненное наличием неоднородного взаимодействия Дзялошинского–Мория [24], [25] вдоль связей J' (см. рис. 1.7). При учете такого взаимодействия хорошее согласие с экспериментальными данными достигается при $\mathbf{D}||a$, $D = 0.02$ мэВ. Таким образом, было показано, что обменное взаимодействие в Cs_2CuCl_4 носит существенно двумерный характер. То, что экспериментально определенные J , J' и q не соответствуют классической формуле 1.3, указывает на влияние квантовых флуктуаций.

В 2003 году Р. Колди с коллегами опубликовали детальное исследование спектра в первой зоне Бриллюэна в нулевом магнитном поле при различных температурах [26]. Ключевая особенность этого спектра — сосуществование ниже T_N острого пика, соответствующего рассеянию на магнонах, и широкого континуума, простирающегося в область больших энергий. Были попытки интерпретировать эти результаты как в рамках высоких приближений спин-волновой теории по $1/S$ с учетом многомагнонных процессов [27], так и в терминах возбуждений с дробными квантовыми числами (т. е. «спионов») [28], [29]. Спионный подход хорошо описывает спектральную плотность континуума, в то время как $1/S$ разложение дает результаты, отличающиеся от экспериментальных.

В 2006 году была полностью изучена фазовая диаграмма Cs_2CuCl_4 [30]. Она представляет собой совокупность данных, полученных из рассеяния нейтронов, измерения магнитной восприимчивости (рис. 1.10), кривых намагничивания и теплоемкости. Фа-

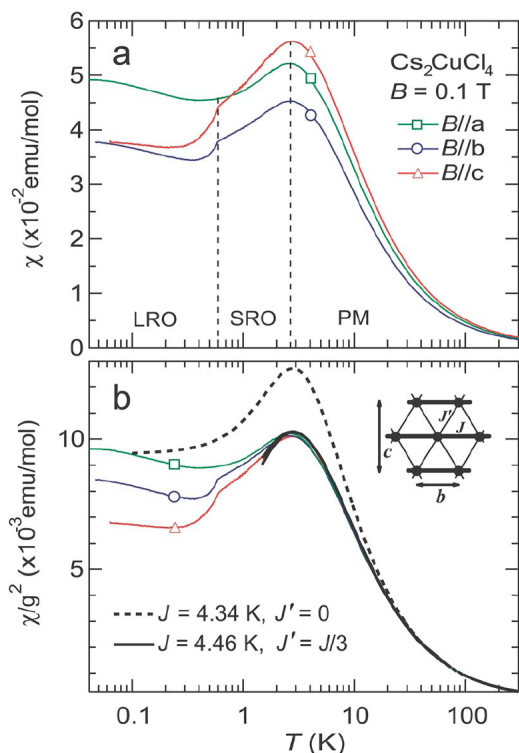


Рис. 1.10. а) Магнитная восприимчивость $\chi(T)$ монокристалла Cs_2CuCl_4 для главных ориентаций магнитного поля. б) Те же магнитные восприимчивости $\chi_a(T)$, $\chi_b(T)$, $\chi_c(T)$, нормированные на g^2 . Из работы [30].

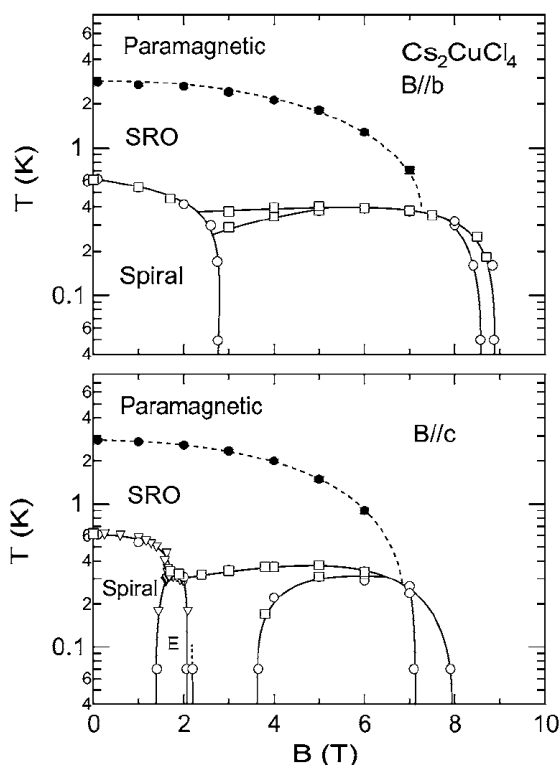


Рис. 1.11. Фазовая диаграмма Cs_2CuCl_4 для направлений магнитного поля $B||b$ и $B||c$ соответственно. Символы: \circ — особенности в намагниченности, \square — особенности в теплоемкости, \triangle — данные нейтронов, \bullet — максимумы магнитной восприимчивости. Из работы [30].

зовые диаграммы для направлений магнитного поля вдоль осей b и c изображены на рисунке 1.11. При высоких температурах вещество находится в парамагнитной фазе. При понижении температуры происходит переход от парамагнитного к спин-жидкостному поведению (SRO). Обозначающая данный плавный переход пунктирная линия проведена по температурам максимумов восприимчивости (рис. 1.10). Температура упорядочения в спиральную структуру $T_N = 0.62$ К. При температурах ниже $T \lesssim 0.3$ К появляется несколько новых фаз для полей, лежащих в плоскости bc . Выше 8 Тесла индуцируется ферромагнитный порядок, ему предшествует коническая несоизмерная структура. Природа остальных фаз остается пока что неясной. Попыткам теоретического объяснения фазовой диаграммы посвящены работы Вейлетта и Чалкера [31], [32]. Работа [31] позволила объяснить зависимость $q(H)$ для $H||a$ в рамках спин-волновой теории с учетом квантовых флуктуаций. Успехом работы [32] является идентифика-

ция одной из новых фаз² с указанием ее магнитной структуры. Однако этот подход не объяснял, почему качественным образом различаются фазовые диаграммы для полей, направленных вдоль осей b и c , поскольку используемый гамильтониан в плоскости bc симметричен. Следующий шаг в объяснении фазовой диаграммы был сделан О. Старых и коллегами в еще неопубликованной работе [33]. Рассматривая все допускаемые симметрией взаимодействия Дзялошинского–Мория, они обнаружили, что введение в гамильтониан еще одного вектора Дзялошинского–Мория \mathbf{D}' , лежащего в плоскости ac , связывающего спины в спиновых цепочках вдоль оси b и однородного вдоль этой оси позволяет качественным образом полностью объяснить фазовую диаграмму 1.11.

Также были проведены эксперименты по ядерному магнитному резонансу на ядрах ^{133}Cs [34]. Была измерена зависимость константы спин-решеточной релаксации T_1^{-1} от магнитного поля и температуры. Измерения ЯМР подтвердили отсутствие *структурных* переходов в кристалле Cs_2CuCl_4 . Последняя на текущий момент экспериментальная работа по магнитным свойствам Cs_2CuCl_4 — магнитоакустические измерения, подтверждающие наличие сильных корреляций при $T > T_N$ [35].

² Вейлетт и Чалкер пользовались разложением по $\frac{H}{H_c}$ в гамильтониане вблизи поля насыщения. Это разложение подтвердило предсказание классической теории о конической несоизмерной структуре, предшествующей ферромагнитному упорядочению, и также позволило обнаружить существование области полей, в которой энергию минимизирует соразмерная структура

Электронный спиновый резонанс в Cs_2CuCl_4

2.1. Электронный парамагнитный резонанс

Электронный парамагнитный резонанс, являющийся очень распространенным и точным инструментом в исследовании магнитных явлений, был открыт Е. К. Завойским в 1944 году [36]. Суть явления магнитного резонанса можно вкратце объяснить следующим образом: происходит резонансное поглощение фотона при переходе между зеемановскими уровнями в магнитном поле. Для системы невзаимодействующих спинов $S = 1/2$ (см. рисунок 2.1) в магнитном поле энергия расщепления равна

$$\Delta E = \mu_B g H \Delta S = \mu_B g H \quad (2.1)$$

Соответственно, поглощение фотона со спином $S = 1$ может происходить при

$$\hbar\omega = \mu_B g H \quad (2.2)$$

Строгое квантовомеханическое описание явления магнитного резонанса сводится к рассмотрению гамильтониана вида

$$\hat{\mathcal{H}} = \hat{\mathcal{H}}_0 - \hat{\mu}_z \mathbf{H} - \hat{\mu}_x \cdot \mathbf{h} \cos \omega t \quad (2.3)$$

Здесь \mathbf{H} — внешнее постоянное магнитное поле, направленное вдоль оси z , \mathbf{h} — амплитуда внешнего осциллирующего поля вдоль оси x , а $\hat{\mathcal{H}}_0$ — гамильтониан невозмущенной

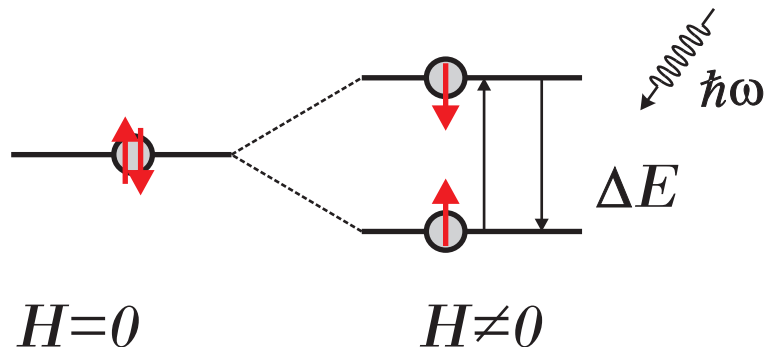


Рис. 2.1. Расщепление спиновых подуровней магнитным полем и переход между ними с поглощением фотона для $S = 1/2$. Разность энергий уровней в магнитном поле есть $\Delta E = \mu_B g H$.

системы. Решение согласно теории возмущений дает [37] вероятность перехода между состояниями $|a\rangle$ и $|b\rangle$, выражающуюся следующим соотношением:

$$\rho_{ab} = \frac{\pi}{\hbar} |\langle a | \hat{\mu}_x h | b \rangle|^2 \delta(\Delta E_{ab} - \hbar\omega) \quad (2.4)$$

Наличие дельта-функции в формуле (2.4) обеспечивает выполнение условия (2.2). Заметим также, что (2.2) справедливо только для изолированных магнитных ионов. При наличии магнитного порядка аналогичное условие в формуле (2.4) будет иметь более сложный вид. Переходы между состояниями $|a\rangle$ и $|b\rangle$ возможны только при наличии разности заселенностей, которую обеспечивает температура, малая по сравнению с разностью энергий. Отношение заселенностей определяется больцмановским фактором

$$\frac{N_b}{N_a} = \exp\left(-\frac{\Delta E_{ab}}{T}\right) \quad (2.5)$$

За счет процессов релаксации происходит обратный переход из $|b\rangle$ в $|a\rangle$, а энергия поглощенного поля переходит в тепловые колебания кристаллической решетки.

Характерное магнитное поле, применяемое в эксперименте, составляет примерно 1 Тесла, следовательно, исходя из соотношения (2.2), характерная частота поглощаемого фотона — несколько десятков гигагерц. Длина волны фотона с $\nu \sim 100$ ГГц составляет $\lambda \sim 3$ мм. Значит, отношение импульса СВЧ-фотона к вектору обратной решетки есть величина порядка

$$\frac{k_\omega}{k_D} \sim \frac{a_B}{\lambda} \sim 10^{-7} \quad (2.6)$$

Следовательно, при магнитном резонансе мы изучаем возбуждения спиновой системы в центре зоны Бриллюэна, что соответствует пространственно однородным колебаниям. С макроскопической точки зрения, величину потерь, связанных с поглощением СВЧ в образце определяет мнимая часть обобщенной восприимчивости $\chi''(\omega, 0)$. Обобщенное условие резонанса типа (2.2) записывается в виде $H_{res} = H_{res}(\omega)$, тогда в резонансе χ'' имеет особенность вида

$$\chi''(H) \propto \frac{1}{1 + \left(\frac{H - H_{res}(\omega)}{\Delta H_{1/2}}\right)^2} \quad (2.7)$$

Поглощаемая в образце мощность будет определяться выражением

$$P_M = \frac{1}{2} \chi'' h^2 \omega V_s \quad (2.8)$$

где V_s есть объем образца. Для того, чтобы оптимизировать мощность потерь, образец помещают в резонатор, настроенный на данную частоту. Потери в резонаторе без

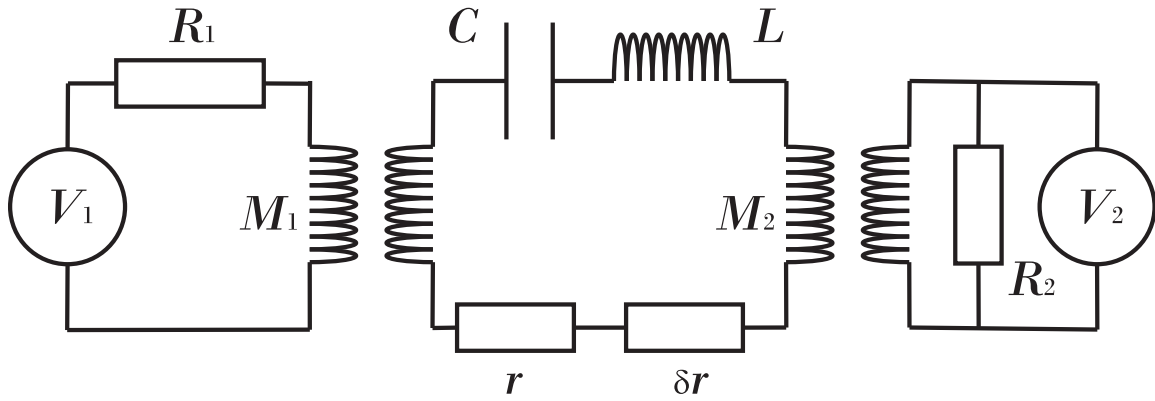


Рис. 2.2. Эквивалентная схема проходного резонатора, подключенного к генератору и детектору.

образца могут быть записаны в виде

$$P_{\Omega} = \frac{1}{Q_0} \omega \frac{h^2}{8\pi} V, \quad (2.9)$$

где Q_0 - добротность ненагруженного резонатора, V - эффективный объем резонансной полости¹. Таким образом, отношение потерь в объеме образца к потерям в стенках резонатора равно

$$\frac{P_M}{P_{\Omega}} = 4\pi \chi'' Q_0 \eta, \quad \eta = \frac{V_s}{V}. \quad (2.10)$$

Для достижения наибольшей чувствительности мы должны максимизировать это соотношение. Это достигается увеличением коэффициента заполнения η (т. е. расположением образца в максимуме магнитного поля) и увеличением добротности резонатора.

Опишем теперь спектрометр в терминах эквивалентной цепи с сосредоточенными параметрами, изображенной на рисунке 2.2. Источник мощности с внутренним сопротивлением R_1 и напряжением V_1 индуктивно связан коэффициентом взаимной индукции M_1 с резонансным контуром, имеющим сопротивление r . Вольтметр с входным сопротивлением R_2 , напряжение на котором равно V_2 , также индуктивно связан коэффициентом взаимной индукции M_2 с контуром и измеряет мощность в нем. Дополнительные потери мощности в образце описываются добавочным сопротивлением δr в колебательном контуре. Таким образом, параметры V_1 и R_1 описывают источник СВЧ и входной тракт, резонансный контур описывает полостной резонатор, V_2 и R_2 — выходной тракт и приемник (детектор). Индуктивные связи M_1 и M_2 соответствуют входному и выходному отверстиям связи в резонаторе (эта связь является именно индуктивной, поскольку

¹ $V = \frac{\int H^2 dV}{h^2}$, интеграл берется по объему резонатора

отверстия связи располагаются на стенках резонатора, вблизи которых электрическое поле E минимально). Сопротивление r описывает потери в ненагруженном резонаторе.

Поскольку $\delta r \ll r$, из соотношения (2.10) мы можем записать:

$$\frac{\delta r}{r} = 4\pi\chi''Q_0\eta. \quad (2.11)$$

Полагая V_1 постоянным, мы должны связать изменение напряжения V_2 с δr . Источник мы будем характеризовать мощностью на согласованной нагрузке $P_1 = V_1^2/4R_1$. Пересчитанные на настроенный контур сопротивления R_1 и R_2 будут записываться как $r_1 = \omega^2 M_1^2/R_1$ и $r_2 = \omega^2 M_2^2/R_2$ соответственно. Отсюда следует (см. [38]), что

$$\frac{V_2}{\sqrt{R_2}} = \frac{2\sqrt{P_1} \sqrt{r_1 r_2}}{r_1 + r_2 + r} \quad (2.12)$$

и, следовательно

$$\frac{|\delta V_2|}{\sqrt{R_2}} = \frac{2\sqrt{P_1} \sqrt{r_1 r_2}}{r_1 + r_2 + r} \delta r \quad (2.13)$$

Теперь мы должны оптимизировать это соотношение по параметрам r_1 и r_2 (регулировкой коэффициентов связи). Максимум достигается при $r_1 = r_2 = r/2$. Тогда соотношение (2.13) переписется в виде

$$\frac{|\delta V_2|}{\sqrt{R_2}} = \frac{1}{4} \sqrt{P_1} \frac{\delta r}{r} \quad (2.14)$$

Заметим, что в случае оптимальной связи добротность нагруженного резонатора Q равна половине добротности ненагруженного резонатора Q_0 .

Если детектор имеет эквивалентную температуру шумов T_D и полосу пропускания по частоте df , то сигнал на выходе равен шуму при условии

$$\frac{|\delta V_2|}{\sqrt{R_2}} = \sqrt{kT_D df} \quad (2.15)$$

Считая, что этот случай соответствуем минимальному обнаружимому сигналу, мы таким образом находим из соотношений (2.11) и (2.15):

$$\chi''_{min} = \frac{1}{\pi Q_0 \eta} \left(\frac{kT_D df}{P_1} \right)^{1/2} \quad (2.16)$$

Можно оценить величину этой минимально обнаружимой восприимчивости: подставив в формулу (2.16) типичные параметры ($Q_0 = 5000$, $P_1 = 40$ мВт, $V = 3$ см³, $T_D = 300$ К, $df = 1$ Гц), мы получим $\chi''_{min} = 2 \cdot 10^{-13}$.

Рассмотрим, как связан с χ'' наблюдаемый на детекторе сигнал при измерении «на проход». Пусть β — коэффициент связи с источником ненагруженного резонатора.

Из электродинамических соображений (см. [39]) следует, что

$$P_M + P_\Omega = \frac{4\beta_L}{(1 + \beta_L)^2} \cdot P_{source}, \quad (2.17)$$

$$\beta_L = \frac{\beta}{1 + P_M/P_\Omega} \quad (2.18)$$

Подставив (2.18) в (2.17), мы получим

$$P_M = 2\sqrt{\beta P_{source} P_\Omega} - (1 + \beta)P_\Omega, \quad (2.19)$$

— связь мощности в дополнительной нагрузке с мощностью возбуждения. С учетом соотношения (2.10), а также считая $\chi'' = 0$ вне резонанса, получим, что

$$4\pi\chi''Q_0\eta = (1 + \beta) \cdot \left(\sqrt{\frac{U_0}{U}} - 1 \right),$$

где U_0 — мощность на детекторе вне резонанса, U — мощность на детекторе в резонансе.

Это соотношение можно переписать в итоговом виде:

$$U = \frac{U_0}{\left(1 + \frac{4\pi\chi''Q_0\eta}{1 + \beta} \right)^2} \quad (2.20)$$

Отсюда видно, что хотя χ'' — лоренцева функция, сигнал на детекторе, строго говоря, не является лоренцианом. Однако в случае малого χ'' либо малого размера образца (что соответствует малому коэффициенту заполнения) можно провести разложение (2.20) в ряд Тейлора по параметру $\frac{4\pi\chi''Q_0\eta}{(1 + \beta)}$ с удержанием только первого члена. Считая, что связь оптимальная и $\beta = 1$, мы придем к соотношению

$$U = U_0 \cdot (1 - 4\pi\chi''Q_0\eta), \quad (2.21)$$

понятному интуитивно. В этом приближении уменьшение мощности на детекторе, связанное с поглощением в образце, описывается лоренцевой функцией. Как правило, формула (2.21) является достаточно хорошим приближением для интерпретации экспериментальных данных, однако при большом размере образца или при сильном поглощении в нем следует пользоваться формулой (2.20).

2.2. Методика и оборудование

2.2.1. Эксперимент

Экспериментальное оборудование состояло из двух криостатов с откачкой ^4He для работы при температурах до $T = 1.3$ К; двух самодельных вставок для ЭПР-спектро-

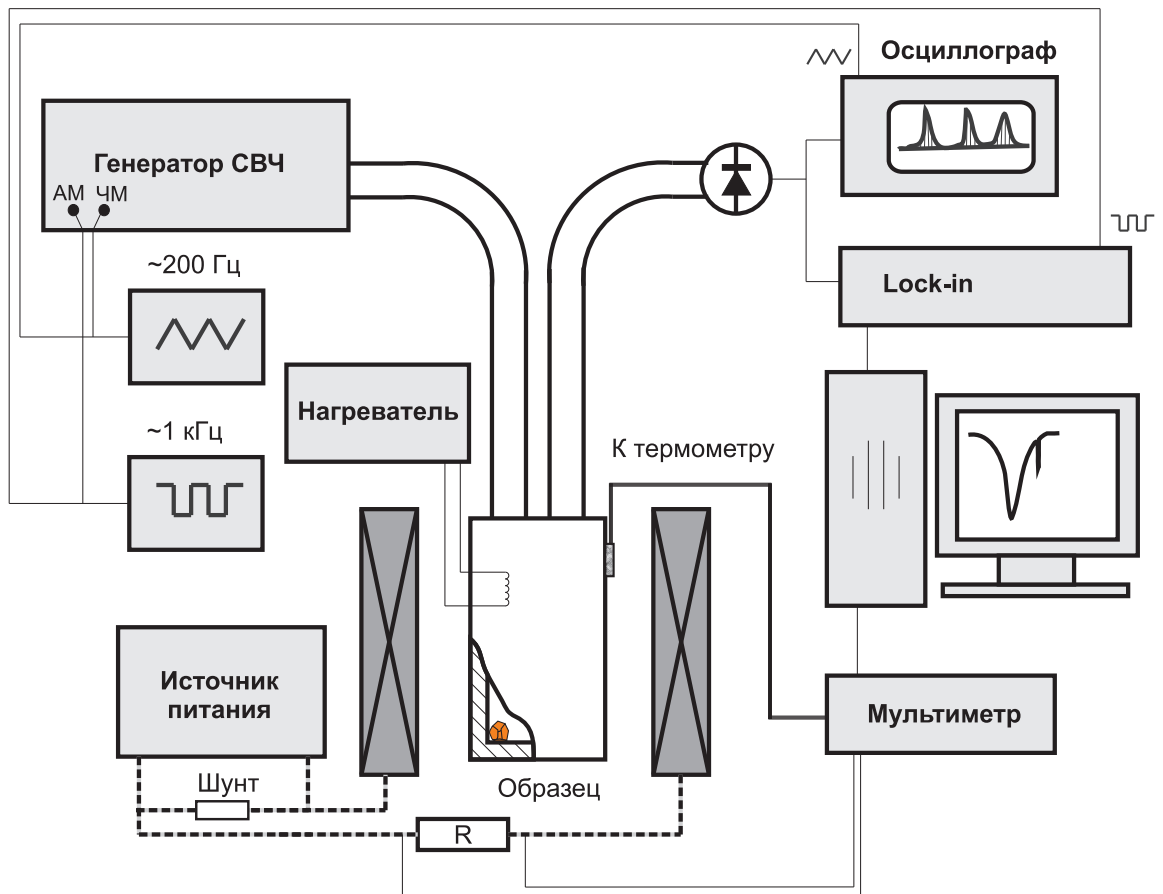


Рис. 2.3. Блок-схема экспериментальной установки для изучения электронного спинового резонанса.

скопии к ним, с резонаторами прямоугольного типа, рассчитанными на длину волны $\lambda = 1.5$ см и $\lambda = 3$ см. В криостатах также смонтированы сверхпроводящие соленоиды, критическое магнитное поле которых составляет $H_{cr} \sim 8$ Тесла при температуре $T = 1.3$ К. Соленоиды находятся в гелиевой ванне. В качестве источников СВЧ использовался следующий набор генераторов:

- Г4-111 (9 – 20 ГГц)
- Г4-155 (18 – 26 ГГц)
- Г4-156 (26 – 38 ГГц)
- Г4-141 (38 – 54 ГГц)
- Г4-142 (56 – 78 ГГц)

Принципиальная схема установки приведена на рисунке 2.3. Излучение генератора СВЧ модулируется как по амплитуде (меандром, с частотой порядка 1 кГц), так и по частоте

(частота модуляции около 200 Гц). Затем это излучение по волноводу подается в резонатор, где находится образец. Резонатор расположен таким образом, чтобы образец находился в максимуме магнитного поля, создаваемого соленоидом. Соленоид погружен в гелиевую ванну, а измерительная ячейка отделена от гелиевой ванны вакуумной рубашкой с малым количеством теплообменного газа. Благодаря этому возможно изменять температуру измерительной ячейки относительно гелиевой ванны посредством пропускания тока через обмотку нагревателя и выделения тепловой мощности. Образец поглощает часть СВЧ-излучения и затем излучение попадает по выходному волноводу на квадратичный детектор². Напряжение на детекторе считывается синхронным фазочувствительным вольтметром (на схеме обозначен как Lock-in), который синхронизирован с источником амплитудной модуляции. Посредством синхронного детектирования достигается более выгодное соотношение «сигнал-шум». Время интегрирования сигнала много больше периода частотной модуляции. Модуляция СВЧ по частоте снижает влияние расстройки резонатора на полезный сигнал (см. [40]). Модулируя частоту на величину, большую ширины резонансной линии объемного резонатора, мы исключаем влияние расстройки резонатора (как связанную с особенностью χ' образца вблизи H_{res} , так и связанную со случайным дрейфом частоты генератора) на полезный сигнал, хотя в величине полезного сигнала мы при этом проигрываем. Температура измеряется с помощью калиброванного термометра сопротивления. Цифровой мультиметр измеряет сопротивление термометра по четырехточечной схеме; он же отслеживает величину магнитного поля по напряжению на сопротивлении в цепи питания соленоида. Показания приборов в режиме реального времени подаются на компьютер, где обрабатываются при помощи программы ESR 2.0, написанной в среде программирования LabView³.

Сама экспериментальная ячейка на $\lambda = 1.5$ см устроена следующим образом (рисунок 2.4): резонатор (3) находится в заполненной небольшим количеством газообразного гелия вакуумной рубашке (1), изолирующей его от гелиевой ванны. Уменьшению теплообмена с гелиевой ванной способствуют также волноводы (2), верхняя секция которых изготовлена из нержавеющей стали и имеет малую теплопроводность. К резонатору приклеен термометр сопротивления (7). Внутри вакуумной рубашки находится также обмотка нагревателя (6), пропускающая ток через которую мы создаем регулируемый пере-

² Для полупроводникового детектора $U \propto E^2$, то есть напряжение пропорционально мощности падающего поля

³ © 2004 National Instruments Corporation

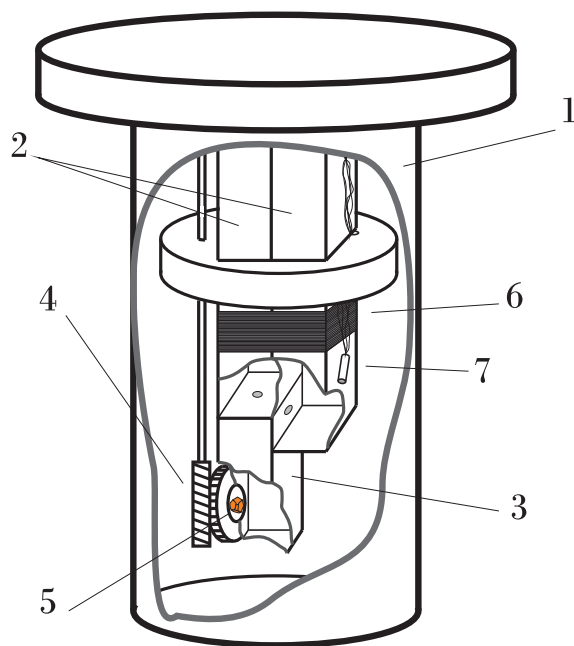


Рис. 2.4. Изображение экспериментальной ячейки с поворотным механизмом в разрезе. Цифрами на рисунке обозначены: 1 – вакуумная рубашка, 2 – волноводы, 3 – резонатор, 4 – вращательный механизм, 5 – образец, 6 – обмотка нагревателя, 7 – термометр.

грев экспериментальной ячейки относительно гелиевой ванны. Образец (5) находится внутри прямоугольного резонатора на шестерне, вращая которую с помощью червячной передачи (4) мы можем менять ориентацию образца относительно внешнего магнитного поля, направленного вертикально вверх. Вместе с образцом в резонатор помещается небольшое количество дифенилпикрилгидразида (ДФПГ), который, будучи парамагнетиком с изотропным g -фактором $g = 2.0$ и чрезвычайно узкой ($\Delta H_{1/2} \sim 10^{-4}$ Т) резонансной линией, используется для калибровки магнитного поля по частоте резонанса. Основная рабочая мода резонатора — TE_{016} , имеющая частоту ~ 27 ГГц.

2.2.2. Образцы

Образцы Cs_2CuCl_4 представляют собой прозрачные кристаллы темно-оранжевого цвета с характерным размером 1 см. Имелось две серии образцов Cs_2CuCl_4 : одна серия была выращена из расплава по методу Бриджмена [41] С. В. Петровым⁴, другая была выращена из водного раствора А. Я. Шапиро⁵. Экземпляры образцов обеих серий показаны на рисунке 2.5. Заметим, что образцы, выращенные из расплава, не имеют

⁴ С. В. Петров, Институт Физических Проблем им. П. Л. Капицы РАН, 119334, Москва, Россия

⁵ А. Я. Шапиро, Институт кристаллографии им. А. В. Шубникова РАН, 117924 Москва, Россия

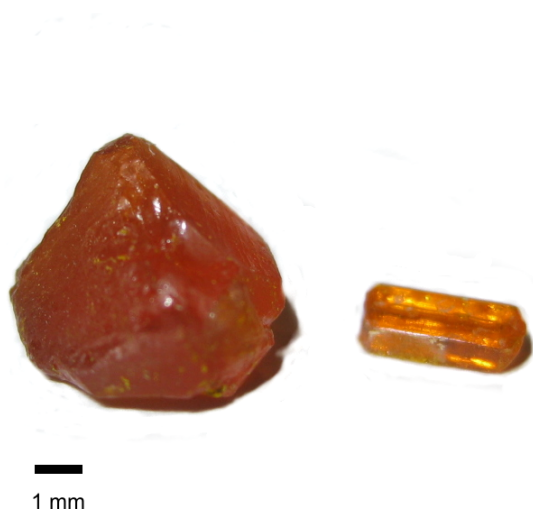


Рис. 2.5. Кристаллы Cs_2CuCl_4 . Слева на фотографии находится более крупный кристалл, выращенный из расплава по методу Бриджмена, справа — небольшой кристалл более правильной формы, выращенный из раствора.

какой-либо ярко выраженной формы. Образцы из раствора, напротив, имеют форму вытянутых прямоугольных параллелипедов. Рентгеноструктурный анализ, выполненный Ю. Ф. Ореховым⁶ в ИФП РАН показал хорошее соответствие параметров решетки данным из базы JCPDS-ICDD [42] для образцов обеих серий. Так, определенные из рентгеноструктурного анализа параметры решетки для наших образцов составляют

$$\begin{aligned} a &= 9.77 \pm 0.02 \text{ \AA}, \\ b &= 7.62 \pm 0.02 \text{ \AA} \\ c &= 12.42 \pm 0.02 \text{ \AA} \end{aligned}$$

при $T = 250 \text{ K}$. Согласно данным из JCPDS-ICDD, параметры решетки Cs_2CuCl_4 при комнатной температуре составляют

$$\begin{aligned} a &= 9.773 \text{ \AA}, \\ b &= 7.617 \text{ \AA} \\ c &= 12.41 \text{ \AA}. \end{aligned}$$

Приведенные в [18] параметры решетки составляют

$$\begin{aligned} a &= 9.65 \text{ \AA}, \\ b &= 7.48 \text{ \AA} \\ c &= 12.35 \text{ \AA} \end{aligned}$$

⁶ Ю. Ф. Орехов, Институт Физических Проблем им. П. Л. Капицы РАН, 119334, Москва, Россия

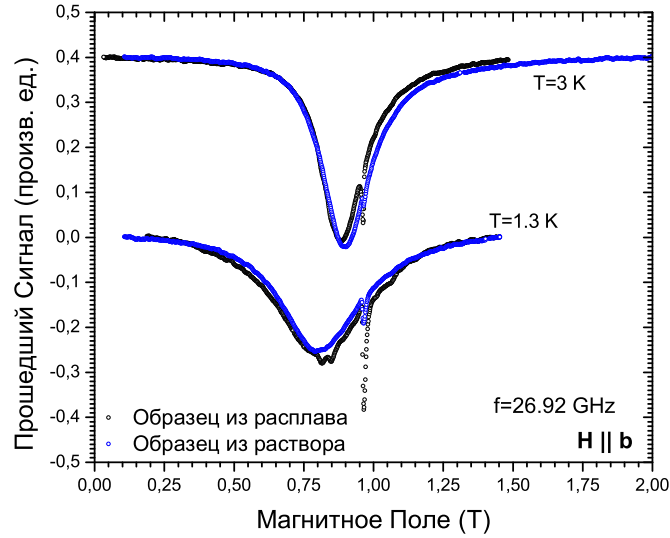


Рис. 2.6. Сопоставление спектров при $H \parallel b$ для образцов разных серий. Синие точки — кристалл Cs_2CuCl_4 , выращенный из раствора, черные точки — из расплава. Частота СВЧ $f = 26.92 \pm 0.02$ ГГц, температуры $T = 3$ К и $T = 1.3$ К.

при $T = 0.3$ К. Таким образом, можно сделать вывод о хорошем качестве наших образцов из обеих серий и соответствии их образцам, использовавшимся другими исследователями. Также было показано, что направление вытянутости для образцов из раствора соответствует оси b .

Ориентация образцов относительно внешнего магнитного поля также происходила при помощи рентгеноструктурного анализа. Магниторезонансные свойства образцов из обеих серий оказались полностью идентичными (примеры спектров ЭПР приведены на рисунке 2.6).

2.3. Результаты для неупорядоченной фазы

2.3.1. Парамагнитный резонанс

При температурах в диапазоне $T \sim 10 - 20$ К в Cs_2CuCl_4 наблюдается единственная линия магнитного резонанса для всех ориентаций магнитного поля. Частотно-полевая зависимость этого резонанса соответствует парамагнитной

$$hf = \mu_B g H \quad (2.22)$$

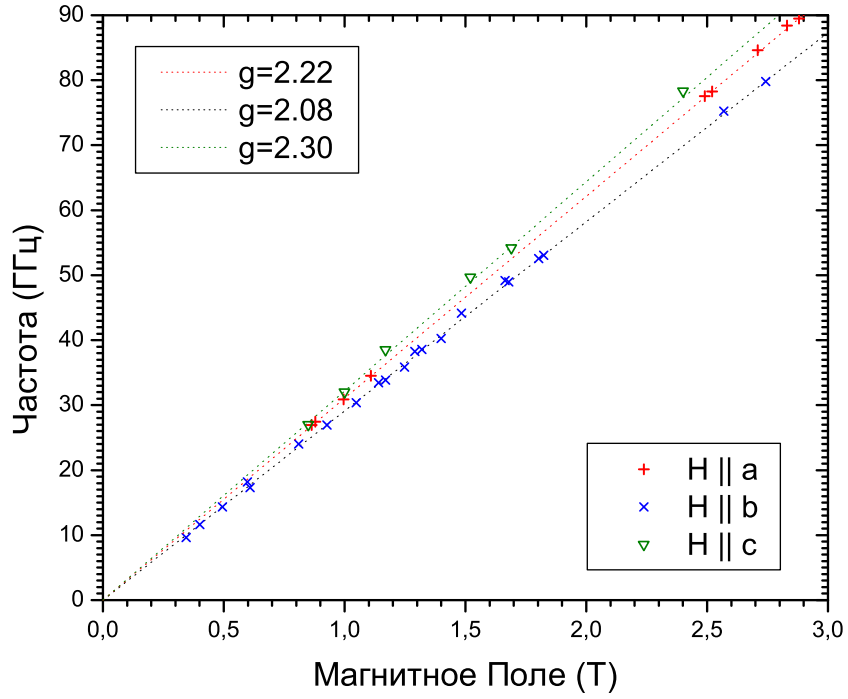


Рис. 2.7. Парамагнитный резонанс в Cs_2CuCl_4 при температурах $T \gtrsim 10$ К. Пунктирные линии — формула (2.22).

с g -факторами $g_a = 2.22 \pm 0.02$, $g_b = 2.08 \pm 0.02$ и $g_c = 2.3 \pm 0.02$ для точных ориентаций магнитного поля вдоль соответствующих кристаллографических осей. Частотно-полевые зависимости магнитного резонанса для таких ориентаций внешнего поля представлены на рисунке 2.7.

На рисунке 2.8 представлена зависимость g -фактора от направления магнитного поля относительно осей кристалла. При произвольном направлении магнитного поля частота парамагнитного резонанса определяется как [38]

$$hf = \mu_B \left\| \begin{pmatrix} g_a & 0 & 0 \\ 0 & g_b & 0 \\ 0 & 0 & g_c \end{pmatrix} \begin{pmatrix} H \cos \varphi \cos \theta \\ H \sin \varphi \cos \theta \\ H \sin \theta \end{pmatrix} \right\| = \mu_B g_{eff} H \quad (2.23)$$

что приводит нас к выражению для эффективного g -фактора

$$g_{eff} = \sqrt{(g_a \cos \varphi \cos \theta)^2 + (g_b \sin \varphi \cos \theta)^2 + (g_c \sin \theta)^2} \quad (2.24)$$

Видно, что экспериментальная зависимость g -фактора от углов поворота соответству-

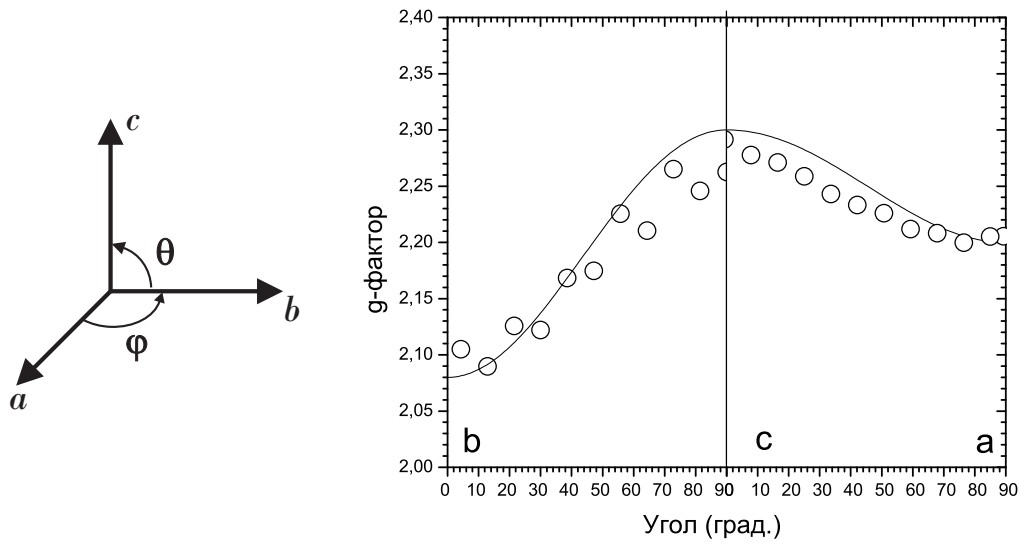


Рис. 2.8. Зависимость g -фактора от направления магнитного поля относительно осей кристалла при температурах $T \gtrsim 10$ К. Сплошная линия — формула (2.24).

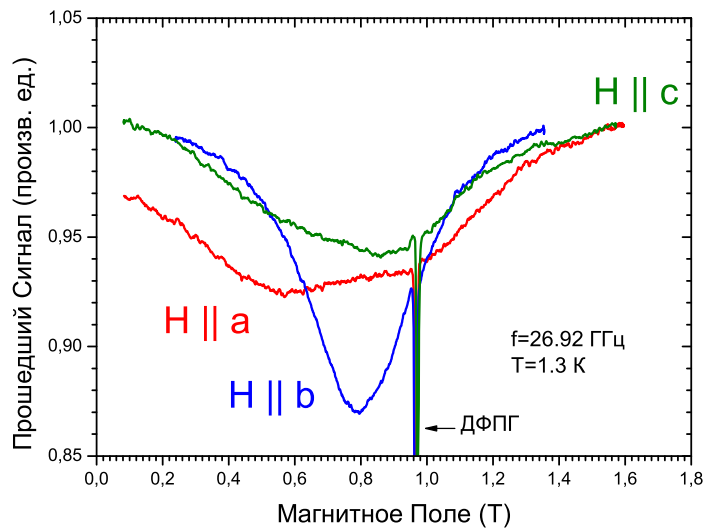


Рис. 2.9. Резонансная линия при $T = 1.3$ К для различных направлений внешнего магнитного поля.

ет теоретической. Таким образом, при высоких температурах Cs_2CuCl_4 демонстрирует парамагнитный резонанс, характерный для изолированных ионов Cu^{2+} .

При дальнейшем понижении температуры форма линии начинает сильно зависеть от ориентации внешнего магнитного поля (рис. 2.9). Поэтому далее результаты для ориентации магнитного поля вдоль каждой кристаллической оси будут обсуждаться по отдельности.

2.3.2. Спектры магнитного резонанса при $H \parallel b$

В случае, когда магнитное поле направлено вдоль оси b , при понижении температуры ниже $T \sim 4$ К происходит смещение резонансной линии из парамагнитной позиции в область меньших полей. Это смещение усиливается с понижением температуры. При этом также растет ширина резонансной линии. На рисунке 2.10 представлены примеры полученных линий на разных частотах при различных температурах. Видно, что чем выше частота СВЧ-излучения (и соответствующее этой частоте поле парамагнитного резонанса), тем более ярко выражен этот эффект. Так, при частоте резонанса $f = 9.63$ ГГц смещения не наблюдается вообще, при $f = 17.33$ ГГц смещение составляет около 5% от резонансного поля, а при $f = 26.92$ ГГц — уже около 10%. При дальнейшем увеличении частоты смещение резонансного поля уменьшается.

Нами была измерена частотно–полевая зависимость этой смещенной резонансной линии при минимально достижимой в используемом криостате с откачкой паров ^4He температуре $T = 1.3$ К. Результаты этих измерений представлены на рисунке 2.11.

Сдвиг резонансной линии относительно парамагнитного положения сначала растет с увеличением частоты и магнитного поля, достигает максимума при $H \simeq 0.5 \div 1$ Т и затем частотно–полевая зависимость резонанса вновь начинает приближаться к парамагнитной асимптотике. Можно заметить, что для магнитных полей $H \gtrsim 1$ Т частотно–полевая зависимость хорошо описывается стандартной формулой для антиферромагнитного резонанса

$$hf = \sqrt{\Delta^2 + (\mu_B g H)^2} \quad (2.25)$$

В формуле (2.25) величина Δ является энергетической щелью в спектре, то есть энергией, которой обладают элементарные возбуждения с нулевым k в нулевом магнитном поле. В традиционных антиферромагнетиках существование $\Delta \neq 0$ обусловлено взаимодействием однородных возбуждений упорядоченной спиновой структуры с кри-

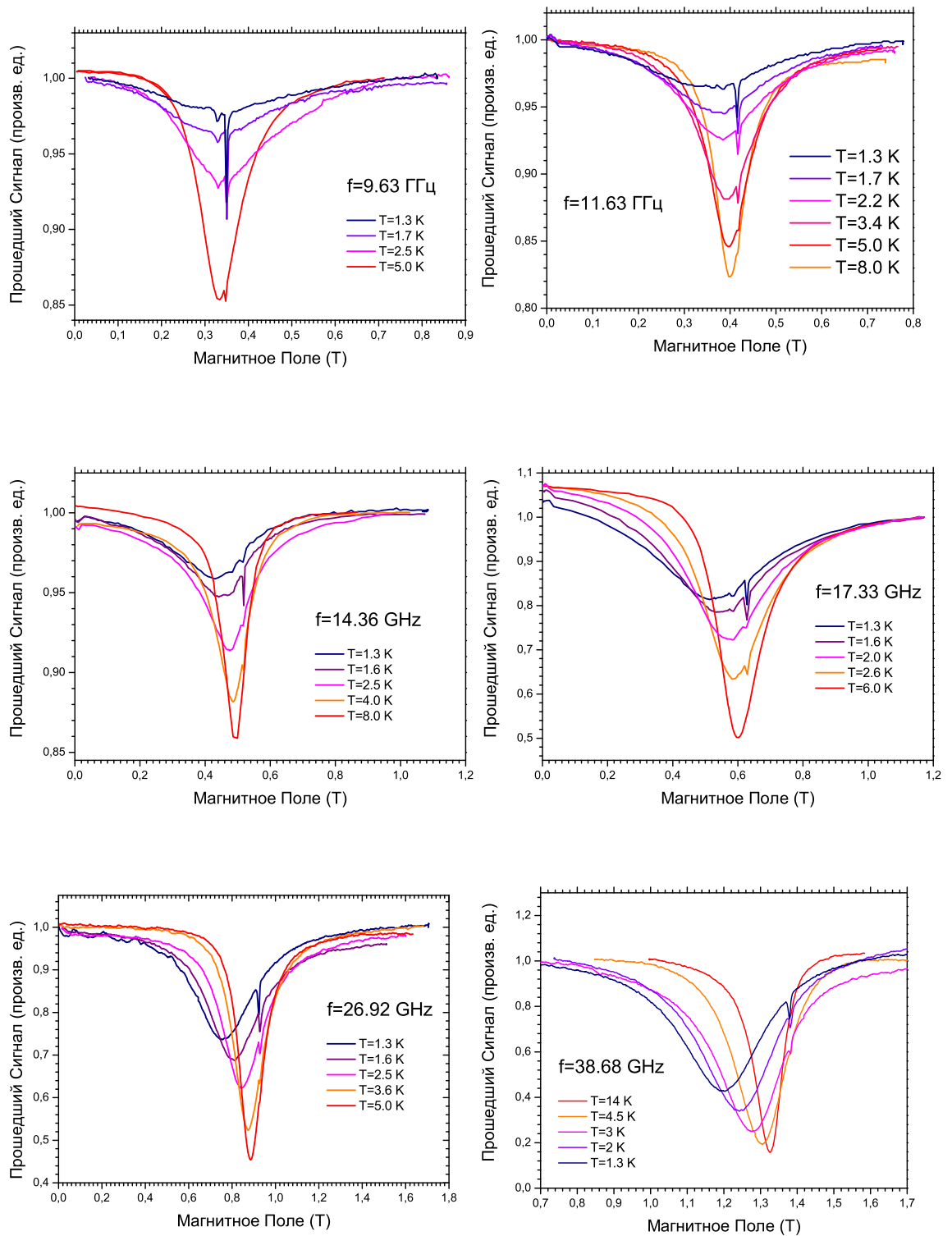


Рис. 2.10. Температурная эволюция резонансной линии в Cs_2CuCl_4 при $H \parallel b$ на различных частотах. Узкая линия — сигнал ДФПГ.

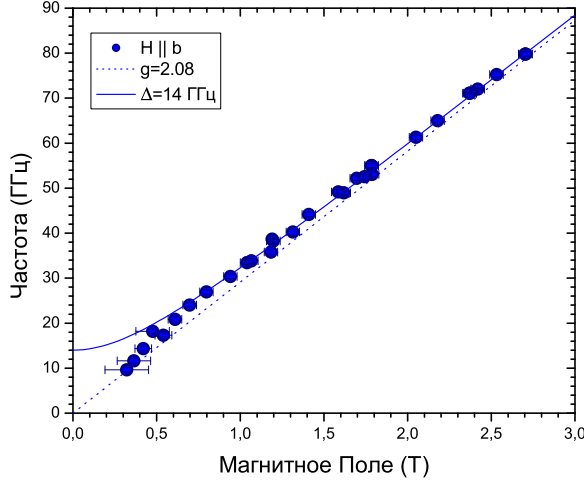


Рис. 2.11. Частотно–полевая зависимость для $H \parallel b$ при $T = 1.3$ К. Пунктирная линия — парамагнитный резонанс с $g = 2.08$, сплошная линия — формула (2.25) с $g = 2.08$ и $\Delta = 14$ ГГц.

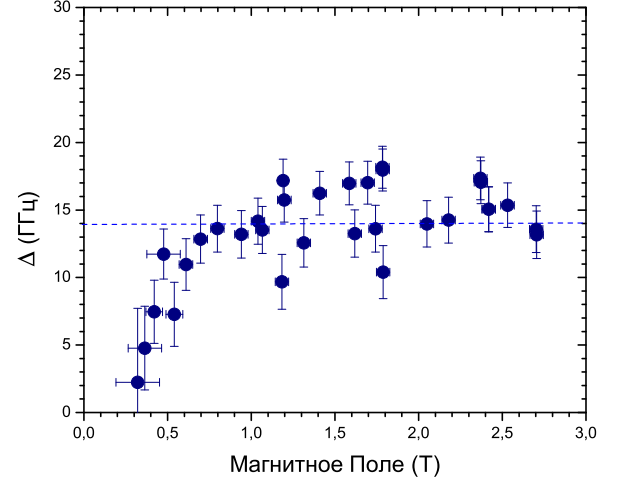


Рис. 2.12. Зависимость величины щели от магнитного поля $\Delta(H)$, вычисленная по формуле (2.25) с $g = 2.08$. Пунктирной линией отмечено значение $\Delta = 14$ ГГц. Магнитное поле вдоль оси b .

сталлическим полем. Соответственно, щель в спектре антиферромагнитного резонанса возникает при T_N и растет пропорционально параметру порядка (т. е. $\Delta \propto \sqrt{1 - \frac{T}{T_N}}$ в теории Ландау [43]). В Cs_2CuCl_4 , напротив, мы наблюдаем изменение спектра парамагнитного резонанса при температурах, в два и более раз превышающих температуру упорядочения $T_N = 0.62$ К. Нельзя однозначно сказать, что определяет величину наблюдаемого эффекта: частота, на которой наблюдается резонанс или магнитное поле, в котром он наблюдается. Тем не менее, рассматривая щель Δ как функцию частоты f либо внешнего поля H , изображенный на рисунке 2.11 спектр можно интерпретировать следующим образом:

$$hf = \sqrt{(\Delta(f, H))^2 + (\mu_B g H)^2} \quad (2.26)$$

и тогда

$$\Delta(f, H) = \sqrt{(hf)^2 - (\mu_B g H)^2} \quad (2.27)$$

Зависимость вычисленной таким образом щели Δ от магнитного поля изображена на рисунке 2.12.

Полученные данные позволяют также проследить за изменением $\Delta H_{1/2}$ (то есть ширины линии на половине высоты) с температурой. Ширина линии монотонно воз-

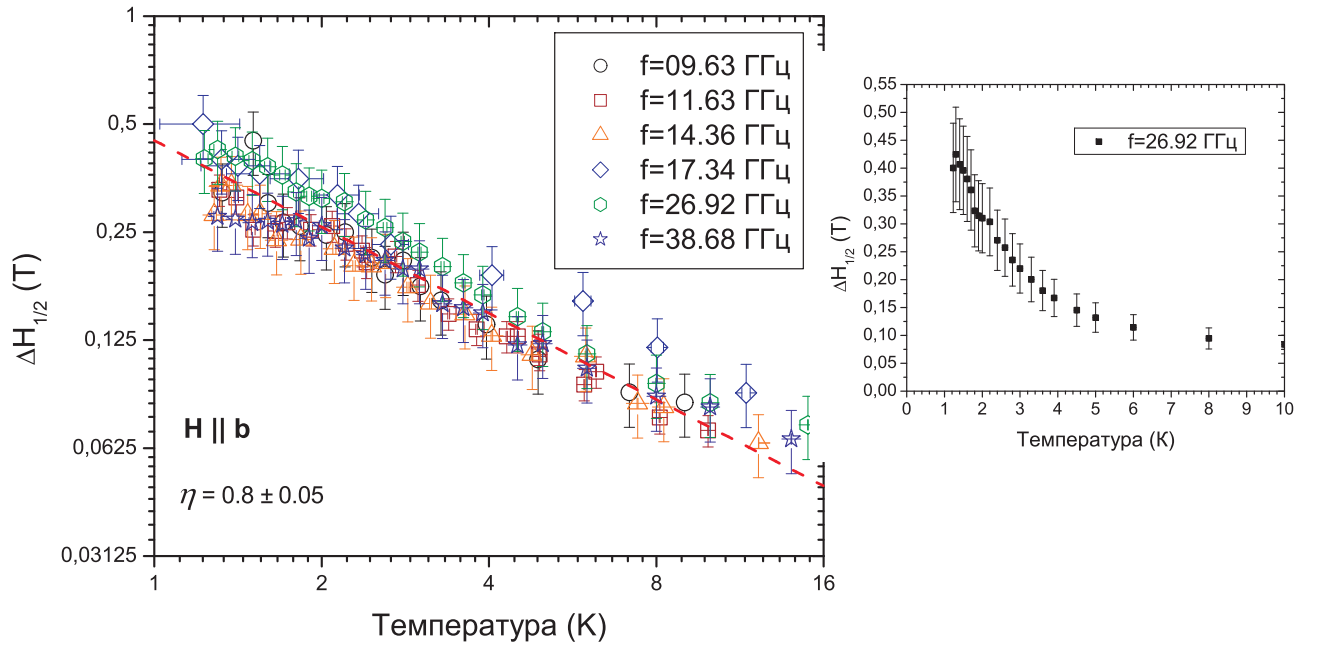


Рис. 2.13. Зависимость полуширины резонансной линии от температуры для поля, направленного вдоль оси b . Красный пунктир — подгонка согласно формуле (2.28). Полученное значение показателя степени $\eta = 0.8 \pm 0.05$. На вставке — та же зависимость для частоты $f = 26.92$ ГГц в линейных координатах.

растает с понижением температуры, причем чем ниже температура, тем быстрее рост. Полученные данные для нескольких частот при магнитном поле вдоль оси b изображены на рисунке 2.13. Полуширина линии не зависит от поля магнитного резонанса, и данные для разных частот в пределах погрешности совпадают друг с другом. Вся совокупность данных хорошо описывается степенной зависимостью

$$\Delta H_{1/2} \propto \left(\frac{1}{T}\right)^\eta \quad (2.28)$$

с показателем степени $\eta = 0.8 \pm 0.05$.

Интерес представляет также зависимость интегральной интенсивности резонанса на данной частоте от температуры. Для парамагнитного резонанса интегральная интенсивность должна быть пропорциональна статической восприимчивости [1]:

$$\int_0^{+\infty} \chi''(\omega) d\omega \propto \int_0^{+\infty} \chi''(H) dH \propto \chi'(0) \quad (2.29)$$

При высоких температурах справедлив закон Кюри–Вейсса:

$$\chi(T) = \frac{C}{T + \Theta} \quad (2.30)$$

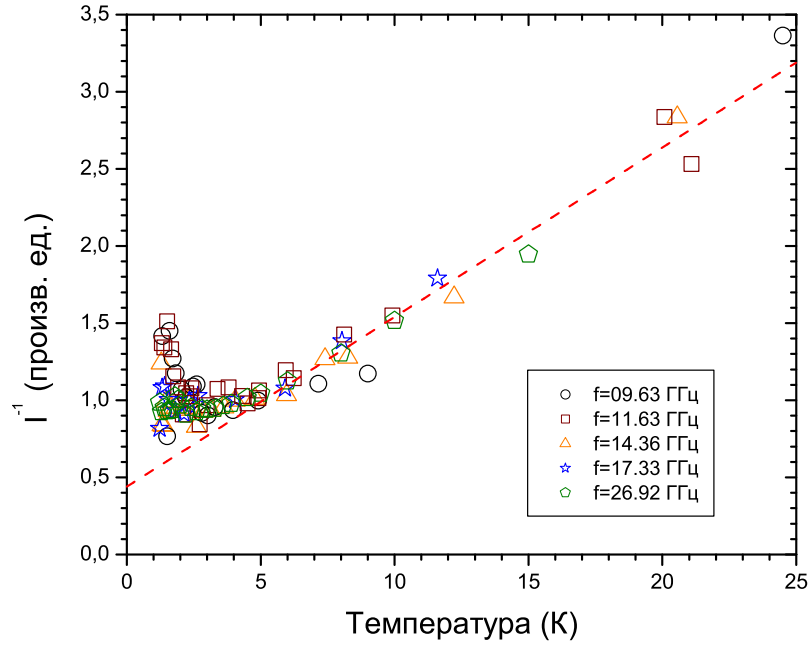


Рис. 2.14. Зависимость интегральной интенсивности сигнала от температуры на различных частотах. Красный пунктир — формула (2.32) с температурой Кюри–Вейсса $\Theta = 4$ К.

который может быть переписан в виде $\chi^{-1}(T) \propto T + \Theta$. Следовательно, если сигнал имеет форму лоренцевой линии

$$\chi''(H) = \frac{a}{1 + \left(\frac{H - H_0}{\Delta H_{1/2}}\right)^2} \quad (2.31)$$

его интегральная интенсивность, равная $I = a \cdot \Delta H_{1/2}$, также будет подчиняться закону Кюри–Вейсса, и при высоких температурах

$$I^{-1} \propto T + \Theta \quad (2.32)$$

На рисунке 2.14 показано изменение I^{-1} с температурой для магнитного поля вдоль оси b . Высокотемпературная часть этой зависимости действительно соответствует закону Кюри–Вейсса (2.32) с температурой Кюри $\Theta \simeq 4$ К. Отклонения от закона (2.32) наблюдаются при температурах, при которых действительная часть восприимчивости также перестает подчиняться закону Кюри–Вейсса (см. рис. 1.10).

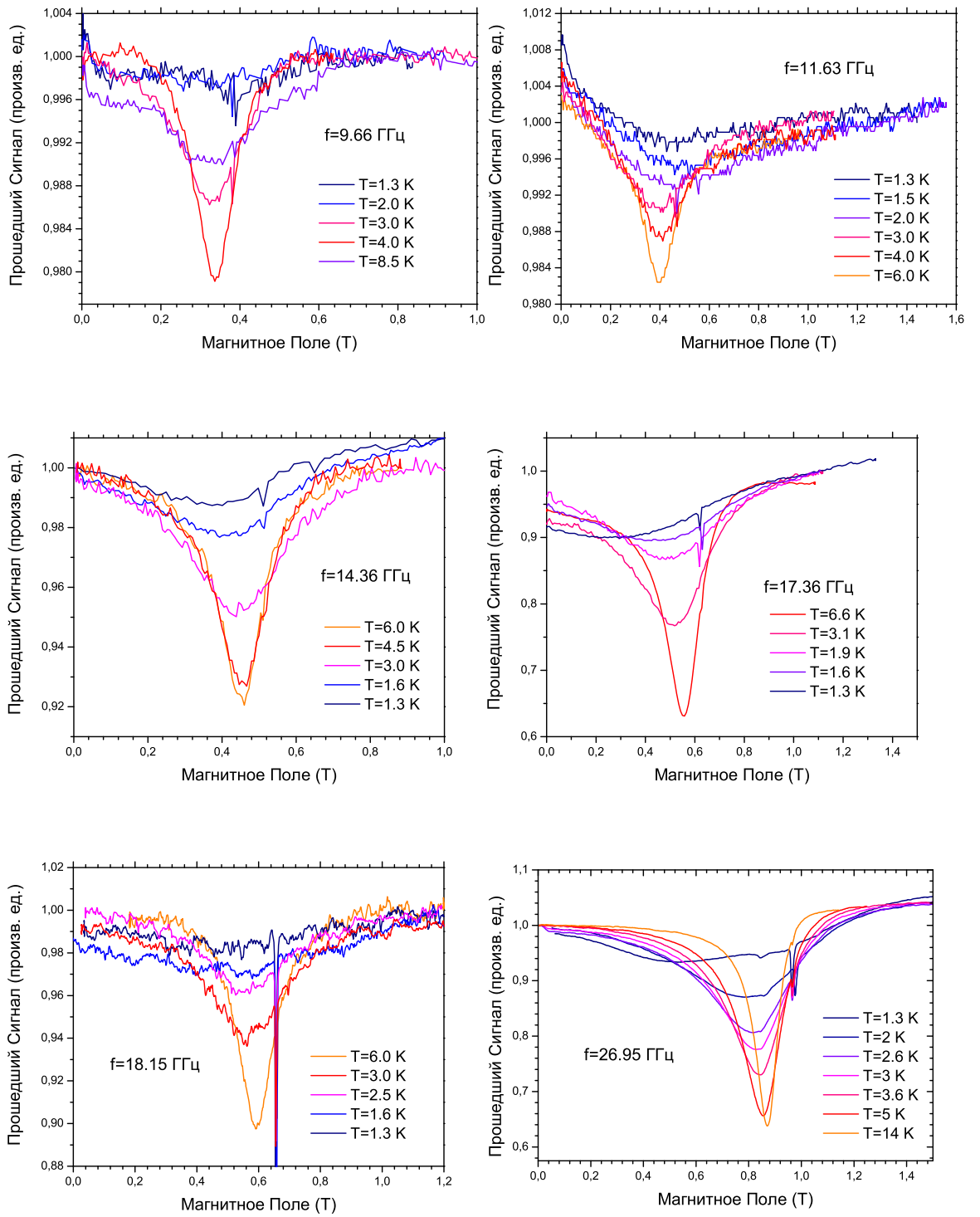


Рис. 2.15. Температурная эволюция резонансной линии в Cs_2CuCl_4 при $H \parallel a$ на различных частотах. Узкая линия — сигнал ДФПГ.

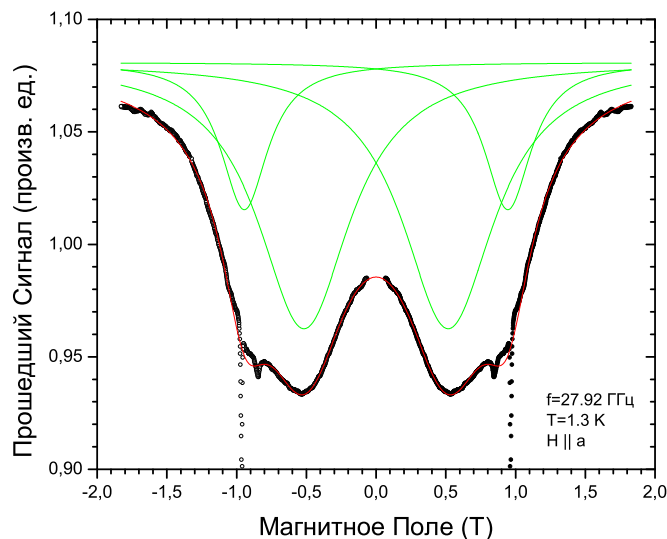


Рис. 2.16. Линия поглощения в Cs_2CuCl_4 на частоте $f = 27.92$ ГГц при температуре $T = 1.3$ К. Сплошные кружки обозначают действительную линию, пустые — её зеркальное отражение. Красная линия — подгонка четырьмя лоренцианами, зеленая линия — лоренцианы по отдельности.

2.3.3. Спектры магнитного резонанса при $H \parallel a$

Иначе выглядит картина изменения резонансной линии с понижением температуры для ориентации внешнего магнитного поля вдоль оси a . Примеры таких температурных эволюций на различных частотах представлены на рисунке 2.15. На низких частотах линия с понижением температуры уширяется настолько сильно, что делается неразрешимой при $T \simeq 1\text{--}2$ К. На более высоких частотах линия с понижением температуры заметно начинает смещаться к нулю, и при $T = 1.3$ К превращается в широкую полосу поглощения, в которой можно выделить две спектральные компоненты: одну близкую к парамагнитному резонансу, а другую — сильно смещенную в область меньших полей. Пример такой линии можно видеть на рисунке 2.16, где изображена резонансная линия на частоте $f = 27.92$ ГГц. Изображена не только непосредственно измеренная линия, но и ее зеркальное отражение,⁷ поскольку для широкой линии вблизи нулевого поля это позволяет правильнее описывать ее форму. На рисунке 2.16 также показано раз-

⁷ Магнитное поле \mathbf{h} в резонаторе поляризовано линейно, а значит в нем присутствуют две компоненты циркулярной поляризации с противоположными направлениями вращения. Одна из них поглощается в поле $+H_{res}$, другая — в поле $-H_{res}$.

ложение этой линии на два лоренциана с учетом вклада «зеркальной» компоненты. Выделить компоненту, близкую к парамагнитной оказывается возможным лишь при $T \lesssim 2$ К. В пользу того, что этот эффект не связан с какой-либо примесью, и, следовательно, представляет собой собственный сигнал Cs_2CuCl_4 можно привести следующие аргументы.

- Эффект не зависит от образца (в том числе и от способа приготовления кристалла Cs_2CuCl_4).
- Эффект анизотропен. Пример изменения резонансной линии показан на рисунке 2.17. Видно, как при изменении направления магнитного поля смещается к нулю «щелевая» мода и проявляется «парамагнитная».
- Рост интенсивности близкого к парамагнитному сигнала не соответствует закону Кюри. При самых низких температурах (в том числе и в упорядоченной фазе) интенсивность этой компоненты остается практически постоянной [44].

Заметим также, что этот эффект в Cs_2CuCl_4 наблюдался ранее и описан в уже упомянутой работе [21].

Полученный при ориентации магнитного поля вдоль оси a спектр изображен на рисунке 2.18. Там, где это было возможным, линия была разложена на две компоненты. В области низких частот линия уширена настолько сильно, что достоверно судить о ее форме не представляется возможным, и это обстоятельство выражено большими значениями погрешностей для соответствующих точек. Из данного графика мы видим, что для частот $f \gtrsim 20$ ГГц смещенная часть спектра хорошо описывается щелевой формулой (2.25). В той области, где смещение максимально, удается также выделить вторую линию, близкую к парамагнитному резонансу.

Также была измерена зависимость полуширины линии от температуры для нескольких различных частот. Для частот, на которых при самых низких температурах можно было выделить парамагнитную компоненту, на рисунке 2.19 откладывалось значение полуширины только для щелевой компоненты. Из данных, приведенных на этом рисунке, видно, что для магнитного поля, направленного вдоль оси a ширина линии растет значительно быстрее, чем для оси b . Здесь мы вновь обнаруживаем зависимость (2.28), но степенной показатель оказывается почти в 1.5 раз больше и составляет $\eta = 1.15 \pm 0.1$.

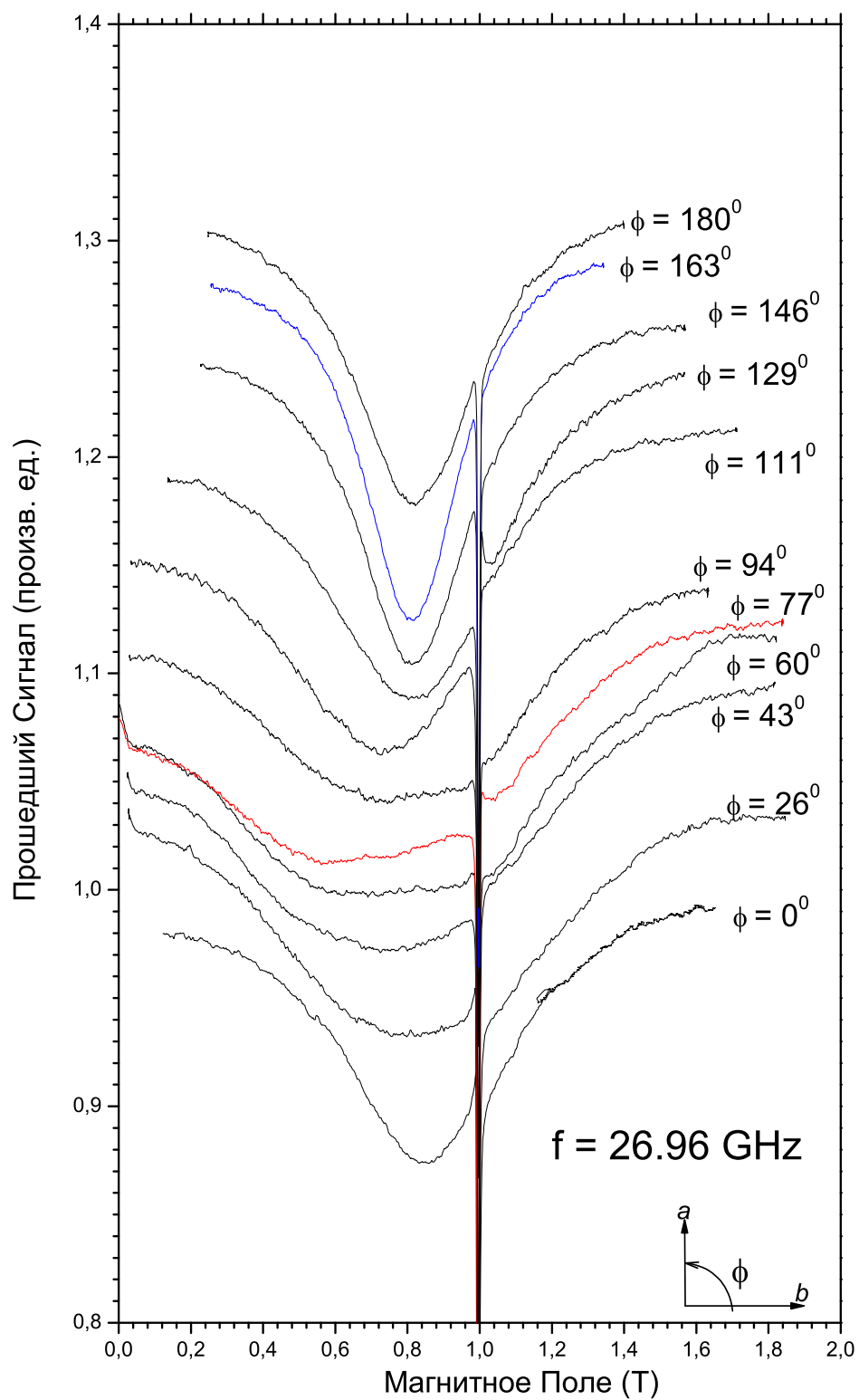


Рис. 2.17. Эволюция линии поглощения на частоте $f = 26.96 \text{ ГГц}$ при повороте от оси b к оси a при температуре $T = 1.3 \text{ К}$. Точные ориентации выделены цветом (синим и красным соответственно).

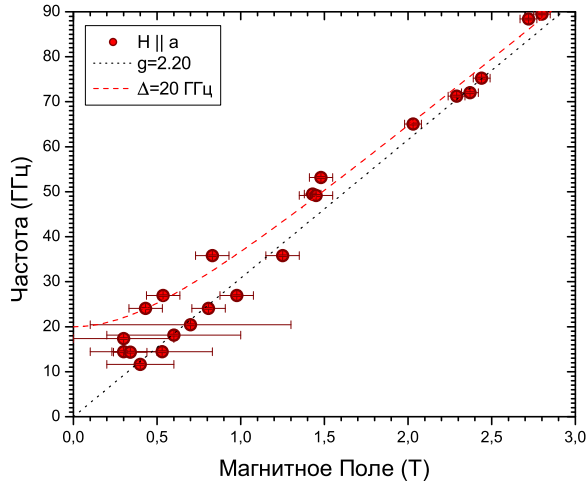


Рис. 2.18. Частотно–полевая зависимость для $H \parallel a$ при $T = 1.3$ К. Пунктирная линия — парамагнитный резонанс с $g = 2.20$, сплошная линия — щелевая ветвь (2.25) с $g = 2.20$ и $\Delta = 20$ ГГц.

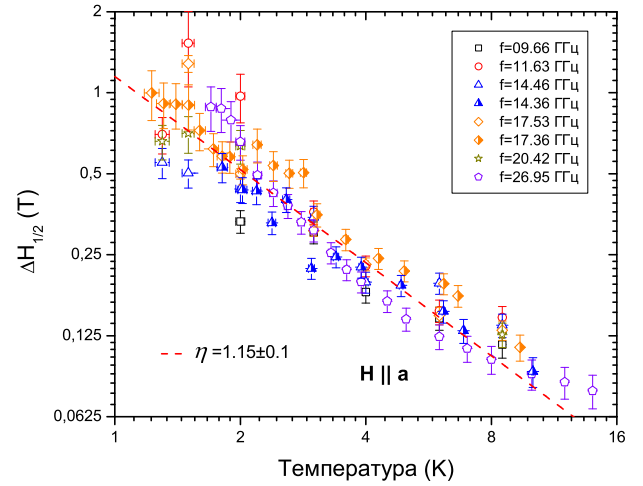


Рис. 2.19. Зависимость полуширины резонансной линии от температуры для поля, направленного вдоль оси a . Красный пунктир — формула (2.28) с показателем степени $\eta = 1.15 \pm 0.1$.

2.3.4. Спектры магнитного резонанса при $H \parallel c$

Магнитный резонанс для ориентации магнитного поля вдоль оси c в целом аналогичен ориентации вдоль оси a . Однако, есть некоторые существенные отличия. Как видно из рисунка 2.20, на всех частотах резонансная линия никуда не смещается при понижении температуры. Она лишь уширяется, и, как и в случае для оси a , на низких частотах (то есть когда положение парамагнитного резонанса близко к нулю) уширение оказывается настолько сильным, что при максимально низких температурах линию разрешить невозможно. На частоте $f \simeq 27$ ГГц (которая является наиболее чувствительной модой прибора) форма резонансной линии становится искаженной. Здесь отсутствует широкая и плоская «верхушка» резонансной линии, которая для ориентации магнитного поля вдоль оси a явно указывала на присутствие двух спектральных компонент, но тем не менее левое плечо линии также является существенно деформированным, что также может указывать на присутствие слабой «щелевой» моды вблизи нулевого поля в дополнение к основной парамагнитной. Последующие опыты с понижением температуры до 0.45 К в криостате с откачкой ^3He показывают, что раздвоение линии действительно присутствует и становится хорошо заметным ниже 1 К.

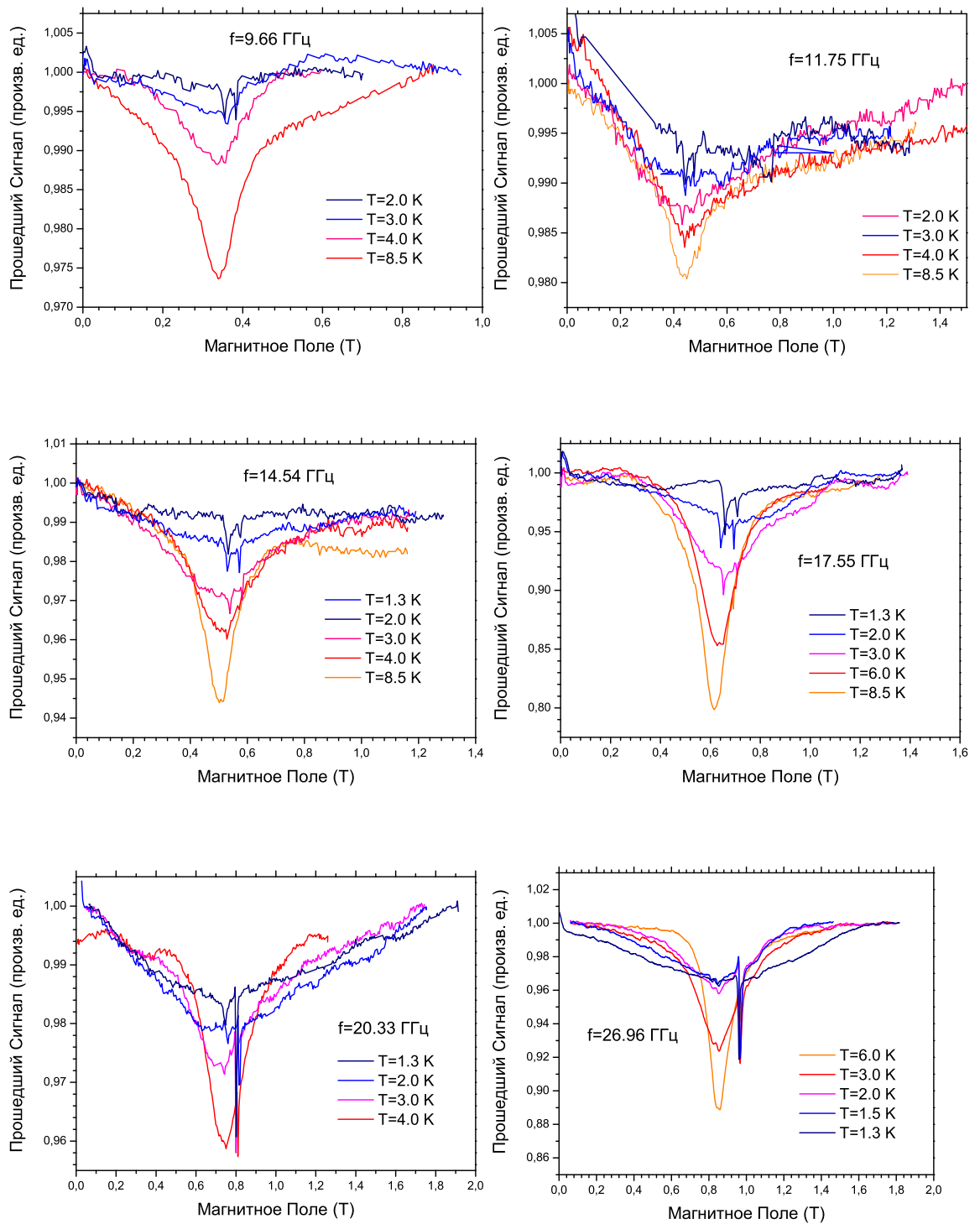


Рис. 2.20. Температурная эволюция резонансной линии в Cs_2CuCl_4 при $H \parallel c$ на различных частотах. Узкая линия — сигнал ДФПГ.

Интересно также проследить за эволюцией линии с поворотом внешнего магнитного поля при температуре $T = 1.3$ К, изображенной для частоты $f = 26.95$ ГГц на рисунке 2.21. Видно, как левое плечо линии, представляющее собой «щелевую» моду, постепенно уменьшается при повороте от оси a к оси c , и смещение становится скрытым шириной линии.

Частотно-полевая зависимость при максимально низкой температуре $T = 1.3$ К для ориентации внешнего магнитного поля вдоль оси c представлена на рисунке 2.22. Видно, что с учетом погрешности в определении резонансного поля для широкой линии, затруднительно отличить частотно-полевую зависимость при температуре $T = 1.3$ К от парамагнитной. Тем не менее, в двух линиях можно выделить смещенную компоненту. На рисунке 2.22 через точки, соответствующие резонансным полям этой смещенной компоненты, проведена пунктирная прямая.

Температурная зависимость полуширины линии, изображенная на рисунке 2.23, схожа с аналогичной зависимостью для оси a . Она также возрастает по степенному закону (2.28), причем показатель степени $\eta = 1.15 \pm 0.1$ совпадает с показателем для оси a .

2.3.5. Температурная зависимость щели

Наиболее простой способ описания изменений в спектре магнитного резонанса состоит в вычислении из экспериментальных данных величины смещения резонансного поля $\delta H = \frac{f}{\gamma} - H$. На рисунке 2.24 представлен результат такого вычисления для набора частот от 9 до 39 ГГц. На всех частотах сдвиг резонанса увеличивается с понижением температуры и достигает максимального значения на частотах, резонансные поля которых попадают в окрестность 1 Т.

Как уже было показано выше, для частот $f > 25$ ГГц в температурной области $T \lesssim 4$ К возможно говорить о щелевом спектре, описываемом формулой (2.25). Тогда становится определенным параметр Δ , и измерив на фиксированной частоте зависимость резонансного поля от температуры $H_{res}(T)$, можно отсюда вычислить также зависимость щели от магнитного поля на этой же частоте:

$$\Delta(T) = \sqrt{f^2 - (\mu_B g H_{res}(T))^2} \quad (2.33)$$

Результат такого вычисления для частоты $f = 26.92$ ГГц при магнитном поле,

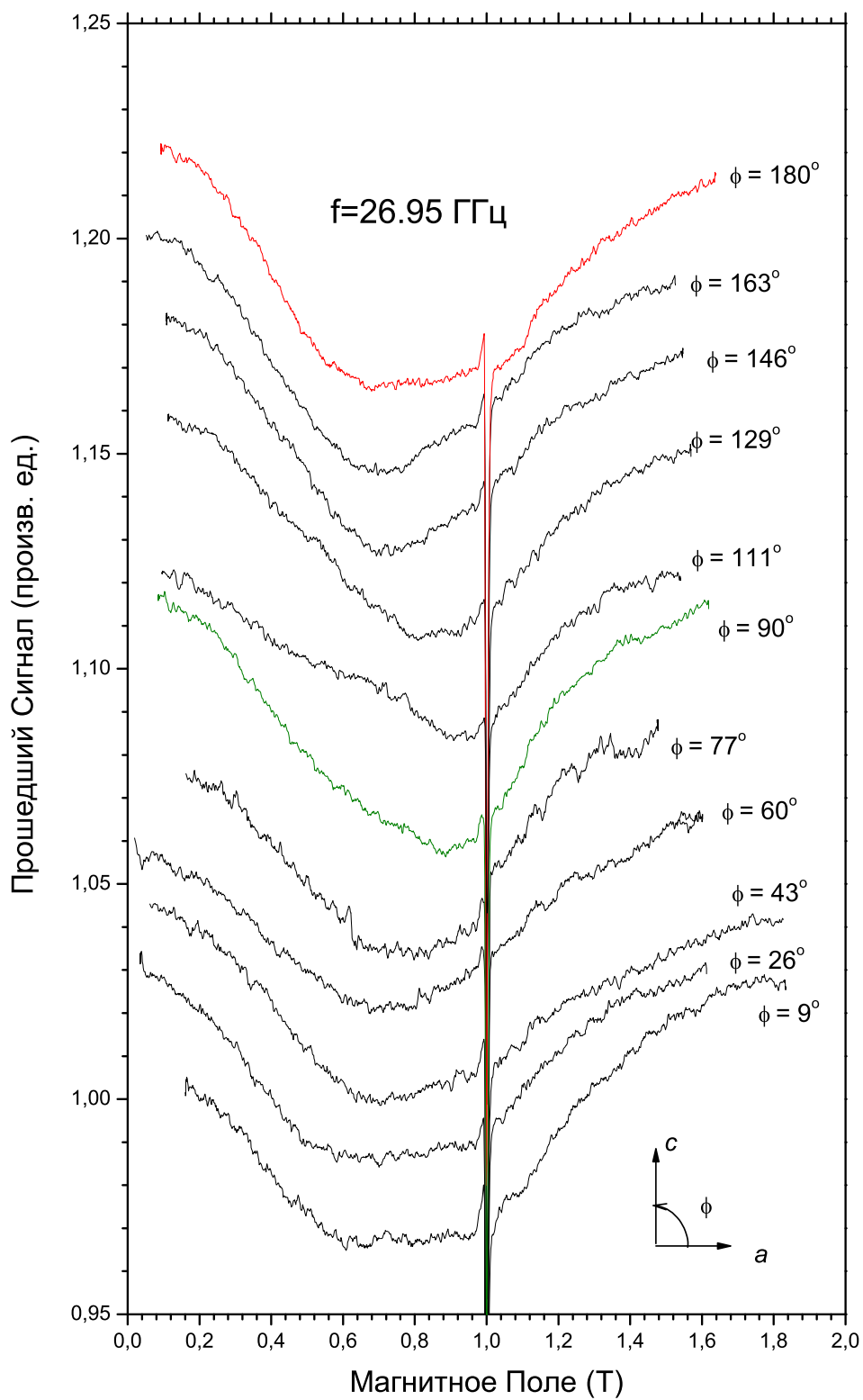


Рис. 2.21. Эволюция линии поглощения на частоте $f = 26.95$ ГГц при повороте от оси a к оси c при температуре $T = 1.3$ К. Точные ориентации выделены цветом (красным и зеленым соответственно).

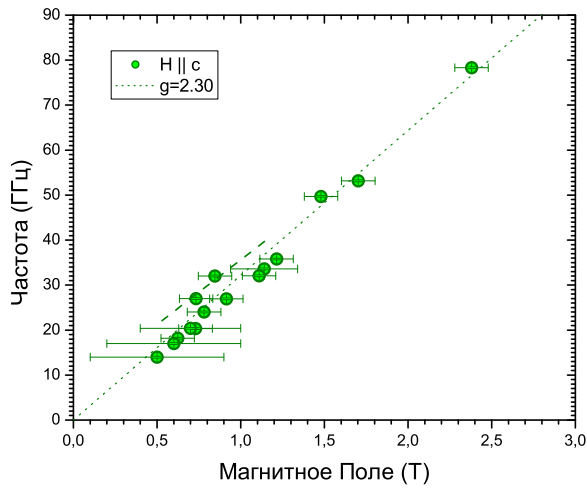


Рис. 2.22. Частотно–полевая зависимость для $H \parallel c$ при $T = 1.3$ К. Тонкая пунктирная линия — парамагнитный резонанс с $g = 2.30$. Толстая пунктирная линия — см. текст.

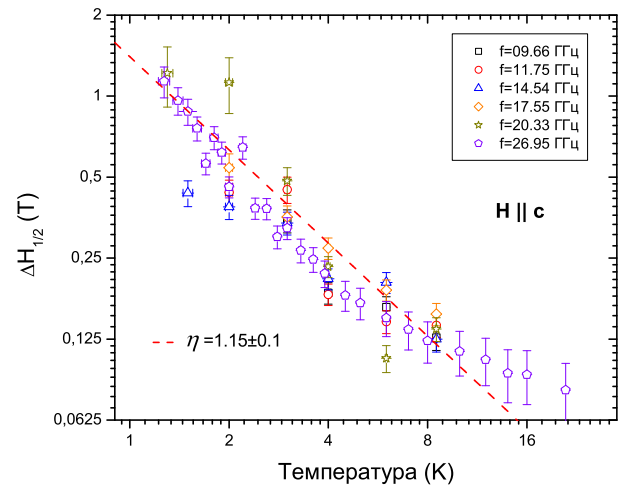


Рис. 2.23. Зависимость полуширины линии от температуры для $H \parallel c$. Красный пунктир — формула (2.28) с показателем степени $\eta = 1.15 \pm 0.1$.

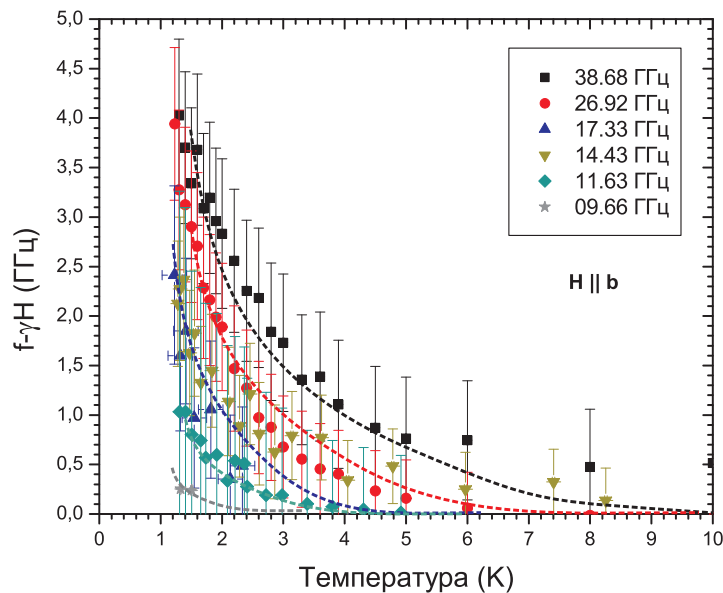


Рис. 2.24. Зависимость смещения резонансного поля от температуры для нескольких различных частот. Магнитное поле направлено вдоль оси b . Пунктирные линии добавлены для наглядности.

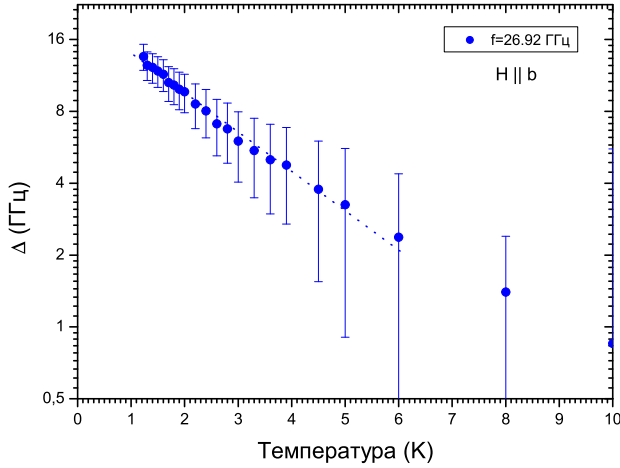


Рис. 2.25. Зависимость щели от температуры для частоты $f = 26.92$ ГГц при магнитном поле, направленном вдоль оси b . По оси y масштаб логарифмический. Прямая пунктирная линии добавлена для наглядности.

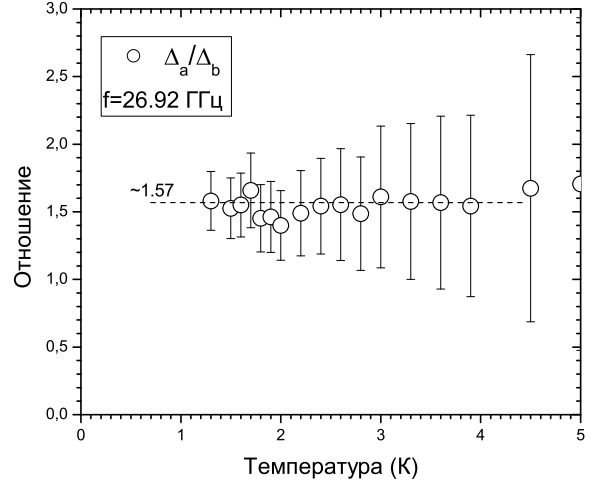


Рис. 2.26. Отношение величин щелей при магнитном поле вдоль осей a и b и зависимость этого отношения от температуры на частоте $f = 27.92$ ГГц. Пунктирная линия добавлена для наглядности.

направленном вдоль оси b , представлен на рисунке 2.25 в полулогарифмическом масштабе.

Для осей a и b щель растет по одинаковому закону, то есть $\Delta_a \propto \Delta_b \propto \varphi(T)$, где $\varphi(T)$ — убывающая функция температуры. На рисунке 2.26 изображена зависимость от температуры отношения $\frac{\Delta_a(T)}{\Delta_b(T)}$ на частоте $f = 27.92$ ГГц, которое остается практически постоянным в пределах погрешности. Следовательно, зависимости щелей от температуры при магнитном поле вдоль осей a и b различаются только множителем, и щель вдоль оси a всегда примерно в 1.6 раз больше, чем вдоль оси b .

Проделать аналогичное сравнение для оси c не позволяет качество исходных данных, так как достоверно выделить щелевую компоненту из резонансной кривой в данном интервале температур не удастся.

2.4. Обзор результатов для упорядоченной фазы

В данном разделе будут коротко изложены некоторые результаты опытов по магнитному резонансу в упорядоченной фазе Cs_2CuCl_4 . Опыты проводились с использованием криостата с откачкой ^3He ($T_{\min} = 0.45$ K), а также с использованием криостата

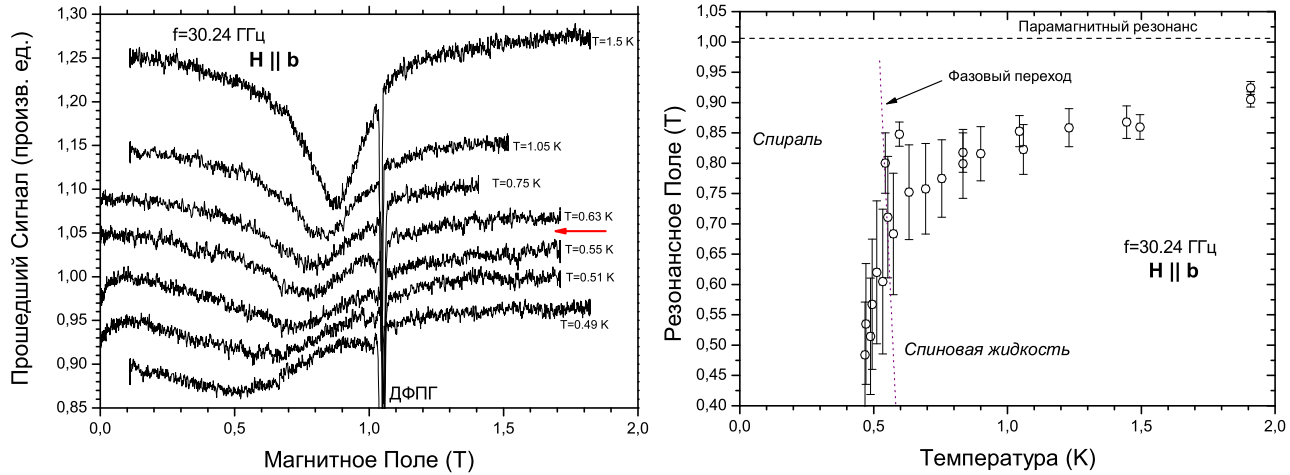


Рис. 2.27. Слева — эволюция линии поглощения с понижением температуры на частоте $f = 30.24$ ГГц, справа — зависимость резонансного поля от температуры на той же частоте. Магнитное поле направлено вдоль оси b . Красная стрелка на левом рисунке обозначает переход в спиральную фазу [30].

растворения KELVINOX-400. Таким образом были достигнуты температуры порядка 0.1 К.

2.4.1. Переход в упорядоченную фазу

Переход Cs_2CuCl_4 в упорядоченную фазу также обладает рядом особенностей. Как уже было показано ранее, развитие корреляций приводит к изменению спектра магнитного резонанса еще при $T > T_N$, в отличие от того, как это происходит в традиционных антиферромагнетиках, где сдвиг частоты возникает в точке перехода. Тем не менее, установление при температуре $T_N = 0.62$ К дальнего порядка, представляющего из себя спиновую спираль в плоскости bc , приводит к некоторой характерной особенности в магнитном резонансе. Так, на рисунке 2.27 изображена температурная эволюция резонансной линии на частоте $f = 30.24$ ГГц при магнитном поле, направленном вдоль оси b и соответствующая ей зависимость резонансного поля от температуры. Видно, что при упорядочении меняется характер зависимости $H_{res}(T)$ и резонансная линия начинает смещаться к нулю быстрее. В точке перехода на зависимости $H_{res}(T)$ наблюдается излом. Соответственно, излом наблюдается и на зависимости $\Delta(T)$. Такая зависимость для нескольких частот изображена на рисунке 2.28. Согласно этим данным, при пере-

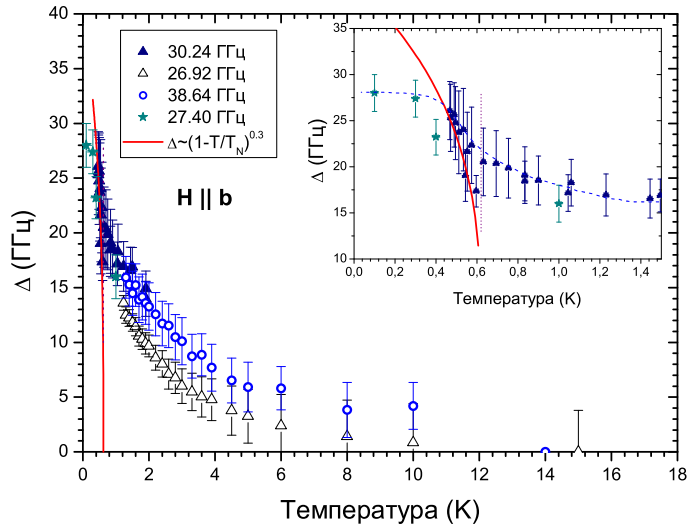


Рис. 2.28. Зависимость щели от температуры в Cs_2CuCl_4 на нескольких частотах для магнитного поля, направленного вдоль оси b . Сплошная линия — критическая зависимость параметра порядка $(T_N - T)^{0.3}$, в соответствии с [18]. Пунктирная линия добавлена для наглядности.

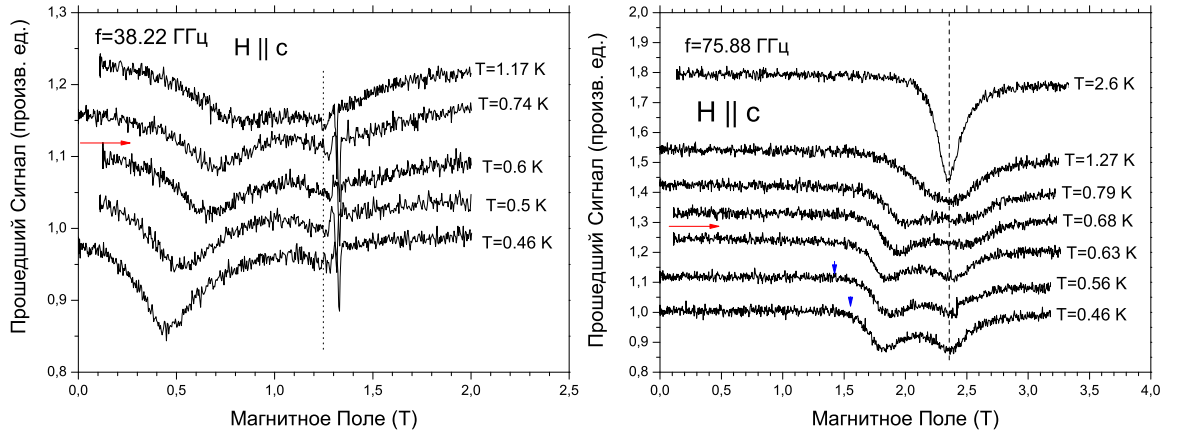


Рис. 2.29. Слева — эволюция линии поглощения с понижением температуры на частоте $f = 38.22$ ГГц, справа — на частоте $f = 75.88$ ГГц. Магнитное поле направлено вдоль оси c . Красные стрелки обозначают фазовый переход по температуре, синие — по магнитному полю (см. фазовую диаграмму 1.11).

ходе в упорядоченную фазу щель сначала начинает расти значительно более резко, чем в спин-жидкостной области, а при достижении температуры порядка $T \sim 0.4$ К рост останавливается и величина щели остается практически постоянной вплоть до самых низких температур.

При магнитном поле, направленном вдоль осей a и c , резонансная линия при дальнейшем понижении температуры и переходе в упорядоченную фазу ведет себя схожим образом. В обеих ориентациях раздвоение линии становится гораздо более отчетливым и дополнительная линия в области парамагнитного резонанса продолжает существовать даже при установлении дальнего порядка. Примеры эволюции резонансных линий с понижением температуры приведены на рисунке 2.29.

2.4.2. Спектр в упорядоченной фазе

На рисунке 2.30 показаны спектры магнитного резонанса в упорядоченной фазе Cs_2CuCl_4 для всех трех ориентаций магнитного поля. Спектры для осей b и c измерены при температуре $T = 0.1$ К, для оси a — при температуре $T = 0.45$ К. Сплошными линиями на рисунках показан результат теоретического расчета спектра в макроскопической двухосного планарного антиферромагнетика [45] со значениями щелей $\Delta_1 = 34$ и $\Delta_2 = 28$ ГГц (более подробно этот подход будет описан в Главе 3). Также на рисунках обозначены поля фазовых переходов согласно работе [30].

Для всех трех осей теоретические результаты удовлетворительно согласуются с экспериментом в малых полях. Однако этот подход не объясняет наличия «парамагнитной» линии при полях, направленных вдоль осей a и c . Кроме того, при $H \parallel c$ в больших полях существует несколько фазовых переходов между различными типами структур, и там возникают новые резонансные моды, не описываемые данной моделью. В этих полях теория [45] уже неприменима и описание дополнительных ветвей спектра остается нерешенной теоретической задачей.

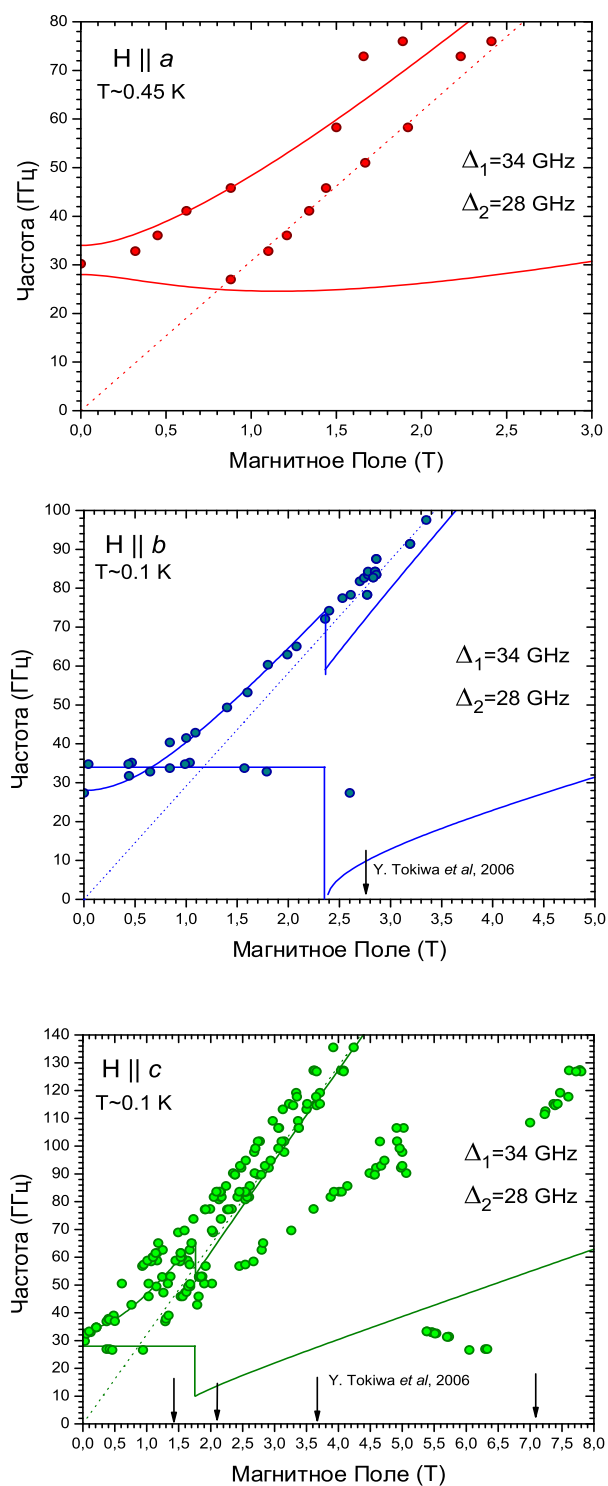


Рис. 2.30. Спектры магнитного резонанса в Cs_2CuCl_4 в упорядоченной фазе. Сплошные линии — результат расчета для модели двухосного спирального антиферромагнетика. Стрелками отмечены поля магнитных переходов согласно [30].

Обсуждение результатов

В данной главе будет описано несколько теоретических моделей, применимых к магнитному резонансу в Cs_2CuCl_4 . Мы предлагаем две исходных гипотезы, позволяющих объяснить сдвиг резонанса в неупорядоченной фазе. Первая из них — предположение о наличии антиферромагнитно упорядоченных областей, коррелированных на коротких расстояниях, выше точки Нееля. Она обсуждается в разделе «Модель спиновых кластеров». Вторая гипотеза — влияние взаимодействия Дзялошинского–Мория на спектр магнитного резонанса. Влияние такого взаимодействия можно описывать микроскопически в рамках теории Ландау фазовых переходов второго рода. Можно также описывать магнитный резонанс в такой системе исходя из микроскопического гамильтониана в приближении слабо связанных спиновых цепочек.

В конце данной главы приводится вычисление спектра магнитного резонанса для планарной антиферромагнитной структуры в рамках теории Андреева–Марченко для объяснения спектров в упорядоченной фазе.

3.1. Модель спиновых кластеров

Обнаруженные в Cs_2CuCl_4 аномалии спектра магнитного резонанса при $T > T_N$ служат еще одним подтверждением факта сильной коррелированности спинов в отсутствие дальнего порядка. Можно качественно описать влияние ближнего порядка на спектр парамагнитного резонанса при помощи следующей модели.

3.1.1. Качественная модель

Предположим, что в исследуемом веществе присутствуют области конечного размера, в которых спины коррелированы, то есть существует ближний антиферромагнитный порядок. При температуре выше, чем температура упорядочения, эти области нестабильны и существуют конечное время, разрушаясь под действием тепловых флуктуаций. Рассмотрим характерное время жизни такой антиферромагнитной области $\tau(T)$ и сравним его с частотой СВЧ f , на которой мы наблюдаем спиновый резонанс. Здесь есть два предельных случая. В первом случае $f \gg \tau^{-1}$, и, следовательно, за один

период колебаний переменного магнитного поля в веществе произойдет многократное перераспределение ближнего магнитного порядка. Взаимная ориентация спинов будет меняться слишком быстро, чтобы дать какой-то скоррелированный отклик на медленное изменение поля \mathbf{h} . Этот случай соответствует парамагнитному резонансу. Во втором случае $f \ll \tau^{-1}$, и за период колебаний внешнего поля ближний порядок не успевает разрушиться, следовательно, отклик будет как от упорядоченной системы. Этот случай соответствует антиферромагнитному резонансу.

В промежуточном случае $f \simeq \tau^{-1}$ ближний порядок будет оказывать влияние на наблюдаемый резонанс, но не настолько сильный, как во втором предельном случае.

3.1.2. Сравнение с экспериментом

Вышеизложенная модель предполагает наличие резонансных мод, характерных для упорядоченной фазы, в системе, где дальний порядок отсутствует, но лишь при больших частотах. Наблюдаемые при $T = 1.3$ К ветви резонанса действительно схожи с наблюдаемыми при 0.1 К и можно проследить, как между ними происходит плавный переход при понижении температуры и переходе в спиральную фазу из парамагнитной.

Измерив спектр при температуре выше T_N , можно указать некоторую характерную частоту, на которой происходит переход от парамагнитного поведения к антиферромагнитному, и таким образом оценить время жизни кластера при данной температуре. На рисунке 3.1 изображена зависимость щели в спектре от частоты, на которой мы наблюдаем резонанс. Видно, что характерной частотой при температуре $T = 1.3$ К является $f_0 \simeq 20$ ГГц. Это соответствует времени жизни кластера $\tau_{1.3 \text{ К}} \simeq 50$ пс.

Эта модель также на качественном уровне объясняет постоянное присутствие парамагнитной линии в спектре, поскольку такой подход предполагает существование парамагнитных кластеров в образце даже при установлении дальнего порядка. В качестве дополнительного аргумента в поддержку этого предположения могут быть привлечены данные по спектру неупругого рассеяния нейтронов, показывающие в упорядоченной фазе присутствие как спиновых волн, так и широкого континуума возбуждений, характерного для парамагнитного либо спин-жидкостного состояния [26].

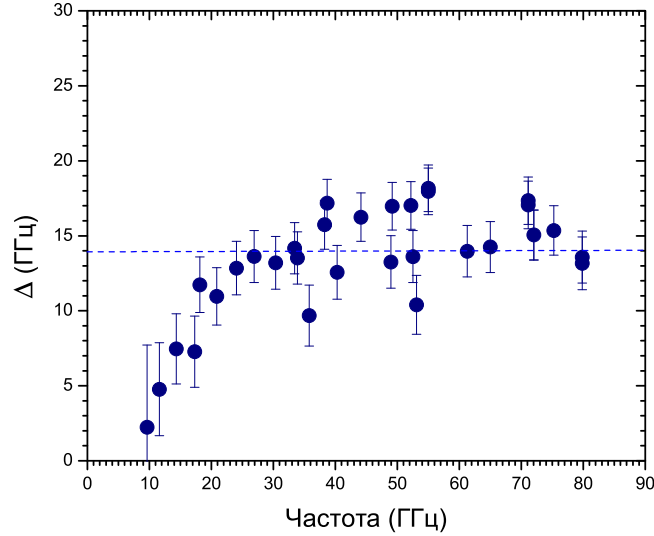


Рис. 3.1. Зависимость щели в спектре резонанса от частоты СВЧ при температуре $T = 1.3$ К. Внешнее поле направлено вдоль оси b . Характерная частота $f_0 = 20$ ГГц.

3.1.3. Недостатки модели

Главным возражением против подобного подхода является отсутствие нейтронных рефлексов упругого рассеяния, соответствующих упорядоченной структуре, при $T > T_N$. В самом деле, времени порядка 10^{-10} сек достаточно для того, чтобы нейтроны с энергией в 5 мэВ¹ (то есть имеющие скорость порядка 10^3 м/с) преодолевали внутри образца расстояние, соответствующее примерно 100 постоянных решетки и сравнимое с периодом несоразмерной структуры. Следовательно, при таких временах жизни кластеров было бы возможно когерентное рассеяние нейтронов и наблюдались бы брэгговские пики, соответствующие волновому вектору спиральной структуры q .

С учетом того, что предполагаемое время жизни кластера возрастает при приближении к температуре Нееля, это возражение становится еще более существенным. Однако имеющиеся экспериментальные данные (рис. 3.2) вполне однозначно показывают, что нейтронный рефлекс, соответствующий спирально упорядоченной структуре с волновым вектором $q = 0.472$, возникает строго при $T = T_N = 0.62$ К.

Таким образом, гипотеза о существовании долгоживущих кластеров с антиферромагнитным порядком оказывается противоречащей экспериментальным данным по упругому рассеянию нейтронов.

¹ Нейтроны с такой энергией использовались в эксперименте [18].

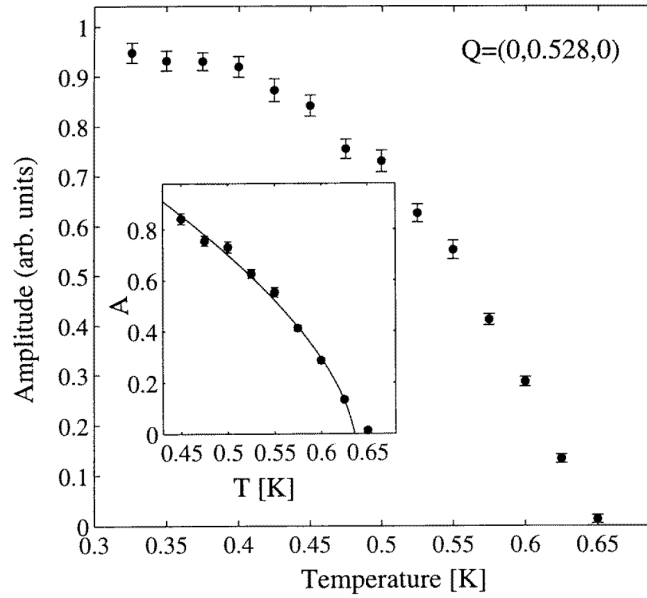


Рис. 3.2. Зависимость интенсивности брэгговского пика, соответствующего волновому вектору $Q = (0, 0.528, 0)$, от температуры. Из работы [18].

3.2. Наведение порядка магнитным полем: термодинамический подход

Наведение порядка выше T_N магнитным полем возможно в антиферромагнетиках со слабым ферромагнетизмом [24]. Рассмотрение этого эффекта в рамках теории фазовых переходов второго рода Ландау описано, например, в [46]. Суть явления в том, что если в разложении термодинамического потенциала кристаллическая симметрия допускает инварианты вида $L_\alpha M_\beta$, то наличие в упорядоченной фазе параметра порядка L_α приводит к существованию ненулевого магнитного момента M_β , и наоборот, если в неупорядоченной фазе создать внешним полем магнитный момент M_β , то будет наведен ненулевой параметр порядка L_α . Примером антиферромагнетика со слабым ферромагнетизмом, в котором наблюдается наведение порядка магнитным полем, является NiCO_3 [47].

Хотя при температуре $T_N = 0.62$ К спины в Cs_2CuCl_4 упорядочиваются в спиральную фазу, в которой слабый ферромагнетизм невозможен, можно рассмотреть разложение термодинамического потенциала по антиферромагнитному параметру порядка L , соответствующему некоторой соразмерной фазе, переход в которую мог бы осуществиться при $T_c < T_N$, если бы спиральная фаза не была энергетически более выгодной. Если такой соразмерный порядок допускает существование слабого ферромагнетизма,

то возможно наведение этого типа порядка магнитным полем выше точки перехода.

Кристалл Cs_2CuCl_4 имеет группу симметрии P_{nma} . В элементарной ячейке находятся 4 иона меди со спином $S = 1/2$. Принимая нумерацию ионов ячейки согласно рисунку 1.6 и направления осей $xyz \rightarrow abc$ мы получаем², что симметрия допускает инварианты $L_x M_z$ и $L_z M_x$. Параметр порядка здесь есть

$$\mathbf{L} = \mathbf{S}_1 - \mathbf{S}_2 + \mathbf{S}_3 - \mathbf{S}_4 \quad (3.1)$$

Тогда разложение термодинамического потенциала в теории Ландау будет

$$\Phi = \Phi_0 + \frac{\lambda}{2}(T - T_c)L^2 + \frac{\beta}{4}L^4 + D_1 L_x M_z + D_2 M_x L_z + \frac{BM^2}{2} - (\mathbf{M}\mathbf{H}) - \frac{H^2}{8\pi} \quad (3.2)$$

Чтобы найти энергетически наиболее выгодную конфигурацию \mathbf{M} и \mathbf{L} для данного магнитного поля \mathbf{H} , следует минимизировать термодинамический потенциал $\Phi(\mathbf{M}, \mathbf{L})$.

Взяв частные производные, мы получаем

$$\frac{\partial \Phi}{\partial \mathbf{M}} = 0 = B\mathbf{M} - \mathbf{H} + \begin{pmatrix} D_2 L_z \\ 0 \\ D_1 L_x \end{pmatrix} \quad (3.3)$$

$$\frac{\partial \Phi}{\partial \mathbf{L}} = 0 = \lambda(T - T_c)\mathbf{L} + \beta L^2 \mathbf{L} + \begin{pmatrix} D_1 M_z \\ 0 \\ D_2 M_x \end{pmatrix} \quad (3.4)$$

Теперь рассмотрим два случая. Сначала примем, что поле направлено вдоль оси y . Это дает нам следующее решение при $T > T_c$ (то есть в парамагнитной фазе): $\mathbf{L} = 0$, $M_{x,z} = 0$, $M_y = H/B$. Пусть теперь поле направлено вдоль оси x . Из уравнений (3.3, 3.4) мы получаем, что

$$\begin{aligned} M_x &= \frac{1}{B}(H - D_2 L_z); \\ M_y &= 0; \\ M_z &= 0; \\ L_x &= 0; \\ L_y &= 0; \\ \lambda(T - T_c)L_z + \beta L_z^3 + \frac{D_2}{B}(H - D_2 L_z) &= 0; \end{aligned} \quad (3.5)$$

² Данный результат принадлежит В. Н. Глазкову

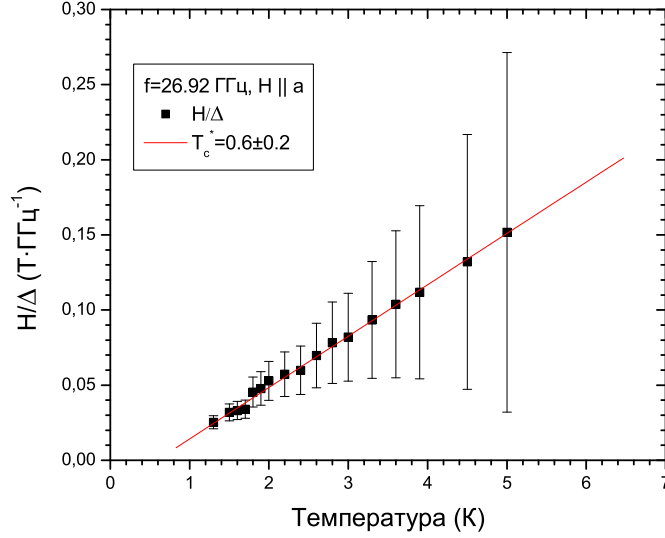


Рис. 3.3. Зависимость $\frac{H}{\Delta}$ от температуры, вычисленная по температурной зависимости резонансного поля на частоте $f = 26.92$ ГГц. Прямая линия — соотношение (3.7) с параметром $T_c^* = 0.6$.

Аналогичную систему можно написать для случая $H \parallel z$. Пусть $T_{c1,2}^* = T_c + \frac{D_{1,2}^2}{\lambda B}$. Тогда рассматривая малые L и пренебрегая L^3 , получим

$$L_{x,z} = \frac{D_{1,2} H_{z,x}}{B\lambda(T - T_{c1,2}^*)} \quad (3.6)$$

Таким образом, в этом приближении возможно наведение порядка магнитным полем вдоль осей a и c . Эффект вдоль оси b может появиться в следующем приближении, при рассмотрении инвариантов 4 порядка, содержащих смешанные произведения \mathbf{L} и \mathbf{M} .

3.2.1. Сопоставление с экспериментом

Поскольку щель пропорциональна параметру порядка, для спектра магнитного резонанса формула (3.6) приводит к следующим эффектам:

- При фиксированной температуре $\Delta \propto H$, что для щелевого спектра $\sqrt{\Delta^2 + (\gamma H)^2}$ приведет к линейной частотно-полевой зависимости с перенормированной величиной γ .

- При фиксированной частоте и меняющейся температуре справедливо следующее соотношение:

$$\frac{H}{\Delta} \propto (T - T_c^*) \quad (3.7)$$

Эти следствия, как и исходное соотношение (3.6), справедливы для малых H и Δ . Проверка первого следствия затруднена из-за сильно уширенной резонансной линии при $T = 1.3$ К в малых полях. Для тех полей, где смещенную линию выделить можно, оно оказывается несправедливым. Второе следствие можно проверить по зависимости величины $\frac{H}{\Delta}$, где H есть резонансное поле, от температуры на частоте $f = 26.92$ ГГц. Эта зависимость изображена на рисунке 3.3, и при малых температурах она действительно близка к линейной. Температура упорядочения предполагаемой структуры $T_c^* = 0.6 \pm 0.2$.

3.3. Цепочка спинов $S = 1/2$: микроскопический подход

Существует также микроскопическая теория, развитая Ошикавой и Аффлеком, описывающая действие магнитного поля на спиновые цепочки $S = 1/2$. Учитывая, что Cs_2CuCl_4 в первом приближении есть система слабо связанных спиновых цепочек вдоль оси b (причем связь между цепочками фрустрирована), применение результатов Ошикавы и Аффлека для объяснения наблюдаемых явлений может оказаться плодотворным. Наши экспериментальные результаты также явно показывают выделенность оси b .

3.3.1. Альтернированное взаимодействие Дзялошинского–Мория

Ошикавой и Аффлеком в работах [48],[49] было показано, что в одномерной цепочке со спином $S = 1/2$ и антиферромагнитным обменом наличие некоторых особенностей в гамильтониане может привести к качественно новому спектру возбуждений при $T = 0$. Такими особенностями могут быть пространственно неоднородный g -тензор или же различающееся знаком для четных и нечетных узлов цепочки взаимодействие

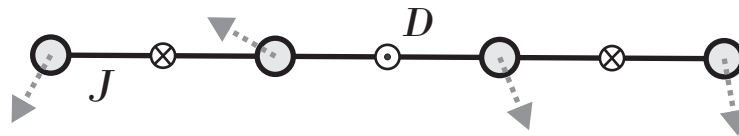


Рис. 3.4. Геометрия обменных связей в модели Ошикавы–Аффлека [48], [49]. Пунктирные стрелки обозначают неупорядоченные спины в узлах цепочки.

Дзялошинского–Мория между ближайшими соседями. Система со знакоперевающимся взаимодействием Дзялошинского–Мория схематично изображена на рисунке 3.4.

Гамильтониан подобной системы записывается следующим образом:

$$\hat{\mathcal{H}} = \sum_j J \hat{\mathbf{S}}_j \hat{\mathbf{S}}_{j+1} + \hat{\mathcal{H}}_H + \hat{\mathcal{H}}_{DM}, \quad (3.8)$$

$$\hat{\mathcal{H}}_H = -\mu_B \sum_{j,a,b} H^a [g_{ab}^u + (-1)^j g_{ab}^s] \hat{\mathbf{S}}_j^b, \quad (3.9)$$

$$\hat{\mathcal{H}}_{DM} = \sum_j (-1)^j \mathbf{D} \cdot (\hat{\mathbf{S}}_j \times \hat{\mathbf{S}}_{j+1}) \quad (3.10)$$

В формулах (3.8, 3.9, 3.10) j означает номер узла цепочки, g_{ab}^u и g_{ab}^s - однородная и переменная части g -тензора соответственно, \mathbf{D} - вектор Дзялошинского–Мория. В случае, когда компоненты g^s и \mathbf{D} малы, члены (3.9) и (3.10) в гамильтониане (3.8) можно привести следующему виду:

$$\hat{\mathcal{H}}_H + \hat{\mathcal{H}}_{DM} = \mu_B \sum_j [-\mathbf{H} \hat{\mathbf{S}}_j - (-1)^j \mathbf{h} \hat{\mathbf{S}}_j], \quad (3.11)$$

$$\mathbf{h} \sim g^s \mathbf{H} + \frac{1}{2J} \mathbf{D} \times g^u \mathbf{H} \quad (3.12)$$

Здесь \mathbf{h} есть амплитуда «качающегося» магнитного поля, возникающего как из-за наличия неоднородного g -тензора, так и из-за знакопеременного взаимодействия Дзялошинского–Мория при действии внешнего однородного поля H .

Ошикава и Аффлек показали, что наличие малого неоднородного поля в цепочке спинов $S = 1/2$ при $T = 0$ приводит к исчезновению парамагнитного резонанса и возникновению новой моды возбуждений, называемой «дыхательной». Частотно–полевая зависимость для этой моды имеет следующий вид:

$$\omega = \sqrt{(\gamma H)^2 + \Delta(h)^2} \quad (3.13)$$

где

$$\Delta(h) = 1.85J \left(\frac{h}{J} \right)^{2/3} \left| \ln \left(\frac{h}{J} \right) \right|^{1/6} \quad (3.14)$$

В силу того, что $h \propto H$ согласно формуле (3.12), для зависимости щели от внешнего поля должно быть справедливо следующее соотношение:

$$\Delta(H) \propto H^{2/3} \quad (3.15)$$

Формулы (3.14) и (3.15) справедливы при $H \ll H_{sat}$.

Экспериментально «дыхательная» мода наблюдалась в нескольких веществах, в которых обмен между магнитными ионами со спином $S = 1/2$ соответствует модели Ошикавы–Аффлека (рис. 3.4): это соединение $KCuGaF_6$ [50], [51]; бензоат меди $Cu(C_6H_5COO)_2 \cdot 3H_2O$ [52], [53]; соединение $CuCl_2 \cdot 2((CD_3)_2SO)$ [54], а также некоторые другие [55], [56].

Кроме того, имеется область температур, где «дыхательная» мода сосуществует с парамагнитной, и экспериментально это выглядит следующим образом: сначала при понижении температуры парамагнитная линия слегка смещается, затем в области меньших полей возникает вторая и при $T \rightarrow 0$ спектральная плотность полностью переходит к ней.

В области, предшествующей этому кроссоверу (то есть до появления второго резонанса), справедливы также следующие скейлинговые соотношения [57, 58] для полуширины линии,

$$\Delta H_{1/2} \propto \left(\frac{H}{T}\right)^2 \quad (3.16)$$

а также для ее смещения относительно парамагнитного резонанса

$$\delta f = f - \gamma H \propto \left(\frac{H}{T}\right)^3 \quad (3.17)$$

3.3.2. Цепочка с анизотропией

В работе Ошикавы и Аффлека [57] также рассматривается влияние анизотропии обмена типа «легкая плоскость» на спектр магнитного резонанса разупорядоченной цепочки $S = 1/2$. Теория предсказывает сдвиг резонансной частоты

$$\delta f = f - \gamma H = \frac{1}{\pi^2} \left(\frac{\delta}{J}\right) H \ln \left(\frac{J}{\max(T, H)}\right) \quad (3.18)$$

и температурную зависимость полуширины линии

$$\Delta H_{1/2} = \frac{2}{\pi^3} \left(\frac{\delta}{J}\right)^2 T \left(\ln \left(\frac{J}{\max(T, H)}\right)\right)^2 \quad (3.19)$$

Здесь δ есть величина анизотропии обмена: $J_z = J_{xy} + \delta$.

Теория для спиновых цепочек с анизотропией типа «легкая плоскость» также вполне может быть приложима к Cs_2CuCl_4 , поскольку согласно [33] здесь присутствует однородное взаимодействие Дзялошинского–Мория на связях вдоль спиновых цепочек. Действительно, эффект однородного взаимодействия Дзялошинского–Мория в первом

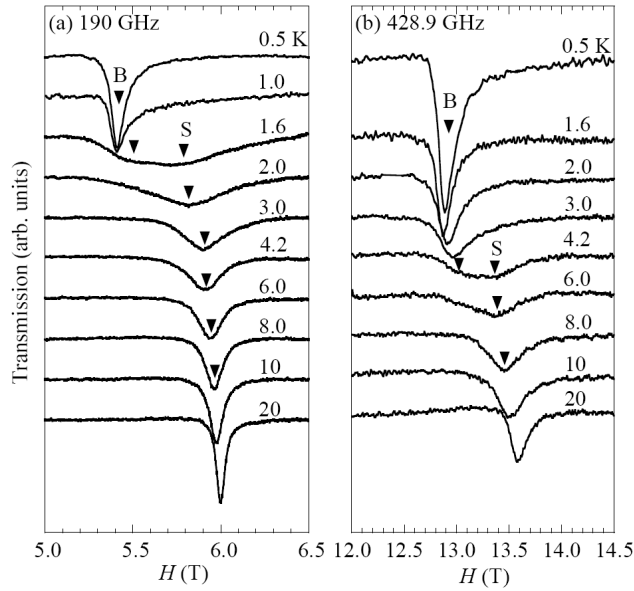


Рис. 3.5. Температурная эволюция линии поглощения в бензоате меди на частотах $f = 190$ и $f = 429$ ГГц. Буквы **S** и **B** обозначают парамагнитную и «дыхательную» моды соответственно. Из работы [59].

приближении может быть представлен в виде легкоплоскостной анизотропии: ведь взаимодействие вида $(\mathbf{D} \cdot [\mathbf{S}_i \times \mathbf{S}_{i+1}])$ делает энергетически выгодным расположение спинов в плоскости, перпендикулярной вектору \mathbf{D} .

3.3.3. Сопоставление с экспериментом

Строго говоря, применение модели Ошикавы–Аффлека для Cs_2CuCl_4 не вполне корректно, так как альтернированное взаимодействие Дзялошинского–Мория действует не вдоль цепочки, а вдоль фрустрирующих «треугольных» связей. Тем не менее, экспериментальные данные в некоторых аспектах демонстрируют согласие с этой моделью. Так, можно провести аналогии между предсказываемым моделью Ошикавы–Аффлека кроссовером от парамагнитного резонанса к «дыхательной» моде и наблюдаемым поведением резонансных линий при внешнем поле, направленном вдоль осей a и c при понижении температуры. В обоих случаях уменьшение температуры приводит во-первых, к смещению парамагнитной линии, во-вторых, к возникновению дублета. На качественном уровне предсказания модели Ошикавы–Аффлека отличаются от наших данных анизотропией эффекта, который должен исчезать при магнитном поле, направленном вдоль вектора Дзялошинского–Мория ($H \parallel a$). В нашем случае эффект существует при всех трех ориентациях внешнего магнитного поля. Согласно [48, 49, 57] возникновение

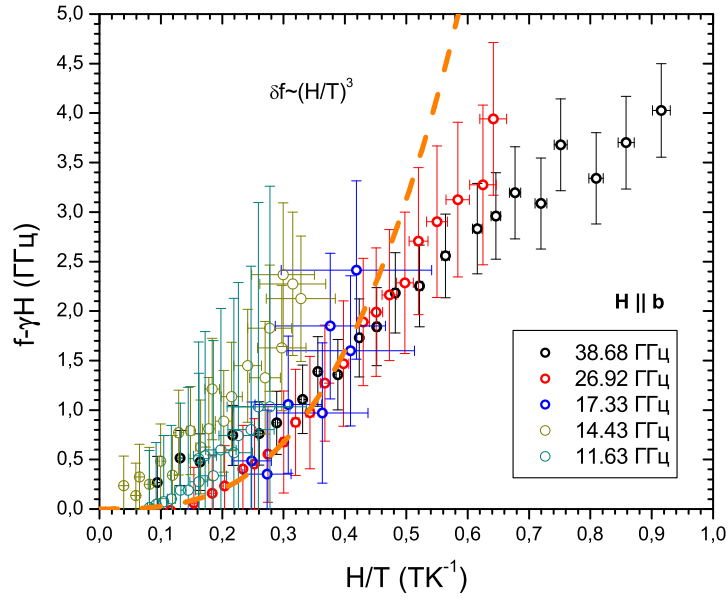


Рис. 3.6. Зависимость сдвига резонанса δf от параметра $\frac{H}{T}$, где H — резонансное поле. Более насыщенными точками выделены данные с частот, для которых выполняется критерий $\Delta H_{1/2} < H$ во всем температурном диапазоне. Оранжевый пунктир — подгонка этих данных (17.33, 26.92 и 38.68 ГГц) скейлинговым соотношением (3.17). Поле направлено вдоль оси b .

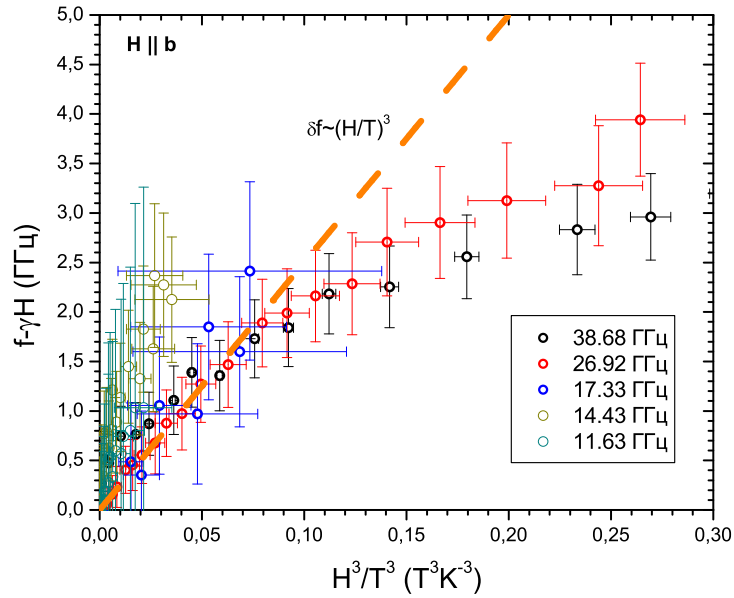


Рис. 3.7. То же, что на рисунке 3.6, но в координатах $\left(\frac{H}{T}\right)^3$.

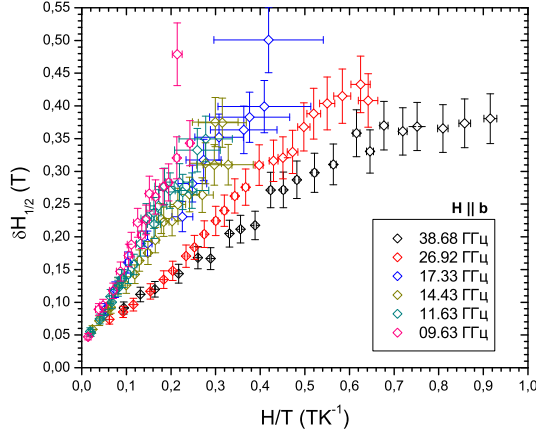


Рис. 3.8. Зависимость полуширины резонансной линии от параметра $\frac{H}{T}$, где H — резонансное поле. Внешнее магнитное поле направлено вдоль оси b .

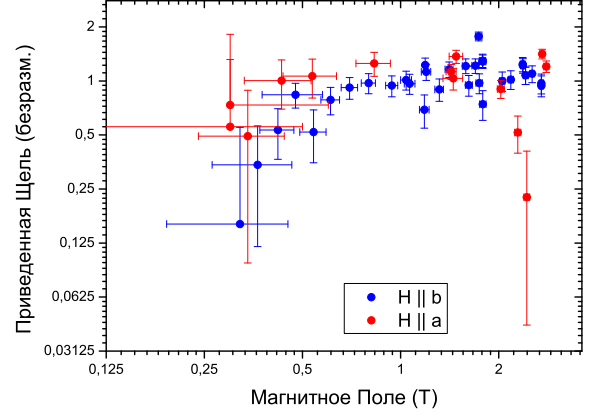


Рис. 3.9. Зависимость щели Δ , нормированной на собственную величину при $T = 1.3$ К (14 и 20 ГГц для магнитного поля вдоль b и a соответственно) от внешнего поля.

новой моды должно выглядеть следующим образом: при высоких температурах возникает смещение парамагнитной линии, затем с понижением температуры возникает дублет и при низких температурах вся спектральная плотность должна полностью перейти в «дыхательную» моду. Экспериментальный пример приведен на рисунке 3.5. На этом рисунке из работы [59] показано, как в бензоате меди, представляющем собой спиновую цепочку $S = 1/2$ с альтернированными взаимодействием Дзялошинского–Мория и g -тензором, происходит переход между парамагнитной и «дыхательной» резонансными модами с понижением температуры. Такая картина находится в согласии с теорией Ошикавы и Аффлека. Соответственно, в Cs_2CuCl_4 можно было бы ожидать отсутствия эффекта при $H \parallel a$ и расщепления линии с последующим исчезновением парамагнитной компоненты при понижении температуры при $H \parallel b, c$. Согласно нашим данным, при $H \parallel b$ резонансная линия смещается без расщепления, а при $H \parallel a, c$ расщепляется на парамагнитную и смещенную компоненты, причем интенсивность парамагнитной линии слабо меняется с температурой.

На рисунках 3.6–3.7 представлены зависимости сдвига резонансной линии $\delta f = f - \mu_B g_b H$ от $\frac{H}{T}$ и $\left(\frac{H}{T}\right)^3$ соответственно, при поле, направленном вдоль оси b . Как видно из рисунков, скейлинговое соотношение (3.17) хорошо выполняется для более

высоких частот, хуже — для низких. Здесь представляется возможным применить следующий критерий отбора данных: во-первых, скейлинговое соотношение выполняется для $\frac{H}{T} \ll 1$; во-вторых, оно выполняется для таких резонансных линий, при уширении и смещении которых с понижением температуры полуширина остается меньше резонансного поля ($\Delta H_{1/2} < H$), то есть линия достаточно удалена от нуля. Таким образом мы получаем, что на частотах $f = 17.33, 26.92$ и 38.68 ГГц величина смещения резонансной линии пропорциональна $\left(\frac{H}{T}\right)^3$, в соответствии с предсказанием [57].

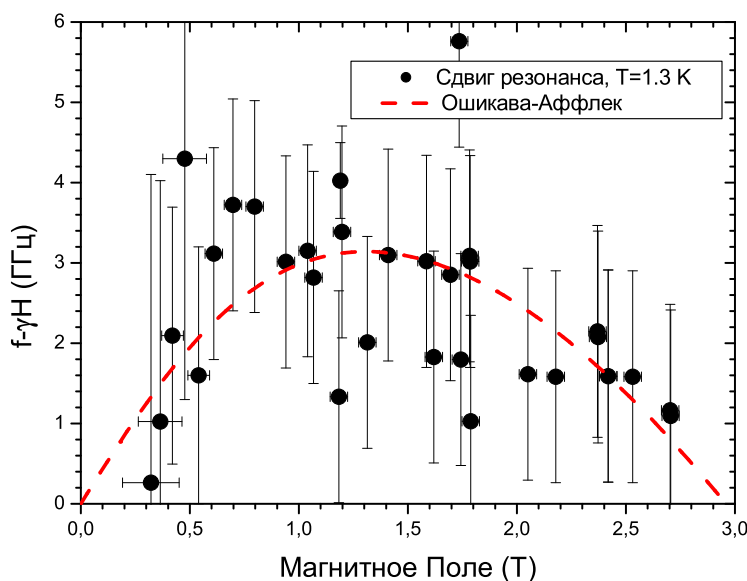


Рис. 3.10. Зависимость сдвига резонанса δf от резонансного поля H при температуре $T = 1.3$ К во всем диапазоне частот. Красный пунктир — подгонка по формуле (3.18) с параметрами $J = 3.1$ Т, $\delta = 10J$. Поле направлено вдоль оси b .

Однако, эта теория предсказывает также скейлинг полуширины резонансной линии, пропорционально $\left(\frac{H}{T}\right)^2$, чего в действительности не наблюдается (см. рис. 3.8). Как уже было показано ранее, полуширина линии для данной ориентации вообще не зависит от магнитного поля.

Можно также попытаться интерпретировать щелевую ветвь спектра как присутствие «дыхательной» резонансной моды. Однако наблюдаемая зависимость $\Delta(H)$ (рисунок 3.9) предсказываемой Ошикавой и Аффлеком степенной зависимости $3/2$ (3.15) не соответствует. При полях выше 0.5 Т щель остается почти постоянной, а в меньших полях качество данных позволяет лишь утверждать, что наблюдается монотонный рост.

Сравним также наши экспериментальные результаты с теоретическими результатами Ошикавы–Аффлека для цепочек с анизотропией обмена. На рисунке 3.10 приведена зависимость сдвига резонанса от величины магнитного поля вдоль оси b при температуре $T = 1.3$ К. Удовлетворительное согласие формулы (3.18) с экспериментальными результатами достигается лишь при нефизически большом значении параметра $\frac{\delta}{J} \simeq 10$. Это свидетельствует о том, что применение такого теоретического подхода здесь неоправдано. Об этом говорит также то, что температурная зависимость полуширины линии радикально отличается от предсказаний Ошикавы и Аффлека (3.19): в то время, как для анизотропной цепочки она должна быть пропорциональна T , в нашем случае полуширина быстро возрастает с понижением температуры. По видимому, такое поведение объясняется тем, что система близка к точке фазового перехода второго рода ($T_N = 0.6$ К).

3.4. Резонансные моды при $T = 0$

Согласно [18], магнитная структура Cs_2CuCl_4 в малых полях есть спираль, лежащая почти в плоскости bc . Макроскопический подход Андреева–Марченко [60] дает возможность рассчитать спектры магнитного резонанса в полях, много меньших чем поле насыщения, опираясь исключительно на симметричные свойства упорядоченной фазы. Поскольку угол отклонения спирали от плоскости bc не очень велик ($\sim 17^\circ$), магнитоупорядоченную структуру при $T = 0$ можно считать планарной. Кристалл Cs_2CuCl_4 имеет три оси второго порядка, следовательно, может присутствовать двухосная анизотропия. Расчет мод АФМР для планарной структуры с двухосной анизотропией в рамках формализма Андреева–Марченко был проведен А. М. Фарутиным в работе [45]. Воспроизведем здесь его результаты.

Для планарного антиферромагнетика магнитная структура определяется двумя взаимно перпендикулярными векторами \mathbf{l}_1 и \mathbf{l}_2 . Введем также их векторное произведение $\mathbf{n} = [\mathbf{l}_1 \times \mathbf{l}_2]$. Тогда лагранжиан 1 моля нашего планарного магнетика запишется в виде

$$\mathcal{L} = \frac{I_1}{2} \left\{ (\dot{\mathbf{l}}_1 + \gamma[\mathbf{l}_1 \times \mathbf{H}])^2 + (\dot{\mathbf{l}}_2 + \gamma[\mathbf{l}_2 \times \mathbf{H}])^2 \right\} + \frac{I_2}{2} (\dot{\mathbf{n}} + \gamma[\mathbf{n} \times \mathbf{H}])^2 - U_a \quad (3.20)$$

Здесь $I_1 = \frac{\chi_\perp}{2}$, $I_2 = \chi_\parallel - \frac{\chi_\perp}{2}$. Энергия анизотропии может быть записана в виде

$$U_a = \frac{1}{2}(An_z^2 + Bn_y^2) \quad (3.21)$$

если мы выберем оси следующим образом: $a \rightarrow z \parallel \mathbf{n}$, $b \rightarrow x$, $c \rightarrow y$. При этом должно быть $A < 0$, $A < B$, чтобы основным состоянием была спираль, лежащая в плоскости bc . Варьирование лагранжиана (3.20) по $\delta \mathbf{l}_1$ и $\delta \mathbf{l}_2$ приведет нас к следующим ветвям спектра:

1) В случае $H \parallel b$

$$\omega = \omega_{10}, \sqrt{\omega_{20}^2 + (\gamma_b H)^2} \quad (3.22)$$

2) В случае $H \parallel c$

$$\omega = \omega_{20}, \sqrt{\omega_{10}^2 + (\gamma_c H)^2} \quad (3.23)$$

3) В случае $H \parallel a$

$$\begin{aligned} \omega^2 = & \frac{\omega_{10}^2 + \omega_{20}^2}{2} + (\gamma_a H)^2 \frac{I_1^2 + I_2^2}{(I_1 + I_2)^2} \pm \\ & \pm \sqrt{\frac{(\omega_{10}^2 - \omega_{20}^2)^2}{4} + 2(\gamma_a H)^2 (\omega_{10}^2 + \omega_{20}^2) \frac{I_2^2}{(I_1 + I_2)^2} + 4(\gamma_a H)^4 \frac{I_1^2 I_2^2}{(I_1 + I_2)^4}} \quad (3.24) \end{aligned}$$

Здесь $\omega_{10}^2 = \frac{-A}{\chi_{\parallel}}$, $\omega_{20}^2 = \frac{B-A}{\chi_{\parallel}}$. Кроме того, в случае $\chi_{\parallel} > \chi_{\perp}$ при некоторой критической величине магнитного поля в плоскости спиральной структуры происходит ее переориентация — так называемый «спин-флоп». Поля, в которых происходит спин-флоп, определяются из следующих соотношений:

$$H_{sf}^b = \frac{\omega_{10}}{\gamma_b} \sqrt{\frac{\chi_{\parallel}}{\chi_{\parallel} - \chi_{\perp}}} \quad (3.25)$$

для магнитного поля, параллельного оси b , и

$$H_{sf}^c = \frac{\omega_{20}}{\gamma_c} \sqrt{\frac{\chi_{\parallel}}{\chi_{\parallel} - \chi_{\perp}}} \quad (3.26)$$

для магнитного поля, параллельного оси c . При $H \parallel b$ частоты спинового резонанса после спин-флопа будут определяться по формуле (3.24), в которую теперь надо подставить $\omega_{10}^2 = \frac{A}{\chi_{\parallel}}$ и $\omega_{20}^2 = \frac{B}{\chi_{\parallel}}$. Для $H \parallel c$ — аналогично, со значениями параметров $\omega_{10}^2 = -\frac{B}{\chi_{\parallel}}$ и $\omega_{20}^2 = \frac{A-B}{\chi_{\parallel}}$.

Обнаруженные в экспериментах на криостате растворения значения щелей составляют $\omega_{10} = 34$ ГГц и $\omega_{20} = 28$ ГГц при $T \simeq 0$ К. Из данных, представленных на рисунке

1.10 мы получаем, что $\chi_{\parallel} = 4.9 \cdot 10^{-3}$ и $\chi_{\perp} = 3.7 \cdot 10^{-3}$ при $T = 0$. Отсюда мы находим параметры анизотропии в лагранжиане (3.20) $A = -56644$ ГГц² и $B = -18228$ ГГц². Спектр магнитного резонанса спирального магнетика с этими параметрами изображен на рисунке 2.30, там же изображены экспериментальные результаты при низких температурах. В малых полях теория хорошо совпадает с экспериментом. Однако, не совпадают поля фазовых переходов, и в больших полях есть ветви спектра, которые эта модель не предсказывает.

Условие применимости данного приближения есть $\frac{H}{H_{sat}} \ll 1$. С учетом того, что для Cs₂CuCl₄ поле насыщения составляет приблизительно $H_{sat} \simeq 8$ Т, это приближение должно хорошо работать лишь в полях не выше 1 – 2 Тесла.

3.5. Выводы

Ни одна из описанных моделей не объясняет всей совокупности экспериментальных данных. Кластерная модель качественно объясняет спектр магнитного резонанса в спин-жидкостной области, однако противоречит данным по упругому рассеянию нейтронов.

Термодинамический подход к наведению порядка магнитным полем качественно описывает температурные зависимости щели для осей a и c , однако не объясняет сдвиг резонанса для $H \parallel b$ и наличие парамагнитной компоненты спектра. Микроскопический подход Ошикавы и Аффлека также демонстрирует соответствие поведению сдвига резонанса в области высоких температур, однако предсказывает поведение полуширины линии, отличное от наблюдаемого. Следует отметить, что область применимости этих подходов, строго говоря, не позволяет применять их для Cs₂CuCl₄. Термодинамический подход применим только для малых значений щели v и окрестности T_N , а теория Ошикавы и Аффлека разработана для цепочек спинов $S = 1/2$.

Макроскопическая теория Фарутина удовлетворительно описывает резонансные моды в малых магнитных полях в упорядоченной фазе. Необъясненными остаются раздвоение линии на высоких частотах и появление дополнительных ветвей спектра в высокополевых фазах.

Таким образом, полное теоретическое описание спектра магнитного резонанса Cs₂CuCl₄ пока отсутствует.

Заключение

Основными результатами данной работы являются следующие:

- Изучен электронный спиновый резонанс в диапазоне частот 9 — 90 ГГц в неупорядоченной фазе антиферромагнетика на искаженной треугольной решетке со спином $S = 1/2$ Cs_2CuCl_4 . Получены спектры резонанса при различных температурах и зависимости ширины линии от поля и температуры.
- В широкой области температур $T > T_N$ обнаружен и изучен сдвиг магнитного резонанса при $H \parallel b$, и сдвиг с раздвоением линии при $H \parallel a$ и $H \parallel c$.
- Существование сдвига предположительно связывается с взаимодействием Дзялошинского–Мория. Высокотемпературное поведение сдвига частоты резонанса находится в качественном соответствии с зависимостью $\delta f \propto \left(\frac{H}{T}\right)^3$, полученной в теоретико–полевой модели Ошикавы и Аффлека для цепочки $S = 1/2$ с альтернированным взаимодействием Дзялошинского–Мория.
- Раздвоение линии требует объяснения.
- Предложена альтернативная модель спиновых кластеров, дающая качественное описание данных.

Полученные экспериментальные данные были доложены на конференциях «Spin Waves 2009» (Санкт-Петербург, июнь 2009) и «НТ-35» (Черноголовка, октябрь 2009).

Автор благодарит Александра Ивановича Смирнова за чуткое руководство работой, многочисленные важные обсуждения и разъяснения и внимание к деталям. Хочется также выразить благодарность Василию Николаевичу Глазкову, Леониду Евгеньевичу Свистову и Сергею Сергеевичу Сосину за постоянное внимание к работе, полезные дискуссии и практическую помощь, Людмиле Андреевне Прозоровой за поддержание теплой атмосферы в коллективе и Игорю Алексеевичу Зализняку за ценные замечания. Данная работа была бы невозможна без помощи в приготовлении и ориентировании образцов со стороны Сергея Владимировича Петрова, Аркадия Яковлевича Шапиро и Юрия Федоровича Орехова, а также большого вклада, который внес Владимир Ефи-

мович Трофимов в создание резонаторных ячеек.

Работа была поддержана грантом РФФИ №09-02 00736, а также программой Минобразования «Научно–образовательный центр Квантовая нанофизика».

Литература

- [1] Р. УАЙТ
Квантовая теория магнетизма
М.: Мир (1985).
- [2] Н. ВЕТНЕ
Zur Theorie der Metalle. I. Eigenwerte und Eigenfunktionen der linearen Atomkette
Z. Physik **71**, 205 (1931).
- [3] B. S. SHASTRY, B. SUTHERLAND
Exact ground state of a quantum mechanical antiferromagnet
Physica B+C **108**, 1069 (1981).
- [4] N. D. MERMIN, H. WAGNER
Absence of Ferromagnetism or Antiferromagnetism in One- or Two-Dimensional Isotropic Heisenberg Models
Phys. Rev. Lett. **17**, 1133 (1966).
- [5] P. W. ANDERSON
Resonating valence bonds: A new kind of insulator?
Mater. Res. Bull. **8**, 153 (1973).
- [6] W. ZHENG, J. O. FJÆRESTAD, 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).
- [7] S. R. WHITE, A. L. CHERNYSHEV
Neél Order in Square and Triangular Lattice Heisenberg Models
Phys. Rev. Lett. **99**, 127004 (2007).
- [8] D. HEIDARIAN, S. SORELLA, F. BECCA
From magnetism to one-dimensional spin liquid in the anisotropic triangular lattice
Phys. Rev. B **80**, 012404 (2009).
- [9] T. NAGAMIYA, K. NAGATA, Y. KITANO

- Magnetization Process of a Screw Spin System*
Progress of Theoretical Physics **27**, 6, 1253 (1962).
- [10] K. KATSUMATA
High-frequency electron spin resonance in magnetic systems
J. Phys.: Condens. Matter **12**, R589–R614 (2000).
- [11] R. B. LAUGHLIN, V. KALMEYER
Theory of the spin liquid state of the Heisenberg antiferromagnet
Phys. Rev. B **39**, 16, 11879 (1989).
- [12] A. V. CHUBUKOV, S. SACHDEV, T. SENTHILL
Large- S expansion for quantum antiferromagnets on a triangular lattice
J. Phys.: Condens. Matter **6**, 8891 (1994).
- [13] 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).
- [14] L. CAPRIOTTI, A. E. TRUMPER, S. SORELLA
Long-Range Néel Order in the Triangular Heisenberg Model
Phys. Rev. Lett. **82**, 19, 3899 (1999).
- [15] M. E. ZHITOMIRSKY, A. L. CHERNYSHEV
Spin waves in a triangular lattice antiferromagnet: Decays, spectrum renormalization, and singularities
Phys. Rev. B **79**, 144416 (2009).
- [16] M. SHARNOFF
Electron Paramagnetic Resonance and the Primarily 3d Wavefunctions of the Tetrachlorocuprate Ion
J. Chem. Phys. **44**, 10, 3383 (1964).
- [17] M. SHARNOFF
Electron Paramagnetic Resonance in Tetrahedrally Coordinated Copper⁺⁺: The

Tetrachlorocuprate Ion

- J. Chem. Phys. **44**, 10, 3383 (1964).
- [18] R. COLDEA, D. A. TENNANT, R. A. COWLEY, D. F. MCMORROW, B. DORNER, Z. TYLCZYNSKI
Neutron scattering study of the magnetic structure of Cs_2CuCl_4
J. Phys.: Condens. Matter **8**, 7473–7491 (1996).
- [19] R. COLDEA, D. A. TENNANT, R. A. COWLEY, D. F. MCMORROW, B. DORNER, Z. TYLCZYNSKI
The Quasi-1D $S=1/2$ Antiferromagnet Cs_2CuCl_4 in a Magnetic Field
Phys. Rev. Lett. **79**, 1, 151 (1997).
- [20] 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).
- [21] 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 Cs_2CuCl_4
Physica B **256-258**, 637 (1998).
- [22] 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 Cs_2CuCl_4
Phys. Rev. Lett. **88**, 13, 137203 (2002).
- [23] T. RADU, H. WILHELM, V. YUSHANKHAI, D. KOVRIZHIN, R. COLDEA, Z. TYLCZYNSKI, T. LÜHMANN, F. STEGLICH
Bose-Einstein Condensation of Magnons in Cs_2CuCl_4
Phys. Rev. Lett. **95**, 127202 (2005).
- [24] И. Е. ДЗЯЛОШИНСКИЙ
Термодинамическая теория «слабого» ферромагнетизма антиферромагнетиков
ЖЭТФ **32**, 1547 (1957).

- [25] T. MORYA
Anisotropic Superexchange Interaction and Weak Ferromagnetism
 Phys. Rev. **120**, 1, 91 (1960).
- [26] 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).
- [27] D. DALIDOVICH, R. SKNEPNEK, A. J. BERLINSKY, J. ZHANG, C. KALLIN
Spin structure factor of the frustrated quantum magnet Cs_2CuCl_4
 Phys. Rev. B **73**, 184403 (2006).
- [28] M. Y. VEILLETTE, A. J. A. JAMES, F. H. L. ESSLER
Spin dynamics of the quasi-two-dimensional spin-1/2 quantum magnet Cs_2CuCl_4
 Phys. Rev. B **72**, 134429 (2005).
- [29] C.-H. CHUNG, K. VOELKER, Y. B. KIM
Statistics of spinons in the spin-liquid phase of Cs_2CuCl_4
 Phys. Rev. B **68**, 094412 (2003).
- [30] 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).
- [31] M. Y. VEILLETTE, J. T. CHALKER, R. COLDEA
Ground states of a frustrated spin-1/2 antiferromagnet: Cs_2CuCl_4 in a magnetic field
 Phys. Rev. B **71**, 214426 (2005).
- [32] M. Y. VEILLETTE, J. T. CHALKER
Commensurate and incommensurate ground states of Cs_2CuCl_4 in a magnetic field
 Phys. Rev. B **74**, 052402 (2006).
- [33] O. A. STARYKH, H. KATSURA, L. BALENTS
Extreme sensitivity of a frustrated quantum magnet: Cs_2CuCl_4
 to be published arXiv:1004.5117v1 [cond-mat.str-el], (2010).

- [34] M. A. VACHON, W. KUNDHIKANJANA, A. STRAUB, V. F. MITROVIĆ, A. P. REYES, P. KUHN, R. COLDEA, Z. TYLCZYNSKI
¹³³Cs NMR investigation of 2D frustrated Heisenberg antiferromagnet, Cs₂CuCl₄
New J. Phys. **8**, 222 (2006).
- [35] A. SYTCHEVA, O. CHIATTI, J. WOSNITZA, S. ZHERLITSYN, A. A. ZVYAGIN, R. COLDEA, Z. TYLCZYNSKI
Short-range correlations in quantum frustrated spin system
Phys. Rev. B **80**, 224414 (2009).
- [36] Е. К. ЗАВОЙСКИЙ
Парамагнитная адсорбция в растворах при параллельных полях
ЖЭТФ **15**, 253 (1945).
- [37] С. А. ДЗЮБА
Основы магнитного резонанса
Новосибирск: Издательство Новосибирского Государственного Университета (1994).
- [38] А. АБРАГАМ, Б. БЛИНИ
Электронный парамагнитный резонанс переходных ионов
М.: Мир (1972).
- [39] Г. Д. БОГОМОЛОВ
Прикладная электродинамика
М.: МФТИ (2005).
- [40] В. Н. ГЛАЗКОВ
Экспериментальное исследование спин-пайерсовского магнетика с дефектами
Кандидатская диссертация, Институт Физических Проблем им. П. Л. Капицы РАН (2003).
- [41] Л. В. СОБОЛЕВА, Л. М. БЕЛЯЕВ, В. В. ОГАДЖАНОВА, М. Г. ВАСИЛЬЕВА
Фазовая диаграмма системы CsCl – CuCl₂ – H₂O и рост монокристаллов хлоридов меди-цезия
Кристаллография **26**, 4, 817 (1981).

- [42] THE INTERNATIONAL CENTRE DIFFRACTION DATA
PDF-2
The Joint Committee on Powder Diffraction Standards (1997).
- [43] Л. Д. ЛАНДАУ, Е. М. ЛИФШИЦ
Теоретическая физика, том V. Статистическая физика, часть 1
М.: «Наука» (1976).
- [44] А. И. СМИРНОВ *et al*
неопубликовано (2010).
- [45] Л. Е. СВИСТОВ, Л. А. ПРОЗОРОВА, А. М. ФАРУТИН, А. А. ГИППИУС, К. С. ОХОТНИКОВ, А. А. БУШ, К. Е. КАМЕНЦЕВ, Э. А. ТИЩЕНКО
Магнитная структура квазиодномерного фрустрированного антиферромагнетика со спином $S=1/2$ $LiCu_2O_2$
ЖЭТФ **108**, 1000 (2009).
- [46] Л. Д. ЛАНДАУ, Е. М. ЛИФШИЦ
Теоретическая физика, том VII. Электродинамика сплошных сред
М.: «Наука» (1976).
- [47] Л. А. ПРОЗОРОВА
Антиферромагнитный резонанс в $NiCO_3$ и исследование антиферромагнитного упорядочения в окрестности точки Нееля
ЖЭТФ **57**, 1967 (1969).
- [48] M. OSHIKAWA, I. AFFLECK
Field-induced gap in Cu benzoate and other $S=1/2$ antiferromagnetic chains
Phys. Rev. B **60**, 2, 1038 (1999).
- [49] M. OSHIKAWA, I. AFFLECK
Low-Temperature Electron Spin Resonance Theory for Half-Integer Spin Antiferromagnetic Chains
Phys. Rev. Lett. **82**, 25, 5136 (1999).
- [50] R. MORISAKI, T. ONO, H. TANAKA, H. UEKUSA

- Magnetic-field induced gap in one-dimensional antiferromagnet $KCuGaF_6$*
 J. Phys.: Conf. Ser. **51**, 179 (2006).
- [51] R. MORISAKI, T. ONO, H. TANAKA, H. NOJIRI
Thermodynamic Properties and Elementary Excitations in Quantum Sine-Gordon Spin System $KCuGaF_6$
 J. Phys. Soc. Jpn. **76**, 063706 (2007).
- [52] J. Z. ZHAO, X. Q. WANG, T. XIANG, Z. B. SU, L. YU
Effects of the Dzyaloshinskii-Moriya Interaction on Low-Energy Magnetic Excitations in Copper Benzoate
 Phys. Rev. Lett. **90**, 207204 (2003).
- [53] T. ASANO, H. NOJIRI, Y. INAGAKI, J. P. BOUCHER, T. SAKON, Y. AJIRO, M. MOTOKAWA
ESR Investigation on the Breather Mode and the Spinon-Breather Dynamical Crossover in Cu Benzoate
 Phys. Rev. Lett. **84**, 5880 (1999).
- [54] Y. CHEN, M. B. STONE, M. KENZELMANN, C. D. BATISTA, H. D. REICH, C. BROHOLM
Phase diagram and spin Hamiltonian of weakly-coupled anisotropic $S=1/2$ chains in $CuCl_2 \cdot 2((CD_3)_2SO)$
 Phys. Rev. B **75**, 214409 (2007).
- [55] S. A. ZVYAGIN, A. K. KOLEZHUK, J. KRZYTEK, R. FEYERHERM
Excitation Hierarchy of the Quantum Sine-Gordon Spin Chain in a Strong Magnetic Field
 Phys. Rev. Lett. **93**, 027201 (2004).
- [56] Y. FUJIMOTO, T. FUJITA, S. MITSUDO, T. IDEHARA, T. SASAKI, Y. FUJII, H. KIKUCHI, M. CHIBA
High field ESR measurements on the low dimensional $S=1/2$ Heisenberg antiferromagnet $(CPA)_2CuBr_4$
 J. Phys.: Conf. Ser. **51**, 107 (2006).
- [57] M. OSHIKAWA, I. AFFLECK

Electron Spin Resonance in $S = 1/2$ Antiferromagnetic Chains

Phys. Rev. B **65**, 134410 (2002).

[58] M. OSHIKAWA, I. AFFLECK

Erratum: Electron Spin Resonance in $S = 1/2$ Antiferromagnetic Chains

Phys. Rev. B **76**, 109901(E) (2007).

[59] Y. AJIRO

ESR Experiments on Quantum Spin Systems

J. Phys. Soc. Jpn. **72**, Supplement B, 12 (2003).

[60] А. Ф. АНДРЕЕВ, В. И. МАРЧЕНКО

Симметрия и макроскопическая динамика магнетиков

УФН **130**, 39 (1980).