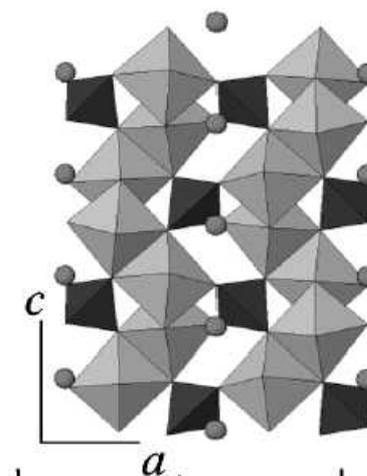
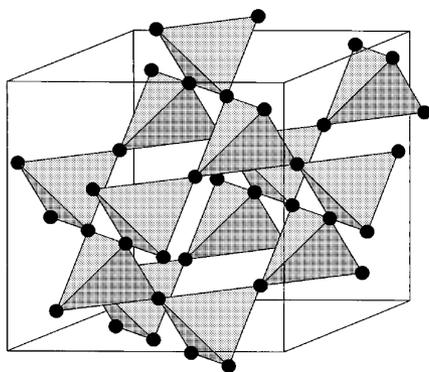


# Электронный спиновый резонанс в антиферромагнетиках (некоторые аспекты)

А.И.Смирнов

*Институт физических проблем им. П.Л. Капицы РАН*



*Школа ФКС Гатчина Зима 2010*

# План

**Диэлектрические магнитные кристаллы  
с антиферромагнитным обменным взаимодействием.**

**Магнитные ионы**

**$\text{Cu}^{2+}$  ( $S=1/2$ ),  $\text{Ni}^{2+}$  ( $S=1$ ),  $\text{Fe}^{3+}$  ( $S=5/2$ ),  $\text{Gd}^{3+}$  ( $S=7/2$ ) ...**

**1. Спиновая динамика простых антиферромагнитных структур.**

**2. Спиновая динамика треугольного антиферромагнетика**

**3. Беспорядок в магнитных кристаллах при  $T=0$ :**

**квантовые спиновые жидкости -**

**3а). Связанные спиновые цепочки**

**3б). Сети связанных димеров**

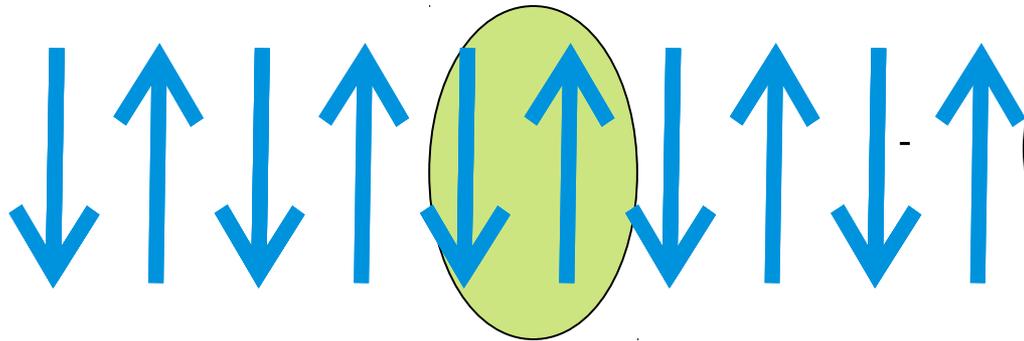
**3в). Сильно фрустрированные магнетики**

# Гейзенберговский обмен и проблема основного состояния антиферромагнетиков

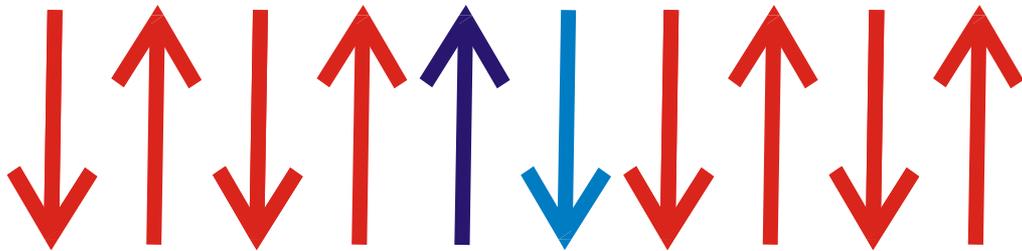
$$H = \sum J \mathbf{S}_i \mathbf{S}_{i+1}$$

$$H = J \sum [S_j^z S_{j+1}^z + 1/2(S_j^+ S_{j+1}^- + S_j^- S_{j+1}^+)]$$

$$S_i^+ = S_i^x + iS_i^y, \quad S_i^- = S_i^x - iS_i^y$$

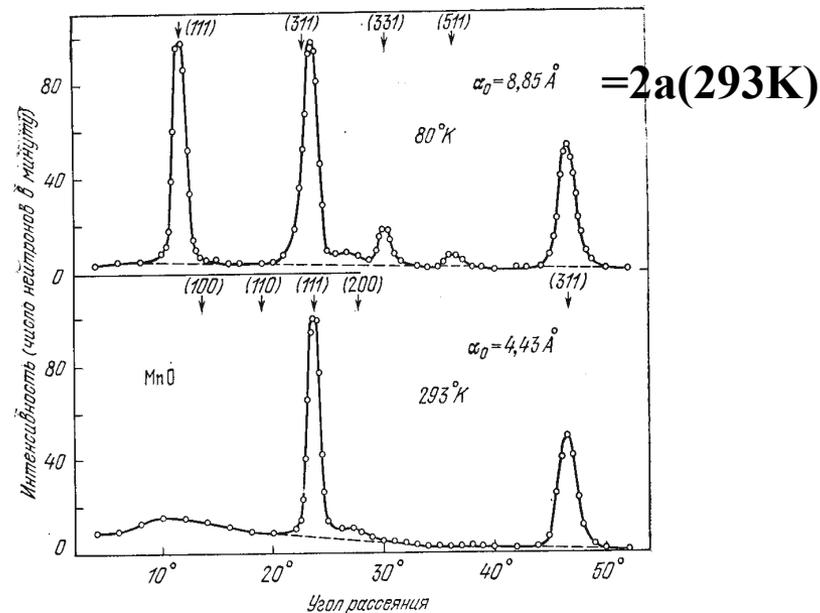
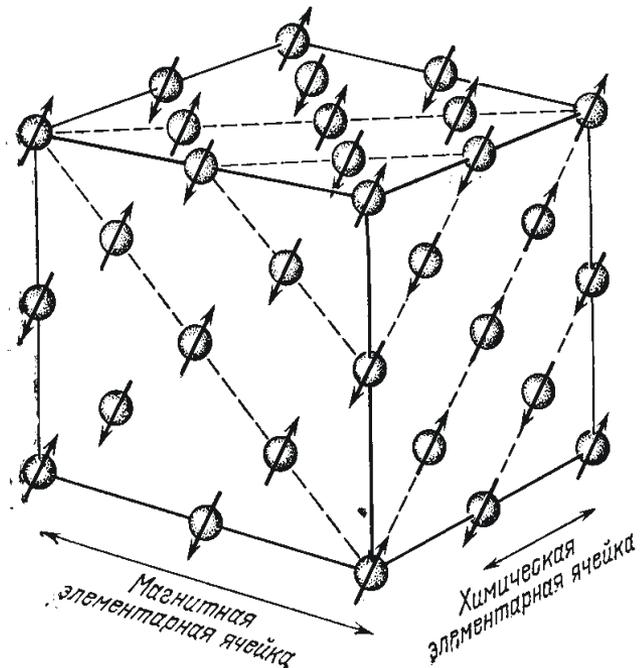


Это – классическое  
основное  
состояние для  $J > 0$

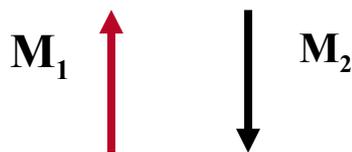
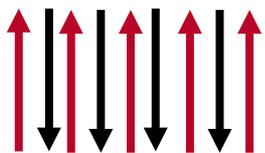


Но оно не является  
собственным  
для гамильтониана

# Антиферромагнетик MnO



Можно выделить две подрешетки:



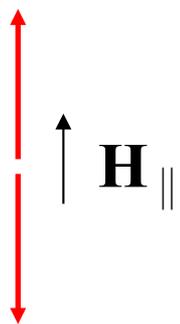
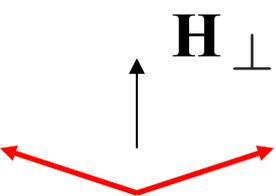
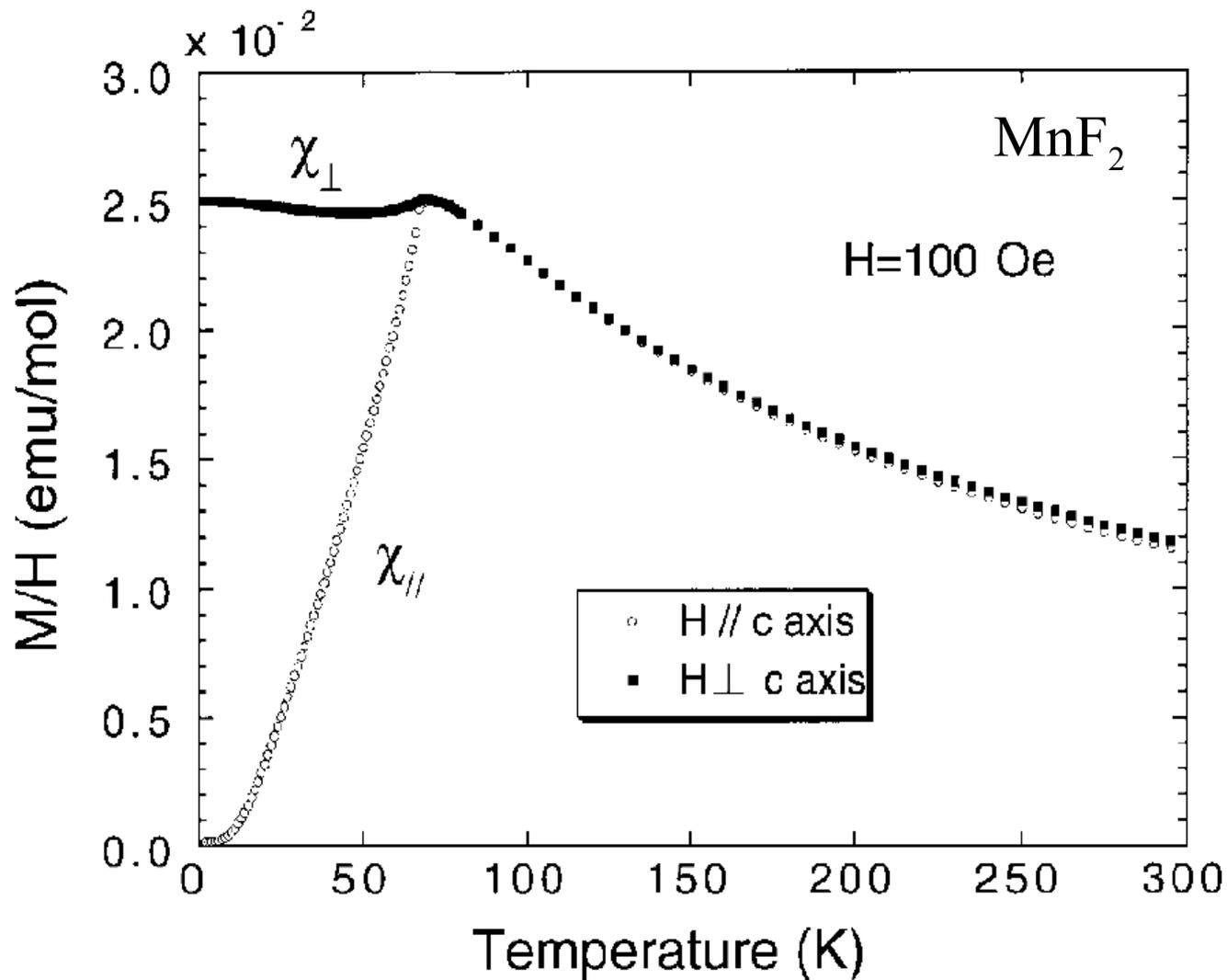
параметр порядка

$$L = M_1 - M_2$$

намагниченность

$$M = M_1 + M_2$$

# Температурная зависимость восприимчивости антиферромагнетика



# Спиновая динамика

Прецессия свободного магнитного момента в магнитном поле

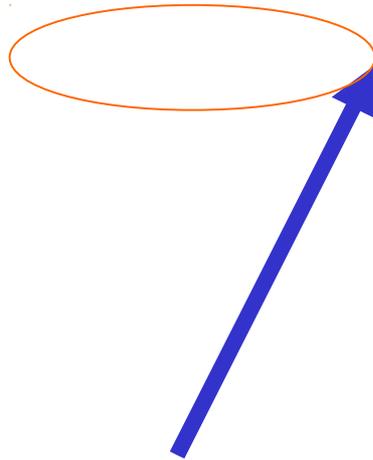
$$\frac{d\mathbf{M}}{dt} = \gamma \mathbf{M} \times \mathbf{H}$$

$$\omega = \gamma H$$



Евгений Константинович  
Завойский

Открытие ЭПР в 1944 г  
В Казанском гос. Университете



$$\Delta = \hbar\omega_0 = g\mu_B H$$



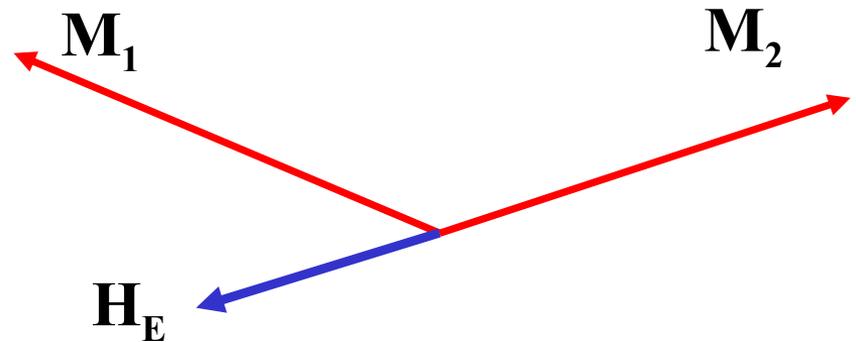
## Как прецессируют спины в антиферромагнетике?

Подрешетка 1 находится в молекулярном поле  $\mathbf{H}_E$  подрешетки 2

$$\hat{\mathcal{H}} = \sum_{\langle i,j \rangle} J_{ij} \hat{\mathbf{S}}_i \hat{\mathbf{S}}_j \rightarrow \sum_{\langle i,j \rangle} J \langle \mathbf{S}_i \rangle \langle \mathbf{S}_j \rangle = g\mu_B \langle S_j \rangle H_E$$

$$g\mu_B H_{E\downarrow} = zJ \langle S_{\uparrow} \rangle$$

$$\frac{d\mathbf{M}_1}{dt} = \gamma \mathbf{M}_1 \times \mathbf{H}_E$$



Итого 2 уравнения:

## Уравнения движения для подрешеток антиферромагнетика

$$\frac{1}{\gamma} \cdot \frac{d\mathbf{M}_\alpha}{dt} = \mathbf{M}_\alpha \times \mathbf{H}_{\text{eff}}^\alpha \quad \alpha=1, 2$$

**Есть несколько способов ввести  $\mathbf{H}_{\text{eff}}$**

*1. Эффективное молекулярное обменное поле и поле анизотропии, используя микроскопический гамильтониан*

$$\hat{\mathcal{H}} = \sum_{\langle i,j \rangle} J_{ij} \hat{\mathbf{S}}_i \hat{\mathbf{S}}_j + \sum_i D (\hat{S}_i^z)^2$$

*2. С помощью разложения термодинамического потенциала вблизи положения равновесия*  $\mathbf{L} = \mathbf{M}_1 - \mathbf{M}_2$   $\mathbf{M} = \mathbf{M}_1 + \mathbf{M}_2$

$$\tilde{\Phi} = \tilde{\Phi}_0 + \frac{B}{2} \mathbf{M}^2 - \frac{a}{2} L_z^2 + \frac{D}{2} (\mathbf{LM})^2 - \mathbf{MH}.$$

$$\mathbf{H}_{\text{eff}}^\alpha = -\partial \tilde{\Phi} / \partial \mathbf{M}_\alpha \quad \alpha=1, 2$$

*Соответствие двух способов:*

$$H_A = 2aM_0 \sim D \langle S_i^z \rangle \quad H_E = BM_0 \sim J \langle S_i^z \rangle$$

**Макроскопический (гидродинамический подход) для низкочастотных колебаний параметра порядка  $l$  в малых полях.**

$$L = \frac{\chi_{\perp}}{2\gamma^2} \dot{l}^2 + \frac{\chi_{\perp}}{\gamma} H [\dot{l}] - U,$$

$$U = \frac{1}{2} a_{ik} \frac{\partial l}{\partial x_i} \frac{\partial l}{\partial x_k} + \frac{1}{2} \chi_{\perp} (Hl)^2 + \frac{1}{2} \alpha_{ik} l_i l_k + \chi_{\perp} l [dH]$$

$$\frac{\partial}{\partial t} [\dot{l}] = \frac{\gamma^2}{\chi_{\perp}} [Hl_t] + 2\gamma (H) \dot{l} - \gamma [\dot{H} - l (H\dot{H})]$$

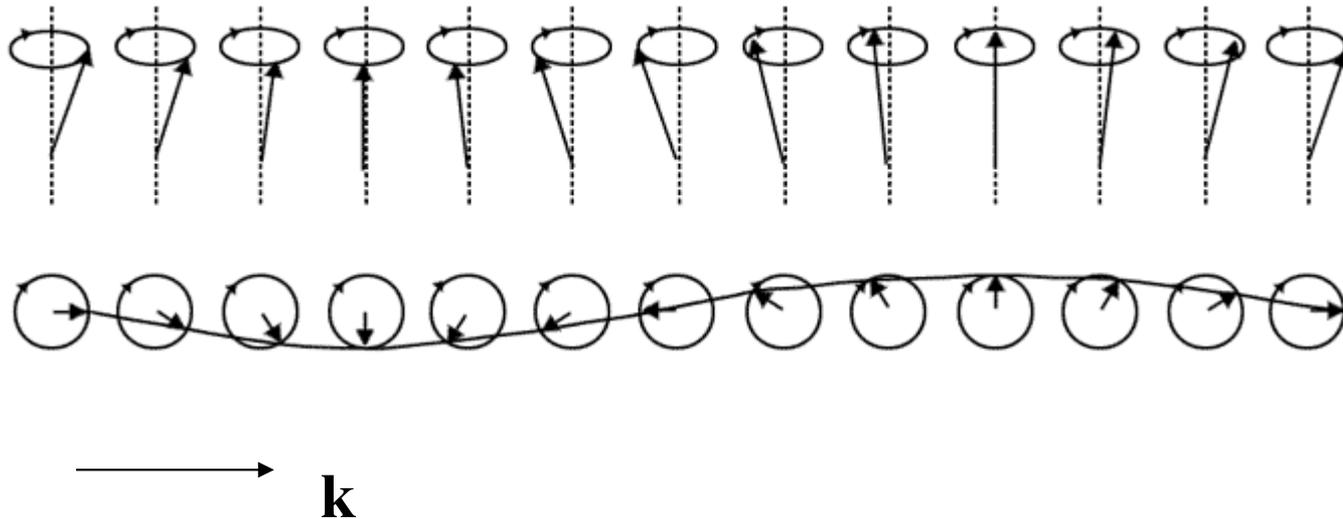
*Преимущества: Безмодельный подход. Охватывает сложные и спиральные структуры, стекла*

*Недостатки: только низкочастотные колебания, малые магнитные поля, условие обменной жесткости*

**Андреев и Марченко:  
УФН 130 39 (1980)**

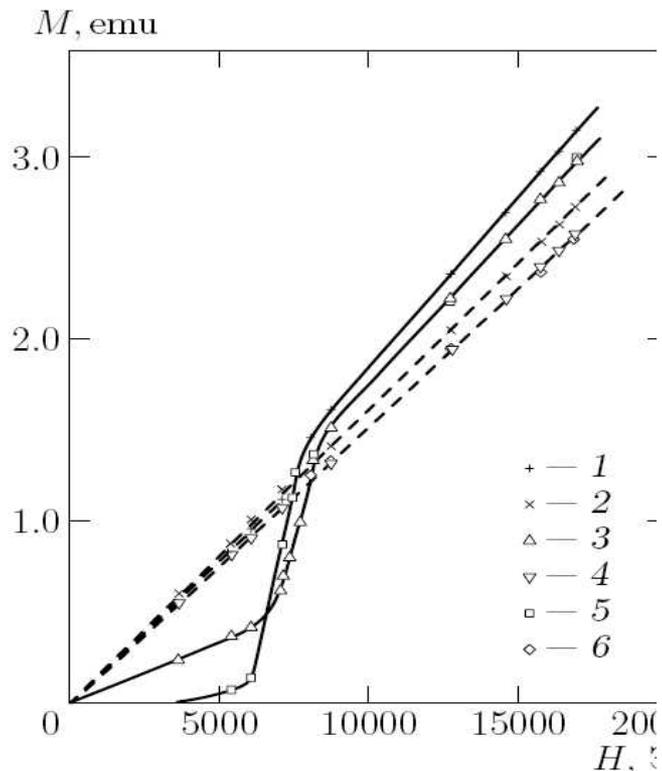
**Представление микроскопического гамильтониана  
В виде Холштейна-Примакова или Дайсона-Малеева  
дает спектр спиновых волн**

# Спиновые волны – элементарные возбуждения магнетика



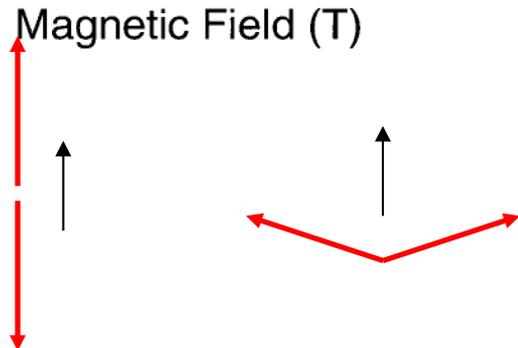
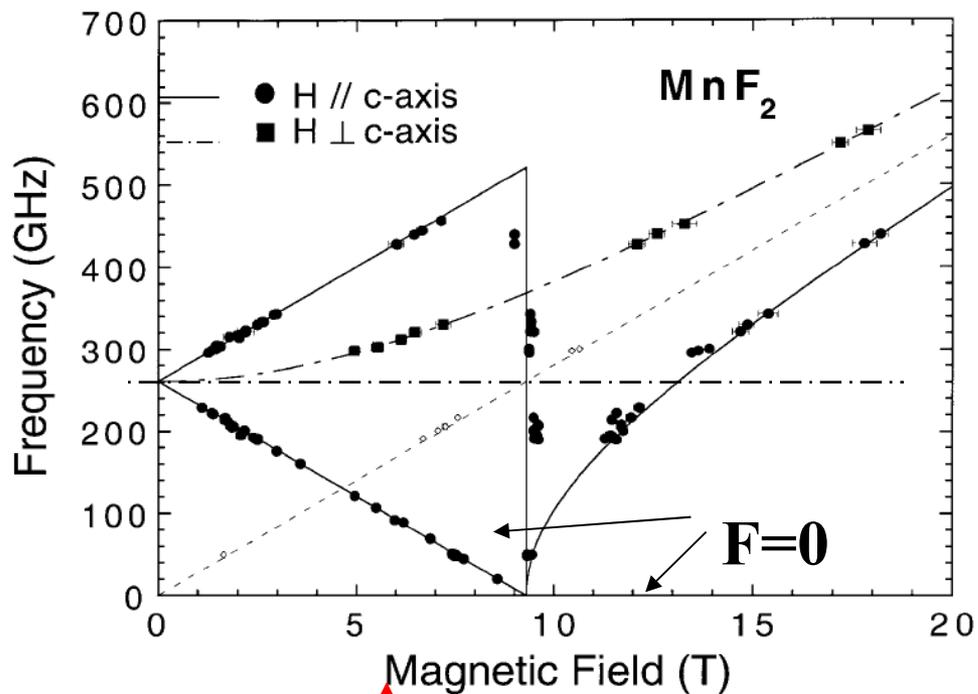
**Антиферромагнитный резонанс (АФМР)**  
– возбуждение спиновых волн с  $k=0$

# Антиферромагнитный резонанс. Анизотропия типа “легкая ось”



**Рис. 8.** Зависимость намагниченности  $M$  от поля  $H$  для  $\text{CuCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$  [20].

- 1 —  $T = 4.10 \text{ K}$ ,  $H \parallel a$ ;
- 2 —  $T = 4.10 \text{ K}$ ,  $H \parallel b$ ;
- 3 —  $T = 3.02 \text{ K}$ ,  $H \parallel a$ ;
- 4 —  $T = 3.02 \text{ K}$ ,  $H \parallel b$ ;
- 5 —  $T = 1.57 \text{ K}$ ,  $H \parallel a$ ;
- 6 —  $T = 1.57 \text{ K}$ ,  $H \parallel b$ .



$$H_A = 2aM_0 \sim D \langle S_i^z \rangle \quad H_E = BM_0 \sim J \langle S_i^z \rangle$$

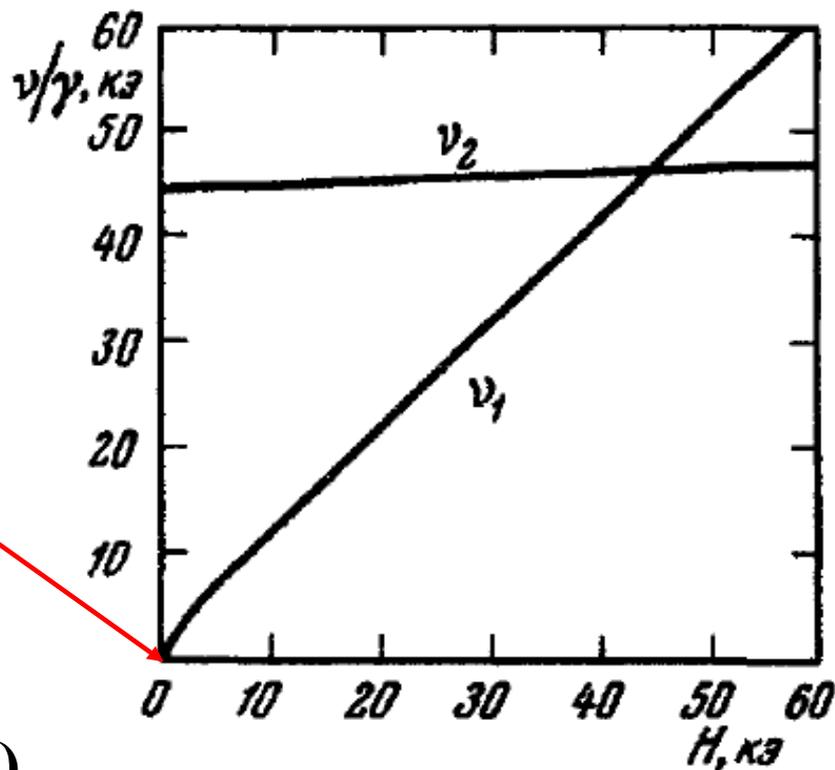
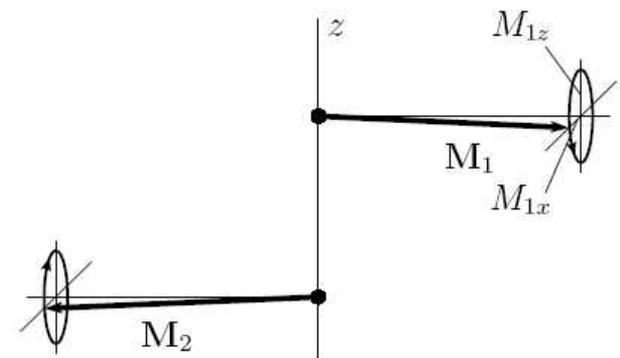
# Антиферромагнитный резонанс. Анизотропия “легкая плоскость”

А. Магнитное поле  $\mathbf{H}$  перпендикулярно оси  $z$  ( $\mathbf{H} \perp \mathbf{L}$ ):

$$(\nu_1/\gamma)^2 = H(H + H_D); \quad (\nu_2/\gamma)^2 = 2H_A H_E + H_D \cdot H.$$

Б. Магнитное поле  $\mathbf{H}$  параллельно оси  $z$ :

$$\nu_1/\gamma = 0; \quad (\nu_2/\gamma)^2 = 2H_A H_E + H^2.$$



Голдстоуновская мода  
для колебаний моментов в  
плоскости  
(*поворот спинов  
в легкой плоскости  
не требует энергии –  
нет возвращающей силы,  
нулевая частота колебаний* )

# Анизотропия “легкая плоскость”

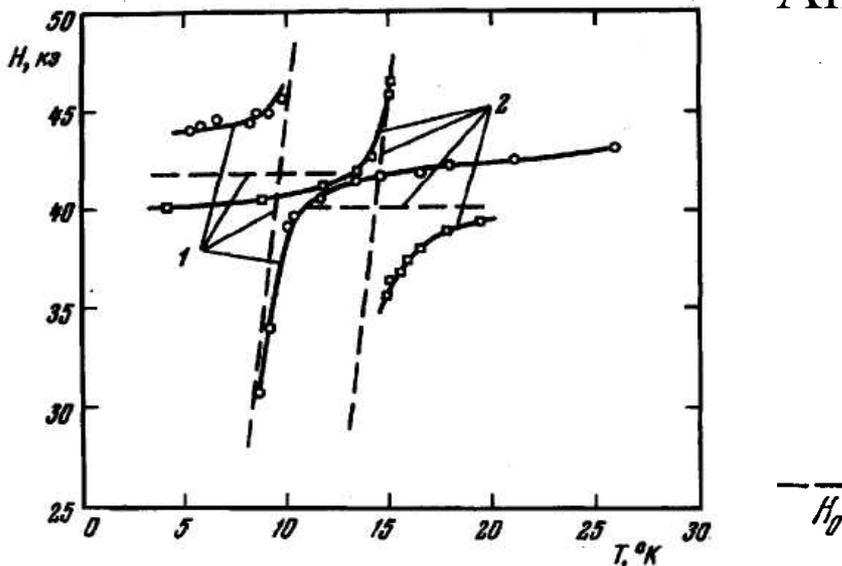


Рис. 2. Зависимость резонансного поля от температуры для угла  $\alpha = 0^\circ$  (пунктирные прямые) и  $\alpha \sim 2^\circ$  (сплошные кривые). 1 -  $\nu = 125$ , 2 -  $\nu = 117$  Гц

ан-  
зот-  
роп-  
ность



90-летие в 2010

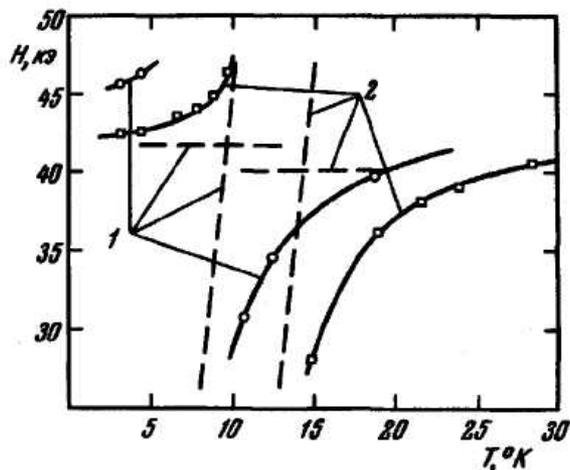
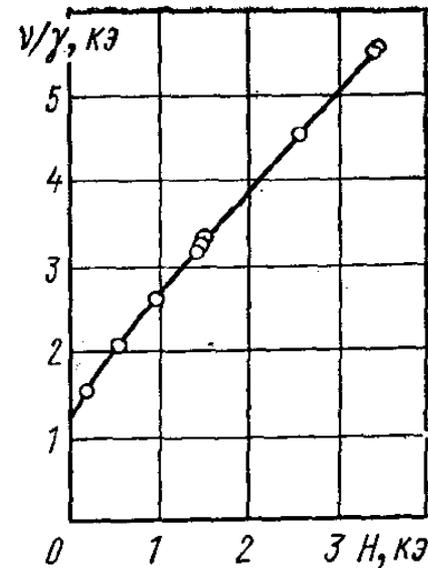
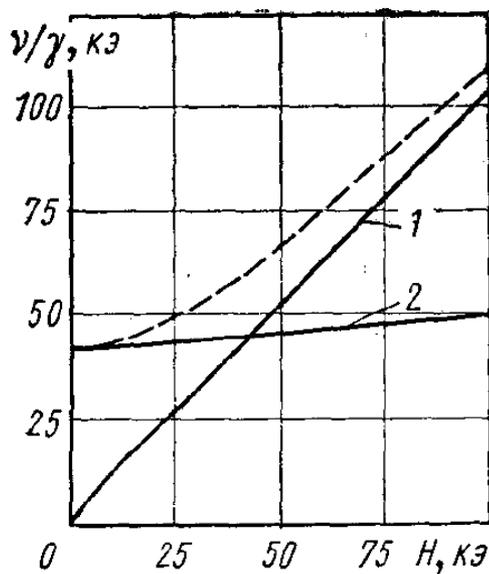


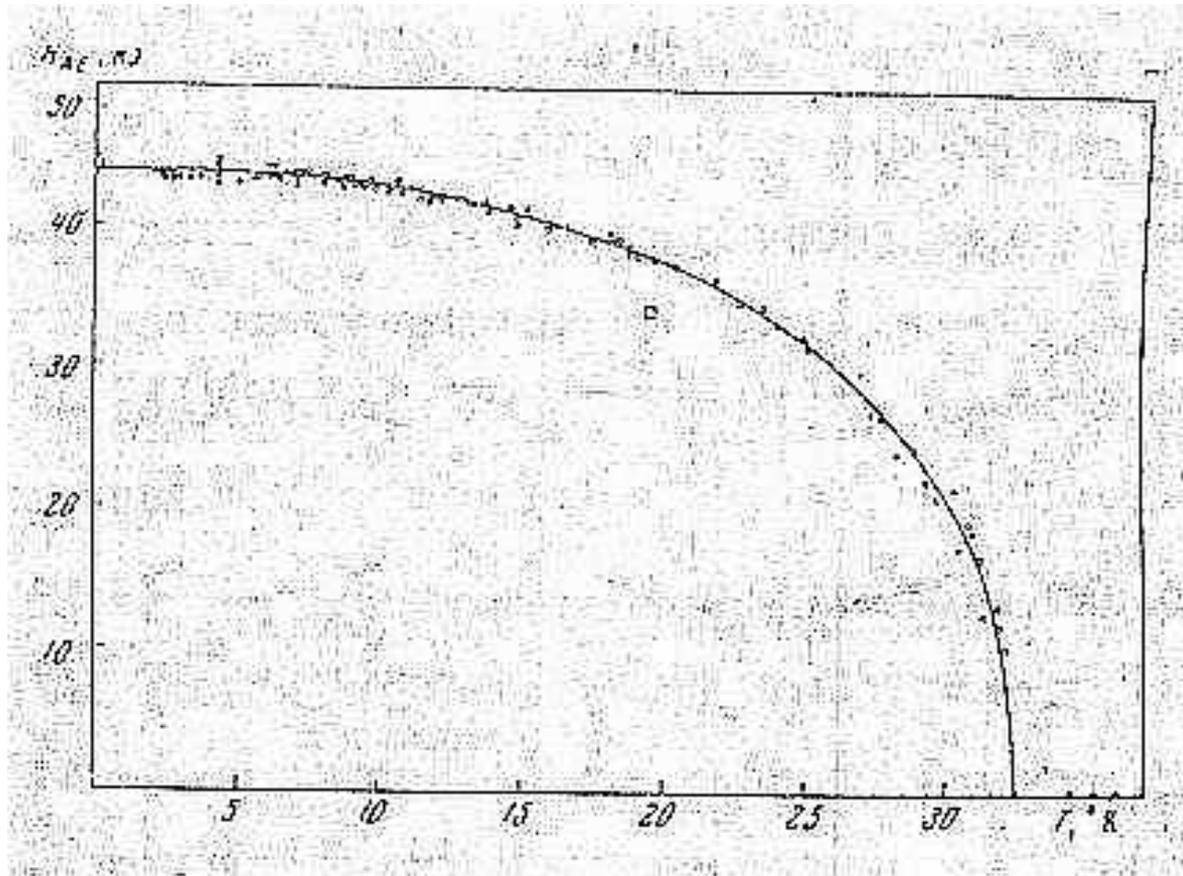
Рис. 3. Зависимость резонансного поля от температуры для угла  $\alpha \sim 6^\circ$  (сплошные кривые). 1 -  $\nu = 125$ , 2 -  $\nu = 117$  Гц



Боровик-Романов, Крейнс, Прозорова  
ЖЭТФ 1963

Щель в спектре антиферромагнитного резонанса пропорциональна параметру порядка

$$\hbar\omega_0 = 4\sqrt{JD}\langle S_i^z \rangle = g\mu_B\sqrt{2H_A H_E}$$



$$\Delta \sim \sqrt{1 - \frac{T}{T_N}}$$

Л.А.Прозорова  
MnCO<sub>3</sub>, диссертация  
1975

## *Выводы 1*

*Антиферромагнитный резонанс – прецессия параметра порядка*

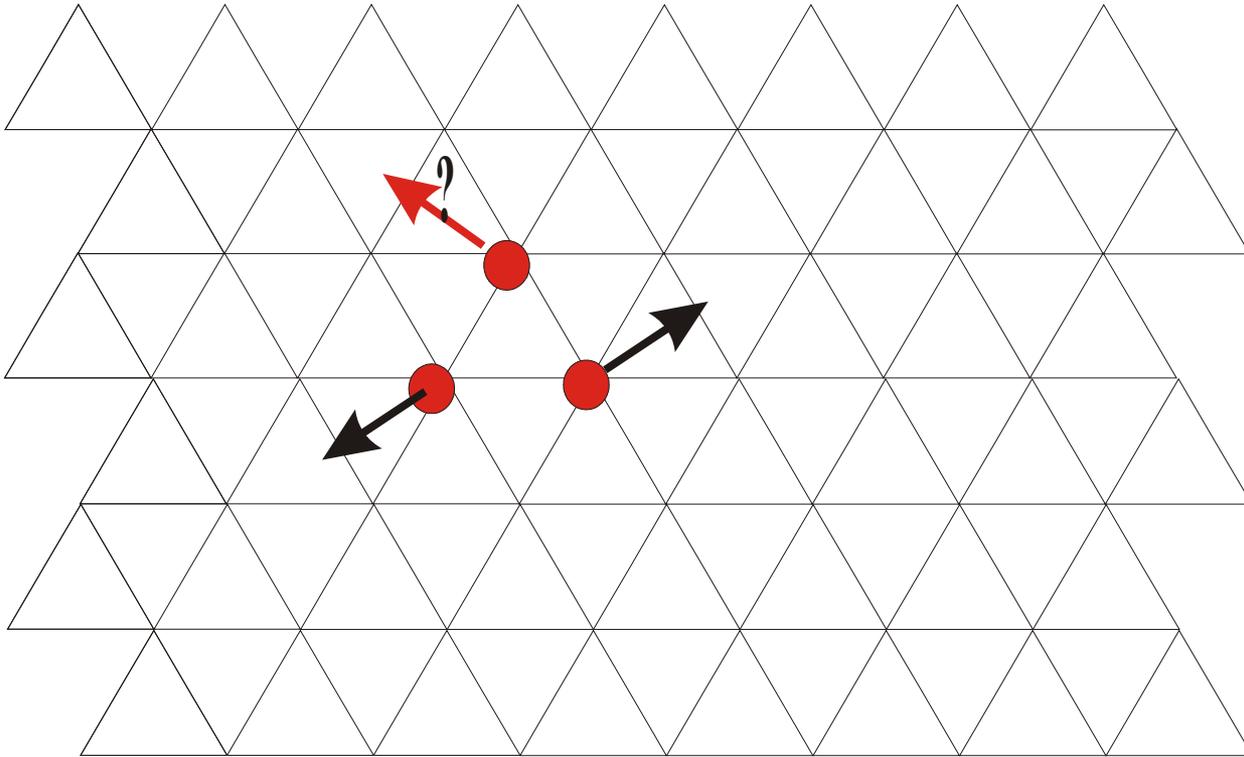
*Спектр – визитная карточка структуры*

*Определение параметра порядка (температурная зависимость, редукция спина)*

**Более сложные магнитные структуры :**

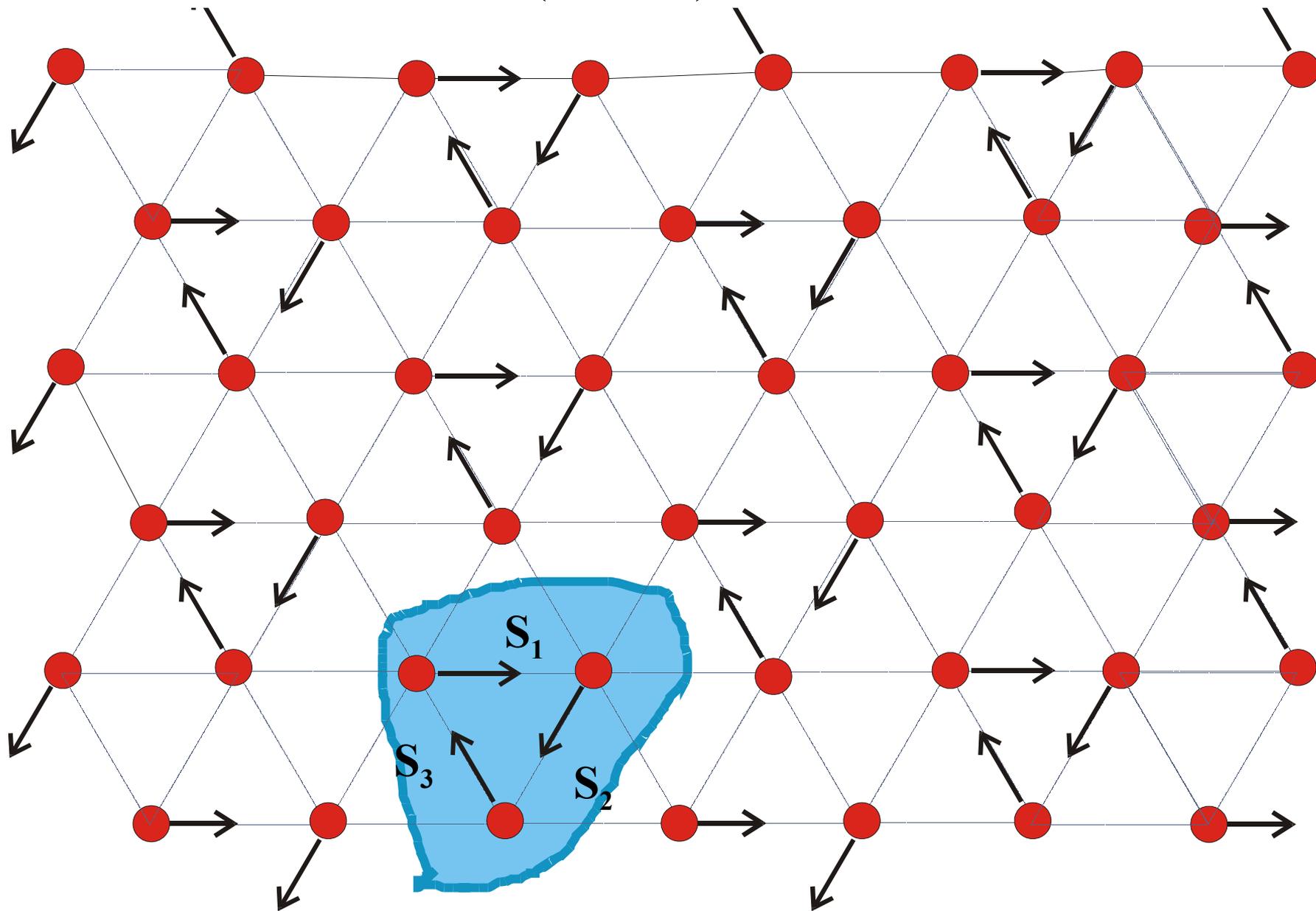
**2D антиферромагнетик на треугольной решетке (2D TL AFM)**

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



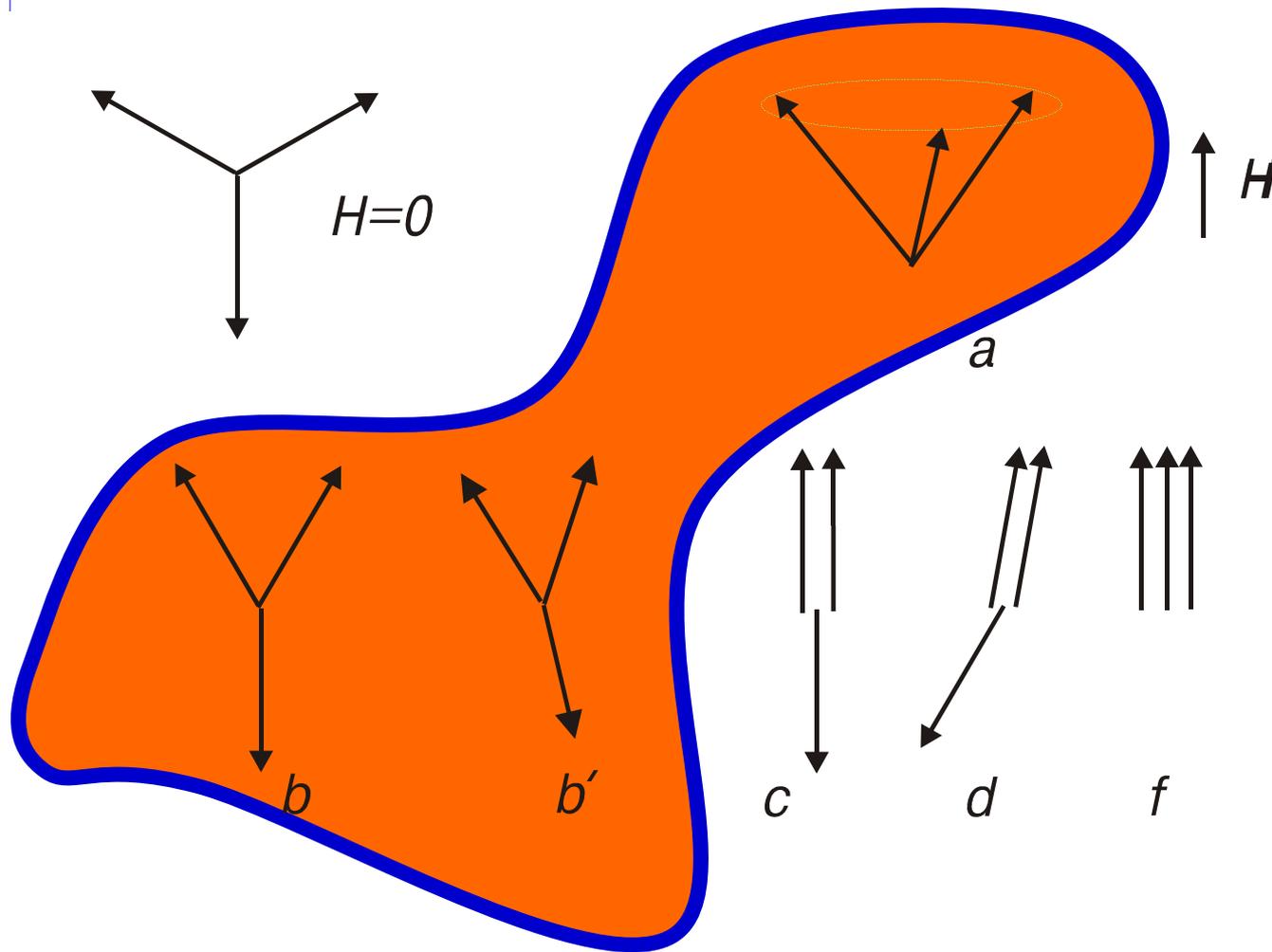
**Фрустрация обменного взаимодействия**

Классическое ( $S=\infty$ ) основное состояние



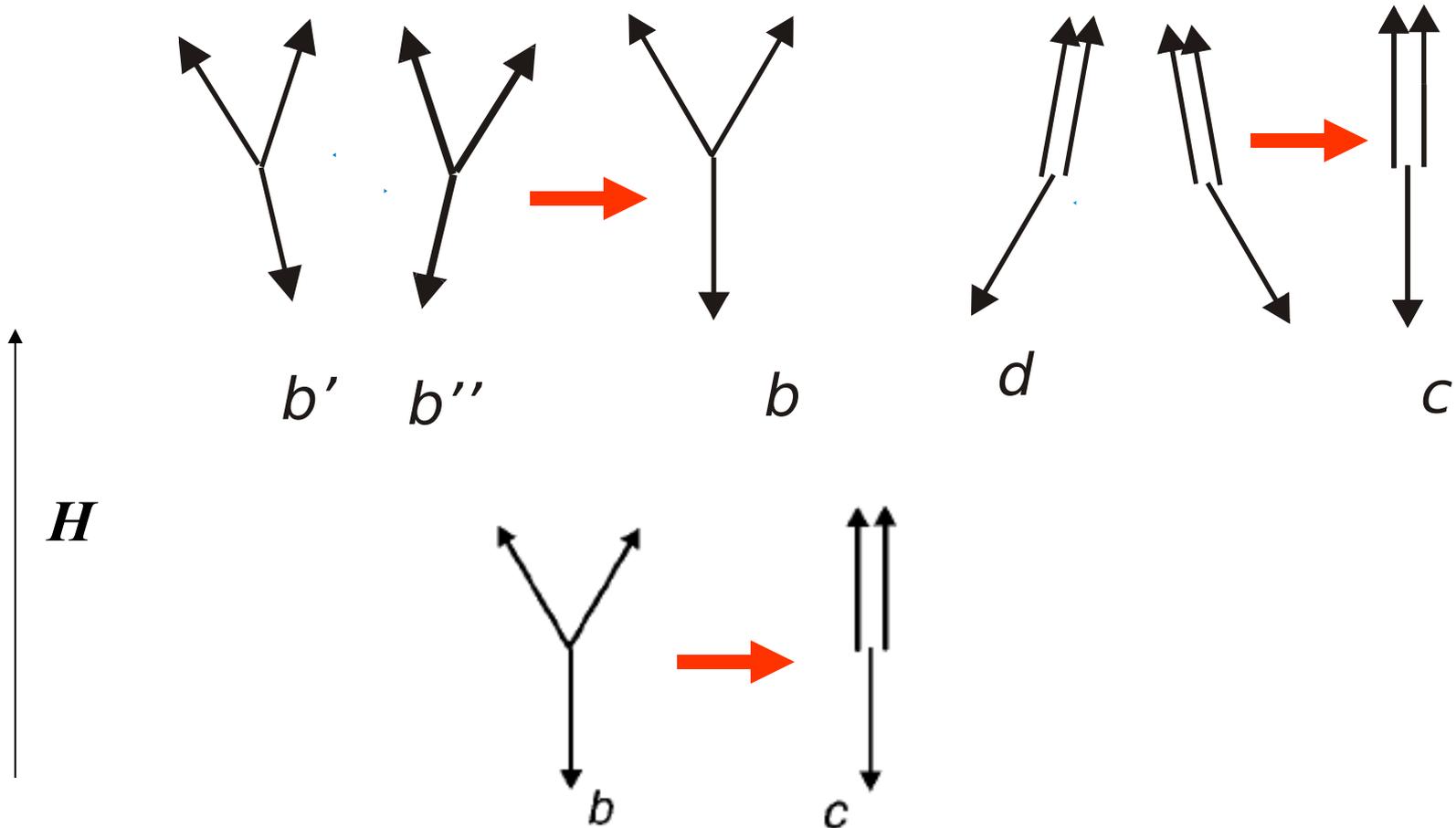
$$\hat{\mathcal{H}} = J \sum (\hat{S}_i \hat{S}_j)$$

$$M_1 M_2 + M_1 M_3 + M_2 M_3 = \frac{1}{2} [(M_1 + M_2 + M_3)^2 - M_1^2 - M_2^2 - M_3^2]$$



В обменном приближении все состояния с одинаковым полным моментом вырождены

# Влияние флуктуаций (Коршунов, Чубуков и Голосов и др.)



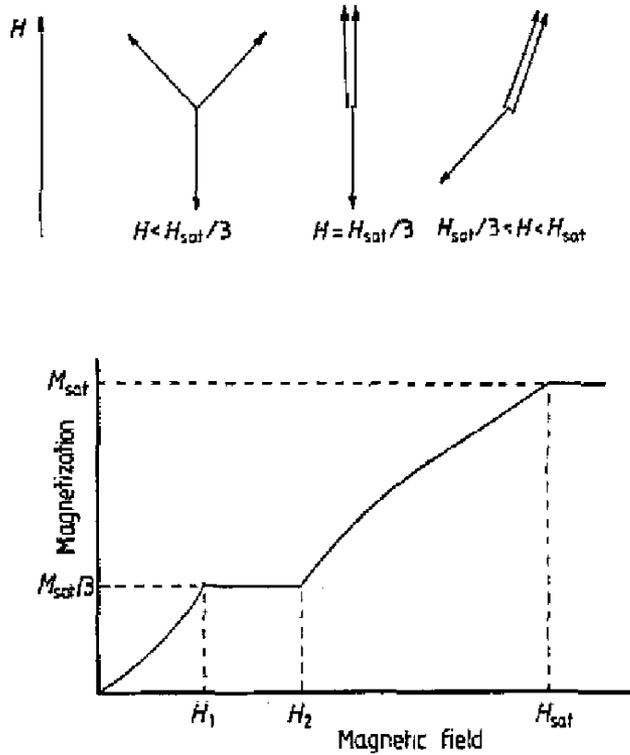
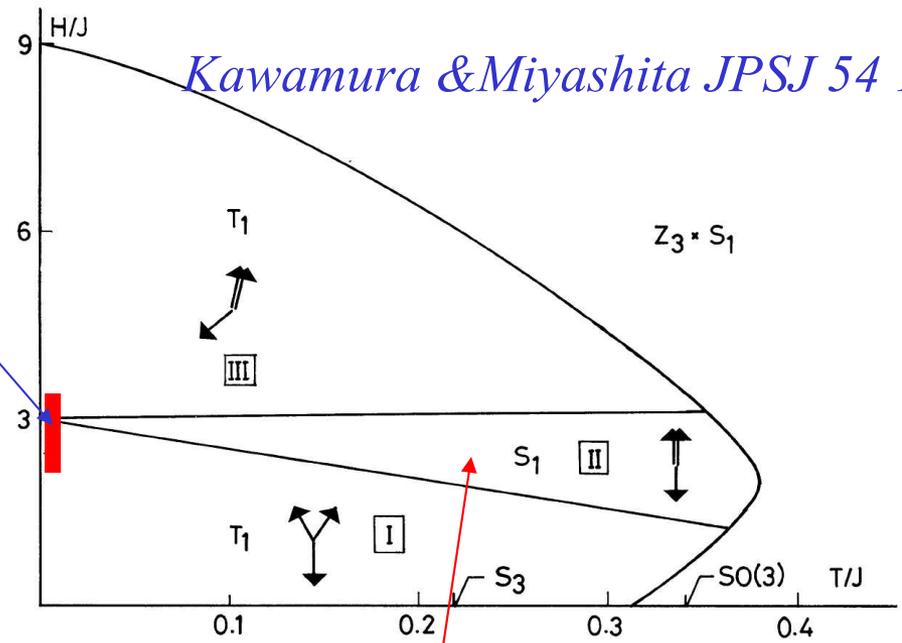
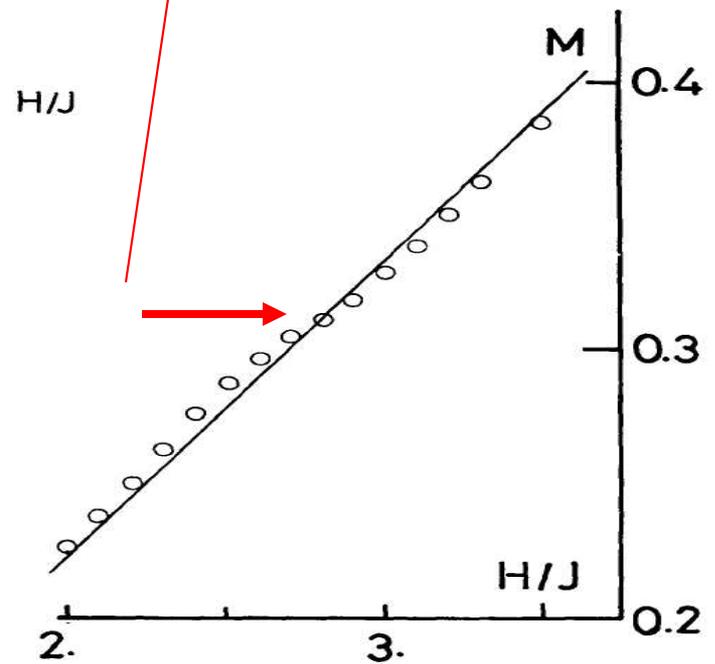


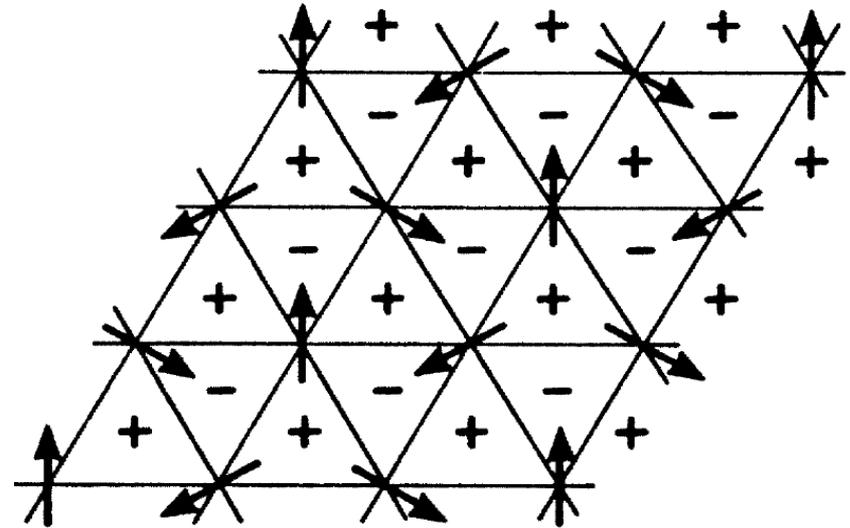
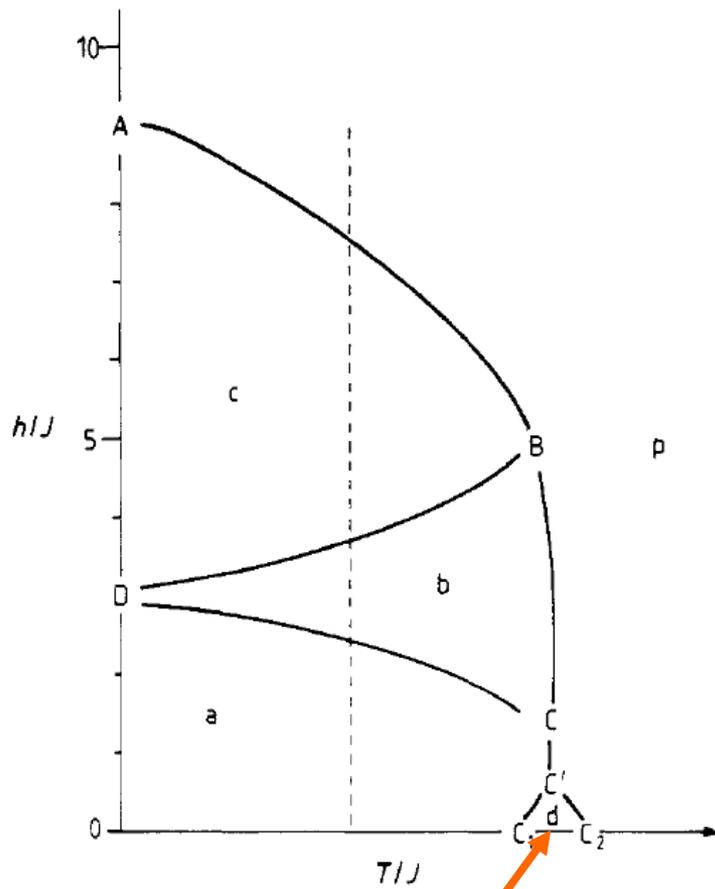
Figure 3. The anticipated behaviour of longitudinal magnetization in 2D Heisenberg AFM on a triangular lattice. The plateau on the magnetization curve results from the stabilization of the collinear phase in the finite region of magnetic fields due to zero-point motion.

Heisenberg model including fluctuations



5. Temperature-magnetic field phase diagram of the AFT Heisenberg model. The effective symmetry and the stable spin configurations are also shown for each phase. Note that the location of phase boundaries may not be very precise.





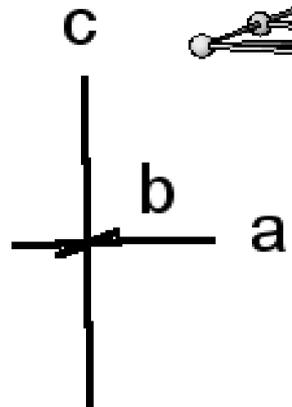
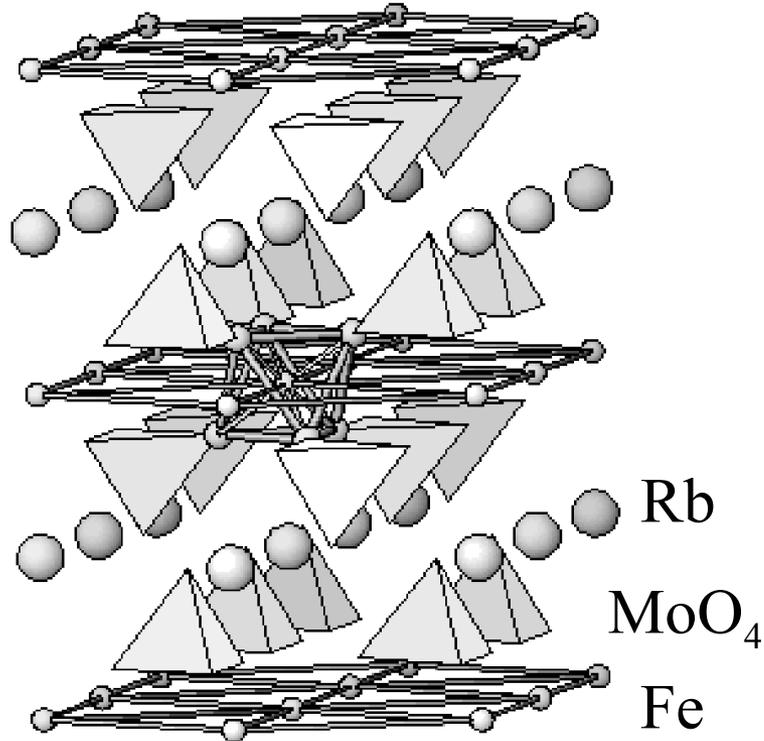
**Киральный дальний  
порядок без AFM LRO**

*S. E. Korshunov*

J. Phys. C: Solid State Phys. **19** (1986) 5927–5935



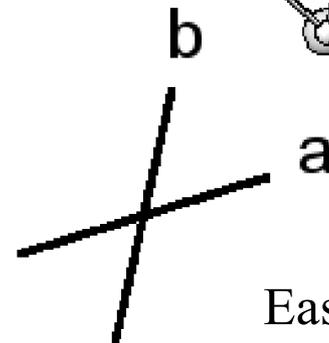
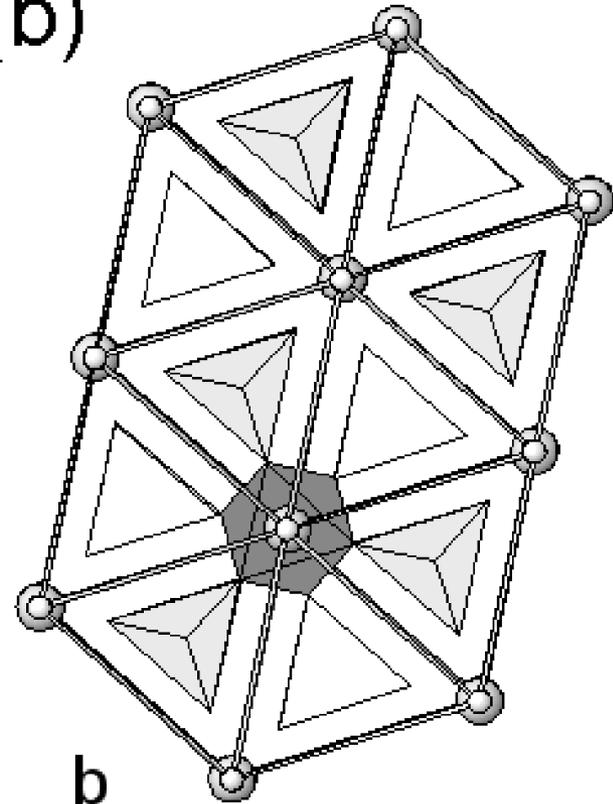
(a)



$\text{Fe}^{3+}, S=5/2$

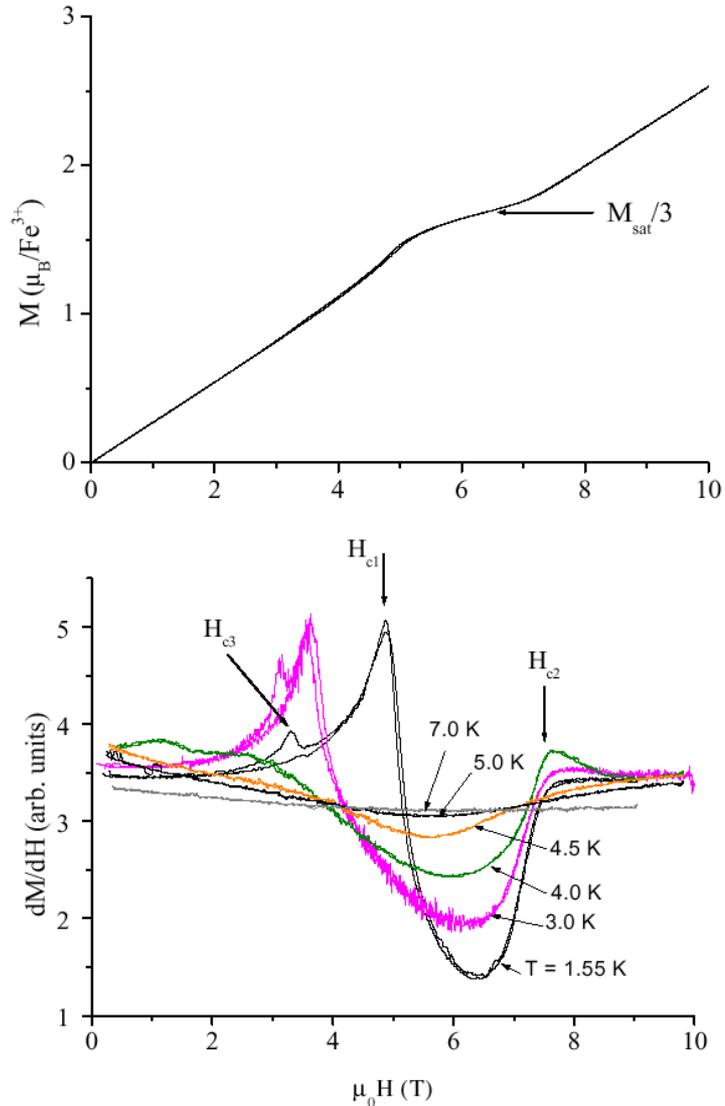
$J/J' = 100$

(b)



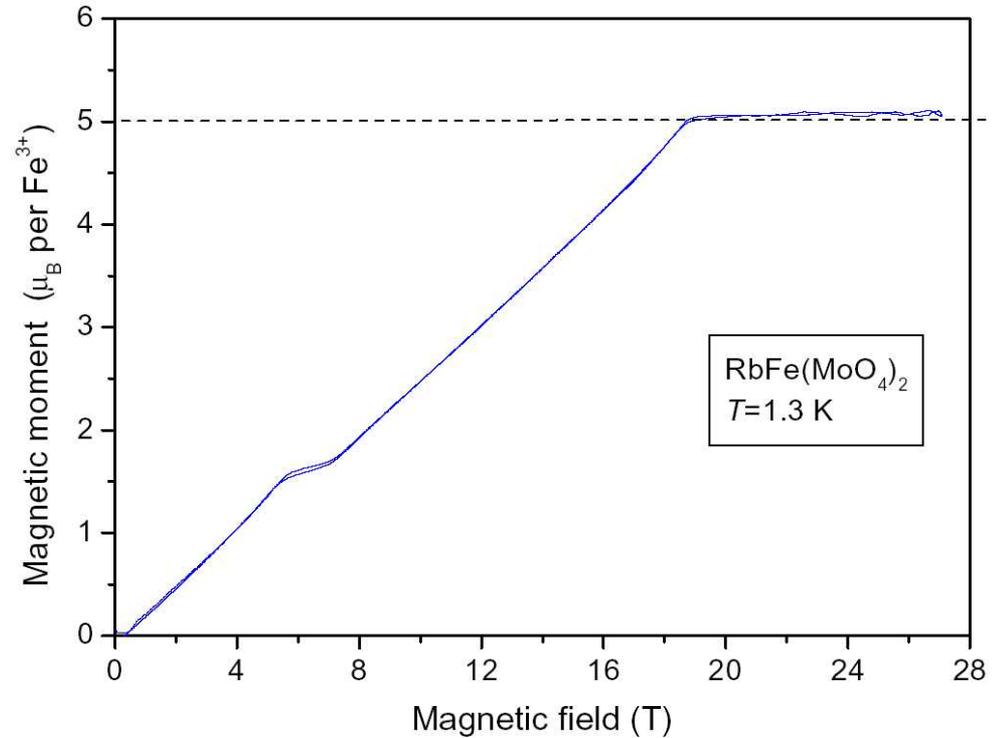
Easy plane anisotropy

# Измерения магнитного момента на вибрационном магнитометре



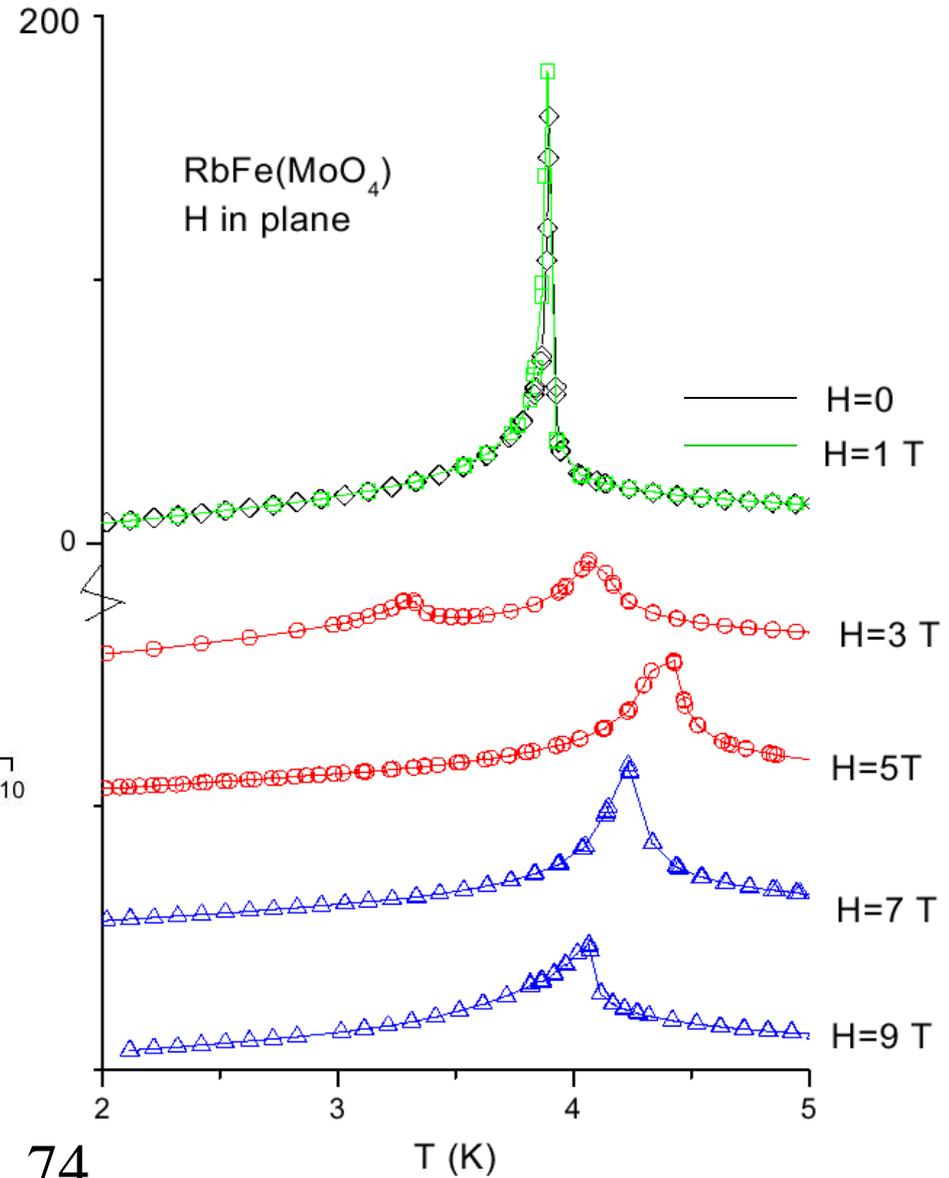
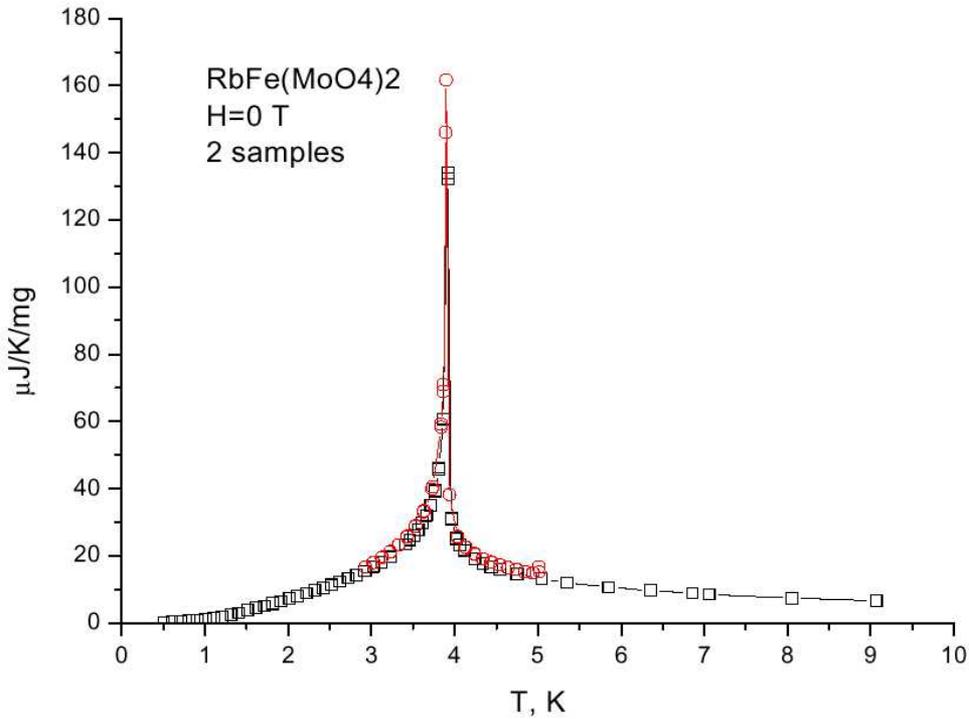
*Svistov et al PRB 67 094434 (2003)*

# Измерения магнитного момента в импульсном поле



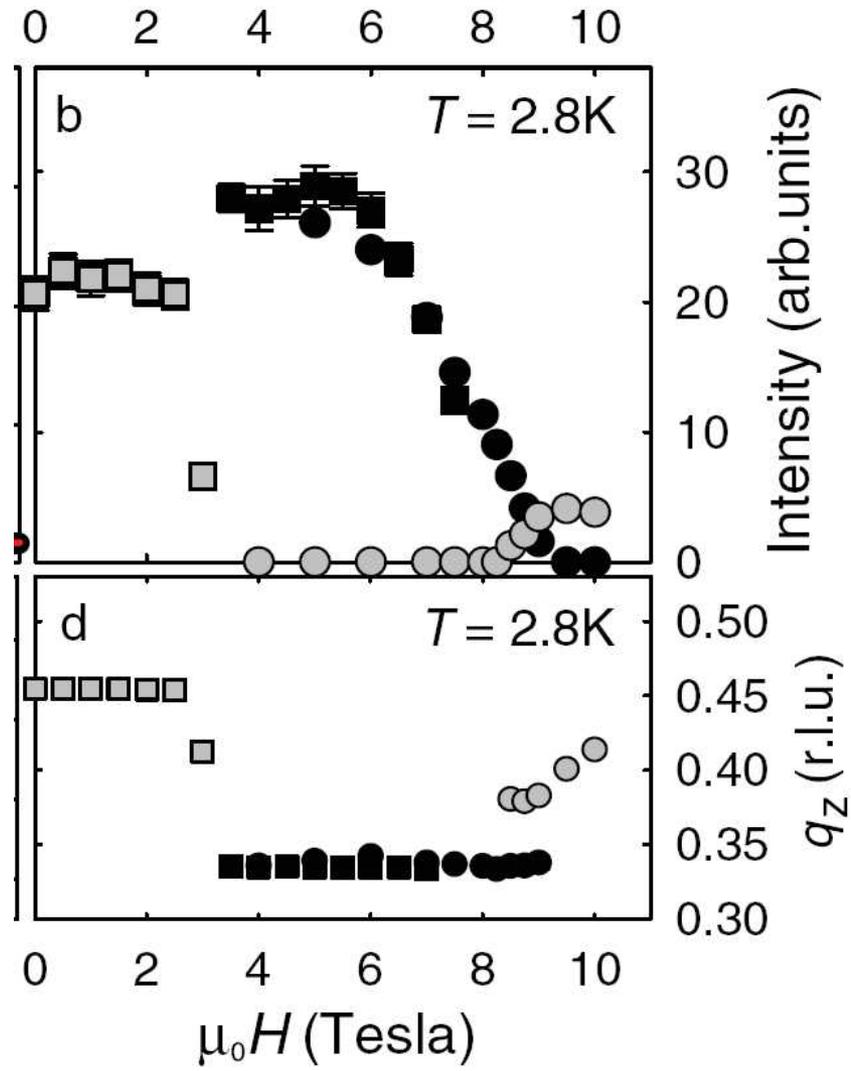
*Smirnov et al PRB 75 134412 (2007)*

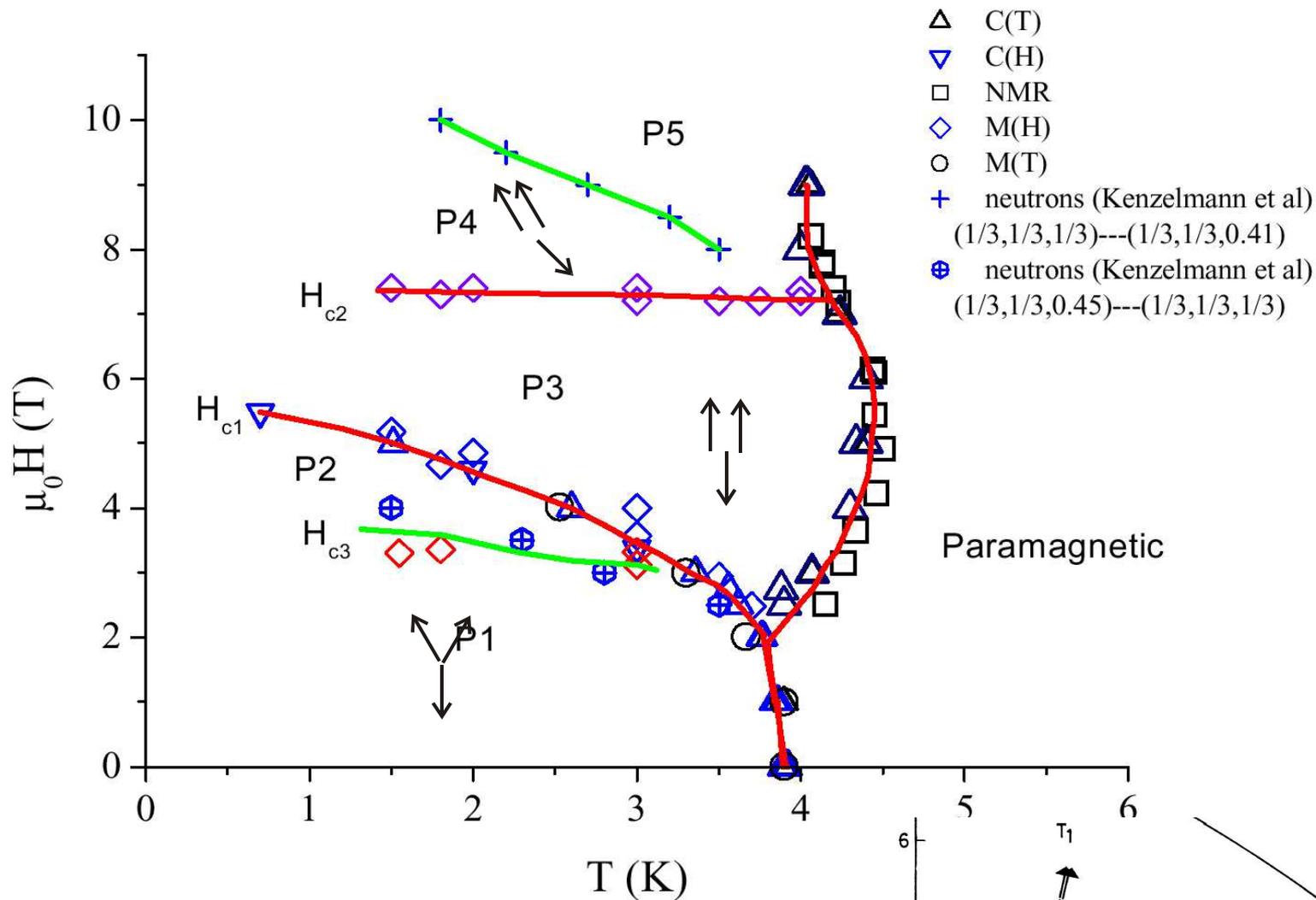
# Specific heat data



*L.E.Svistov et al* Phys. Rev. B. 74,  
024412 (2006)

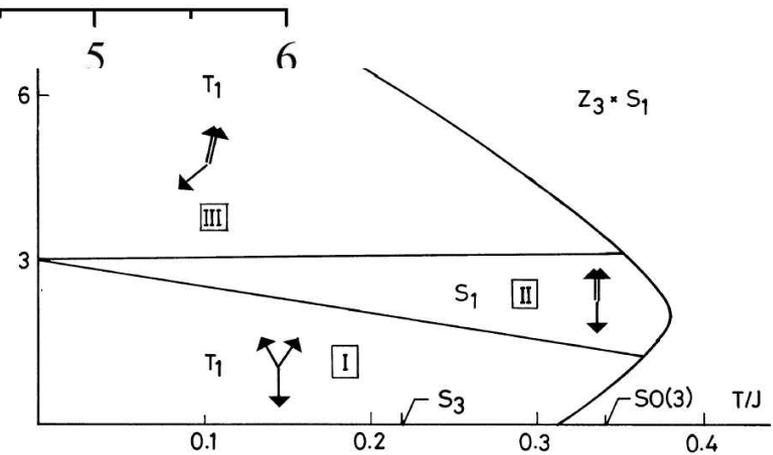
Волновой вектор структуры  $\mathbf{Q} = (1/3, 1/3, q_z)$



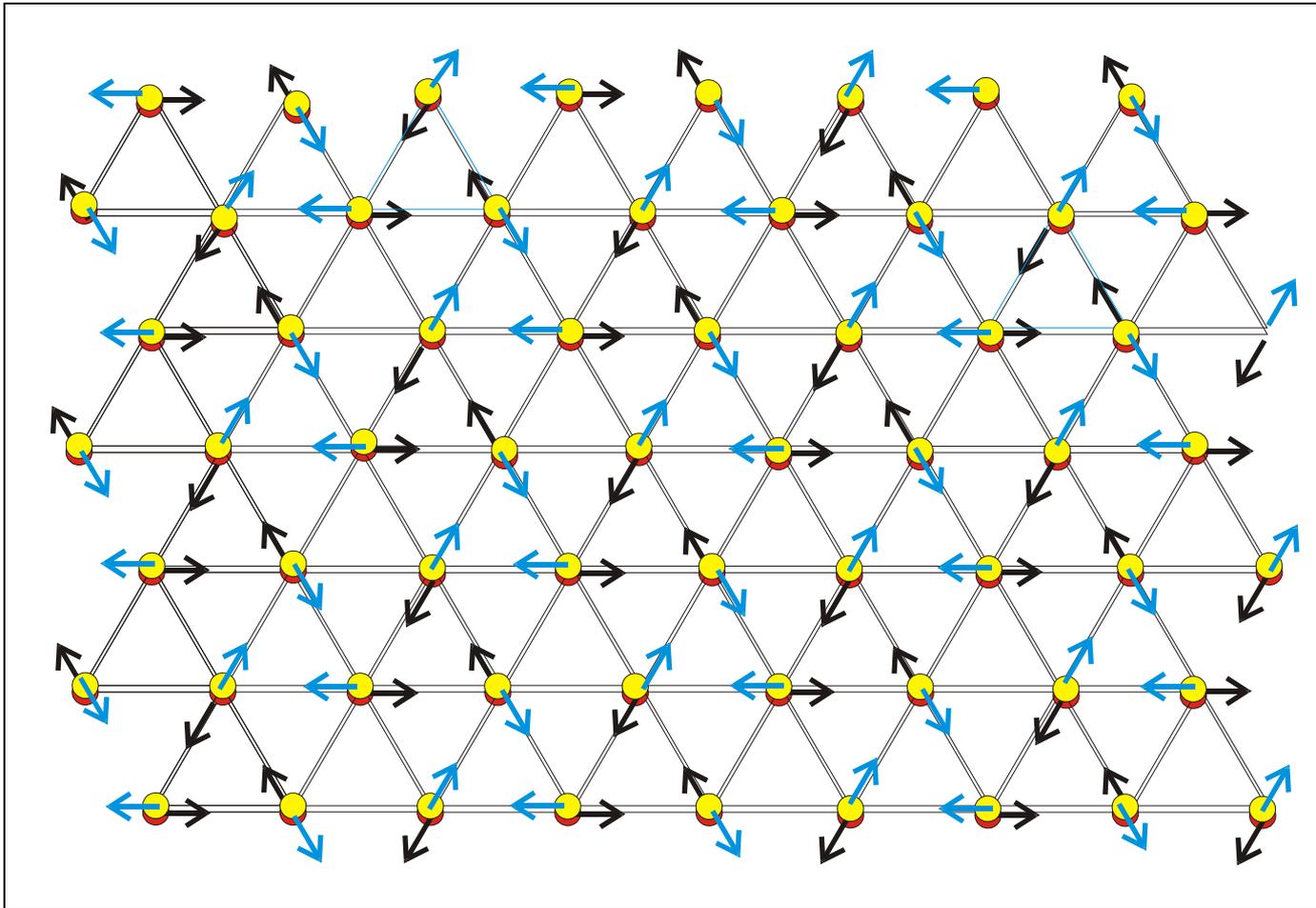


*L.E.Svistov et al Phys. Rev. B. 74, 024412 (2006)*

*Kawamura & Miyashita JPSJ 54 1985*



# 2D magnetic planes in 3D crystal: weak AFM interaction



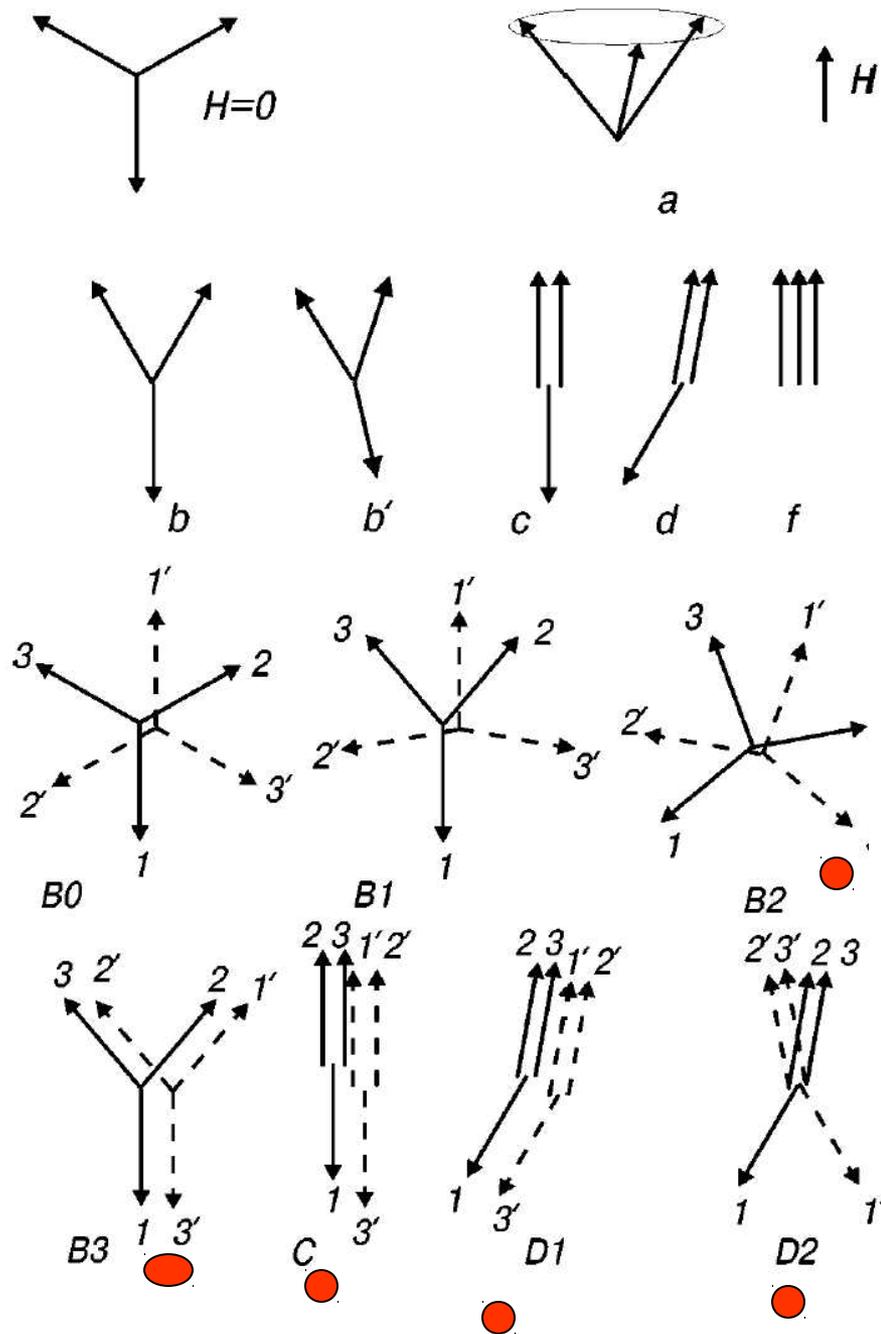
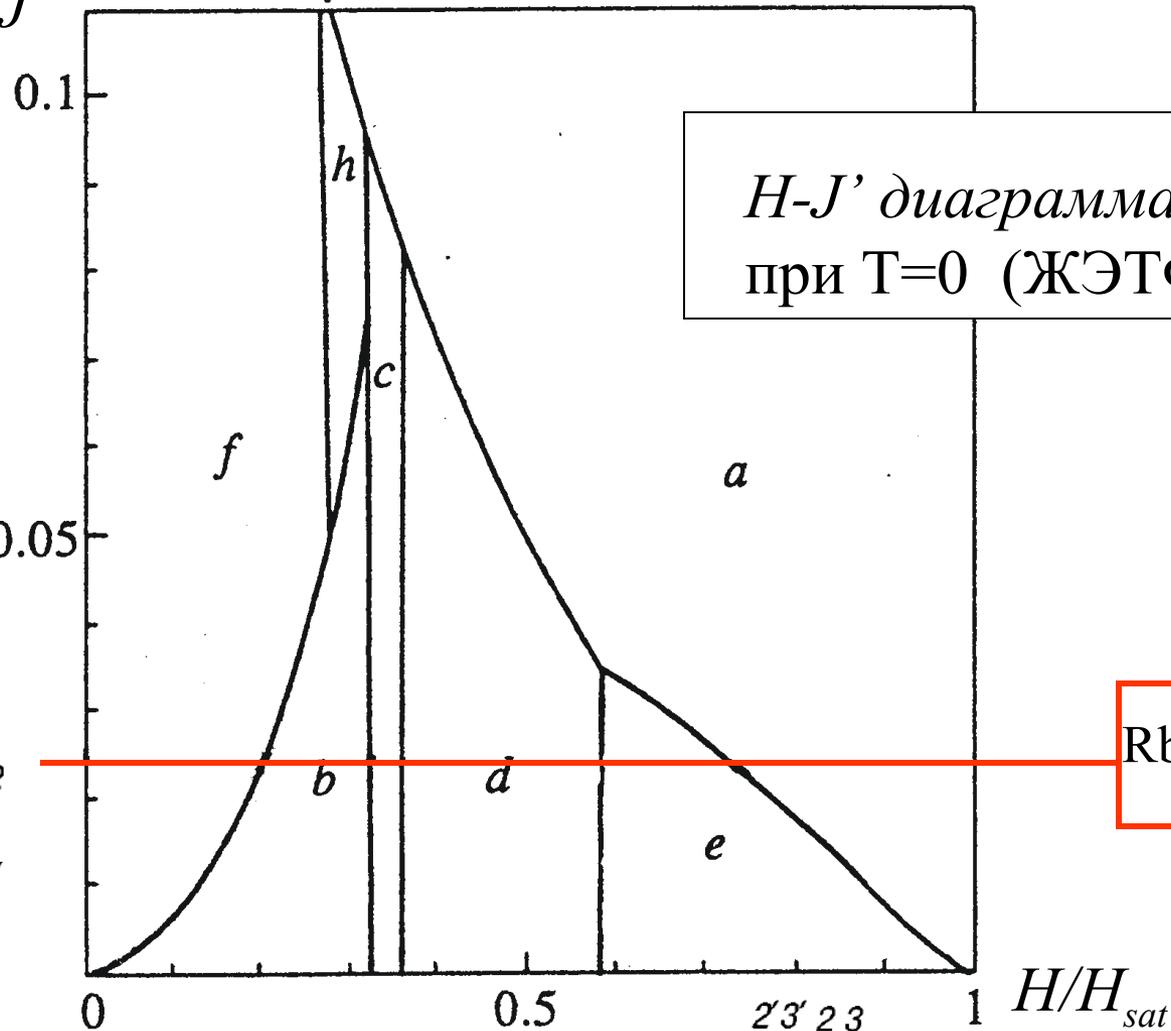
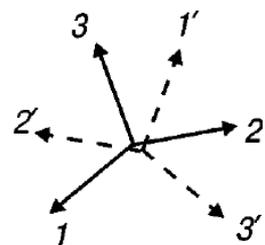


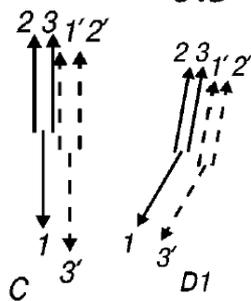
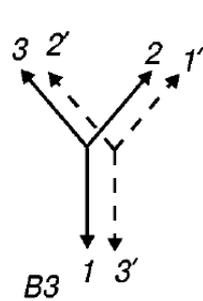
FIG. 1. Schematic representation of the proposed spin structures of a Heisenberg antiferromagnet on a triangular lattice. Structures  $a$ ,  $b$ ,  $b'$ ,  $c$ ,  $d$ , and  $f$  are related to the 2D system ( $J'=0$ ). Structures  $B0$ ,  $B1$ ,  $B2$ ,  $B3$ ,  $C$ ,  $D1$ ,  $D2$  represent the triangular antiferromagnet with a weak antiferromagnetic interlayer exchange in the six-sublattice model (Ref. 8): solid and dashed arrows with the same numbers correspond to magnetic moments of neighboring spins from neighboring layers.

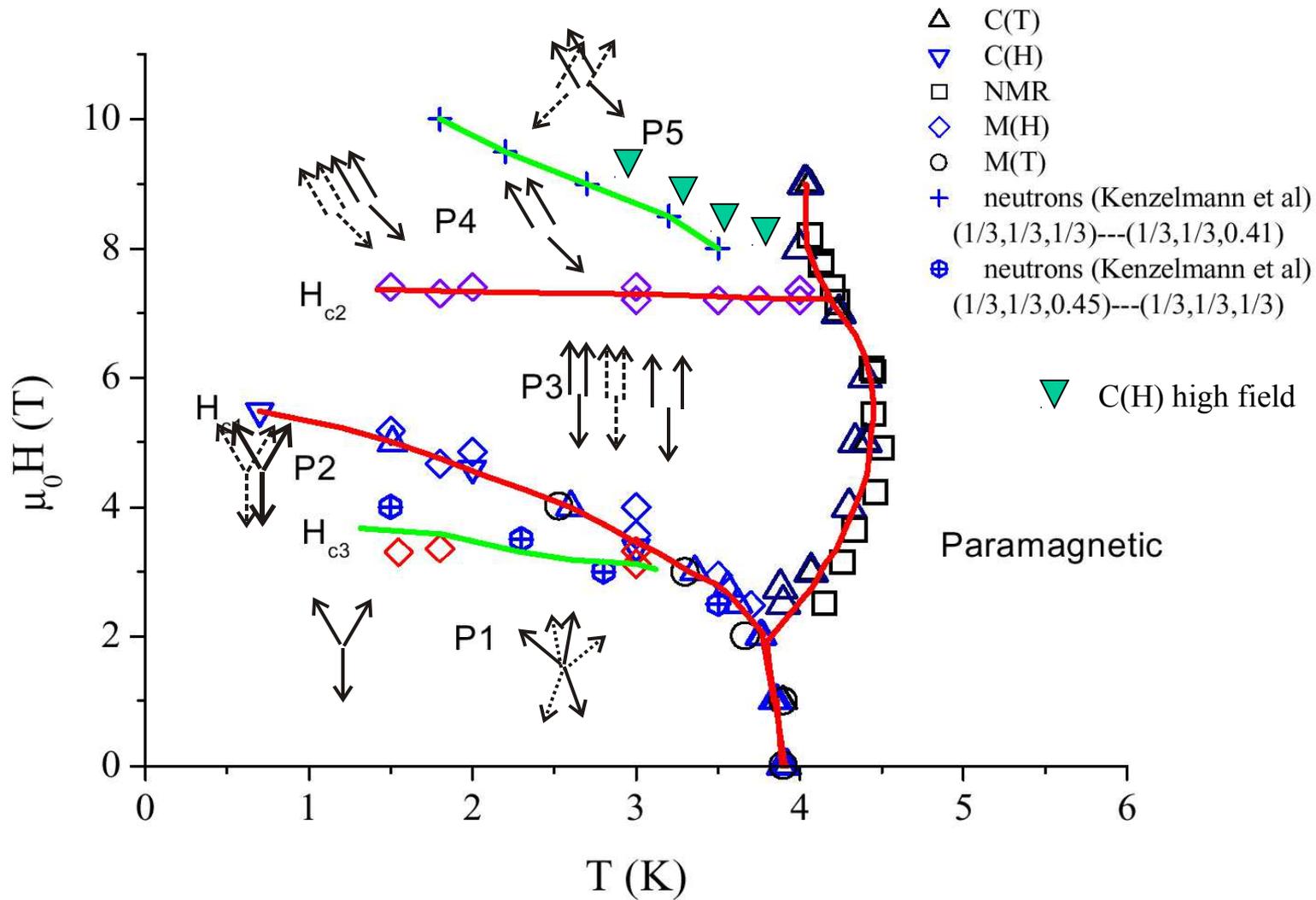
Структуры по Гехту  
при  $T=0$  (ЖЭТФ 1997)

$J'S/J$ 

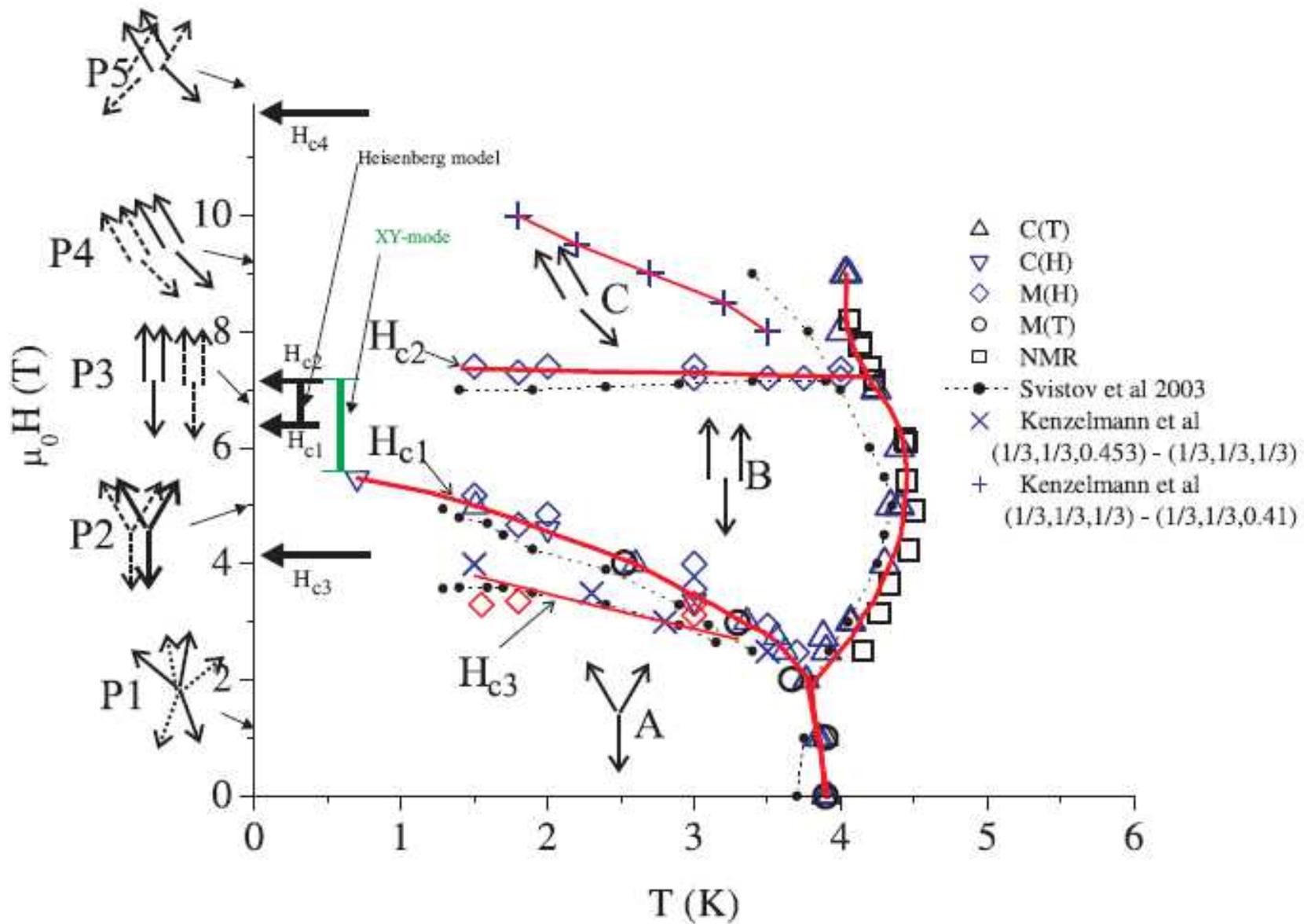
$H$ - $J'$  диаграмма по Гехту  
при  $T=0$  (ЖЭТФ 1997)

$\text{RbFe}(\text{MoO}_4)_2$



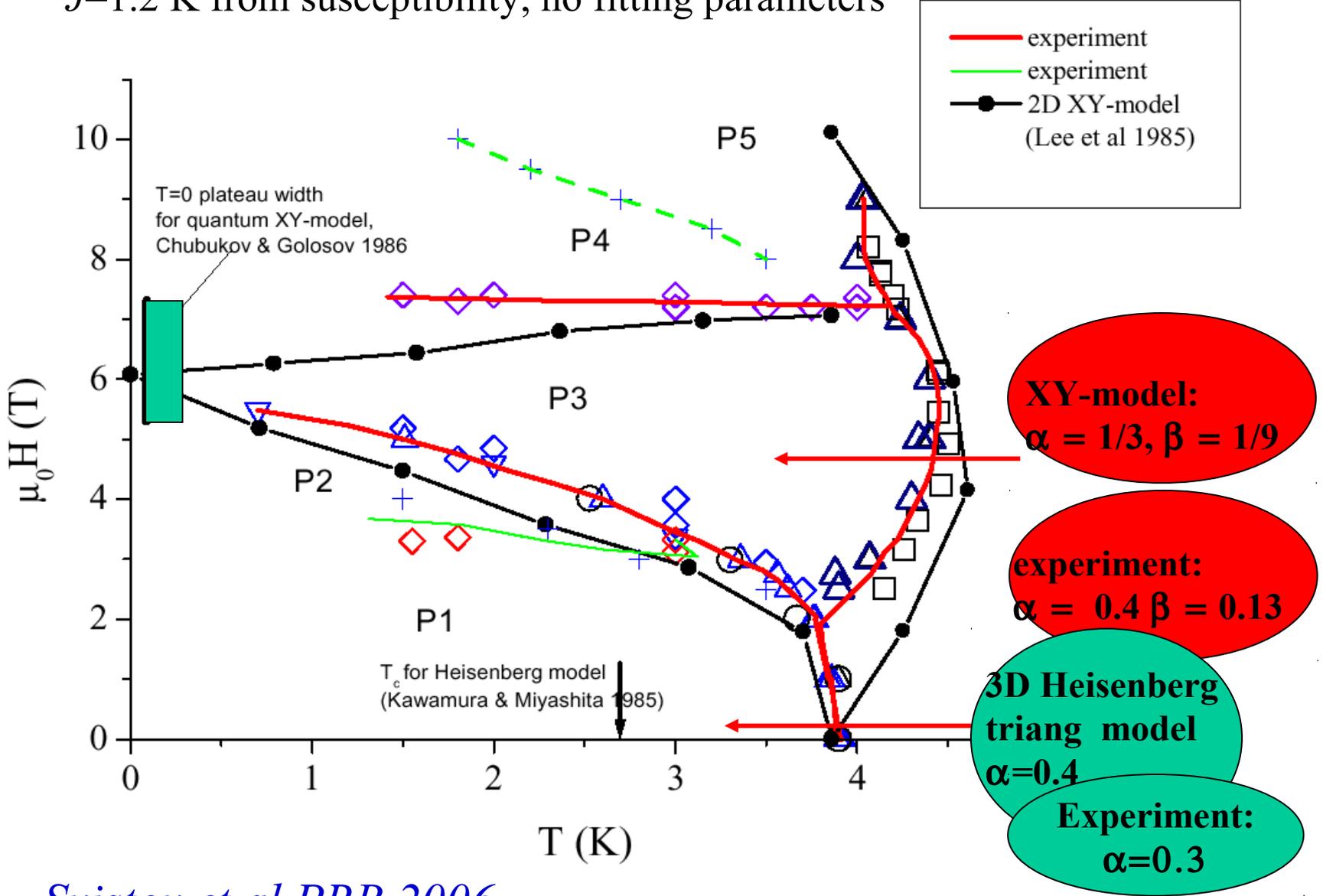


*L.E.Svistov et al Phys. Rev. B. 74, 024412 (2006)*

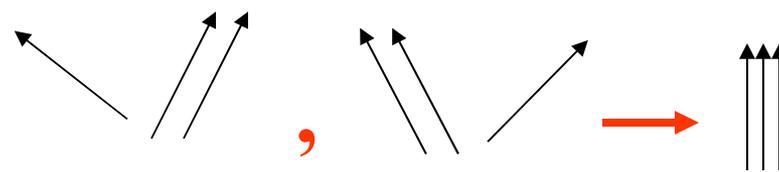
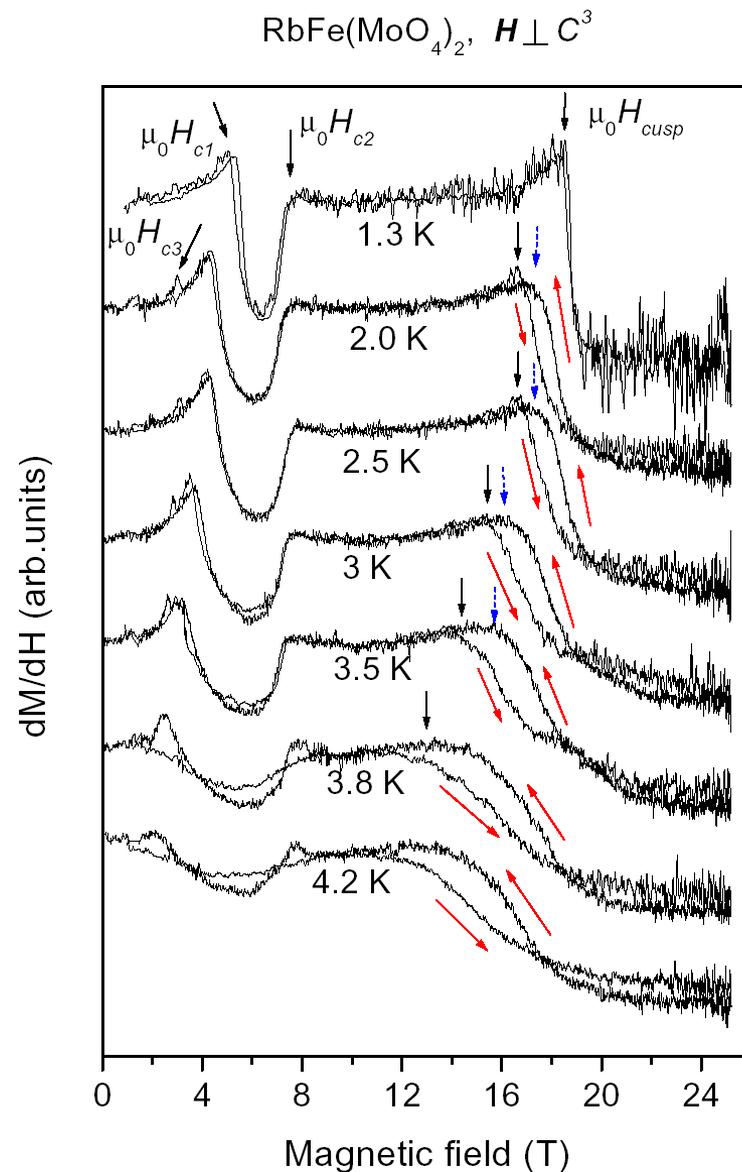
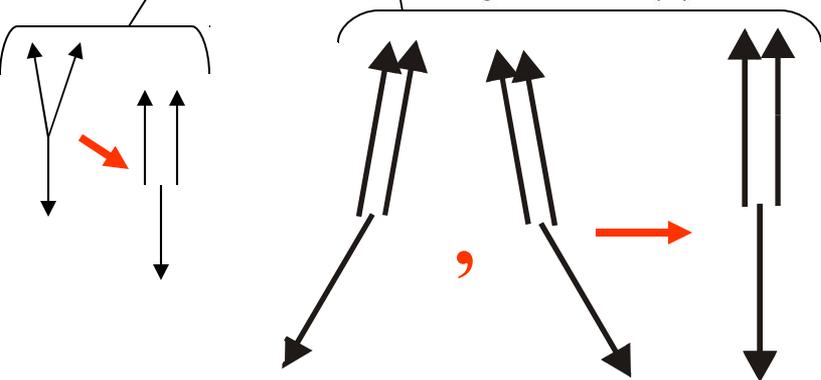
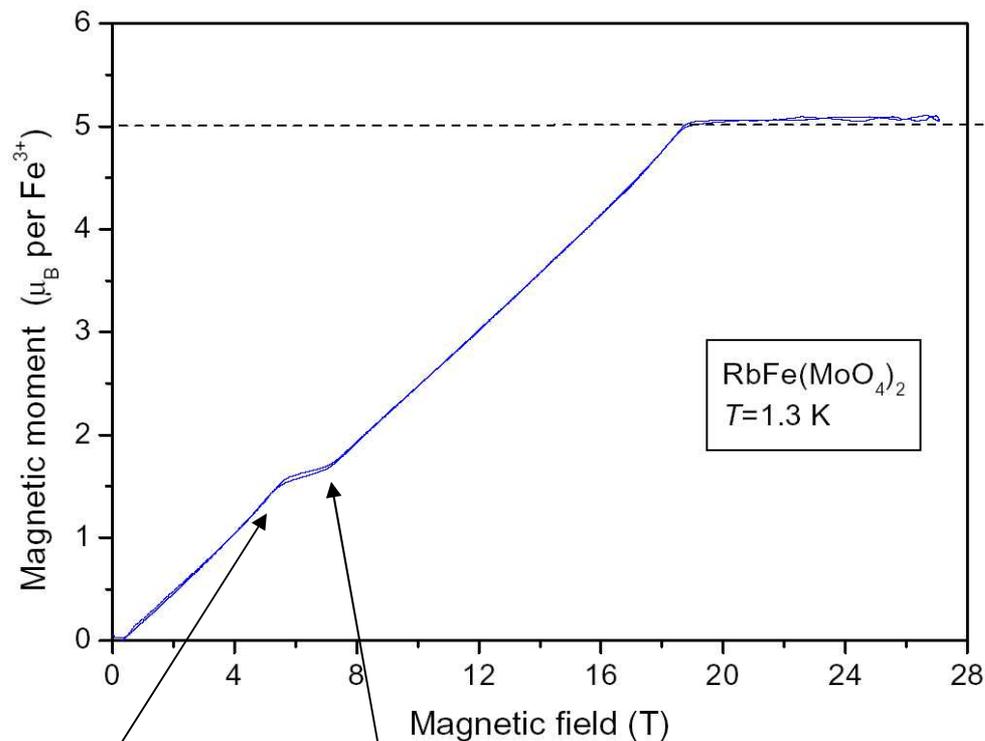


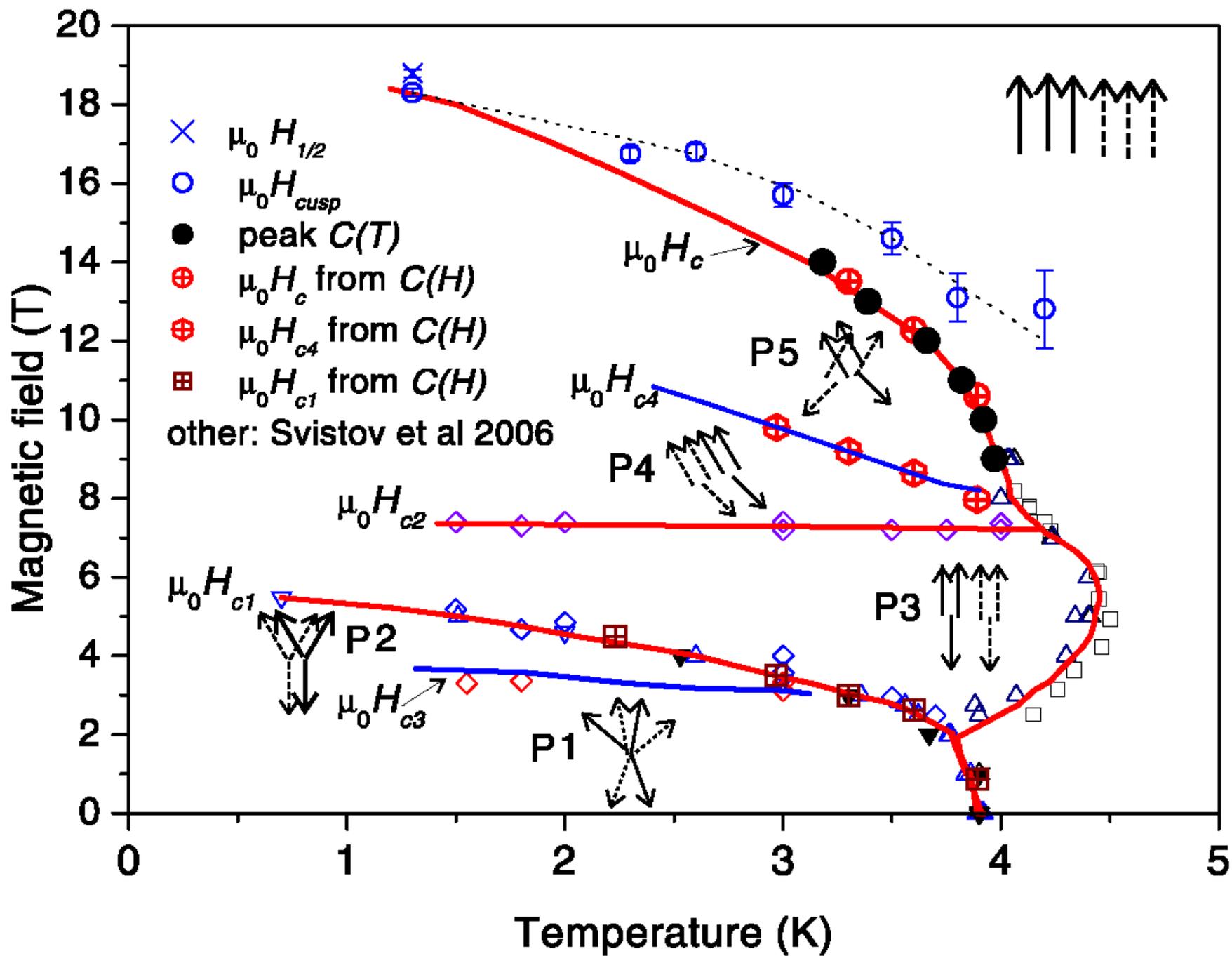
# Соответствие фазовой диаграммы $\text{RbFe}(\text{MoO}_4)_2$ и теоретической фазовой диаграммы для XY-модели

$J=1.2$  K from susceptibility, no fitting parameters

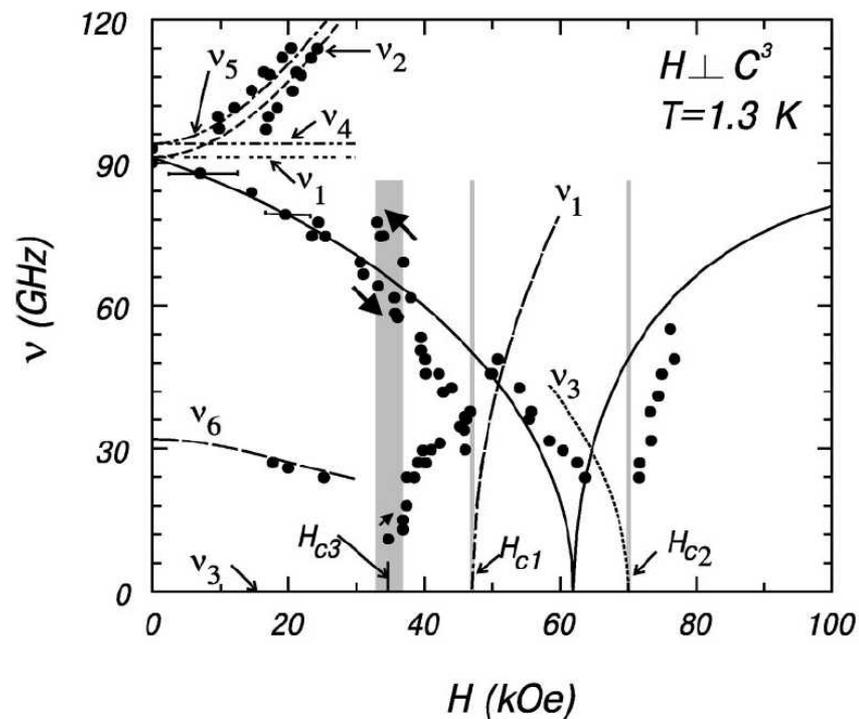
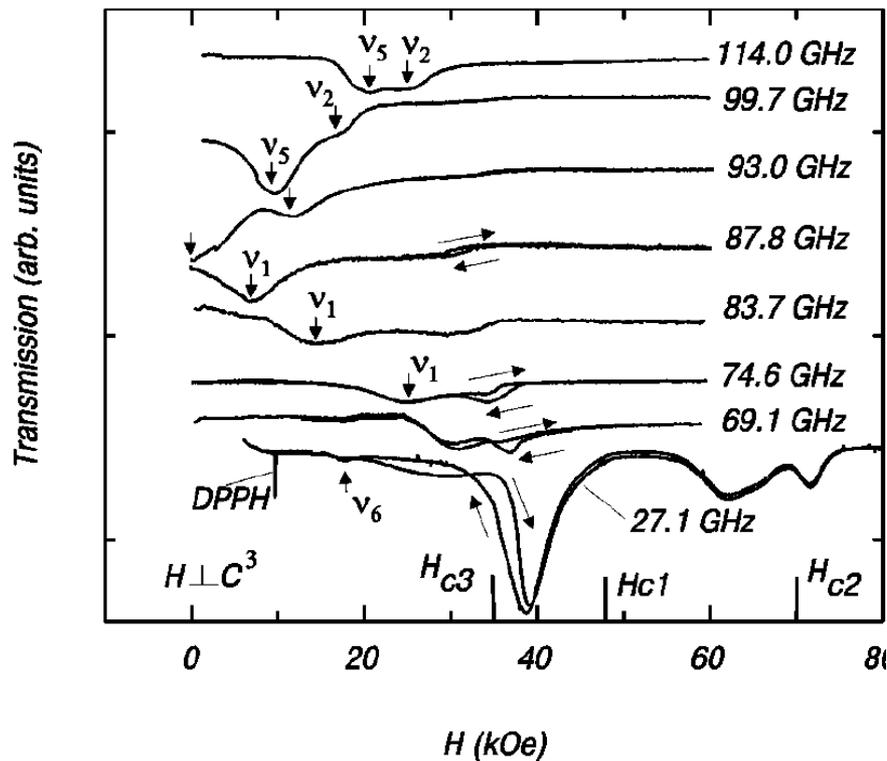


# Флуктуационные пики $dM/dH$ при выходе на плато “1/3” и “1”





# Антиферромагнитный резонанс (низкополевая часть спектра) Поле в плоскости треугольников

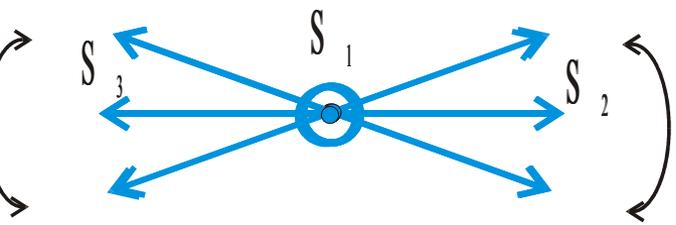


————— Чубуков Голосов, молек. поле  
3-подрешетки

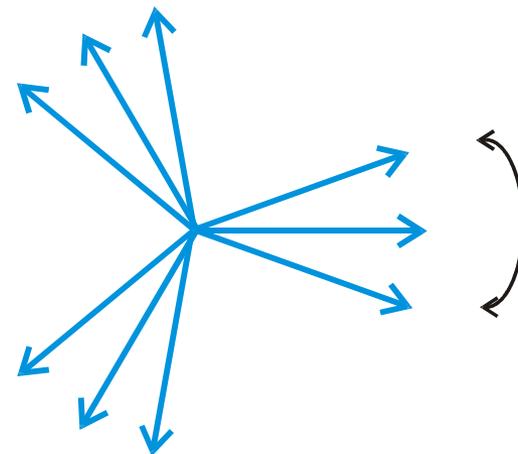
- - - - - Марченко,  
макроскопический лагранжиан  
Межплоскостное взаимодействие

*Svistov et al PRB 67 094434 (2003)*

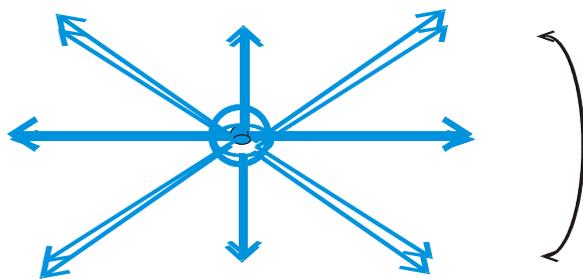
# Моды спиновых колебаний 2D TLAFM (легкая плоскость )



$S_1$  не выходит из плоскости

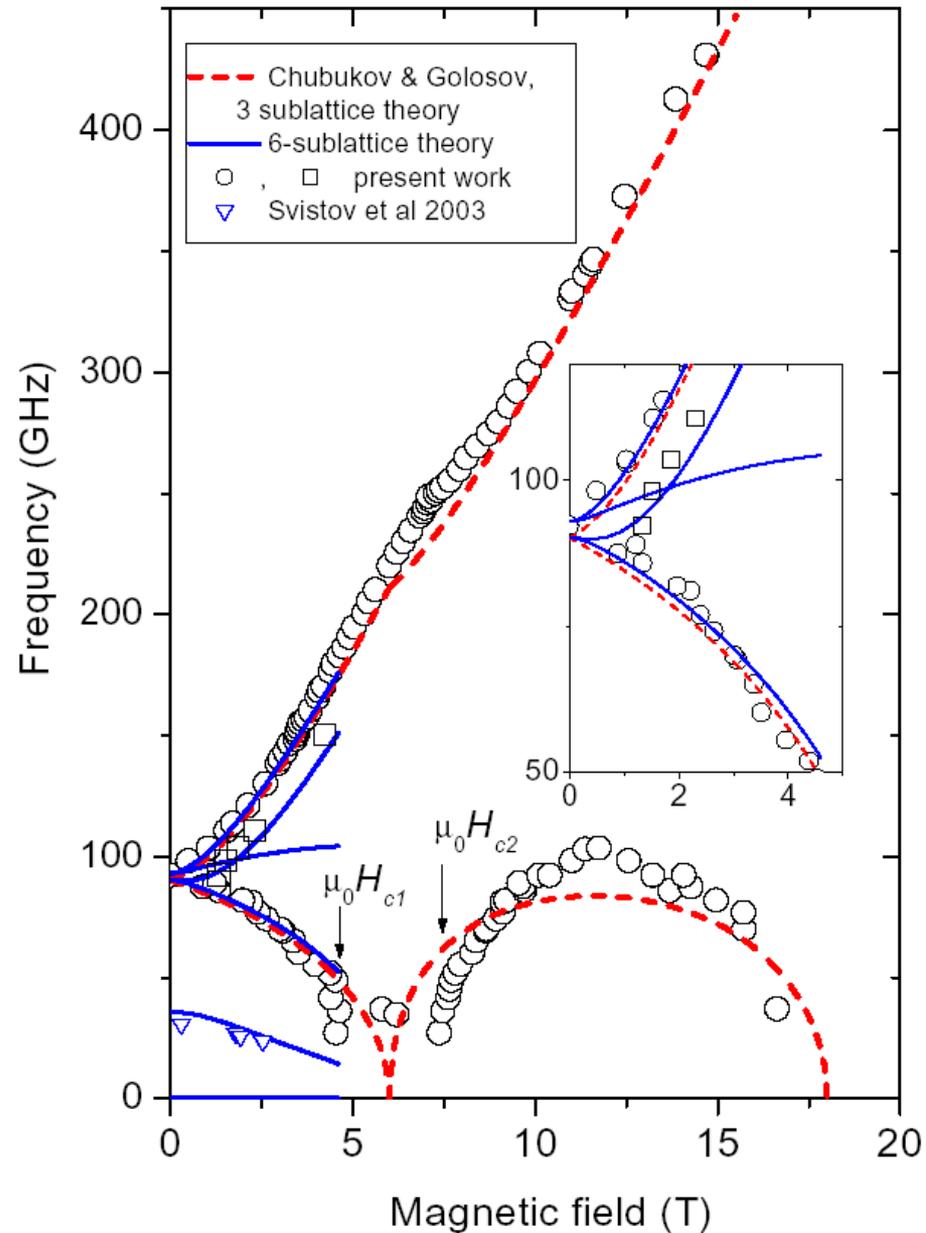
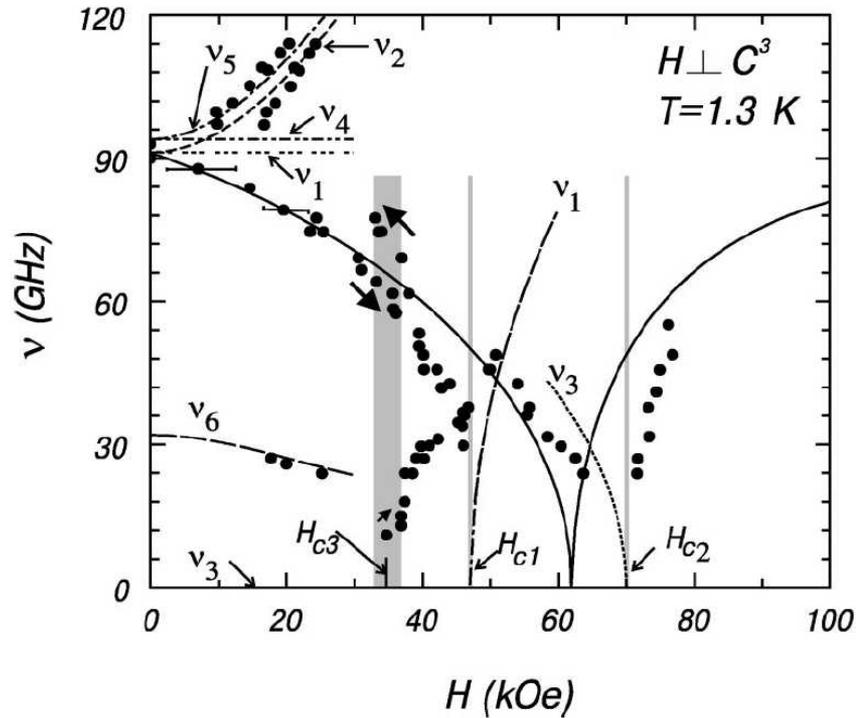


Колебания в плоскости  
(нулевая частота)



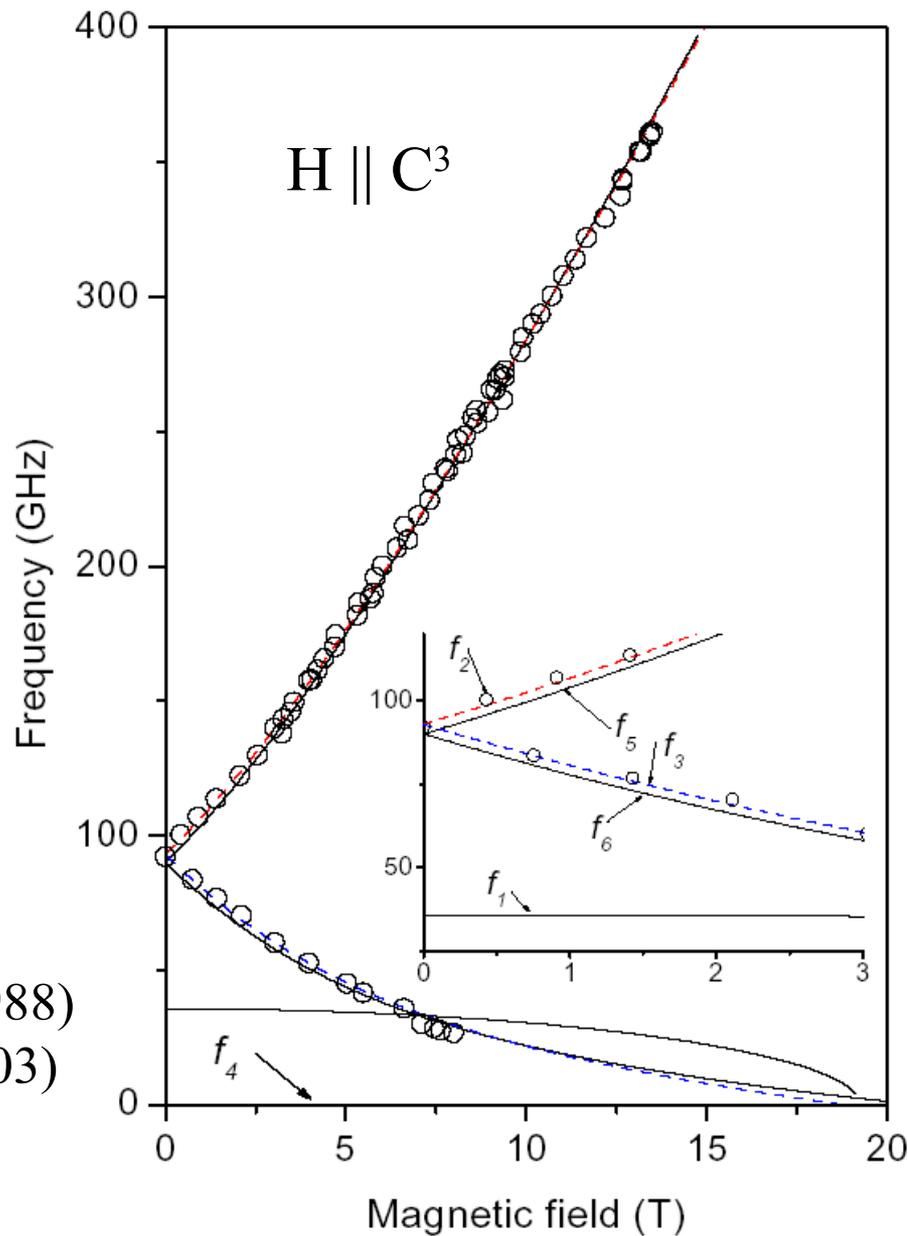
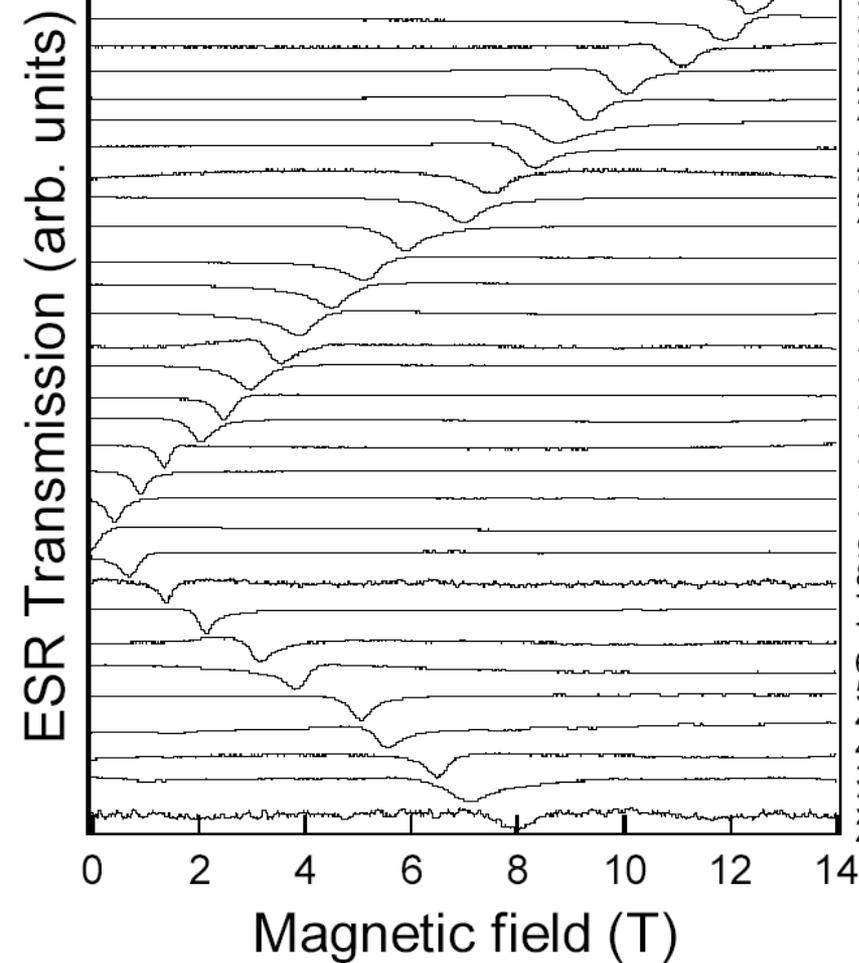
Все три подрешетки  
Выходят из плоскости

# Антиферромагнитный резонанс, весь спектр. Поле в плоскости треугольников



Можно сравнить макроскопический подход и метод молек. поля

*Поле перпендикулярно плоскости  
треугольников*



Расчет по теории молек. поля. (Танака 1988)

И макроскопич. динамика (Марченко2003)

$$g_{\text{eff}} = g/2$$

Почему XY- модель так хорошо соответствует?  
Потому, что щель АФМР 90 ГГц  $\approx 4.5 \text{ K} > T_N$   
Эта энергия определяет выход спинов из плоскости.  
Колебания спинов в плоскости – безщелевые.

XY-model:  $D/J \gg 1$

$$D/J=0.5, H_e / H_a = 13 \quad H_e = 6JS/g\mu_B, H_a = DS/ g\mu_B$$

Spin-wave gap (out of plane mode) is 90 GHz = 4.5 K.

$$\mathcal{H} = 2J \sum_{(ij),n} S_{in} S_{jn} + 2J' \sum_{in} S_{in} S_{in+1} + D \sum_{in} (S_{in}^z)^2 - g\mu_B H \sum_{in} S_{in}$$

$$\chi_{\parallel} = \frac{(g\mu_B)^2}{18J + 2D} N,$$

$$\chi_{\perp} = \frac{(g\mu_B)^2}{18J} N,$$

$$H_E = \frac{6JS}{g\mu_B} = 67 \text{ kOe},$$

$$H_A = \frac{DS}{g\mu_B} = (5 \pm 1.5) \text{ kOe}.$$

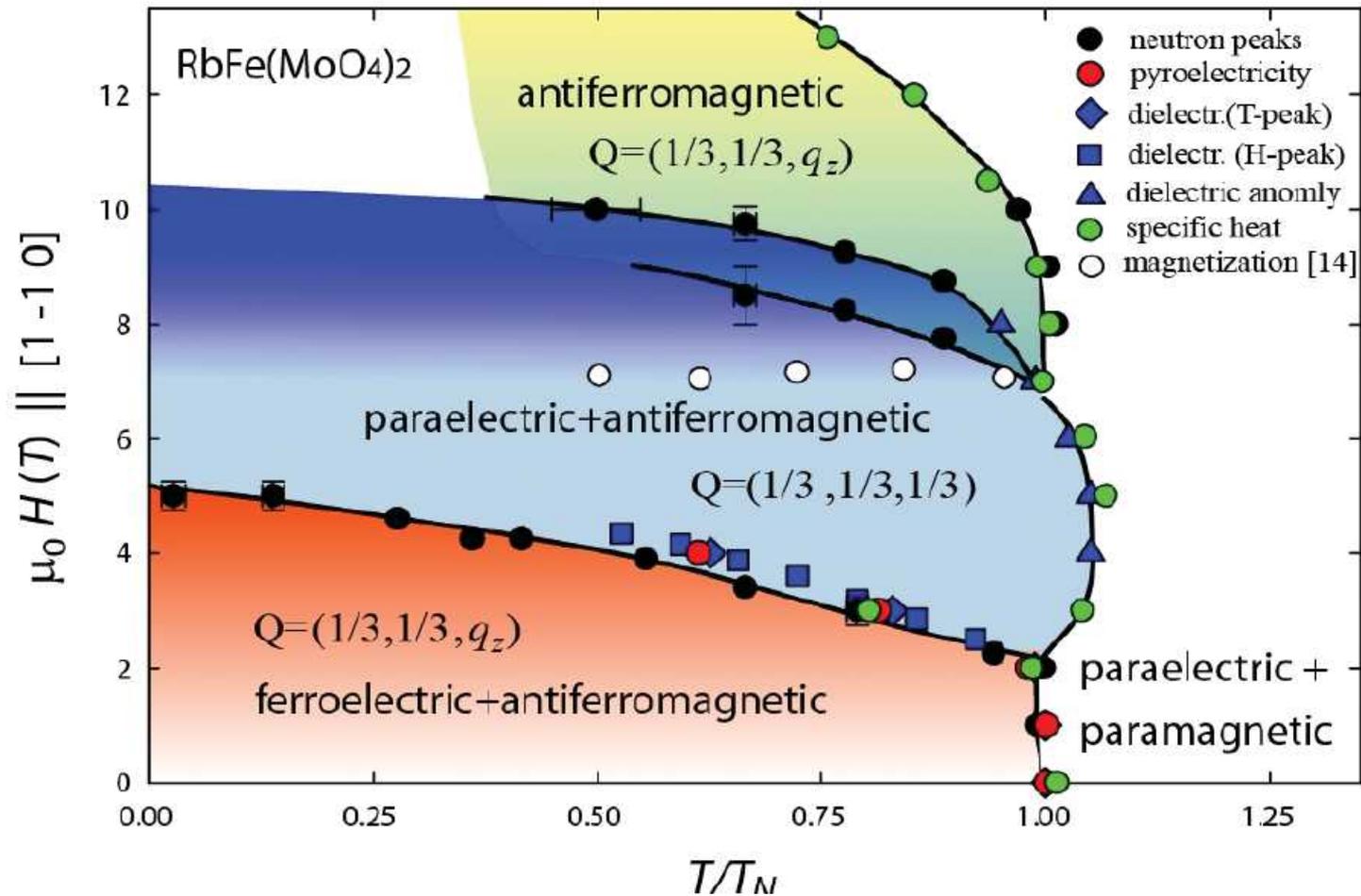
$$a^2 = 18JDS^2 = \gamma^2 3H_A H_E,$$

$$c^2 = \gamma^2 H_E^2 \frac{J'}{J},$$

$$(\gamma = g\mu_B/2\pi\hbar)$$

$$H_E = 67 \text{ kOe}, H_A = 5.2 \text{ kOe}, J'/J = 0.01$$

*Этими 3-мя параметрами описывается фазовая диаграмма, кривые  $M(H)$ , резонансные спектры*



Выводы по треугольному АФМ:

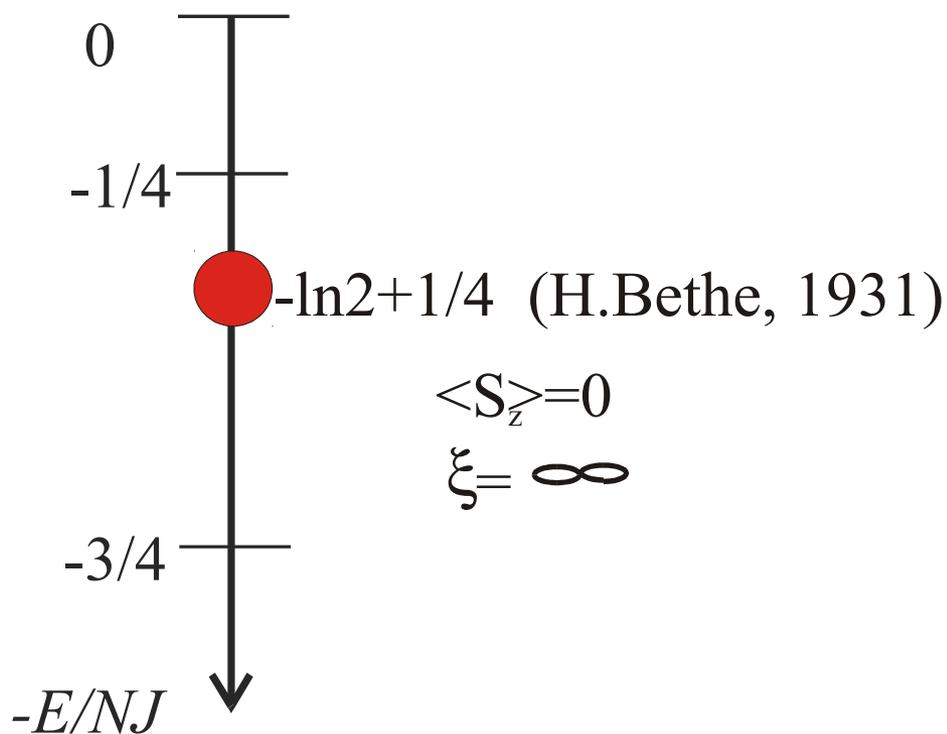
1. Хорошее соответствие фазовой диаграммы 2D XY –модели и 3D-модели со слабым межслоевым взаимодействием.
2. Плато намагниченности, стабилизированное флуктуациями
3. Спектр антиферромагнитного резонанса
4. Нет подгоночных параметров

**ПЕРЕРЫВ**

# ЧАСТЬ 2

## Квантовые спиновые жидкости

# Цепочка спинов $S=1/2$ (анзац Бете)



$$\langle S_z \rangle = 0$$

$$\xi = \infty$$

$S_z = 1/2$

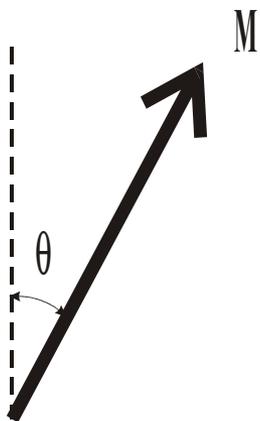
$(\langle S^2 \rangle)^{1/2} = \sqrt{3}/2$

$$\mathcal{H} = \sum_i J S_i S_{i+1}$$



НЕТ порядка в одномерных АФМ спиновых цепочках даже при  $T=0$

## Произвольный спин



Вклад спиновых волн в полную энергию и угол отклонения параметра порядка :

$$E \sim (\text{grad } \Theta)^2 \sim k^2 \Theta_0^2 \sim \varepsilon_k n_k$$

$$\Theta_0^2 \sim \varepsilon_k n_k / k^2 \sim n_k / k \sim 1/k$$

$$\delta M \sim \int_k \theta_0^2 dk \sim \int_k dk/k \rightarrow \infty$$

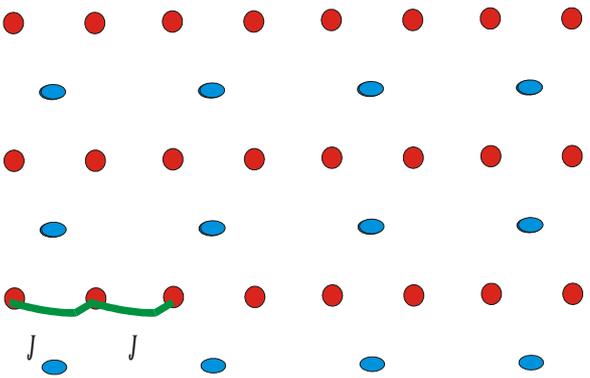
$$\varepsilon_k = \alpha k$$

$$T=0$$

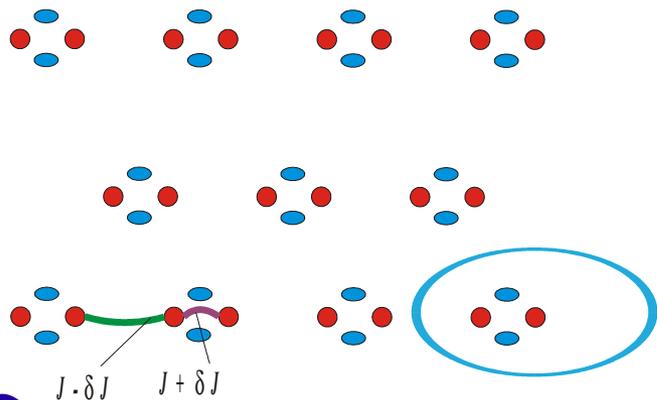
$$n_k = 1/2$$

# Щелевые и бесщелевые состояния спиновых цепочек S=1/2

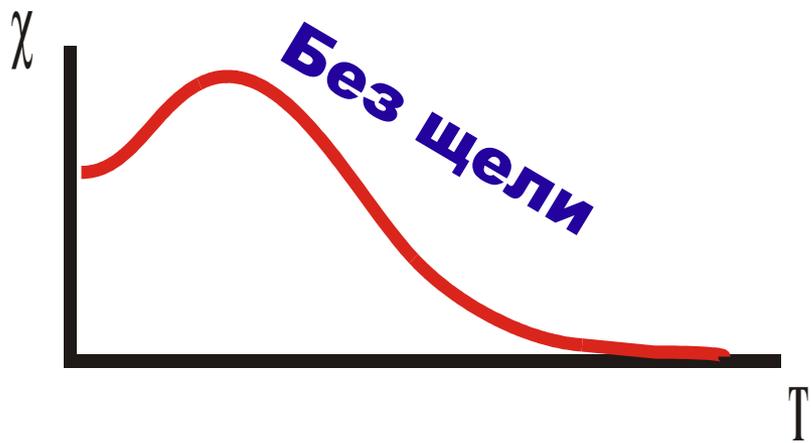
спиновые цепочки в кристаллах



Димеризованные спиновые цепочки в кристалле



*Спин-  
пайерлсов-  
ский  
переход*



$$\langle S_z \rangle = 0$$

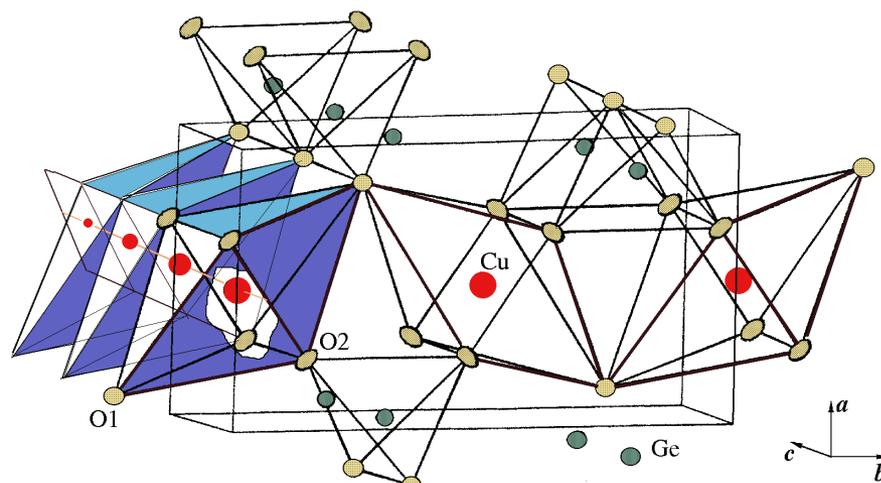
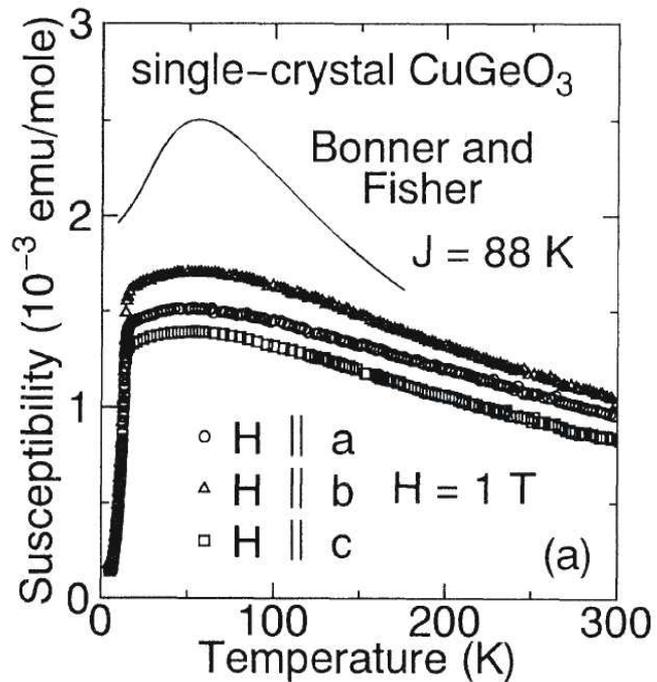
$$\xi = \infty$$



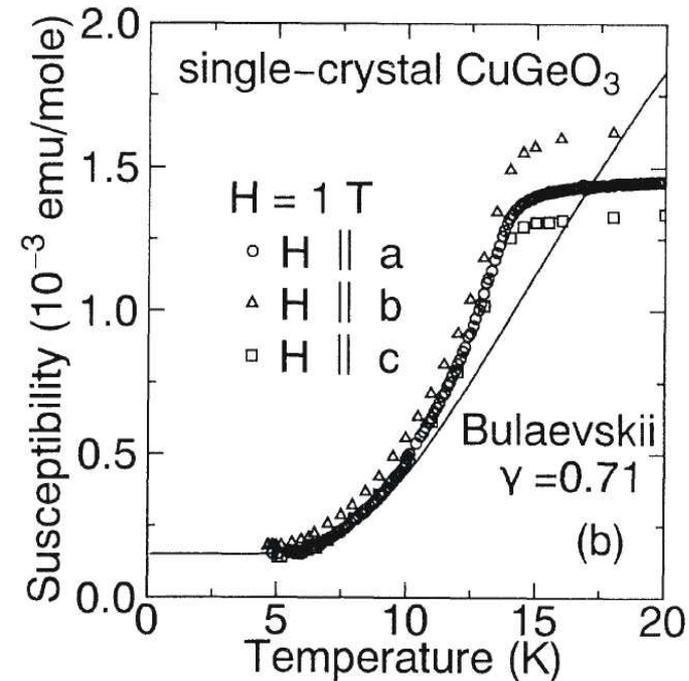
$$\langle S_z \rangle = 0$$

$$\xi = v/\Delta$$

# Восприимчивость спин-пайерлсовского магнетика (димеризованные цепочки)



Lattice parameters:  $a=4.80 \text{ \AA}$   
 $b=8.47 \text{ \AA}$   
 $c=2.94 \text{ \AA}$



# Халдейновские спиновые цепочки

$S=1$

$$|g.s.\rangle = \square 0 \square \square \square \square 0 \square \square \square \square 0 \square \square \square \square \square \square \square \square + \dots$$

$$\langle S_z \rangle = 0$$

$$\xi \sim 7$$

Энергетическая щель  $\Delta=0.41 J$

TSUJII *et al.*

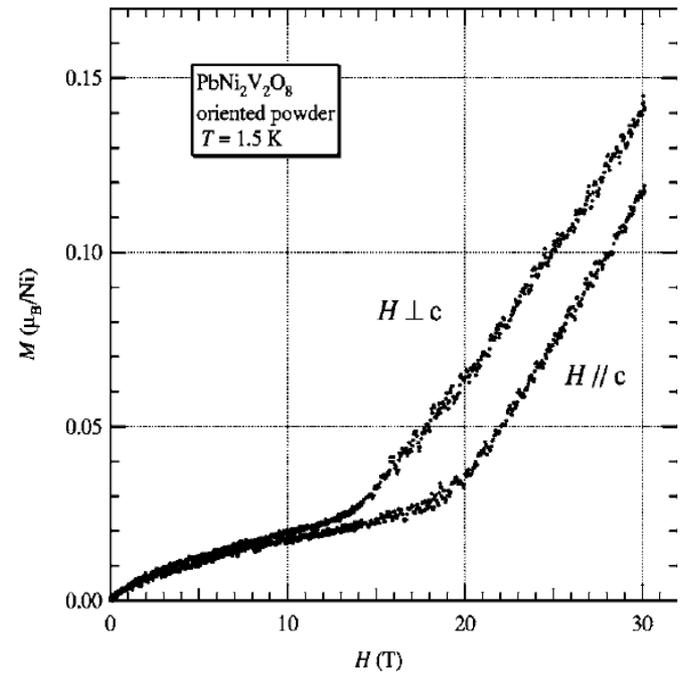
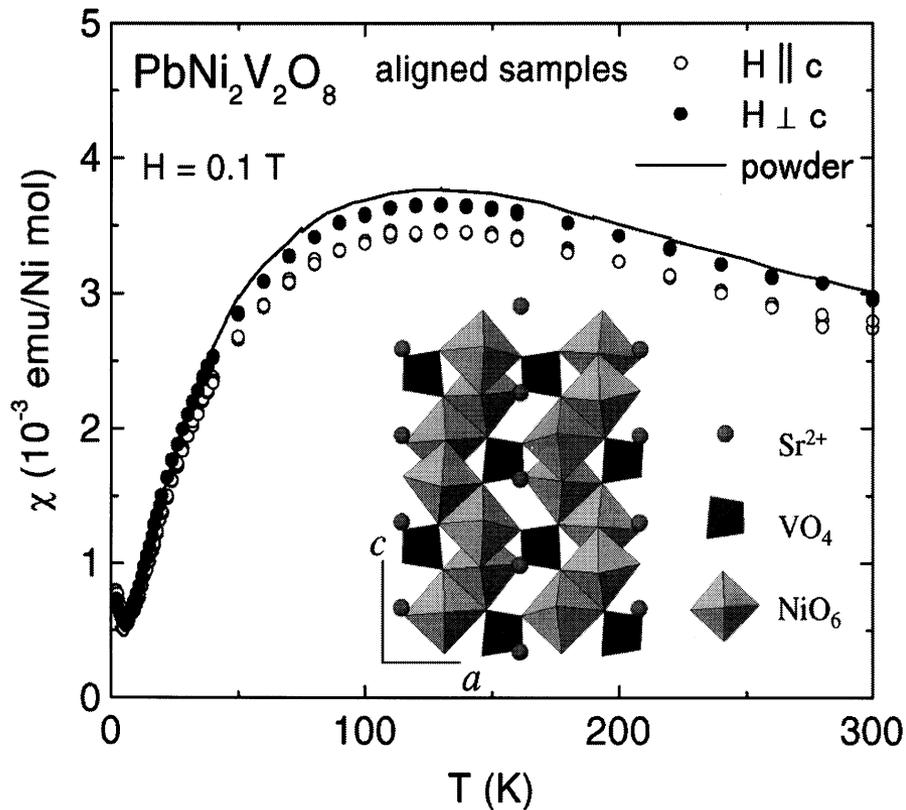
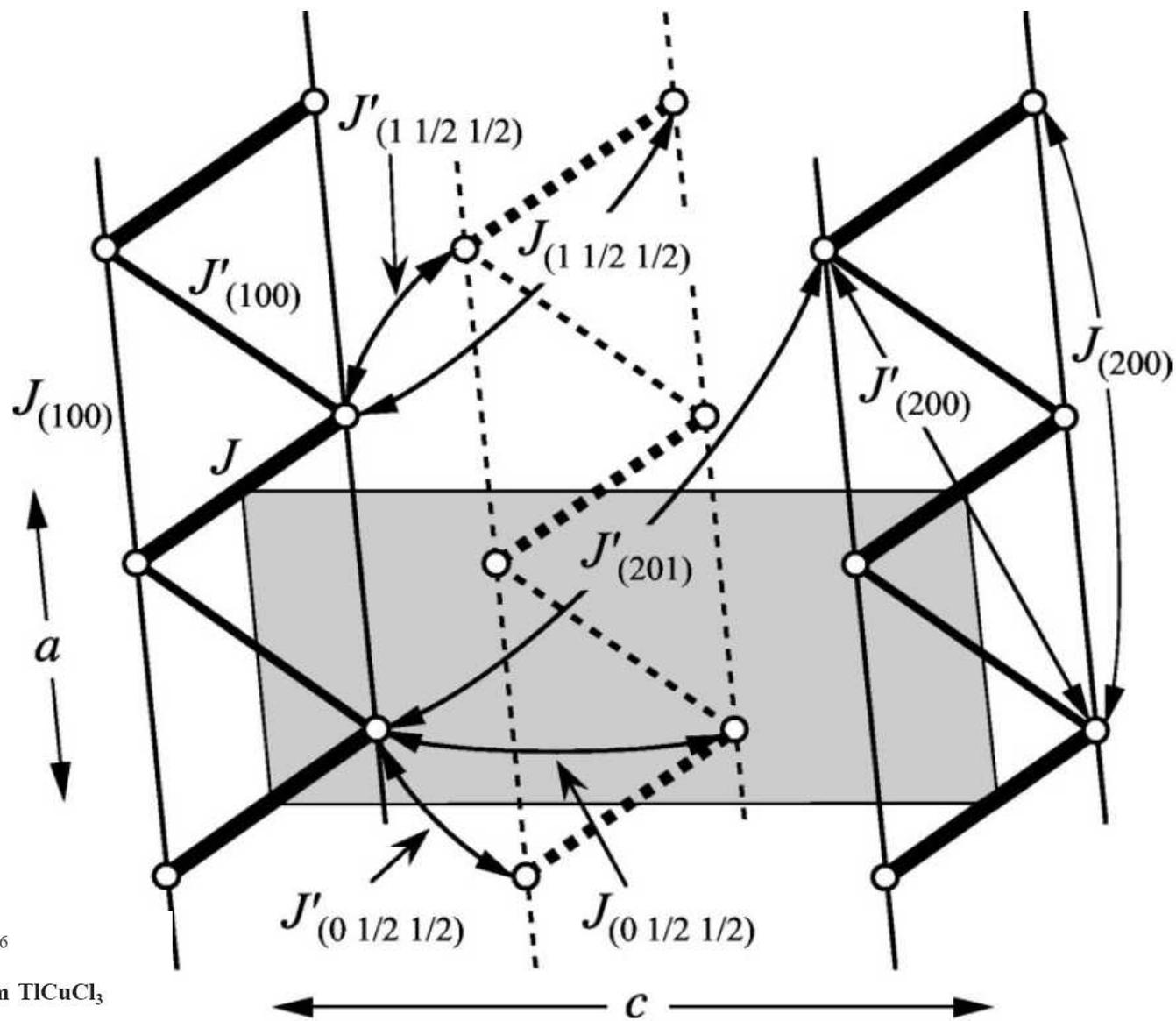


FIG. 1. Field dependence of the magnetization of the  $PbNi_2V_2O_8$  powder samples.

# TlCuCl<sub>3</sub> – трехмерная сеть связанных димеров S=1/2 (Cu<sup>2+</sup>)



PHYSICAL REVIEW B, VOLUME 65, 094426

Magnetic excitations in the spin-gap system TlCuCl<sub>3</sub>

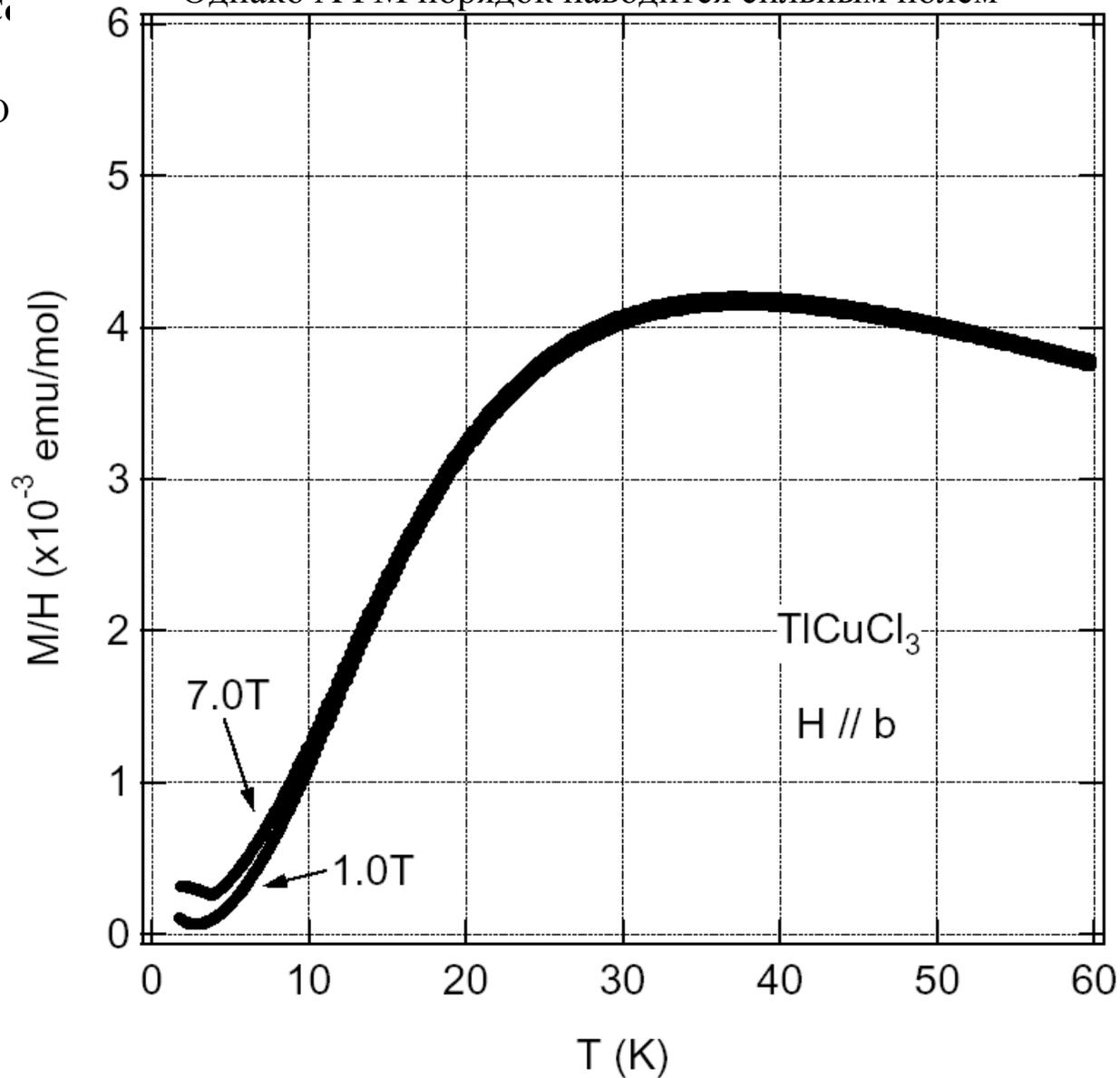
Oosawa,<sup>1</sup> T. Kato,<sup>2</sup> H. Tanaka,<sup>1</sup> K. Kakurai,<sup>3,\*</sup> M. Müller,<sup>4</sup> and H.-J. Mikeska<sup>4</sup>

PRL 2000

Bose-Einstein Condensate  
**TiCuCl<sub>3</sub>**

T. Nikuni,\* M. O

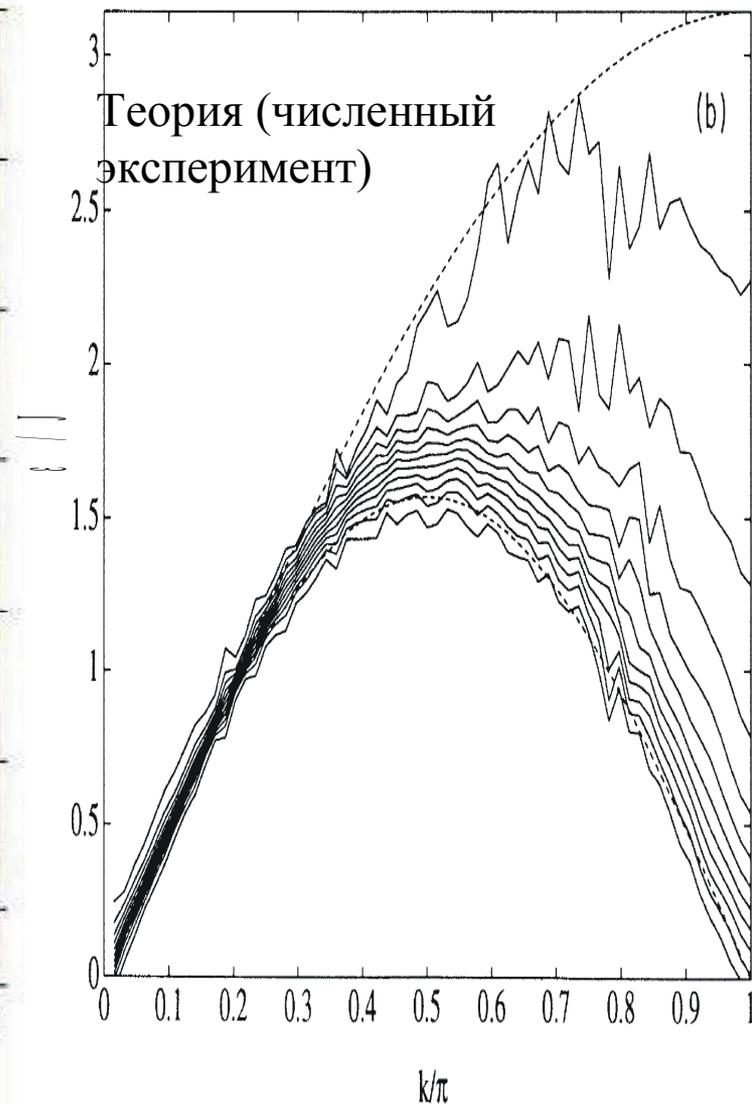
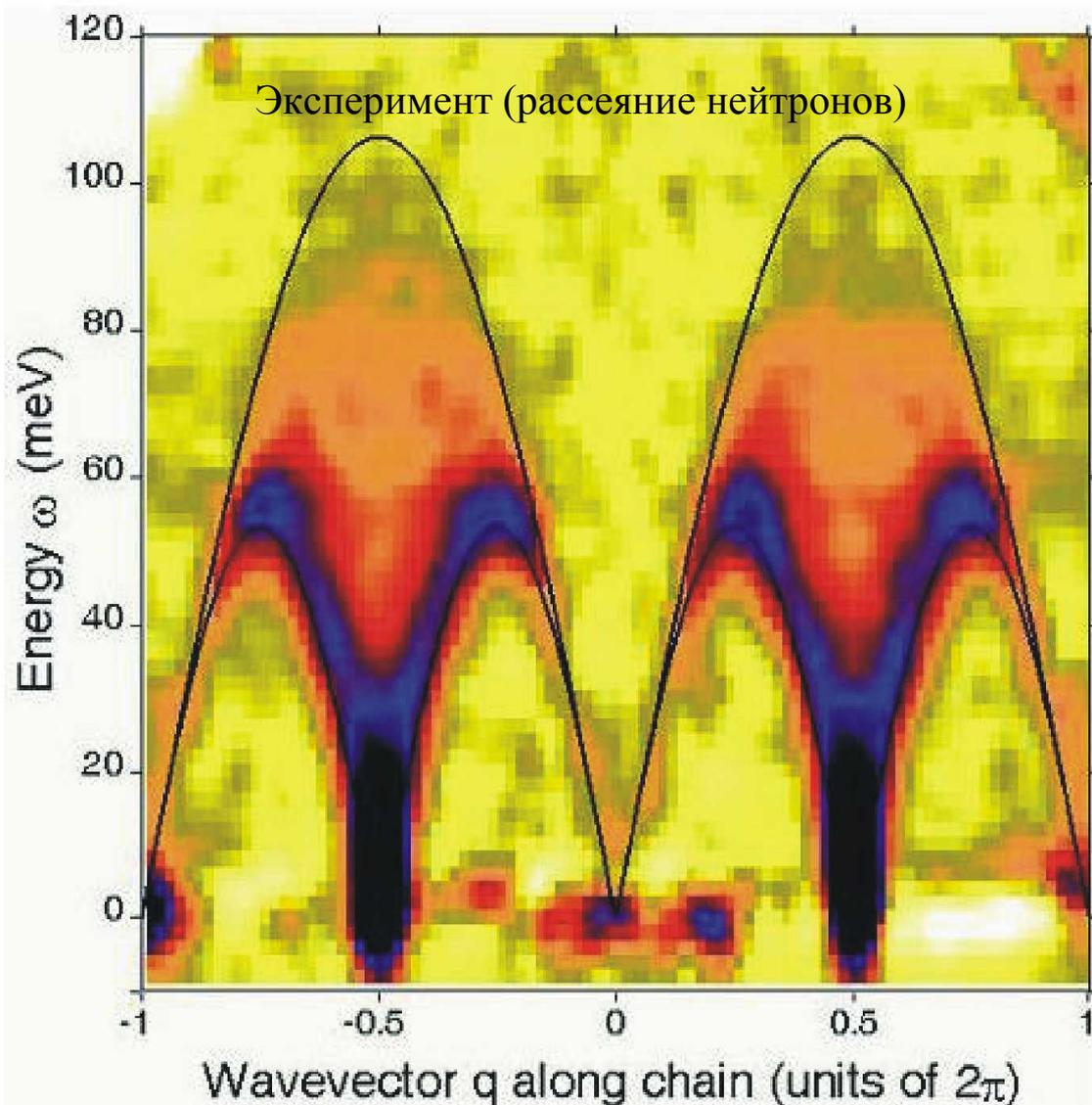
Отсутствие упорядочения вплоть до самых низких температур при H=0  
Однако АФМ порядок наводится сильным полем



Обычные магнитные диэлектрики упорядочиваются  
при  $T \sim J/k_B$

Квантовые спиновые жидкости  
остаются неупорядоченными при  
 $T \ll J/k_B$

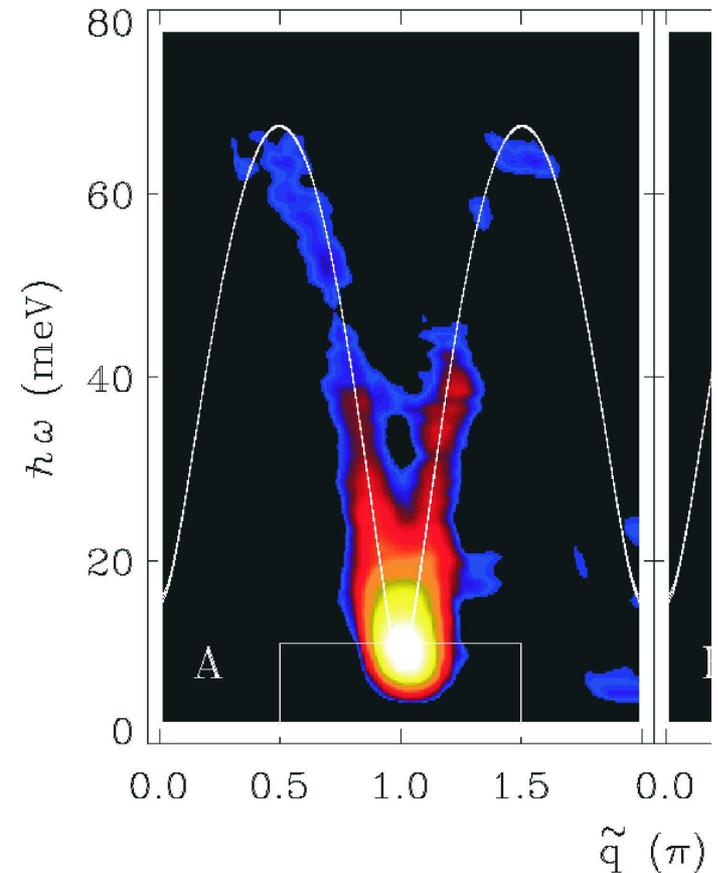
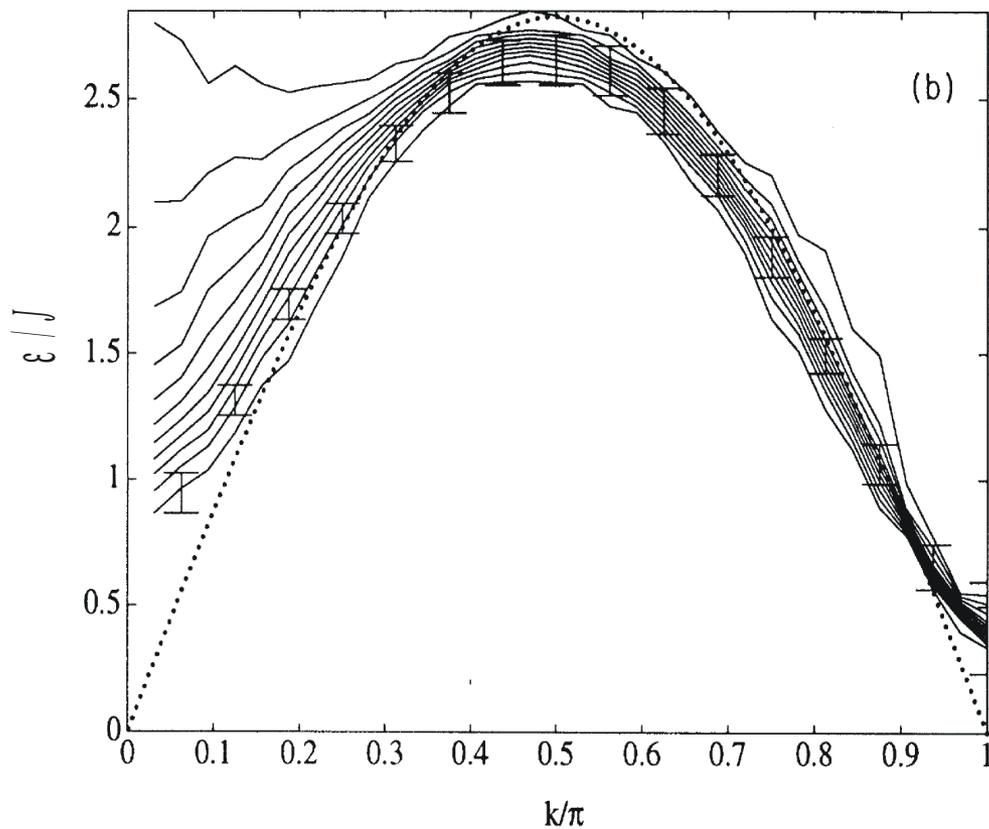
# Возбуждения в спин-жидкостных магнетиках



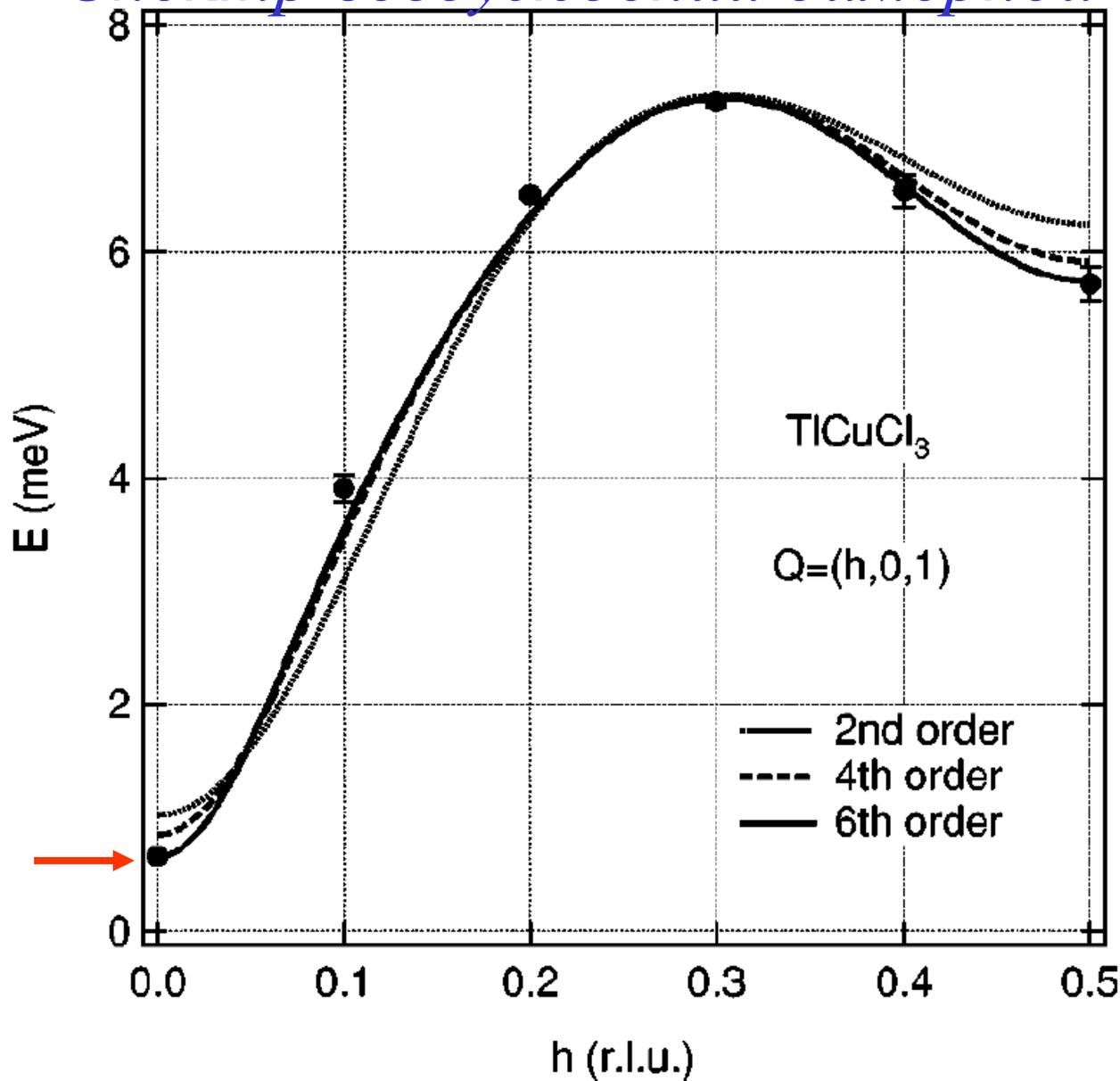
# Возбуждения в спин-жидкостных магнетиках

Теория для халдейновских цепочек:  
С.Мешков PRB 1993

Эксперимент Y2BaNiO5 Xu et al  
Science 2000



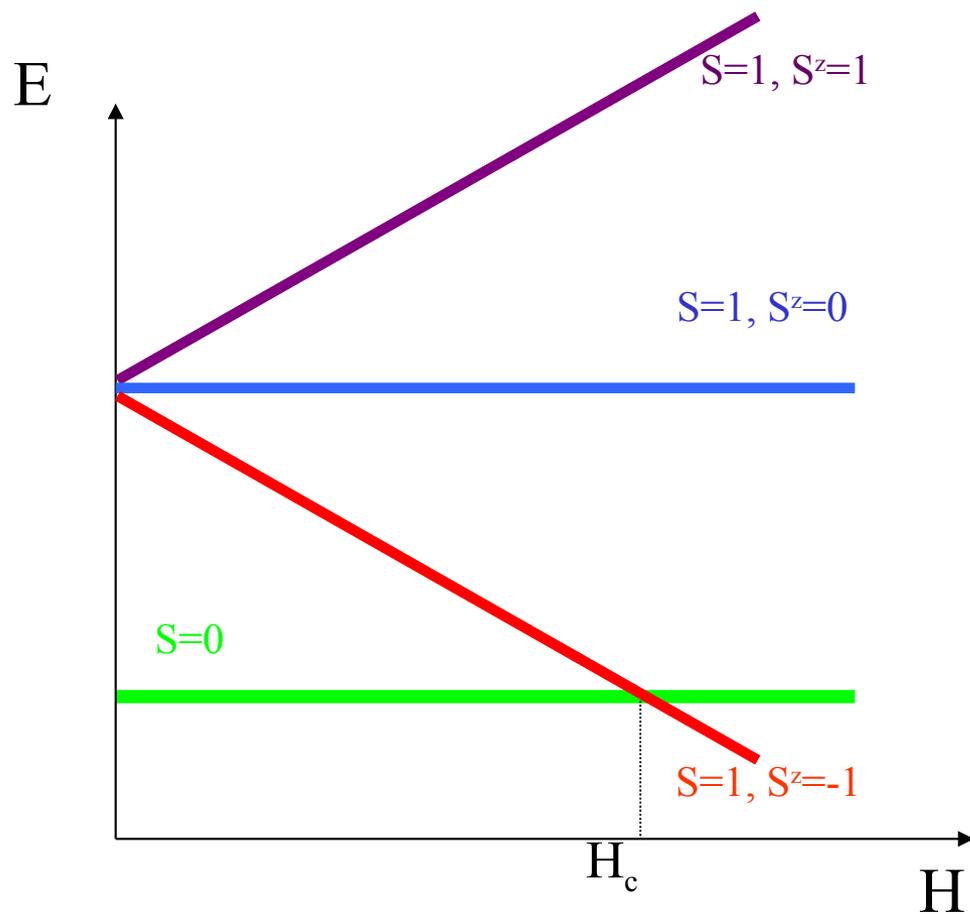
# Спектр возбуждений димерной системы



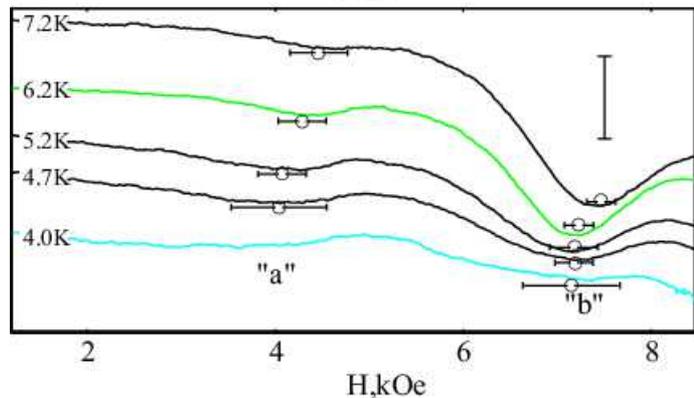
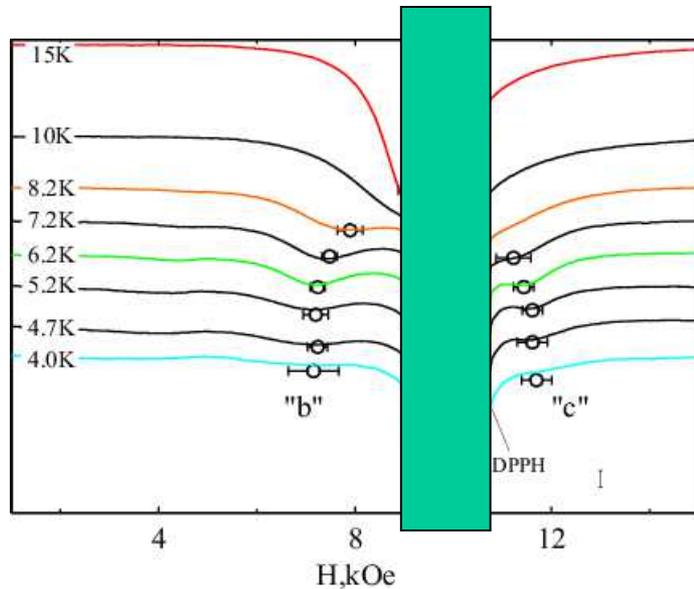
7 K  
Spin-gap

*Как перевести квантовую спиновую жидкость в упорядоченное состояние?*

Способ 2: закрыть спиновую щель сильным магнитным полем



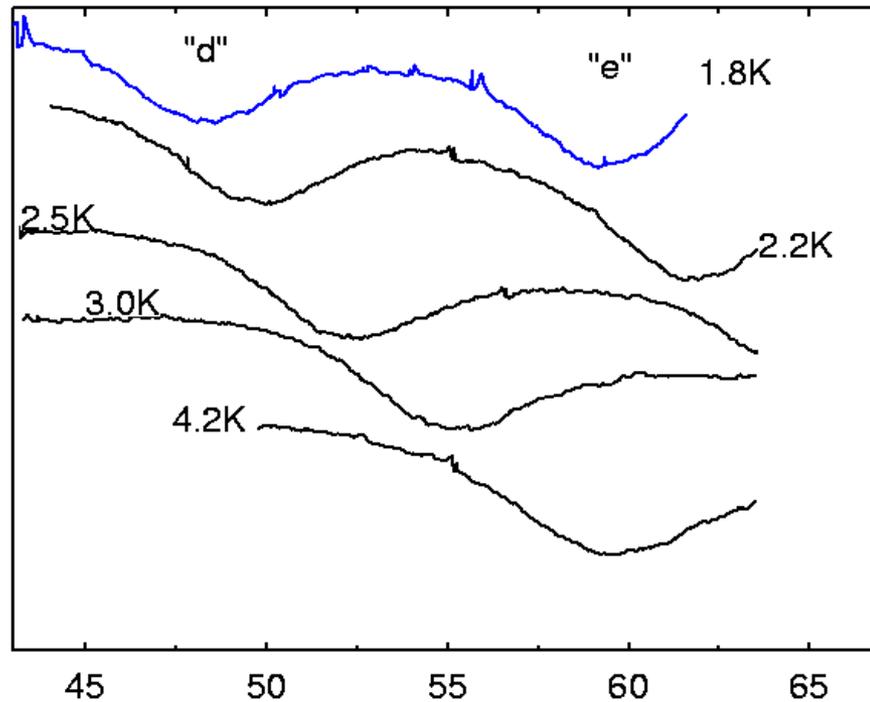
# Димерная сетка спинов $S=1/2$ в кристалле $\text{TlCuCl}_3$ : температурная зависимость спинового резонансного поглощения



Термически активированный сигнал магнитного резонанса, соответствующий изолированным спином  $S=1$  в кристаллическом поле: разреженный газ триплетных возбуждений в синглетной матрице из спинов  $S=1/2$ .

$H \parallel [10-2]$ ,  $f=30.05 \text{ ГГц}$

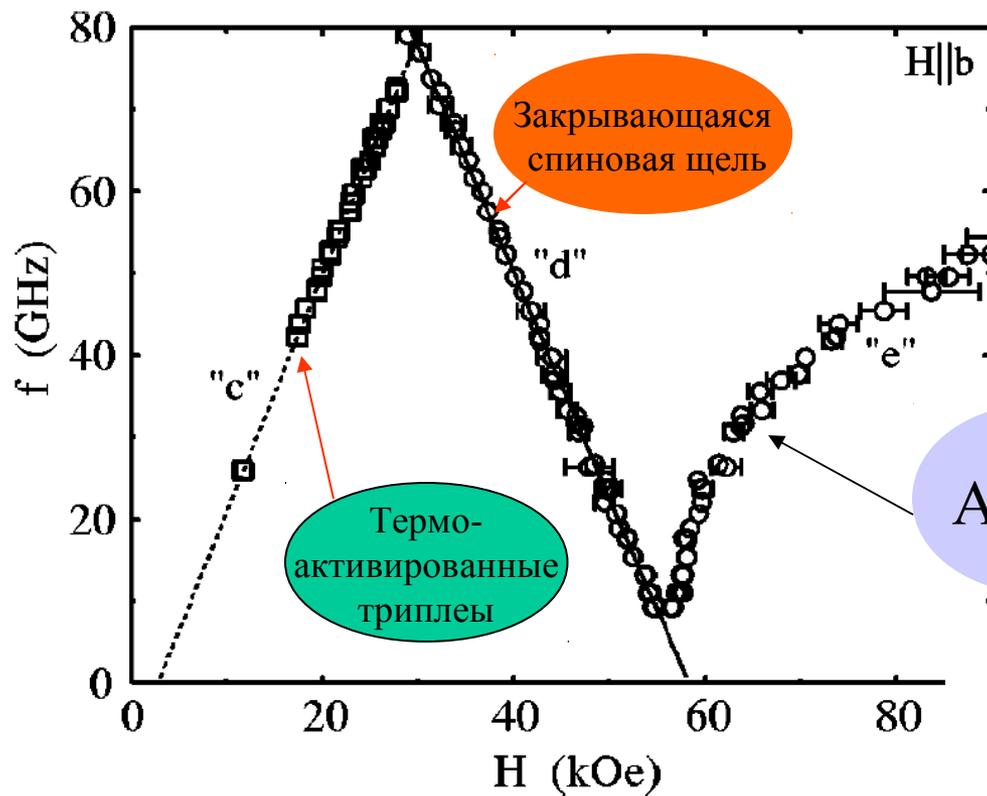
# $TlCuCl_3$ : ЭПР при различных температурах в больших полях.



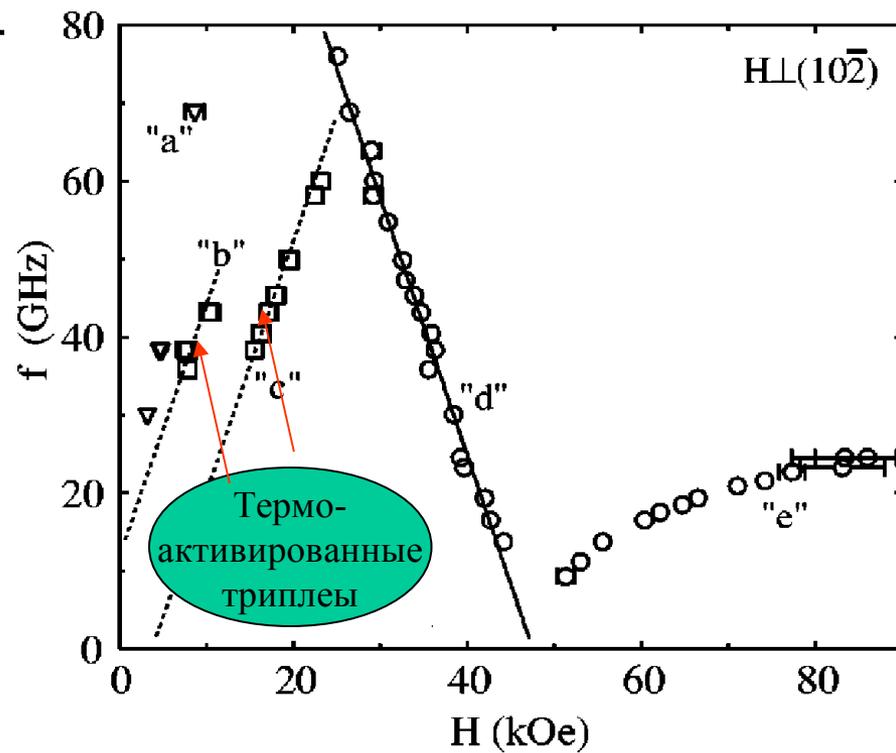
$H \parallel b$ ,  $f=26$  ГГц  
 $H$ , кЭ

В больших полях  
наблюдается две  
компоненты:  
“d” при  $H < H_c$   
“e” при  $H > H_c$

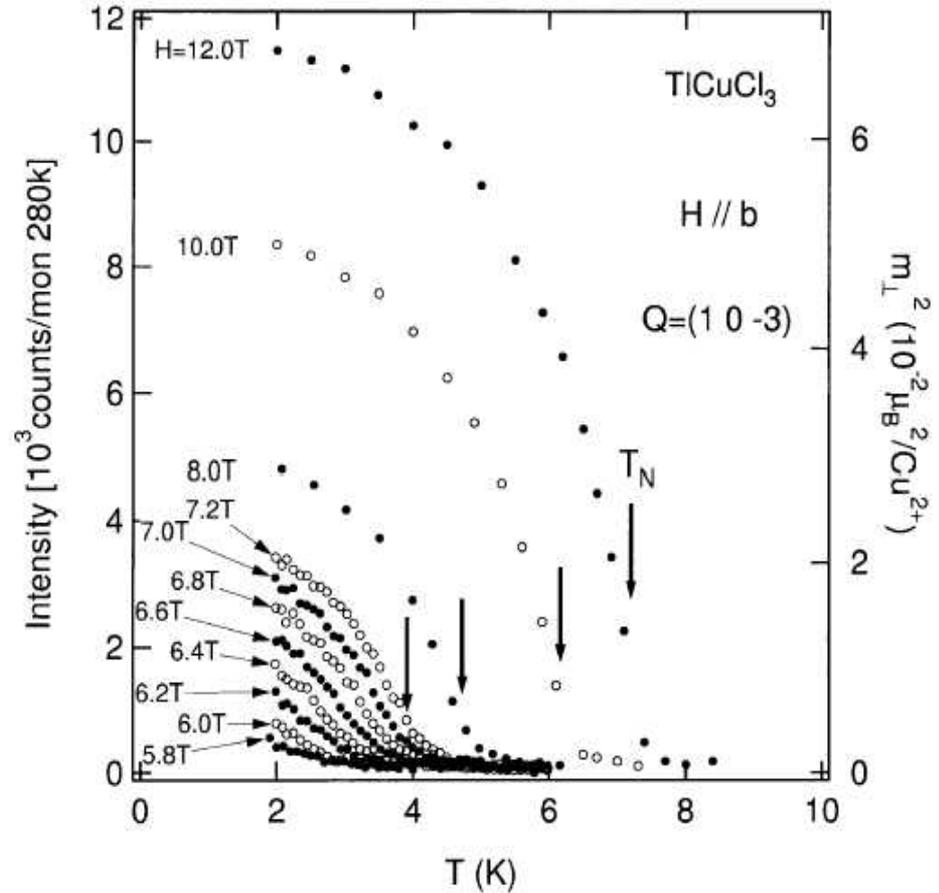
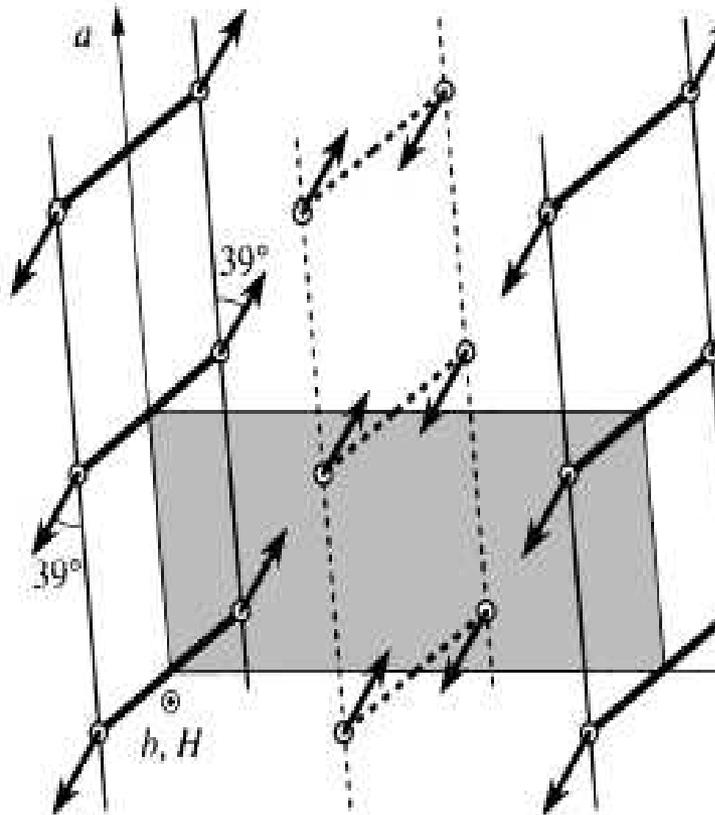
При повышении  
температуры обе  
компоненты  
смещаются в область  
больших полей.



V.Glazkov et al PRB 2004



# Индуцированный магнитным полем антиферромагнитный порядок в $\text{TlCuCl}_3$



H. Tanaka et al JPSJ 2001

## Bose-Einstein Condensation of Dilute Magnons in $\text{TlCuCl}_3$

T. Nikuni,\* M. Oshikawa, A. Oosawa, and H. Tanaka

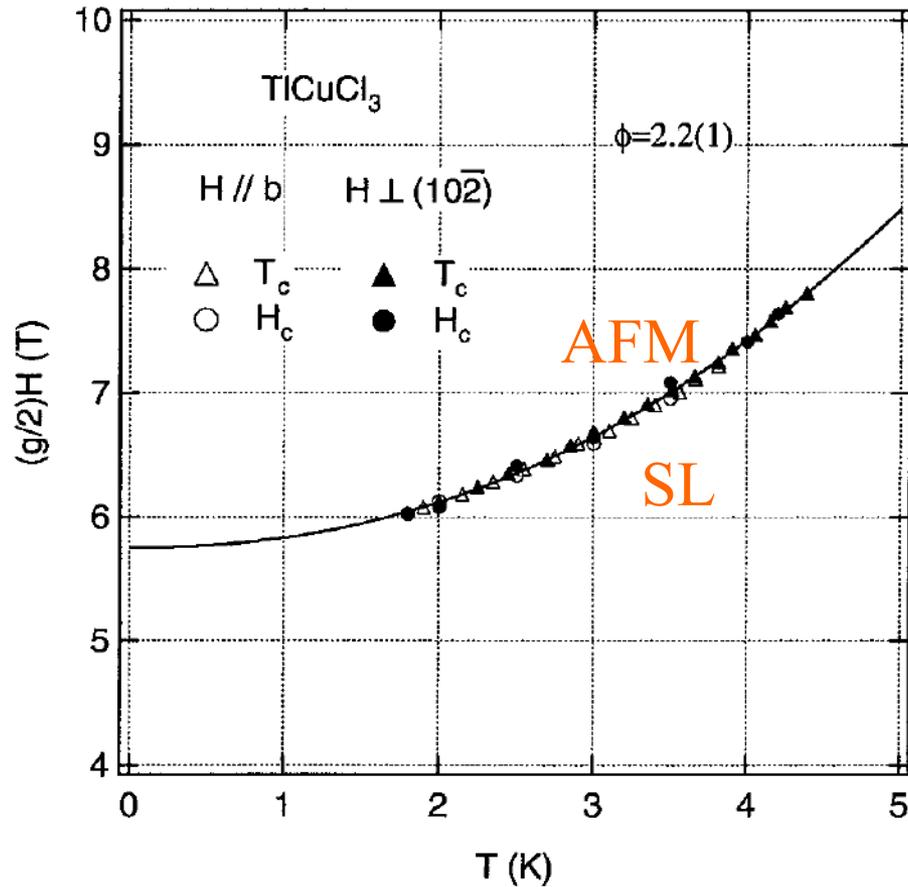
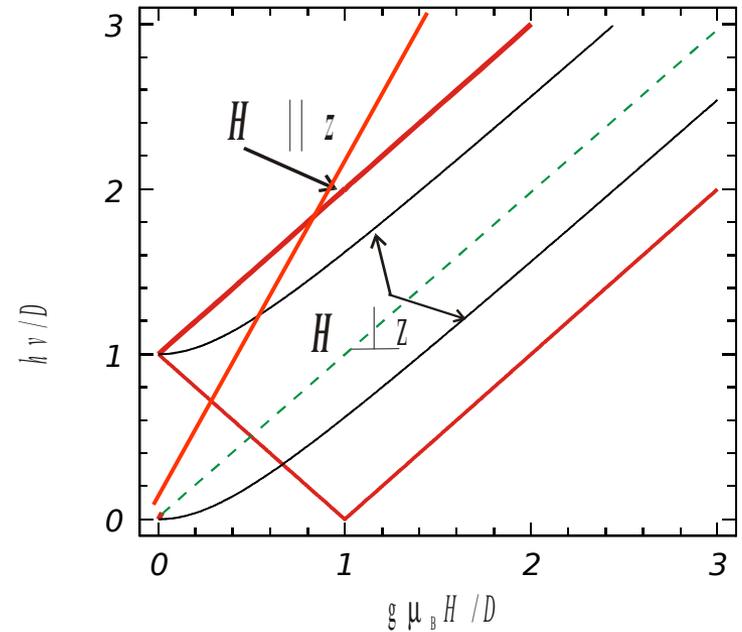
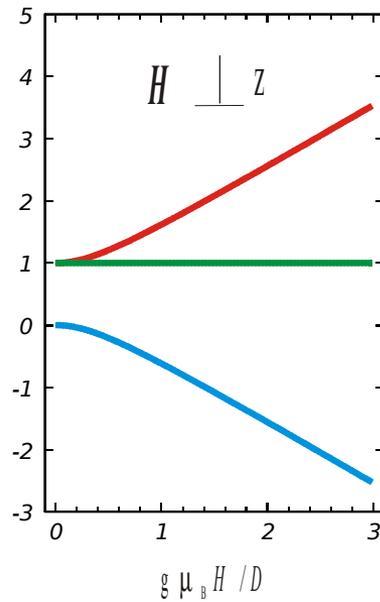
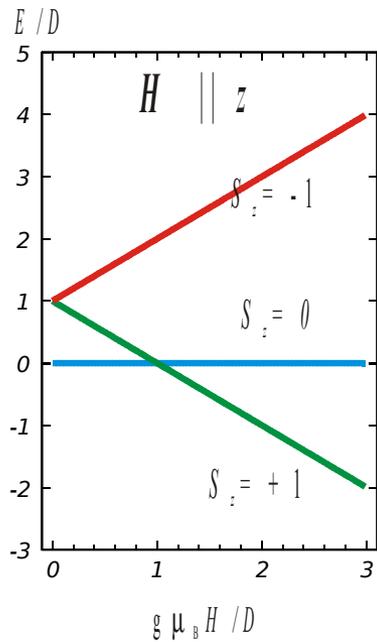


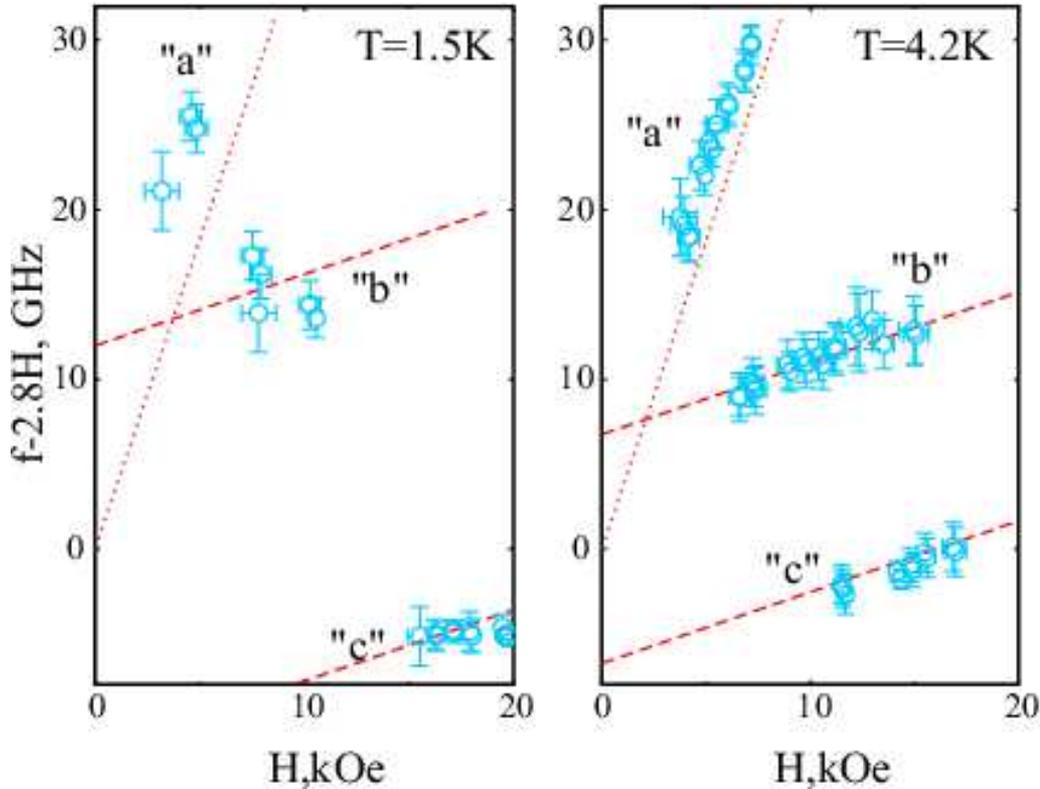
FIG. 1. The phase diagram in  $\text{TlCuCl}_3$ . The solid line denotes the fitting with the formula  $(g/2)[H_c(T) - H_c(0)] \propto T^\phi$  with  $(g/2)H_c(0) = 5.61$  T and  $\phi = 2.2$ .

Spin sublevels and transition frequencies for spin  $S = 1$   
in an axial crystal field

$$H = D (S^z)^2 + g \mu_B H S$$



# TCuCl<sub>3</sub>: магнитный резонанс термоактивированных триплетов



$$S_{\text{eff}} = 1 \text{ !!!!!}$$

$$H = DS_z^2 + E(S_x^2 - S_y^2) + g\mu_B \mathbf{S}H$$

$$D, E \ll g\mu_B H$$

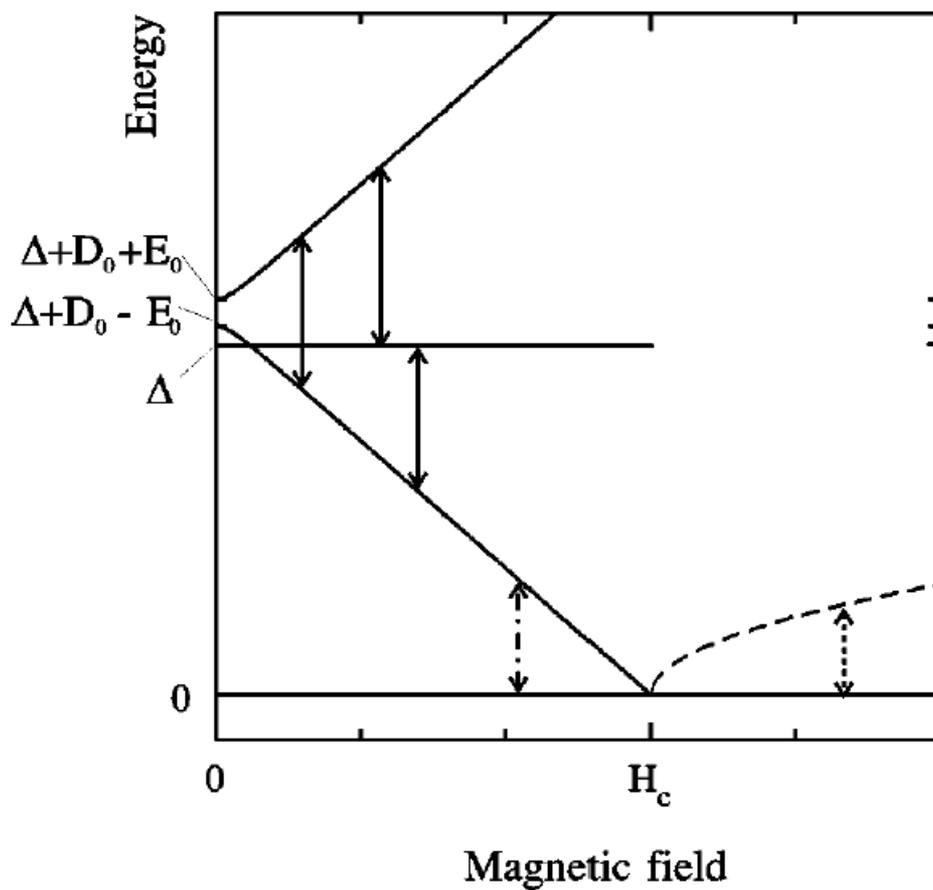
$$f_a = 2 g\mu_B H$$
~~$$f_{b,c} = g\mu_B H \pm \Lambda$$~~

$$D = 8.0 \pm 0.7 \text{ ГГц}$$

$$E = 5.8 \pm 0.6 \text{ ГГц}$$

TlCuCl<sub>3</sub>

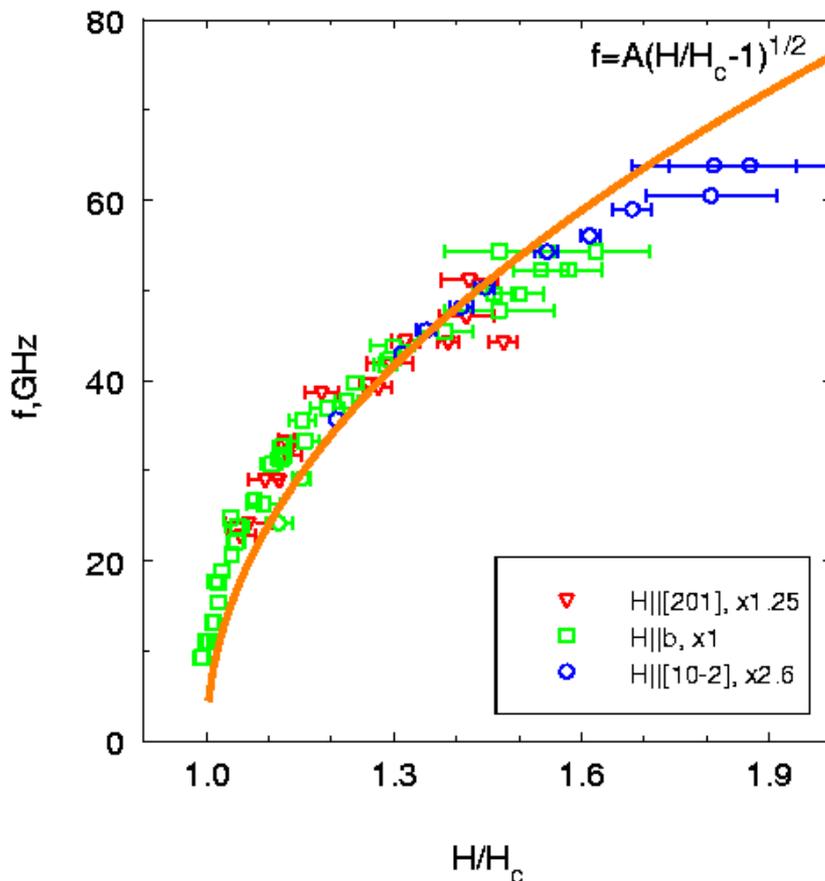
Наблюдаемые переходы  
между коллективными  
квантовыми состояниями



$$\underline{\Delta} = 156 \text{ GHz} = 7.5 \text{ K}$$

$$D_0 = 8.0 \text{ GHz}$$

$$E_0 = 5.8 \text{ GHz}$$



V.Glazkov et al PRB 2004

Параметр порядка индуцирован полем и не насыщен. Теории такого АФМР не было. (Возможны продольные моды)

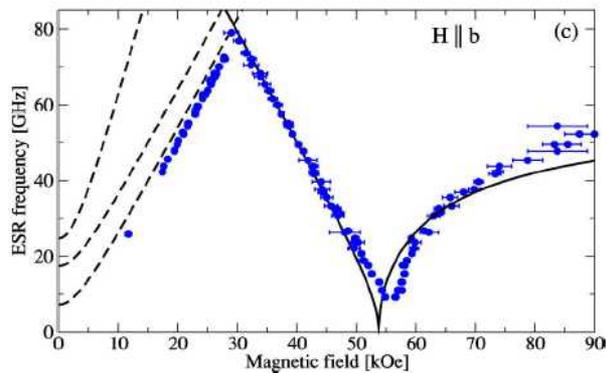
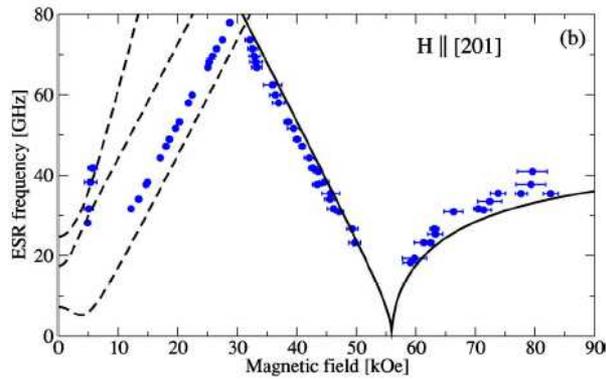
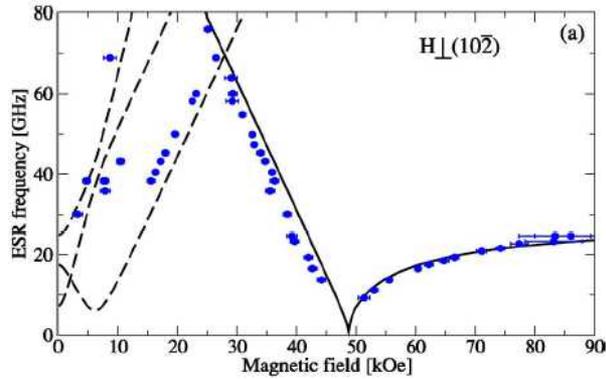
АФМР-прецессия параметра порядка. При  $H > H_{sf}$  спектр АФМР 2-подрешеточного АФМ:

$$f_1 = [(\gamma H)^2 \pm const_1]^{1/2}$$

$$f_2 = const_2$$

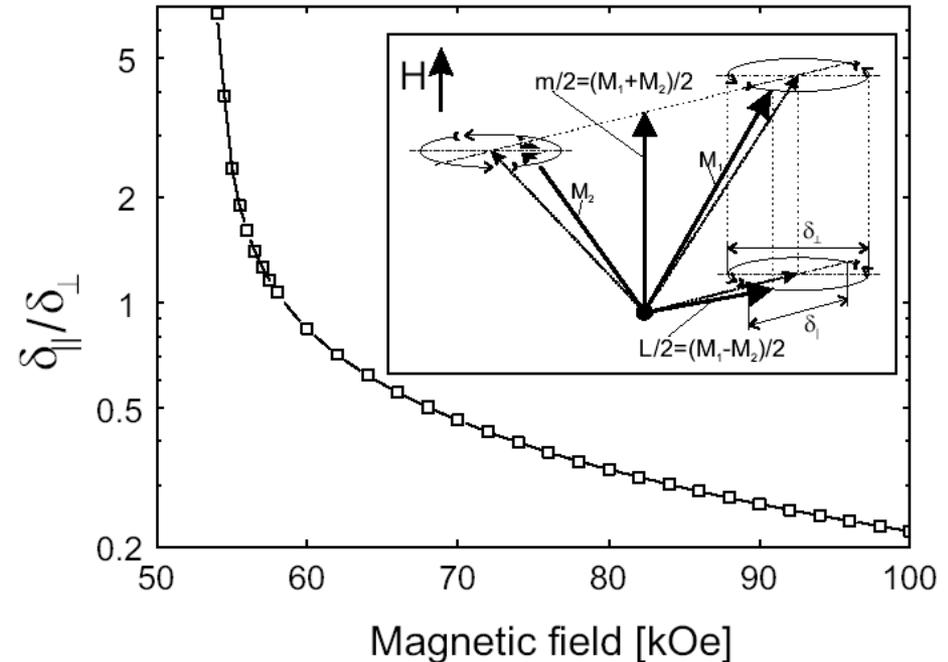
$$const_{1,2} = (H_{A1,2} H_E)^{1/2}$$

$const$  пропорциональна параметру порядка, который зависит от поля.



### III. THE EFFECTIVE MODEL

The dynamics of a  $3d$  coupled anisotropic  $S=1/2$  dimer system in a wide range of fields can be described within the effective field theory which may be viewed as a continuum version of the bond boson approach.[9,13] It is based on introducing dimer coherent states[11]



# Динамика парамагнетиков при нулевой температуре,

Фарутин, Марченко ЖЭТФ 2006

$S = 1$ . Возбуждения системы описываются вектором в спиновом пространстве  $\boldsymbol{\eta}$ . Речь при этом может идти либо о магнитной величине, меняющей знак при изменении знака времени, тогда  $\boldsymbol{\eta}$  связан со спиновой плотностью

$$\eta_\alpha \propto \langle S_\alpha(t, \mathbf{r}) \rangle, \quad (9)$$

либо о спиновом векторе дуальной антисимметричной по спиновым индексам части спин-спиновой корреляционной функции

$$\eta_\alpha \propto e_{\alpha\beta\gamma} \langle S_\beta(t, \mathbf{r}_1) S_\gamma(t, \mathbf{r}_2) \rangle, \quad (10)$$

инвариантной относительно изменения знака времени.

Плотность функции Лагранжа векторного поля есть

$$L = \frac{1}{2} \dot{\boldsymbol{\eta}}^2 - \frac{A}{2} \boldsymbol{\eta}^2 - \frac{G_{ij}}{2} \partial_i \boldsymbol{\eta} \partial_j \boldsymbol{\eta}. \quad (11)$$

Соответствующие уравнения спиновой динамики

$$\ddot{\boldsymbol{\eta}} + A\boldsymbol{\eta} - G_{ij} \partial_i \partial_j \boldsymbol{\eta} = 0, \quad (12)$$

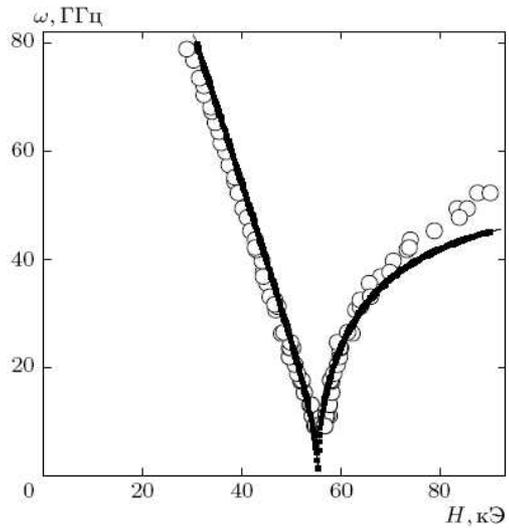


Рис. 5. Поведение низкочастотной ветви магнитного резонанса в  $\text{TiCuCl}_3$  в окрестности критического магнитного поля  $\mathbf{H} \parallel C_2$

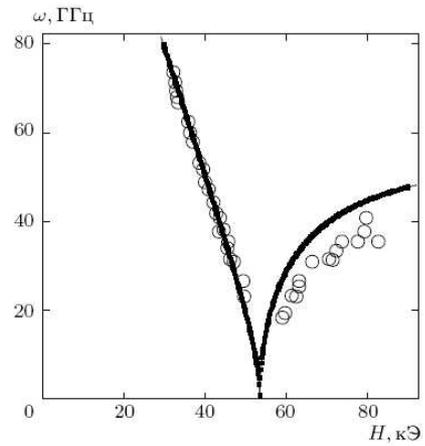


Рис. 6. Поведение низкочастотной ветви магнитного резонанса в  $\text{TiCuCl}_3$  в окрестности критического магнитного поля  $\mathbf{H} \parallel [201]$

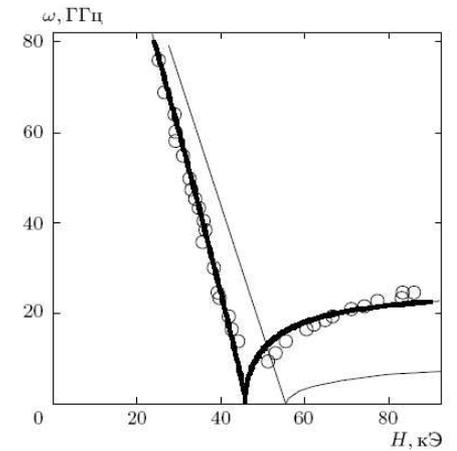
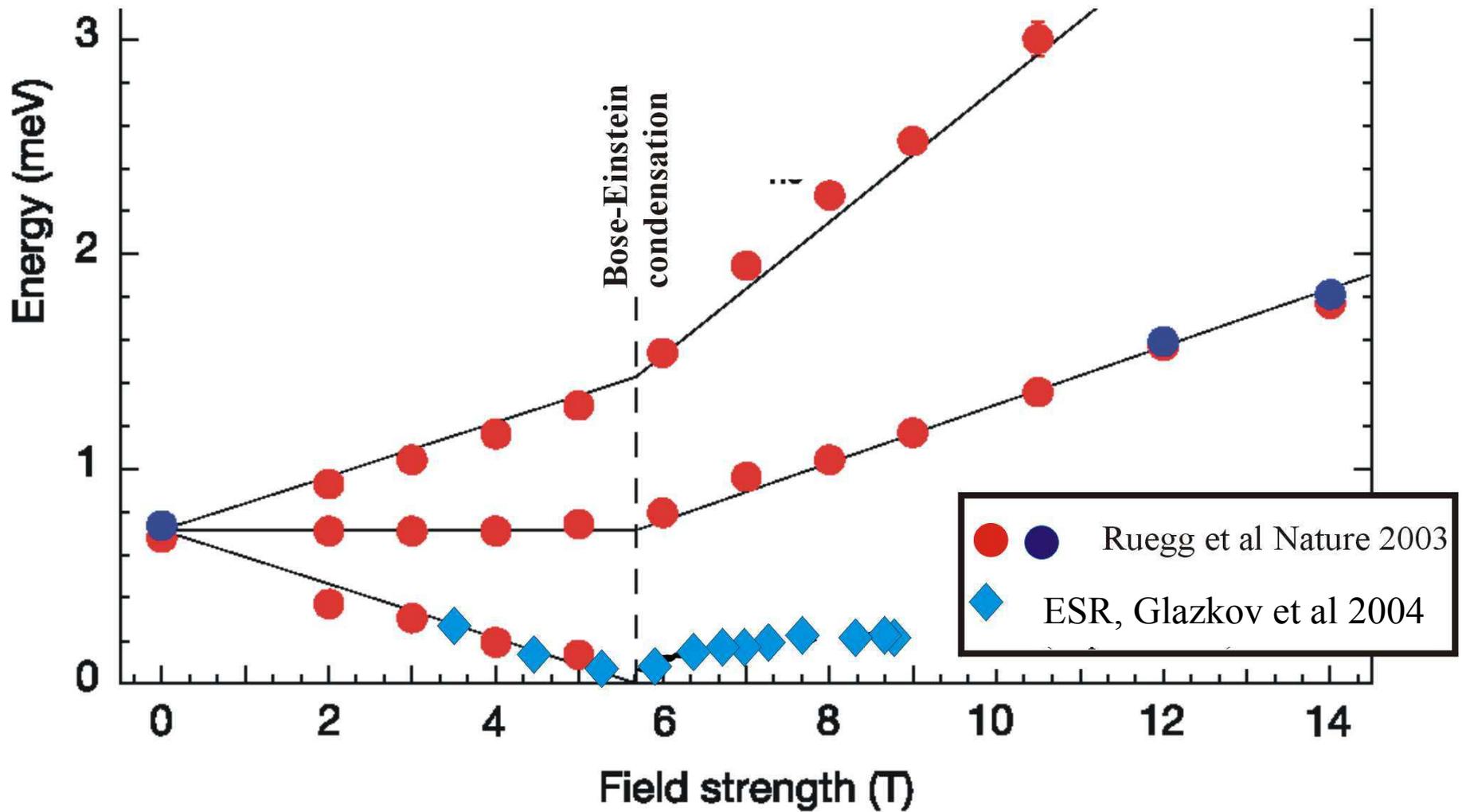


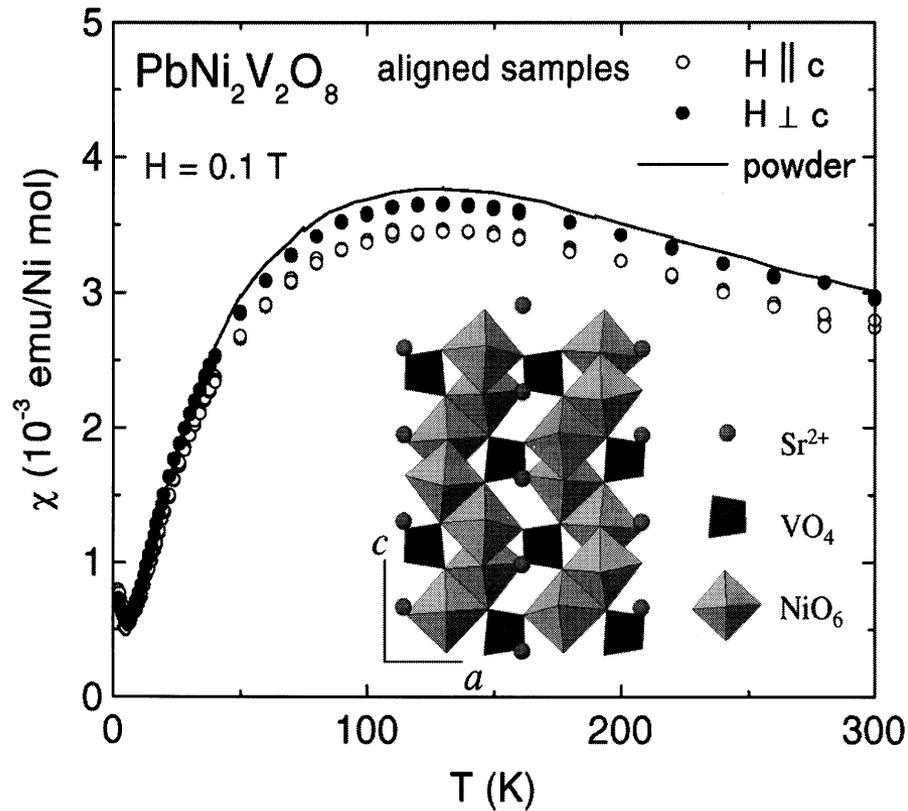
Рис. 7. Поведение низкочастотной ветви магнитного резонанса в  $\text{TiCuCl}_3$  в окрестности критического магнитного поля при  $\mathbf{H} \perp (10\bar{2})$ . Тонкая линия построена с учетом лишь параметров  $\beta_{xx}$ ,  $\beta_{yy}$ ,  $\beta_{zz}$ , полученных из подгонки для двух других направлений магнитного поля

Оказывается, что поведение частоты при направ-

# Сравнение с данными по рассеянию нейтронов



# PbNi<sub>2</sub>V<sub>2</sub>O<sub>8</sub>: Haldane-like magnet with interchain coupling



TSUJII *et al.*

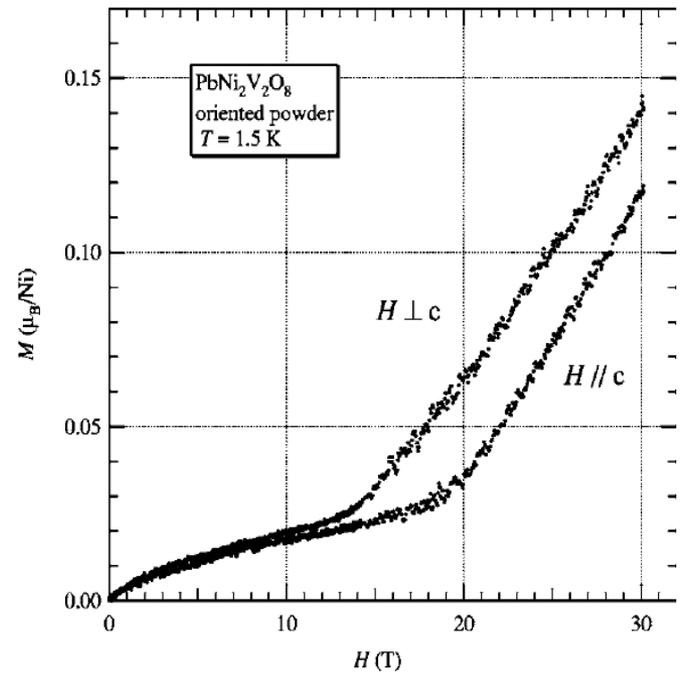
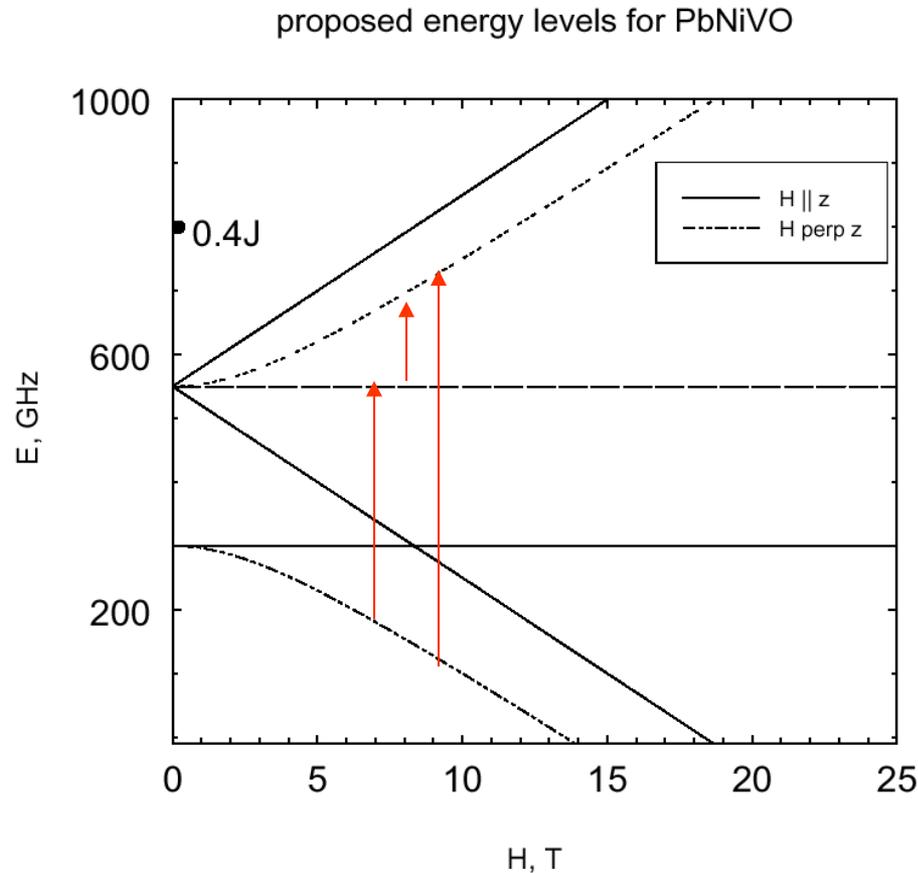


FIG. 1. Field dependence of the magnetization of the  $\text{PbNi}_2\text{V}_2\text{O}_8$  powder samples.

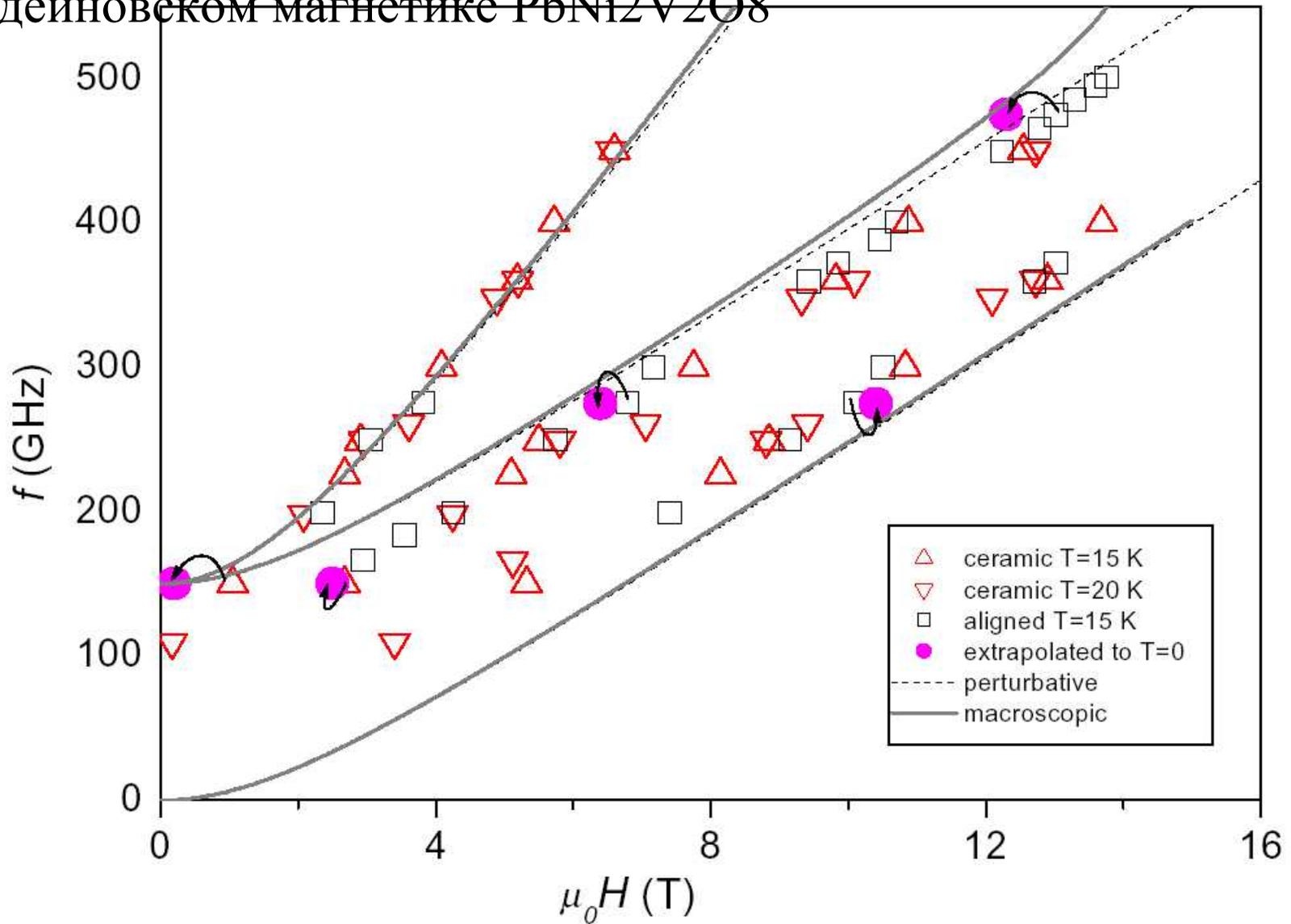
Переходы между расщепленными кристаллическим и магнитным полем подуровнями триплетов можно исследовать методами магнитного резонанса, так как изменение волнового вектора равно нулю.



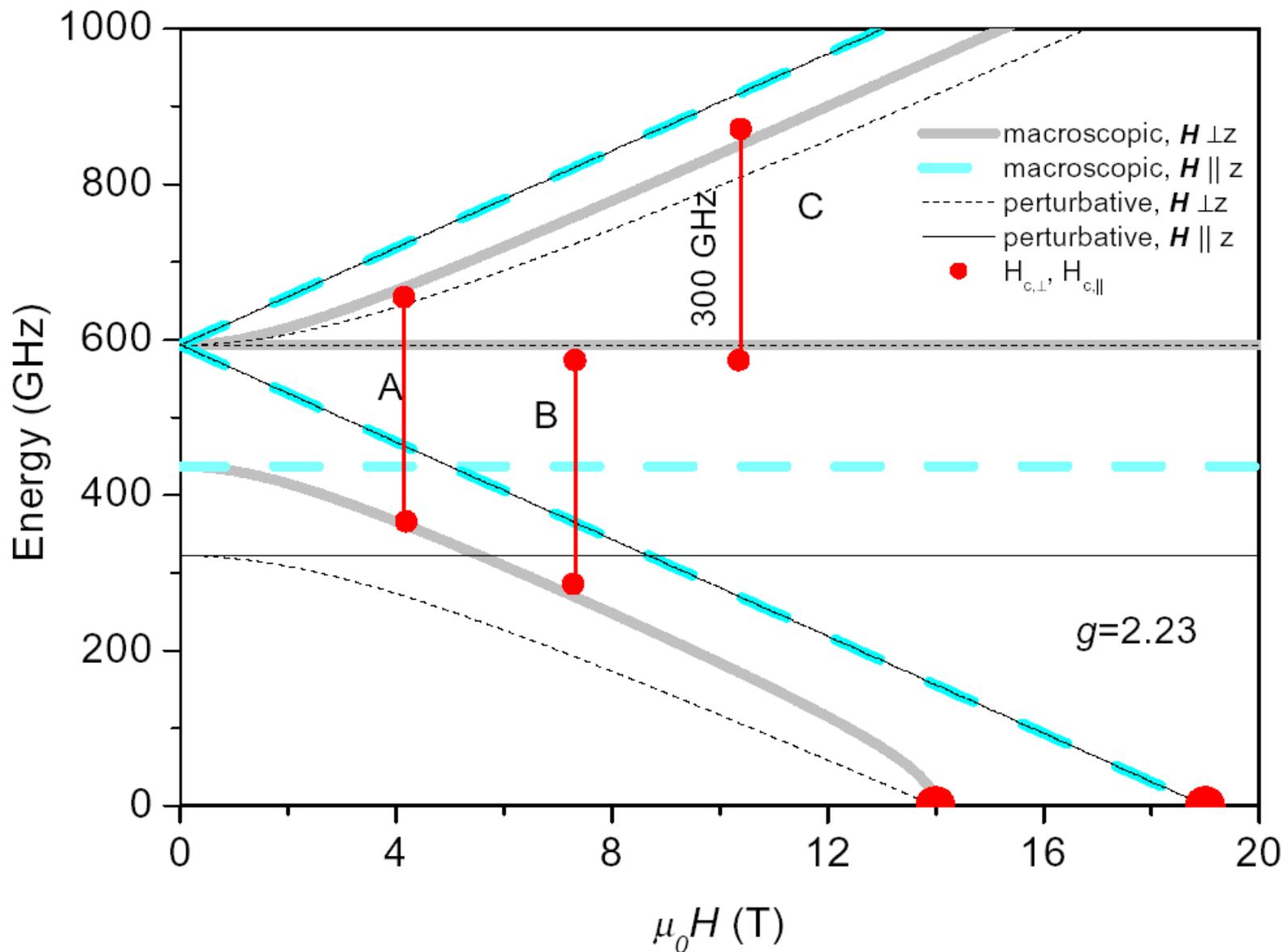
$$D_{\text{eff}} = 250 \text{ GHz}$$

We studied the proposed energy spectrum by ESR, searching for  
The transitions marked by arrows

# Частотно-полевые зависимости термоактивированных резонансов халдейновского магнетика $\text{PbNi}_2\text{V}_2\text{O}_8$

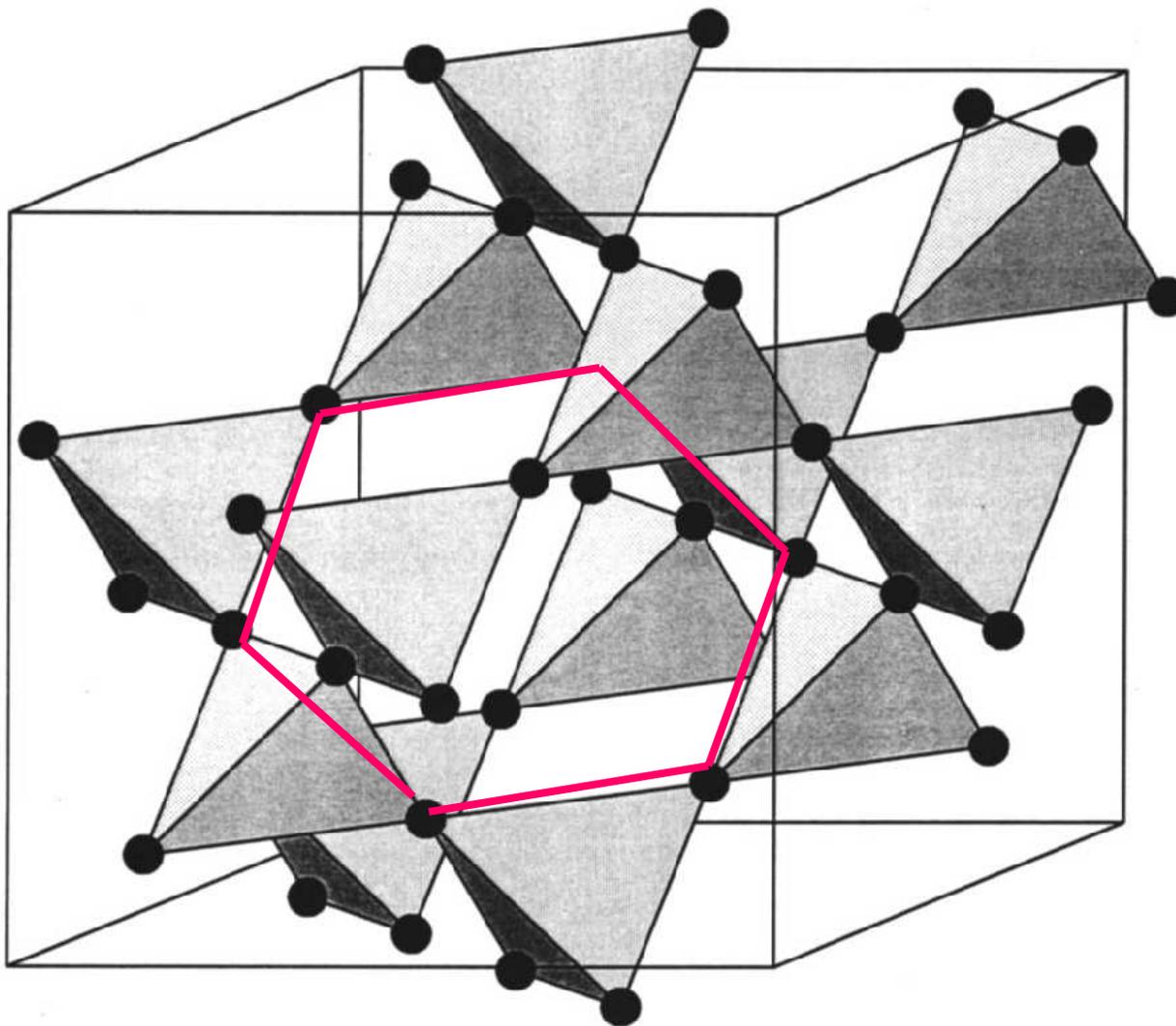


# Энергетические уровни без подгоночных параметров



# Спин-жидкостные состояния во фрустрированных магнетиках

Сильно фрустрированная решетка пироксенов

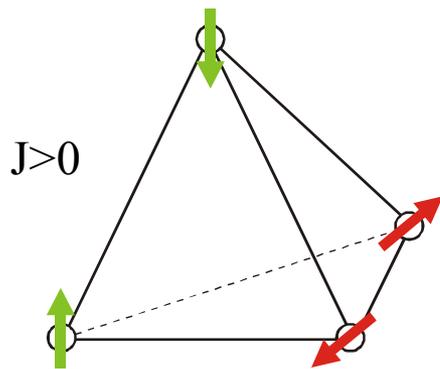


Heisenberg systems:

$\text{Gd}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ ,  $\text{Gd}_2\text{Sn}_2\text{O}_7$

$\text{Gd}^{3+}$

$S=7/2$   $L=0$

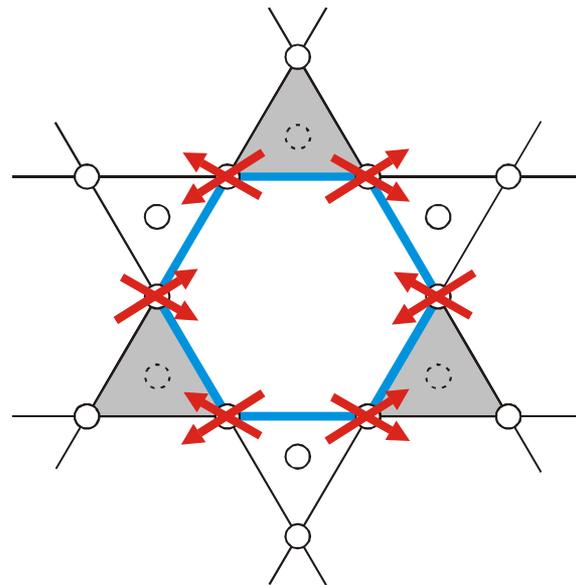


$J > 0$

$$\hat{S} = \sum_i \hat{S}_i$$

$$\mathcal{H} = 2 \sum_{\langle i,j \rangle} J_{ij} \hat{S}_i \hat{S}_j = J \hat{S}^2 - const$$

Minimum energy at  $S=0$

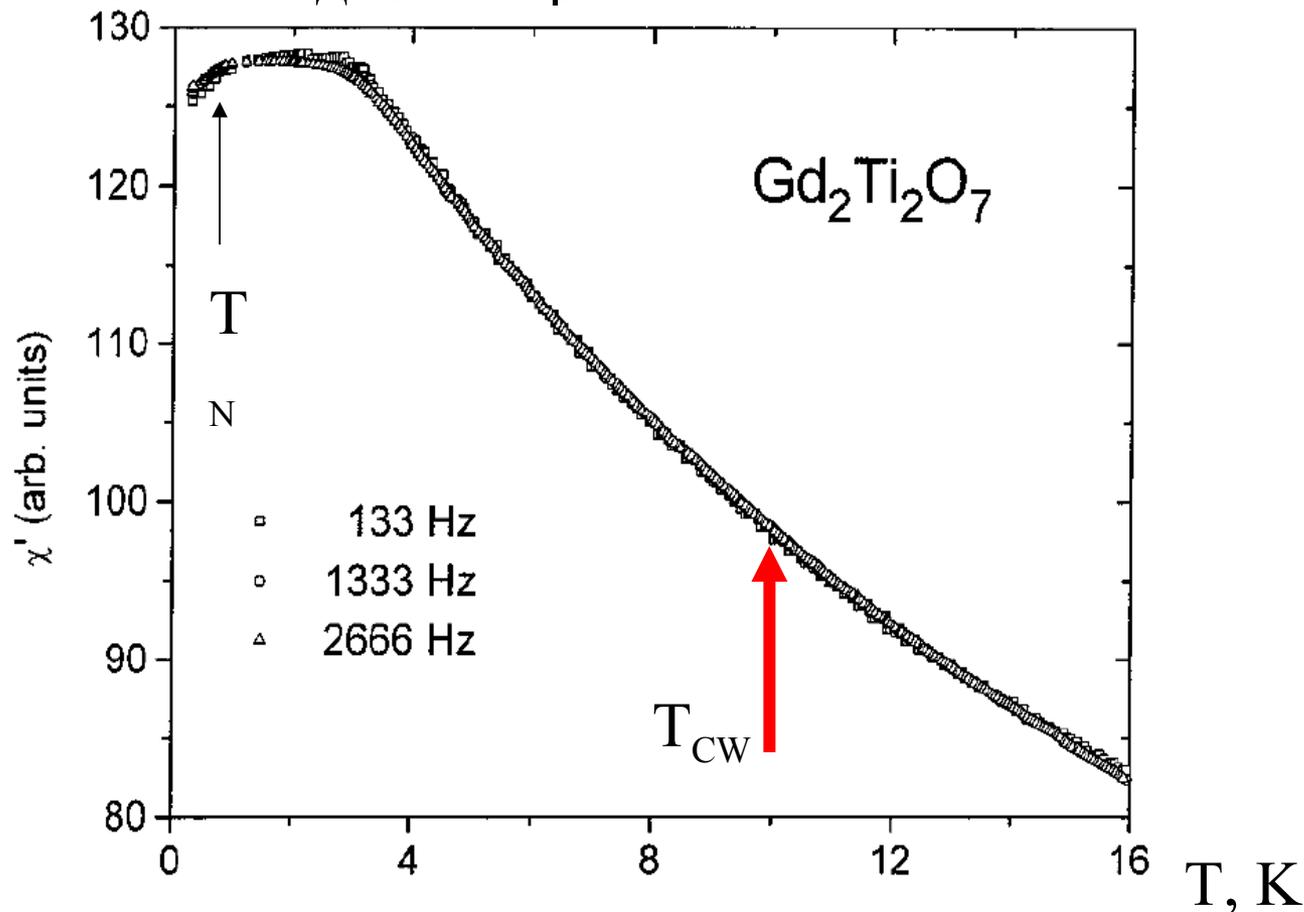


**Сильная фрустрация** – бесконечное вырождение основного состояния Дальний порядок невозможен из-за флуктуаций между вырожденными состояниями.

Макроскопически сильное вырождение основного состояния

Отсутствие упорядочения до очень низких температур  $T \ll T_{CW}$

Фрустрированный магнетик:  
Спиновая жидкость при  $T \rightarrow 0$



Raju et al PRB 1999

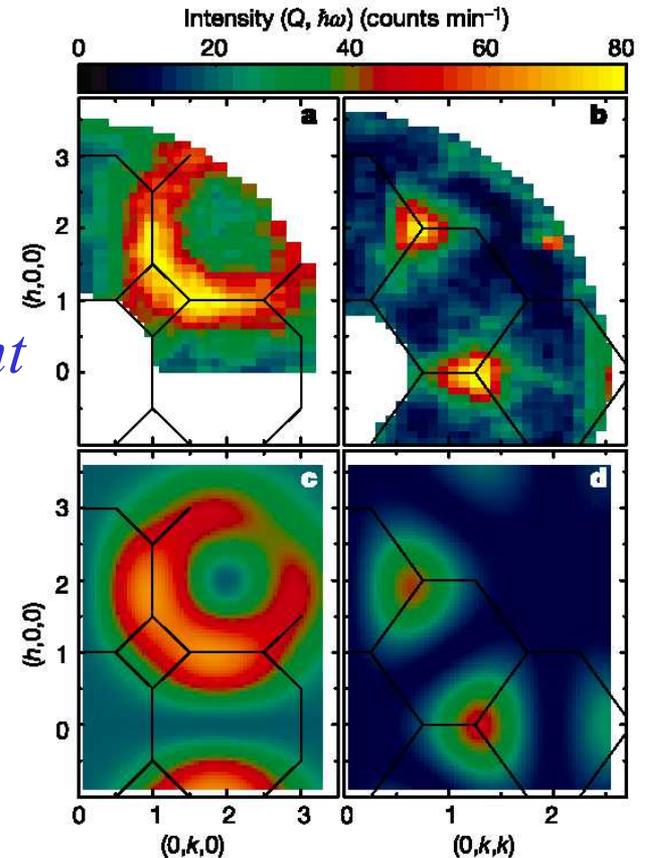
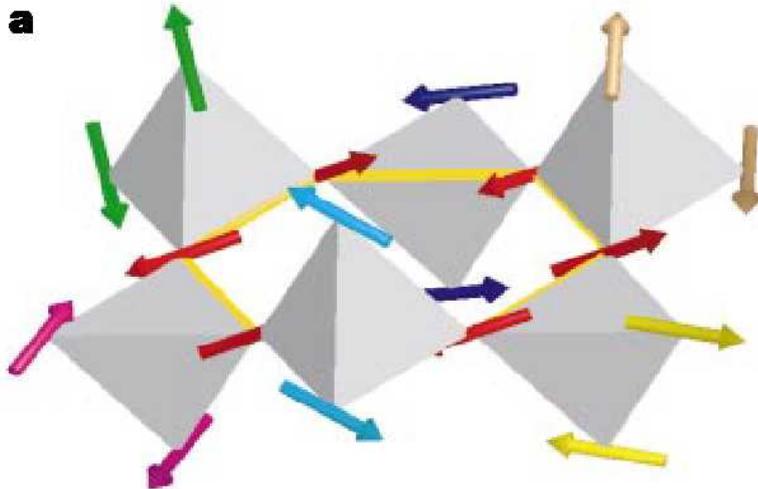
Если упорядочение происходит при низкой температуре, то только благодаря слабым взаимодействиям типа диполь-дипольного, кристаллической анизотропии или эффектам наведения порядка флуктуациями (порядок через беспорядок)

# Hexagon clusters observed in neutron scattering for spinel compound $\text{ZnCr}_2\text{O}_4$

*S.H.Lee et. al Nature 2002*

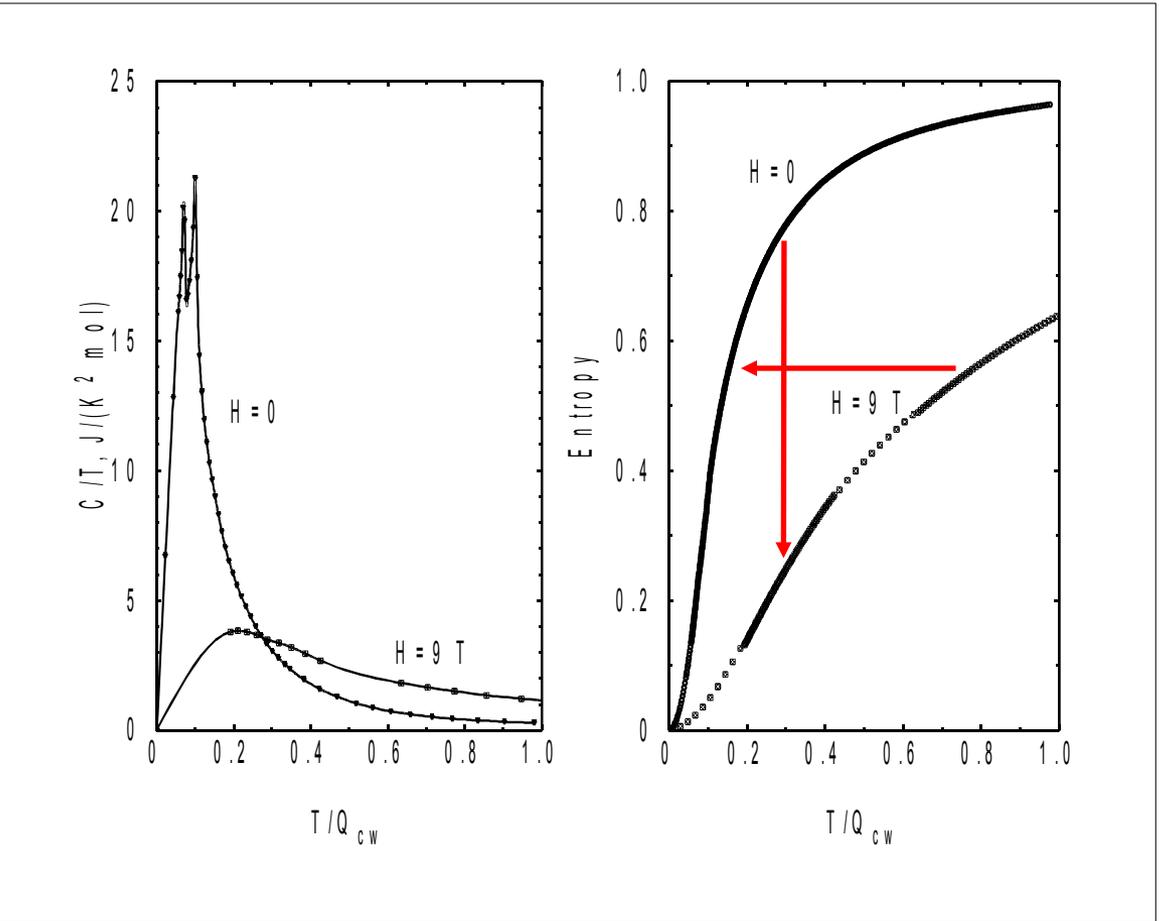
*experiment*

*theory*



**Figure 3** Wavevector dependence of the inelastic neutron scattering cross-section for  $\text{ZnCr}_2\text{O}_4$ . **a,b**, Colour images of inelastic neutron scattering intensities from single crystal of  $\text{ZnCr}_2\text{O}_4$  in the  $(hk0)$  and  $(hkk)$  symmetry planes obtained at  $T = 15$  K for  $\hbar\omega = 1$  meV. The data are a measure of the dynamic form factor for self-organized nanometre-scale spin clusters in the material. **c,d**, Colour images of the form factor squared calculated for antiferromagnetic hexagon spin loops averaged over the four hexagon orientations in the spinel lattice. The excellent agreement between model and data identifies the spin clusters as hexagonal spin loops.

# Теплоемкость и энтропия в магнитном поле – указание на существование мягких мод, связанных с сильным вырождением



$\Theta_{cw} = 10 \text{ K};$   
 $T_{N1} = 1.0 \text{ K}; T_{N2} = 0.7 \text{ K};$   
 $H_{sat} \approx 7.0 \text{ T}$

Ordering is supposedly driven by dipole-dipole interactions

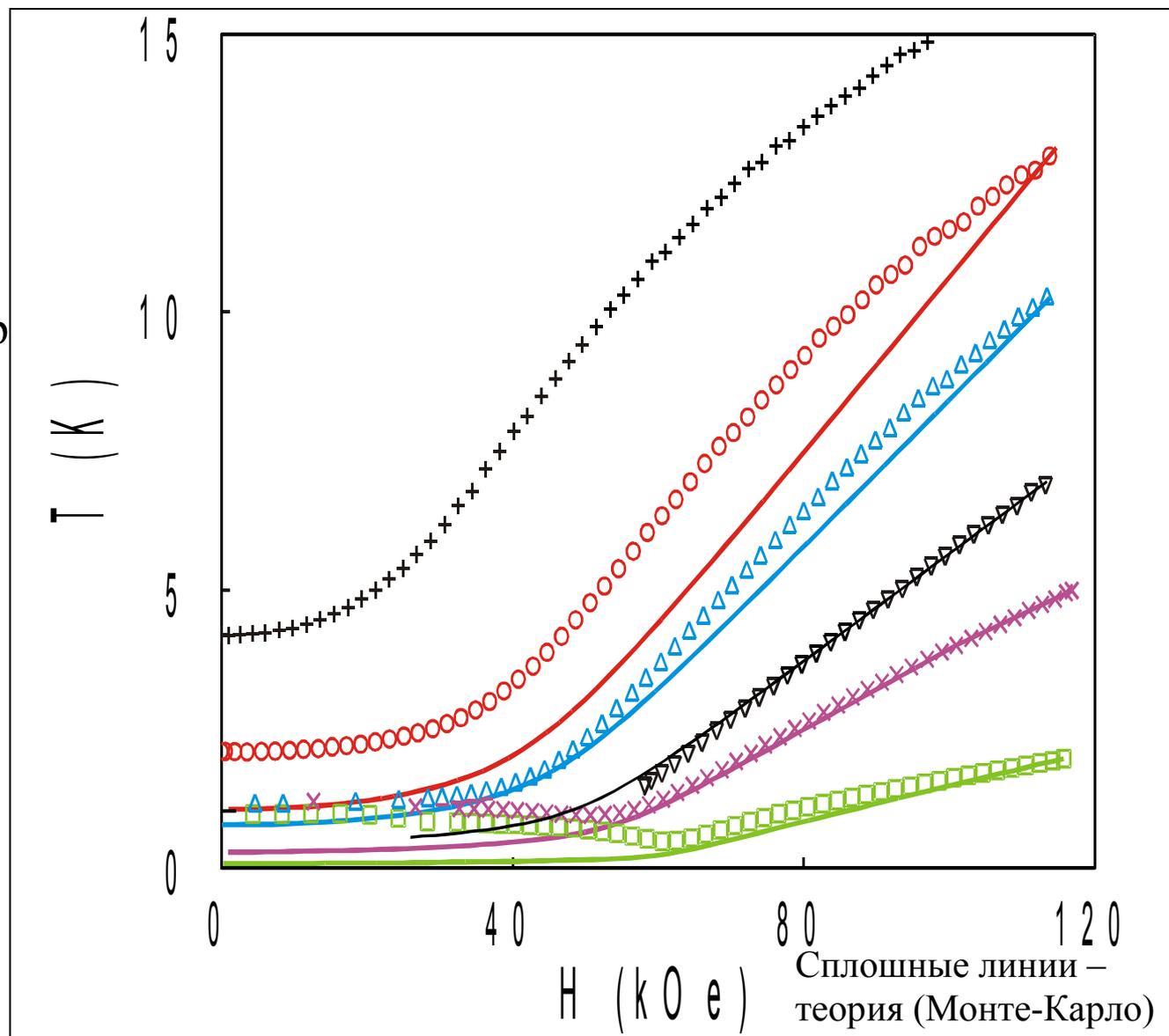
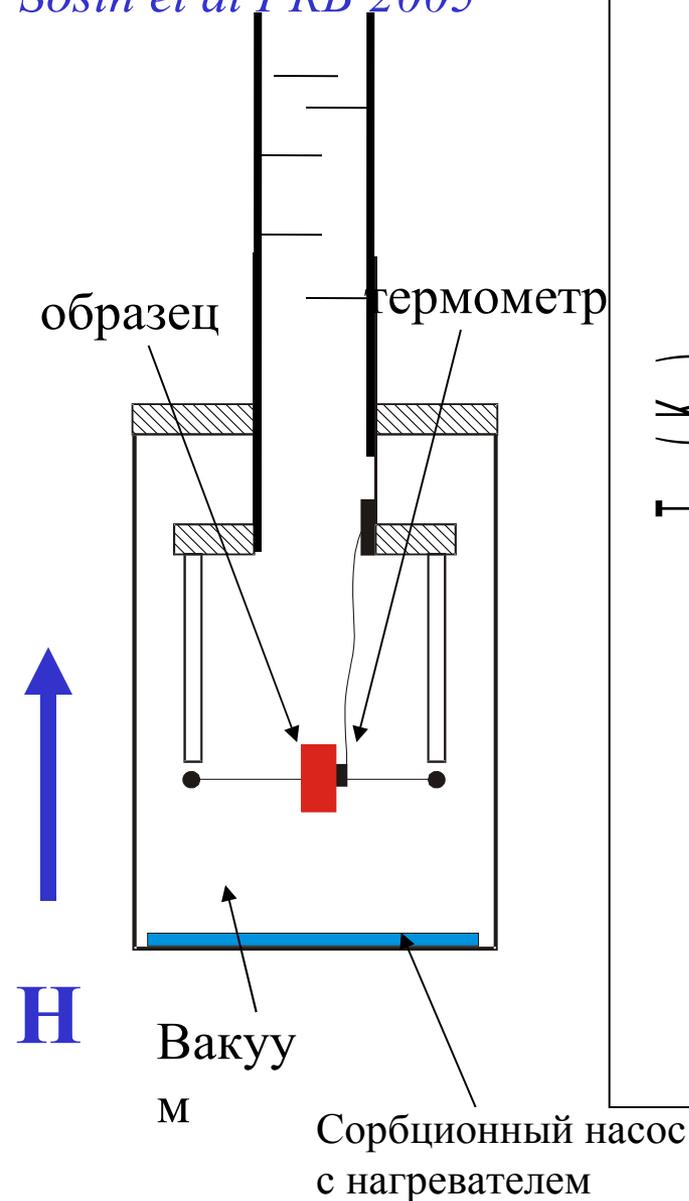
# Изучение вырожденных мод в эксперименте по адиабатическому размагничиванию



# Изучение вырожденных мод в эксперименте по адиабатическому размагничиванию

размагничиванию

*Sosin et al PRB 2005*

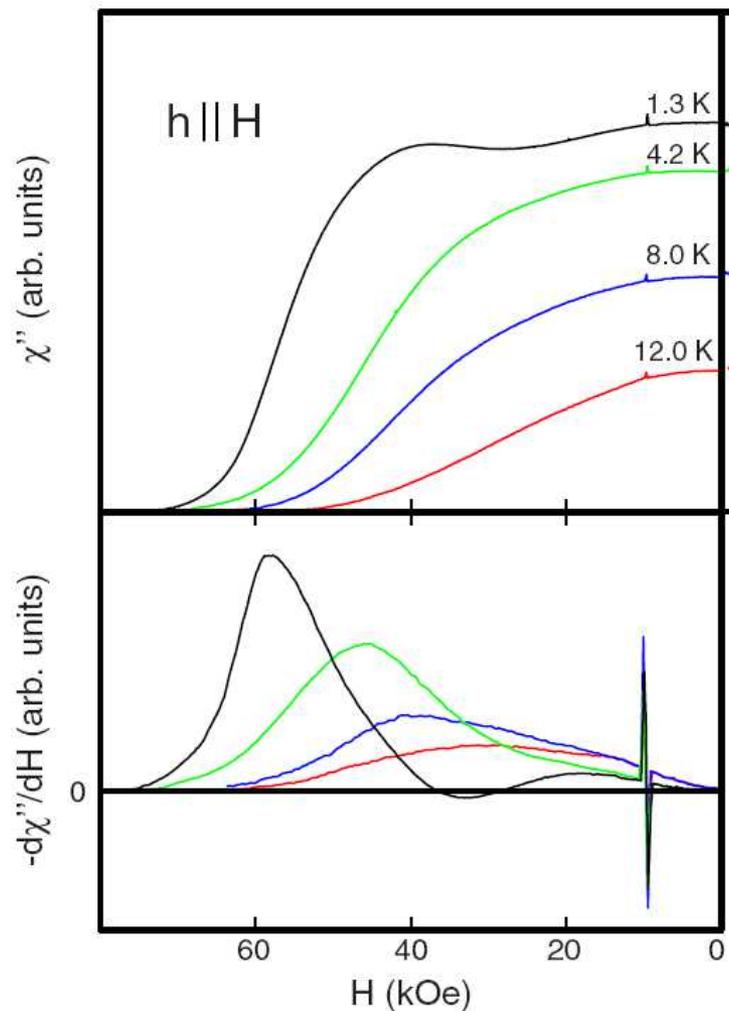


*Sosin et al PRB 2005*

**Возможное применение:  
Магнитное охлаждение**

Микроволновая спектроскопия продольной восприимчивости  $Gd_2Ti_2O_7$  при низких температурах:

Поглощение на низких частотах в полях  $0 < H < H_{sat}$



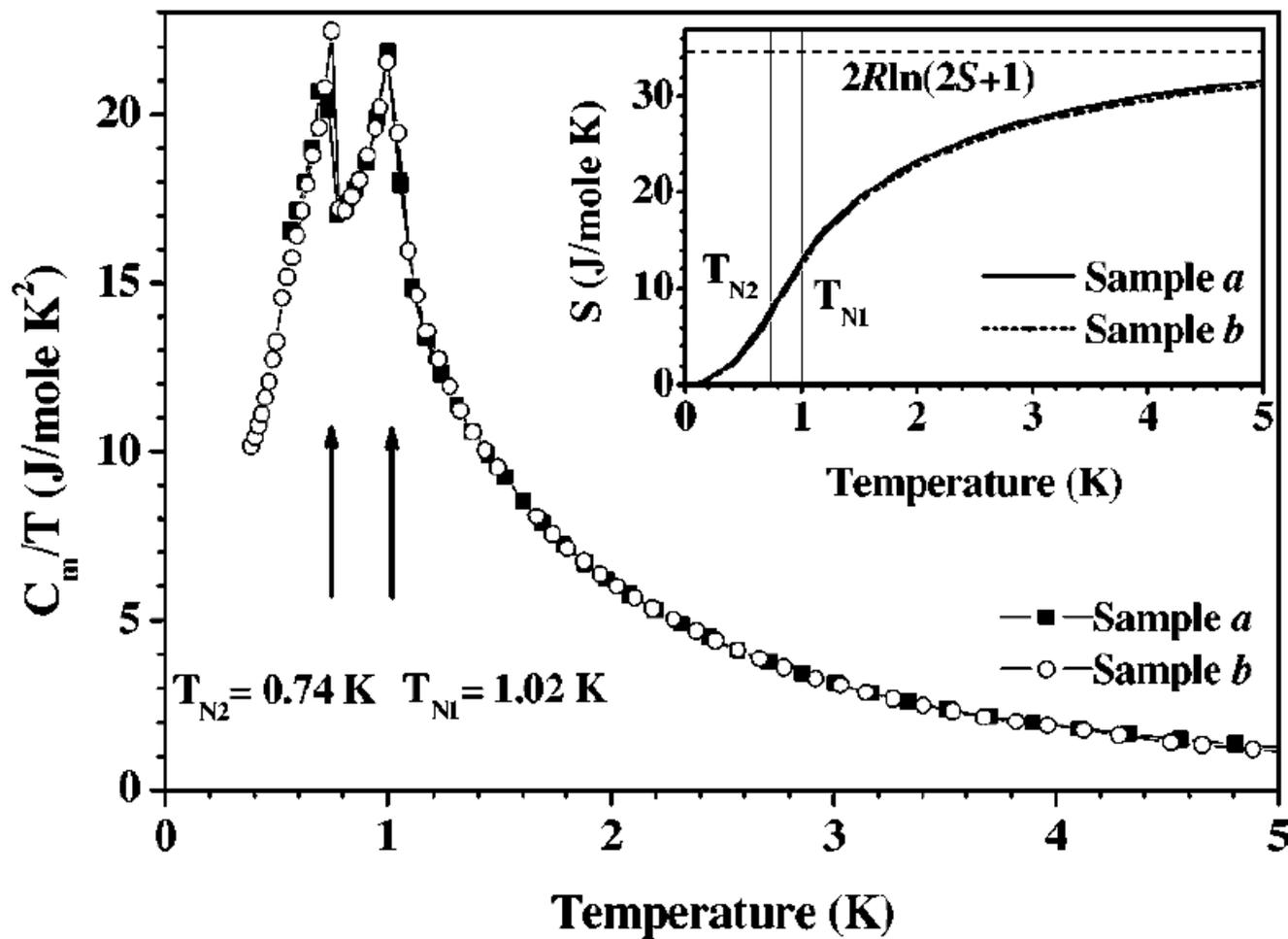
**F=27 GHz**

S Sosin et al PRB 77 104424 (2008)

The “softness” of the systems with respect to longitudinal perturbations at  $T \ll \Theta_{cw} = 10$  K points to the absence of the exchange rigidity

Упорядочение происходит при  $T=1\text{ K} \ll T_{CW}$

Gd<sub>2</sub>Ti<sub>2</sub>O<sub>7</sub> Petrenko et al PRB 2004



$T_{CW} = 10\text{ K}$

Theoretical consideration of low-temperature ordering:

1. dipole-dipole interaction
2. anisotropy

*N. P. Raju et al., Phys. Rev. B 59, 14489 (1999).*

*J. D. M. Champion and P. C. W. Holdsworth, J. Phys.:Condens. Matter 16, S665 (2004).*

remove **partially** macroscopic degeneracy of the classical ground state

*Further selection of states should be due to :*

3. strong fluctuations (choosing the states with  $\mathbf{k}=0$ )

*O. C'epas, A. P. Young and B. S. Shastry, Phys. Rev. B 72, 184408 (2005).*

4. next-nearest-neighbor exchange (favors ordering at  $\mathbf{k}=1/2,1/2,1/2$ )

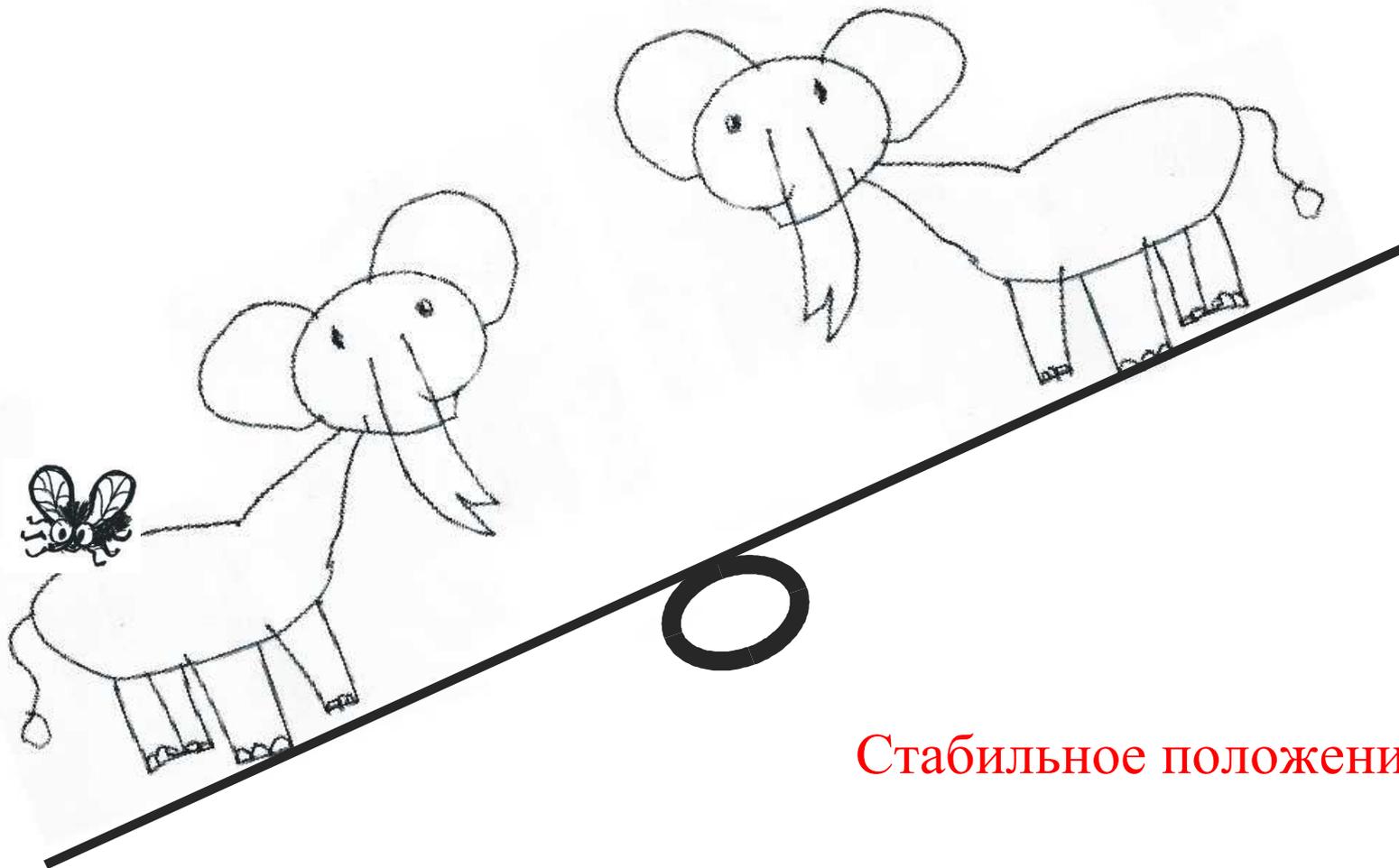
*Wills et al JPCM 2006*

Exchange interaction :  $T_{CW} \sim 10$  K,  $JS^2=3.7$  K *Raju et al., PRB 1999.*

Weak interactions :

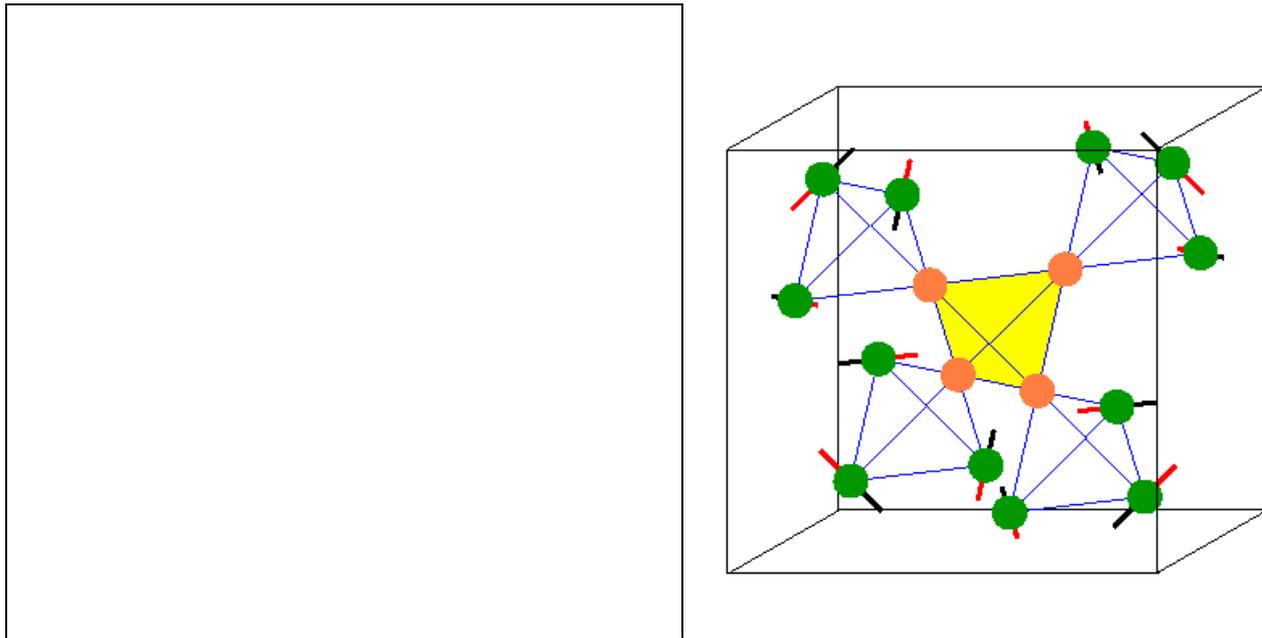
easy-plane single-ion anisotropy  $DS^2 = 2.73$  K ( *Glazkov et al PRB 2005* )

dipole-dipole energy  $E_{d-d}=0.84$  K



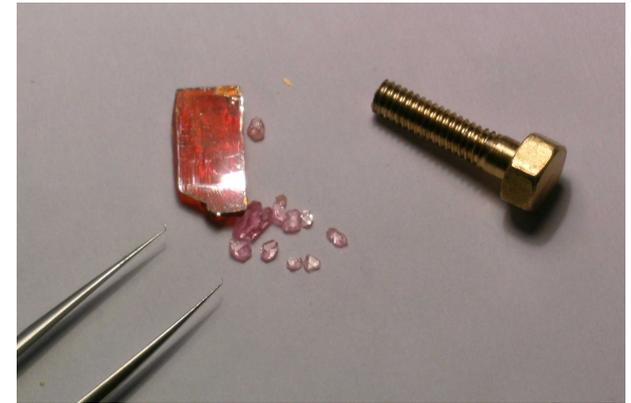
Стабильное положение

## Spin structures suggested for the ordered phase of Gd<sub>2</sub>Ti<sub>2</sub>O<sub>7</sub>



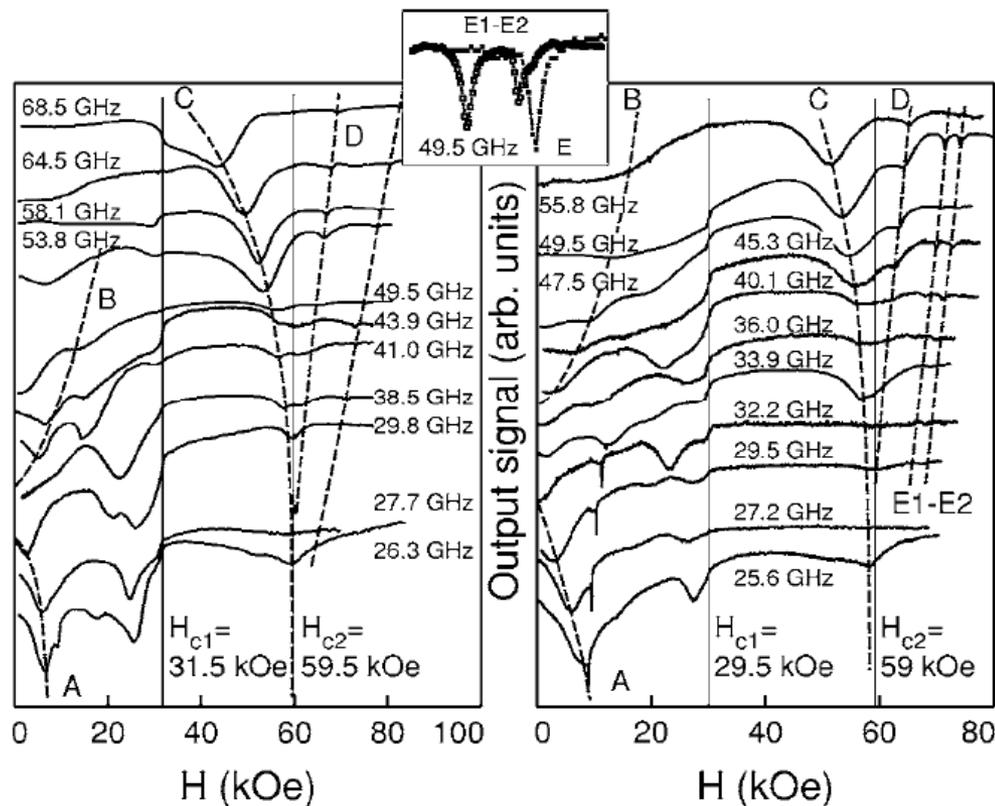
**Figure 2.** Comparison of (left) the 1- $k$  structure and (right) its 4- $k$  variant. In each structure the four Gd<sup>3+</sup> ions coloured orange are shown as carrying no thermally averaged moment. The phase transition at  $T' = 0.7$  K involves weak ordering of these four spins and a small canting of the remaining spins away from the positions shown. At  $T \ll 0.7$  K, *only* these ions carry a disordered spin component.

*Наблюдение мягких мод  
в спектроскопии магнитного резонанса*  
Диапазон частот 1-250 ГГц  
Температура 0.4 – 300 К  
Магнитное поле до 14 Т



# Наблюдение “АФМР” и мягких мод в спектроскопии магнитного резонанса

PHYSICAL REVIEW B 73, 212402 (2006)



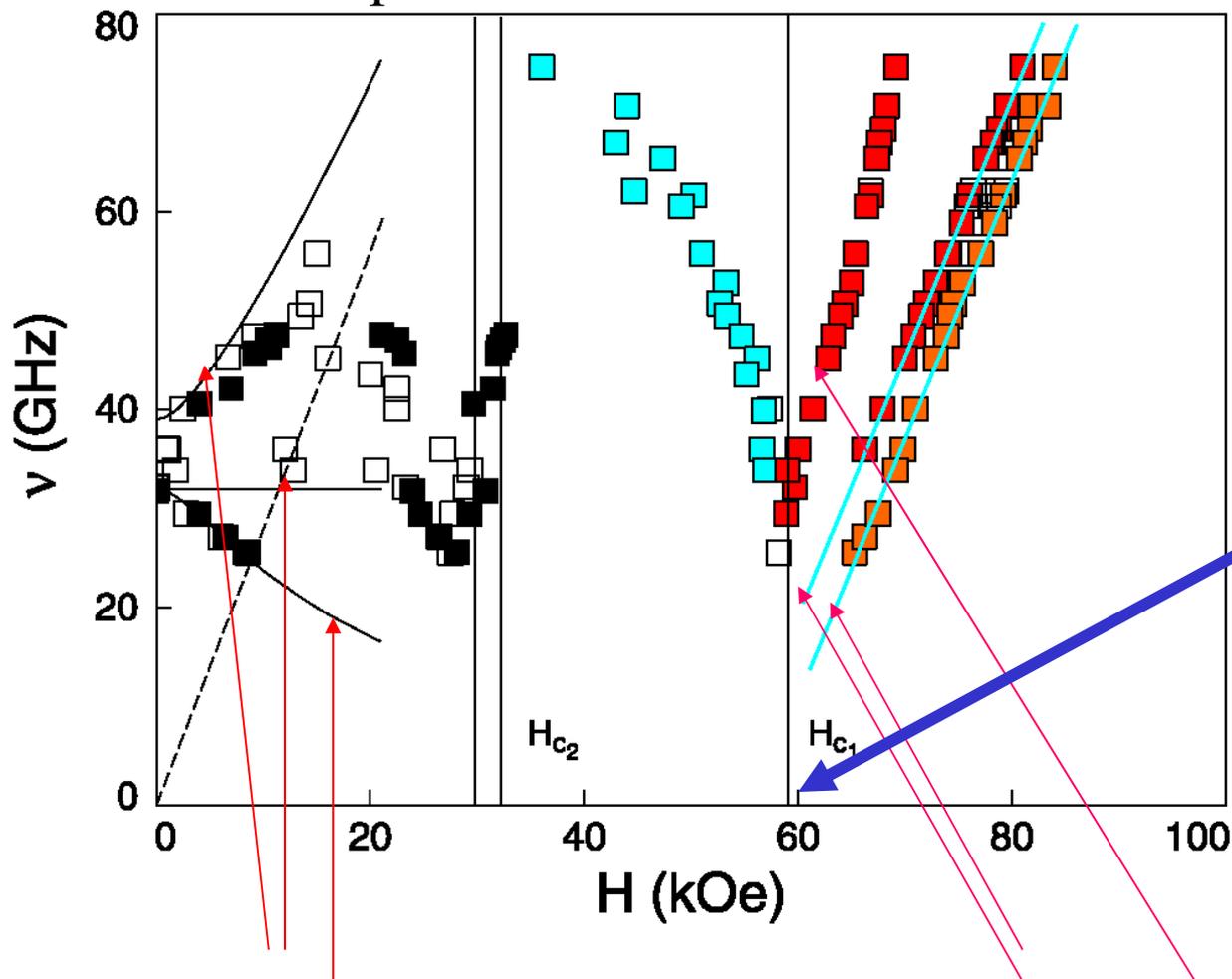
**$T=0.4$  K**

*S S Sosin et al*

FIG. 2. The absorption spectra recorded at  $T=0.42$  K at different frequencies (increasing bottom up) for  $H \parallel [111]$  (left panel) and  $H \perp [111]$  (right panel). Dashed lines are guides to the eye to trace

# Наблюдение “АФМР” и мягких мод в спектроскопии магнитного резонанса

*Sosin et al PRB 2006*



Soft modes acquire a gap in the saturation field

Macroscopic theory of AFMR of A noncomplanar AFM,  
Consistent with 4-k structure

$$\nu_{1,2} = \tilde{\gamma}H - 8JS, \quad \nu_{3,4} = \tilde{\gamma}H - 2JS(2 \mp \sqrt{1 + 3\eta_{\mathbf{k}}}) \quad (4)$$

where  $\eta_{\mathbf{k}}$  is a certain combination of lattice harmonics

*M.Zhitomirsky PRB 2003*

# Выводы

Квантованные возбуждения со спином  $S=1$ , расщепленные кристаллическим полем в спин-жидкостных фазах.

Обращение в ноль энергетической щели и стимулированное магнитным полем антиферромагнитное упорядочение.

Низкотемпературный антиферромагнитный резонанс вблизи точки квантового фазового перехода при  $S^z \ll 1$

Адиабатическое размагничивание фрустрированного магнетика при  $T < T_{CW}$  обнаруживает вырожденные мягкие моды и макроскопическую остаточную энтропию, возможность магнитного охлаждения при низких температурах.

Наблюдение превращения мягких мод в щелевые вблизи поля насыщения

**Спасибо за внимание**

O.Petrenko,G.Balakrishnan

The University of Warwick

Л.Н.Демьянец, А.Я.Шапиро



A.V.Shubnikov  
Institute of Crystallography

Russian Academy of Sciences

M.E.Zhitomirsky

cea

DRFMC

Grenoble

*M. Hagiwara*



OSAKA UNIVERSITY

**A.Oosawa H. Tanaka**

*Department of Physics  
Faculty of Science  
Tokyo Institute of Technology*

**Спасибо ФКС 2010**

# Исследование критического поля и спектра возбуждений в халдейновском магнетике $\text{PbNi}_2\text{V}_2\text{O}_8$

TSUJII *et al.*

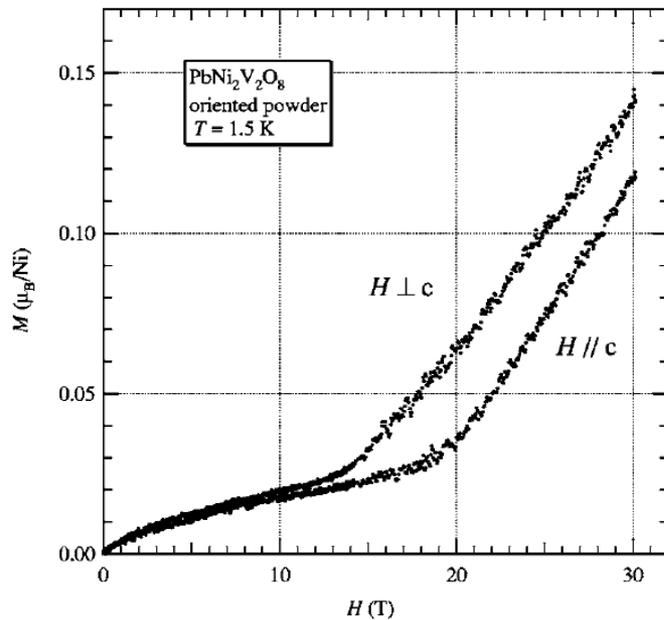
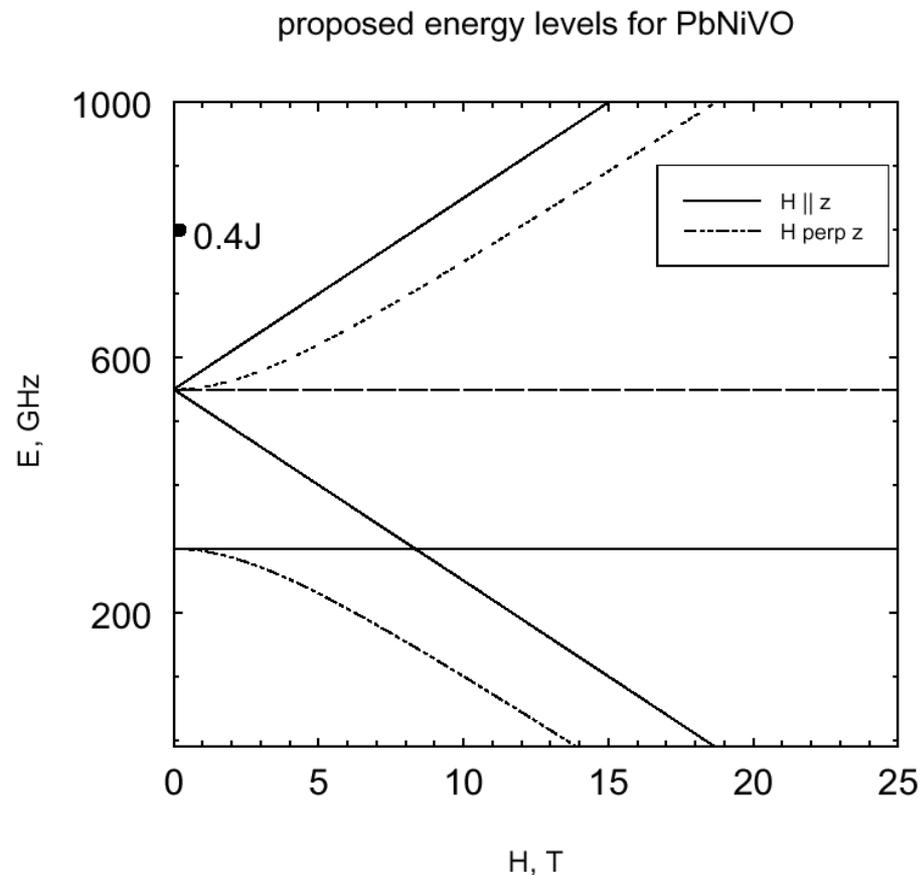
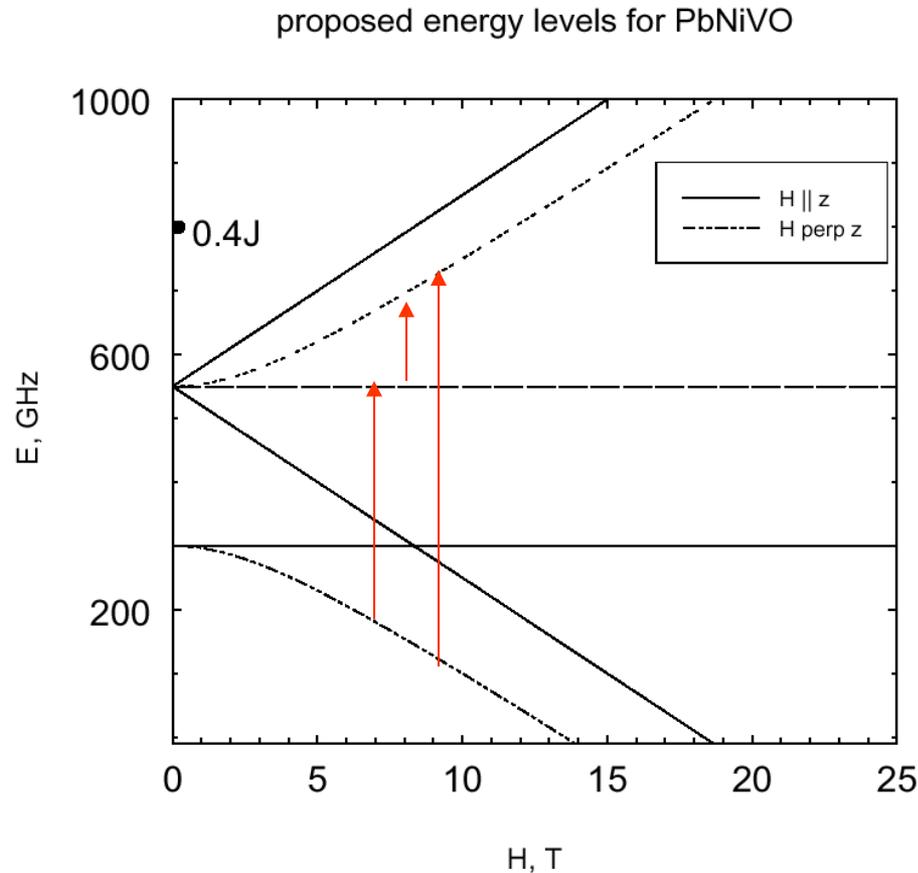


FIG. 1. Field dependence of the magnetization of the  $\text{PbNi}_2\text{V}_2\text{O}_8$  powder samples.



Calculated as for isolated  
S=1 magnetic ions in a uniaxial  
crystal field with  $g=2$

Переходы между расщепленными кристаллическим и магнитным полем подуровнями триплетов можно исследовать методами магнитного резонанса, так как изменение волнового вектора равно нулю.

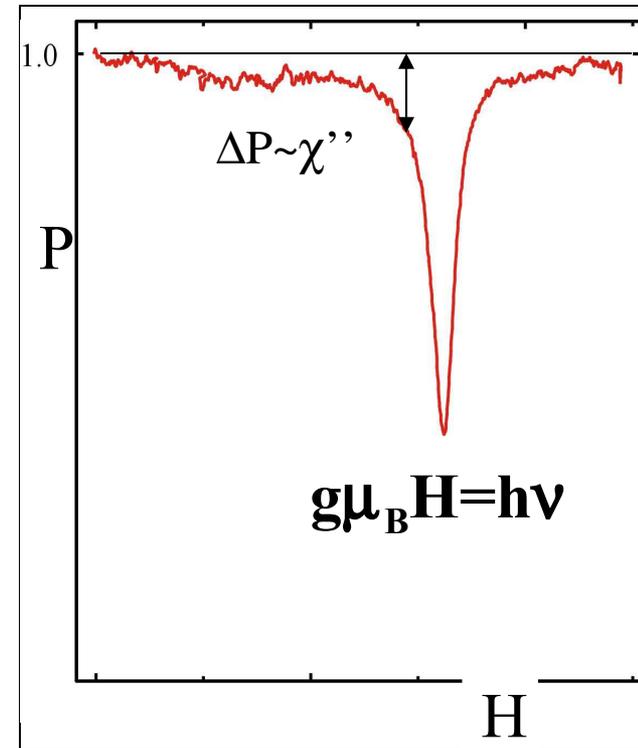
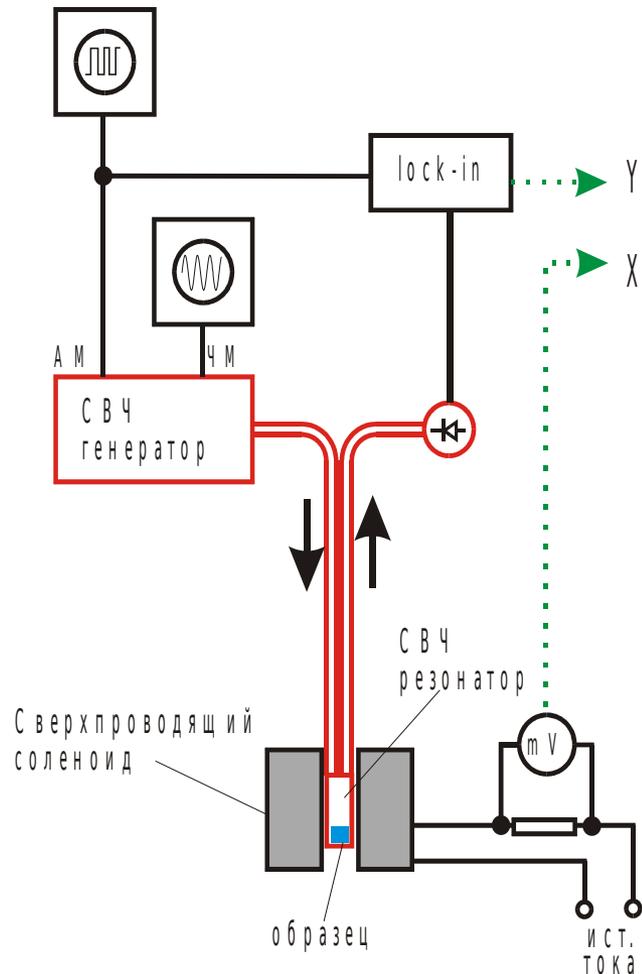


$$D_{\text{eff}} = 250 \text{ GHz}$$

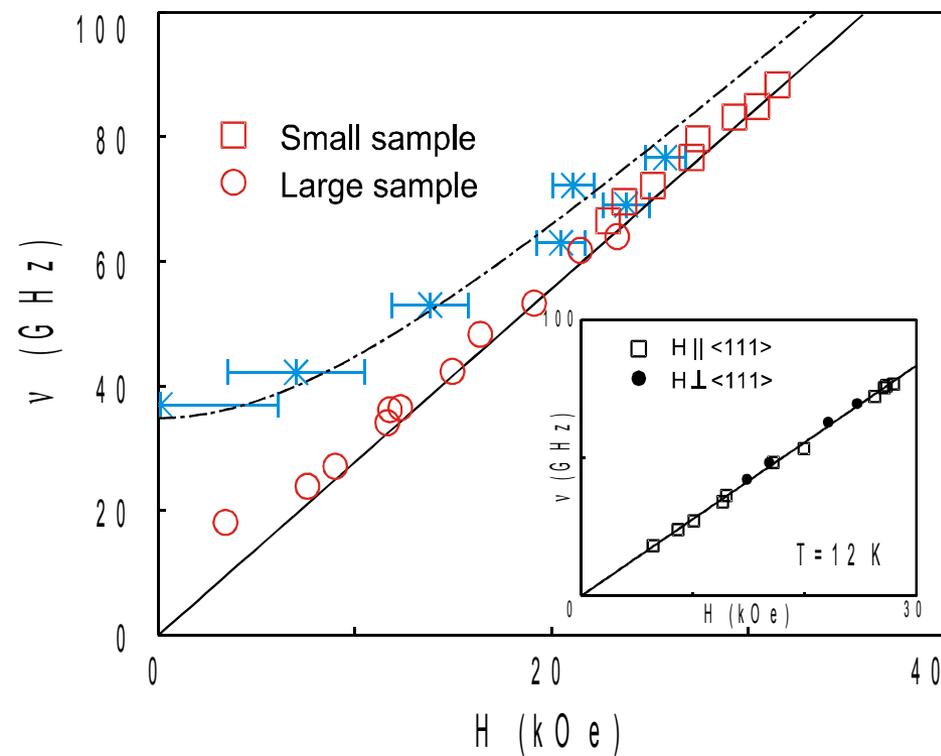
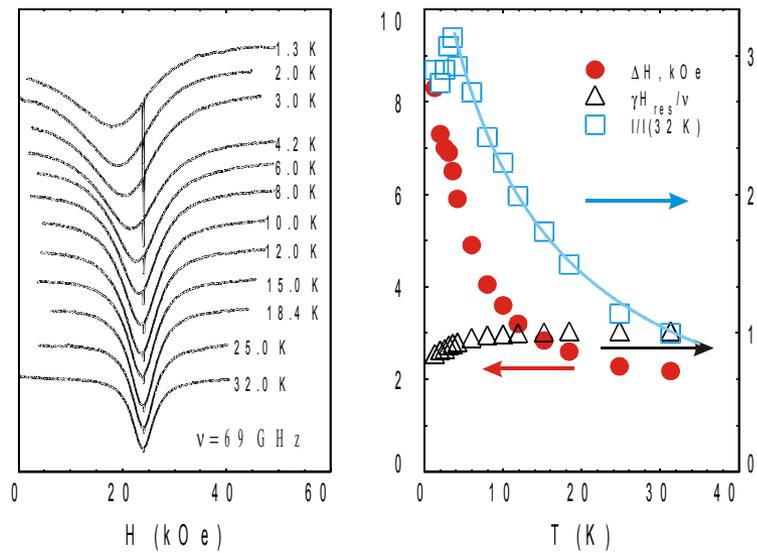
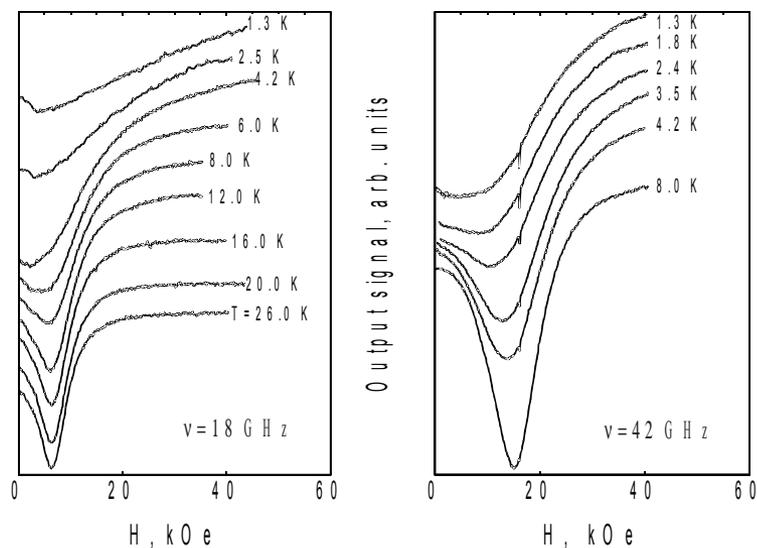
We studied the proposed energy spectrum by ESR, searching for  
The transitions marked by arrows

# Магнитный резонанс – удобный экспериментальный метод определения молекулярных полей, спин-спиновых взаимодействий, эффективного спина и других квантовых чисел магнитных объектов

## Прошедший микроволновый сигнал

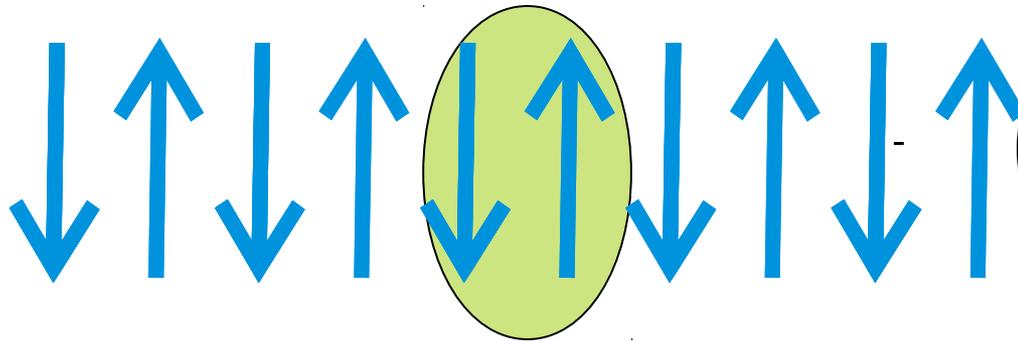


# Resonance at temperatures above 1K

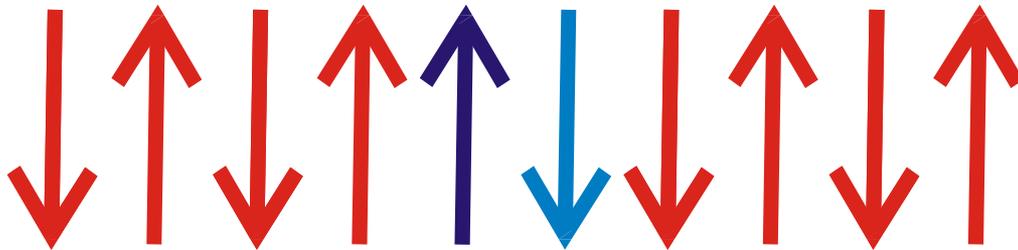


# Гейзенберговский обмен и проблема основного состояния антиферромагнетиков

$$\mathbf{H} = \sum J_{i,i+1} \mathbf{S}_i \mathbf{S}_{i+1}$$
$$\mathbf{H} = J_{i,i+1} \sum [S_j^z S_{j+1}^z + 1/2(S_j^+ S_{j+1}^- + S_j^- S_{j+1}^+)]$$
$$S_i^+ = S_i^x + iS_i^y \quad S_i^- = S_i^x - iS_i^y$$

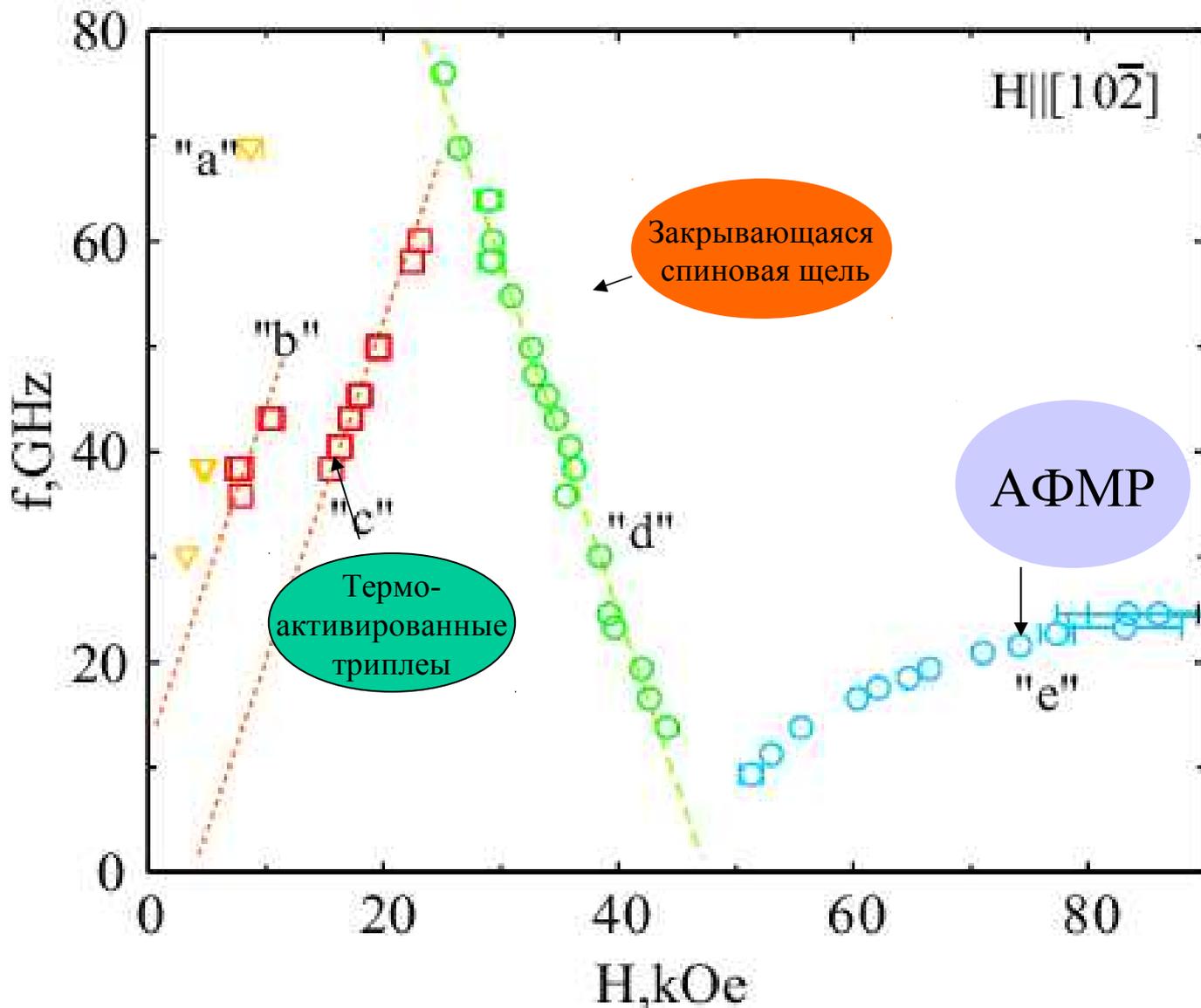


Это – классическое  
основное  
состояние для  $J > 0$



Но оно не является  
собственным  
для гамильтониана

# TlCuCl<sub>3</sub> : ESR



- "a", "b", "c" - переходы между расщепленным и кристаллически м полем подуровнями  $S=1$
- "d" - переход между  $S=0$  и  $S^z=-1$
- "e" - АФМР

## Bose-Einstein Condensation of Dilute Magnons in $\text{TlCuCl}_3$

T. Nikuni,\* M. Oshikawa, A. Oosawa, and H. Tanaka

Перенести позже

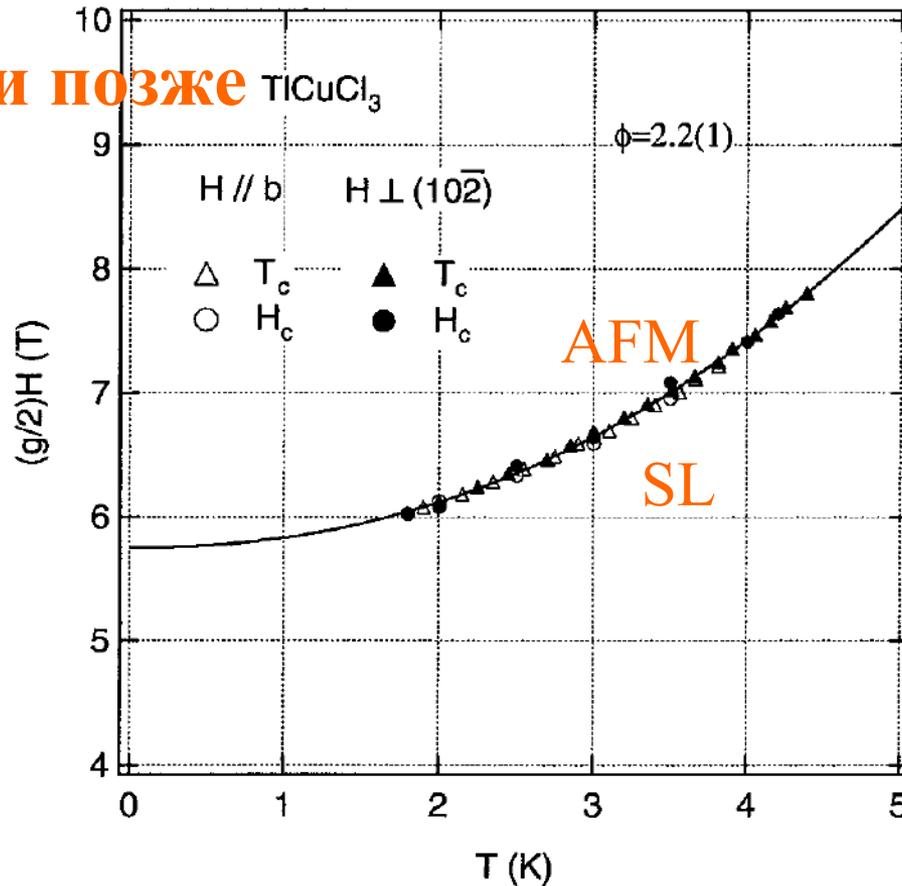
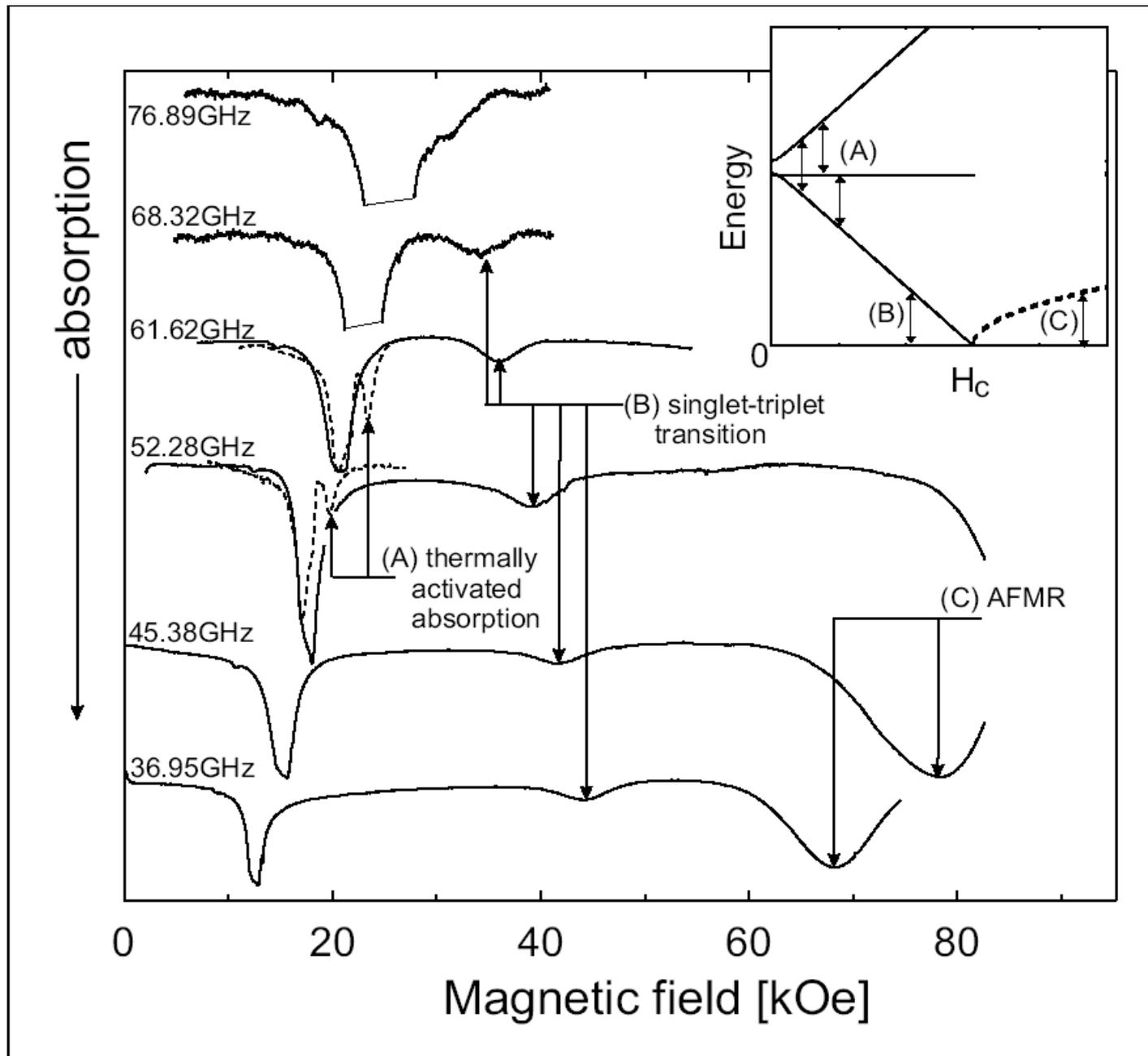
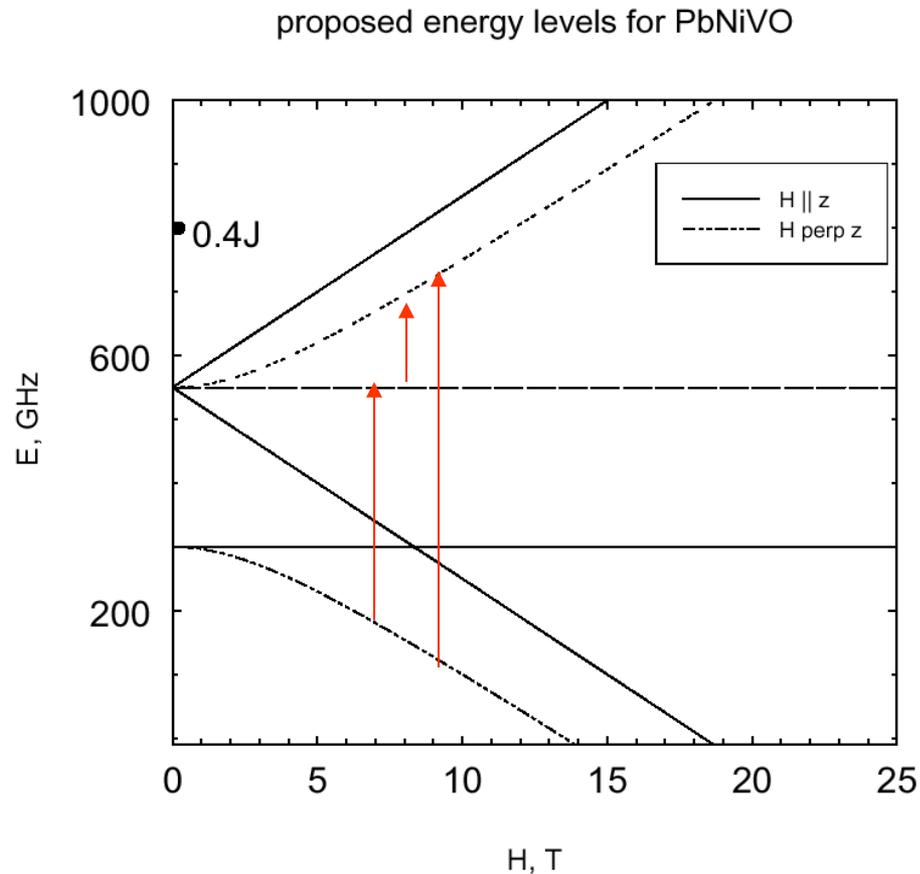


FIG. 1. The phase diagram in  $\text{TlCuCl}_3$ . The solid line denotes the fitting with the formula  $(g/2)[H_c(T) - H_c(0)] \propto T^\phi$  with  $(g/2)H_c(0) = 5.61$  T and  $\phi = 2.2$ .



Переходы между расщепленными кристаллическим и магнитным полем подуровнями триплетов можно исследовать методами магнитного резонанса, так как изменение волнового вектора равно нулю.



$$D_{\text{eff}} = 250 \text{ GHz}$$

We studied the proposed energy spectrum by ESR, searching for  
The transitions marked by arrows