

АНТИФЕРРОМАГНЕТИК С АНИЗОТРОПИЕЙ ТИПА «ЛЕГКАЯ ПЛОСКОСТЬ» В НАКЛОННОМ ПОЛЕ: ЩЕЛЬ В СПЕКТРЕ МАГНОНОВ И ВОСПРИИМЧИВОСТЬ

А. С. Щербаков^{a*}, О. И. Утесов^{b,a,c**}

^a Научно-исследовательский центр «Курчатовский Институт» — ПИЯФ
188300, Гатчина, Россия

^b Санкт-Петербургский государственный университет
198504, Санкт-Петербург, Россия

^c Санкт-Петербургская школа физико-математических и компьютерных наук,
НИУ «Высшая школа экономики»
190008, Санкт-Петербург, Россия

Поступила в редакцию 9 ноября 2022 г.,
после переработки 12 января 2023 г.
Принята к публикации 12 января 2023 г.

С учетом недавних экспериментальных данных по веществу дихлор-тетракистиомочевина-никель (DTN) [Soldatov et al., Phys. Rev. B **101**, 104410 (2020)] рассмотрена модель антиферромагнетика с одноионной анизотропией типа «легкая плоскость» на тетрагональной решетке в наклонном внешнем магнитном поле. Используя малость поперечной компоненты поля, мы аналитически рассматриваем полевую зависимость щели в «акустической» магнонной моде и поперечной однородной магнитной восприимчивости в упорядоченной фазе. Было показано, что щель имеет немонотонную зависимость от поля из-за квантовых флуктуаций, что действительно наблюдалось экспериментально. Поперечная восприимчивость, по существу, зависит от времени распада «оптического» магнона на два других магнона. При магнитных полях, близких к соответствующему центру упорядоченной фазы, это приводит к экспериментально наблюдаемому явлению динамического диамагнетизма.

DOI: 10.31857/S0044451023070088
EDN:GEXKFZ

1. ВВЕДЕНИЕ

Квантовые фазовые переходы и квантовые состояния вещества являются одними из наиболее широко изучаемых тем современной физики конденсированного состояния [1]. В этом контексте квантовые магнетики играют важную роль, демонстрируя разностороннюю физику [2–4]. Важно, что в эти соединения примеси могут быть добавлены более или менее контролируемым образом [5–7], что позволяет изучать эффекты беспорядка в так называемых системах с «грязными» бозонами [8,9]. Более того, в неупорядоченных квантовых магнетиках можно наблюдать такие экзотические состояния, как стекло Бозе и стекло Мотта [6].

Конкретные вещества DTN [дихлор-тетракистиомочевина-никель, $\text{NiCl}_2 - 4\text{SC}(\text{NH}_2)_2$] и его легированный бромом аналог DTNX изучались в течение последних нескольких десятилетий (см., например, статьи [6, 10–15]). Их свойства можно описать с помощью модели слабосвязанных антиферромагнитных (АФ) цепочек со спином $S = 1$ и сильной одноионной анизотропией типа «легкая плоскость» [15], см. рис. 1. Последняя обуславливает интересные магнитные свойства DTN. Во внешнем магнитном поле h , направленном вдоль тетрагональной оси, при $h < h_{c1}$ система находится в синглетной парамагнитной фазе, при $h_{c1} < h < h_{c2}$ — в упорядоченной скошенной антиферромагнитной (САФ) фазе, тогда как при $h > h_{c2}$ можно наблюдать полностью поляризованное состояние со щелью в спектре [10, 16]. Критические поля h_{c1} , h_{c2} и их окрестности можно рассматривать в терминах конденсации Бозе–Эйнштейна элементарных возбуждений (триплов и

* E-mail: nanoscienceisart@gmail.com

** E-mail: utiosov@gmail.com

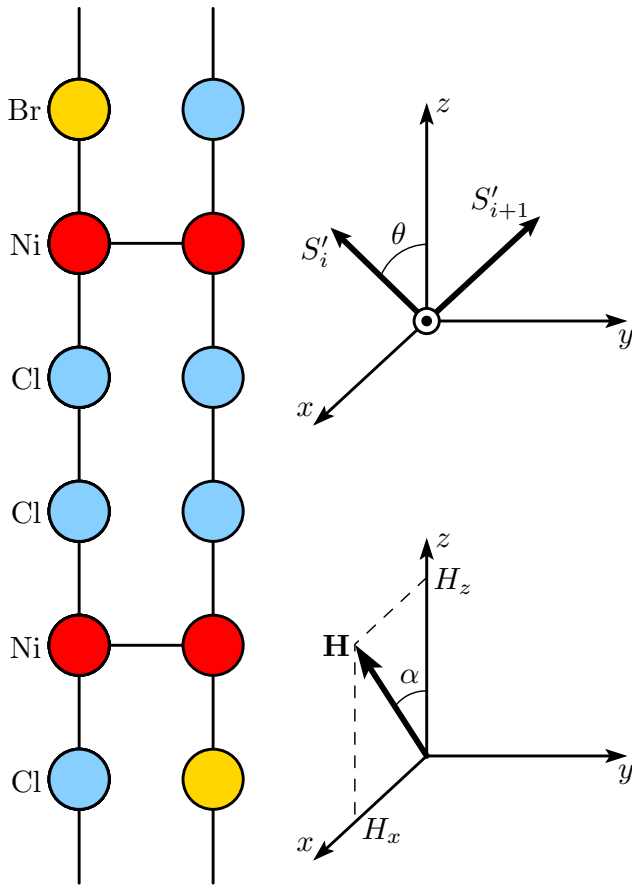


Рис. 1. В настоящей работе рассматривается модель антиферромагнетика, относящаяся к DTN и DTNX. Магнитная подсистема состоит из относительно слабо связанных антиферромагнитных цепочек. В модели учитывается также большая одноионная анизотропия типа «легкая плоскость». В умеренных внешних полях вдоль оси z спины наклонены в сторону направления поля. Более того, слегка наклоненное к оси x поле нарушает вращательную симметрию, появляется ненулевое среднее значение компоненты S^x , что приводит к появлению щели в магнном спектре

магнонов соответственно) [3, 12, 16–19]. Промежуточная САФ-фаза не очень близко к критическим полям может быть описана, как обычная магнитоупорядоченная фаза и изучаться, например, с помощью метода электронного спинового резонанса (ЭСР) [11, 20, 21]. Интересно, что такие эксперименты выявляют, например, нетривиальное изменение «оптической» (высокоэнергетической) магнной частоты от поля. В нашей предыдущей работе [22] это объяснялось в рамках стандартного диаграммного разложения по степеням параметра $1/S$, при этом подчеркивалась роль сильных квантовых флуктуаций.

В настоящей работе мы продолжаем наше теоретическое обсуждение [22]. Здесь мы обращаемся к

случаю наклонного магнитного поля, реализованному экспериментально в работе [21]. Используя формализм Кубо для линейного отклика и $1/S$ -разложение, мы показываем, что индуцируемая наклонным полем компонента спина в плоскости наследует специфическое поведение частоты оптического магнона. Это приводит к экспериментально наблюдаемой полевой зависимости щели в «акустической» (низкоэнергетической) моде спектра. Кроме того, показано, что оптическая мода вблизи центра упорядоченной фазы приобретает значительное затухание за счет двухмагнонных процессов. Таким образом, наша теория количественно поддерживает качественное обсуждение явления динамического диамагнетизма, наблюдавшегося в работе [21].

Остальная часть статьи организована следующим образом. В разд. 2 мы формулируем модель, кратко напоминаем наши предыдущие результаты и используем наш подход для вывода щели в акустической ветви. Раздел 3 посвящен однородной поперечной восприимчивости в наклонном поле и эффекту динамического диамагнетизма. Мы представляем наши выводы в разд. 4. Три Приложения содержат громоздкие формулы и некоторые другие подробности расчетов.

2. ЩЕЛЬ В СПЕКТРЕ МАГНОНОВ

2.1. Постановка задачи

Мы рассматриваем модель антиферромагнетика с одноионной анизотропией типа «легкая плоскость» в наклонном внешнем магнитном поле на простой тетрагональной решетке [23], см. рис. 1. Для определенности возьмем магнитное поле в плоскости xz (xy — легкая плоскость). Соответствующий гамильтониан имеет вид

$$\mathcal{H} = \frac{1}{2} \sum_{\langle i,j \rangle} J_{ij} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j + D \sum_i (S_i^z)^2 - h_z \sum_i S_i^z - h_x \sum_i S_i^x. \quad (1)$$

Здесь внешнее магнитное поле берется в энергетических единицах ($h = g\mu_B |\mathbf{H}|$), а $D > 0$ указывает на анизотропию типа «легкая плоскость». Поскольку наша цель состоит в том, чтобы рассмотреть имеющий отношение к экспериментам [20, 21] случай малых углов наклона α , мы будем рассматривать часть гамильтониана с $h_x \approx \alpha h$ как малое возмущение. Поэтому отправной точкой нашего анализа будет теория из нашей предыдущей статьи [22]. Кратко напомним ее основные выводы.

Мы рассмотрели случай внешнего поля вдоль тетрагональной оси. В основном мы обсуждали «оптическую» магннную моду и ее энергию в центре зоны Бриллюэна Δ , которую можно исследовать с помощью ЭСР [20, 21], используя представление Холстейна–Примакова спиновых операторов через бозонные [24] в локальной системе координат, подходящей для описания скошенного антиферромагнитного упорядочения [25]. С помощью квазиклассического $1/S$ -разложения и соответствующей диаграммной техники мы обнаружили сильную перенормировку спектра магнонов за счет квантовых поправок первого порядка по $1/S$, которые приводят к экспериментально наблюдаемой [20, 21] немонотонной зависимости $\Delta(h)$. Уместно отметить, что наш подход, основанный на преобразовании Холстейна–Примакова, неприменим для полей $h \lesssim h_{c1}$ (т.е. в синглетной фазе и вблизи квантового фазового перехода). В этом случае следует использовать другие методы, см., например, статью [26].

Несмотря на свою малую величину, поперечное магнитное поле h_x оказывает существенное влияние на систему: оно нарушает вращательную симметрию в легкой плоскости xy . Это приводит к исчезновению голдстоуновской моды, соответствующая магннная мода становится щелевой и далее будет называться «квазиголдстоуновской».

Нашей основной целью является аналитическое описание свойств возникающей щели (в зависимости от h и α) и магнитной восприимчивости системы. Для этого мы стартуем с основного состояния системы при $\alpha = 0$ и сразу делаем вывод, что члены h_x в гамильтониане (1) приводят к линейным по бозонным операторам вкладам (что эквивалентно неустойчивости основного состояния), которые в обратном пространстве имеют вид

$$\frac{h_x \sqrt{SN}}{\sqrt{2}} (a_{\mathbf{k}=0}^\dagger + a_{\mathbf{k}=0}), \quad (2)$$

см. Приложение А, в котором приведены некоторые детали. Мы исключаем эти члены, используя следующий сдвиг в операторах:

$$a_{\mathbf{k}=0} = b_{\mathbf{k}=0} + \rho, \quad a_{\mathbf{k}=0}^\dagger = b_{\mathbf{k}=0}^\dagger + \rho. \quad (3)$$

Параметр ρ связан с линейным откликом системы на h_x и может быть найден непосредственно из гамильтониана или с помощью восприимчивости Кубо. В любом случае мы получаем $\rho \propto \alpha$. Важно отметить, что $\rho \neq 0$ приводит к новым слагаемым в гамильтониане, которые будут использоваться для вычислений щели в квазиголдстоуновской моде и

магнитной восприимчивости в наклонном поле. Отметим, что малость α позволяет опустить члены, пропорциональные ρ^n , $n > 2$ при пересчете гамильтониана для ненулевого h_x .

2.2. Расчет ρ

В этом разделе мы выводим аналитическое выражение для главного параметра ρ . Важно отметить, что он связан простым соотношением со средним значением S^x , которое одинаково для всех спинов. В явном виде

$$\begin{aligned} \langle S^x \rangle &= \frac{1}{N} \sum_i \langle S_i^x \rangle = \frac{\sqrt{S}}{\sqrt{2N}} \sum_i \langle a_i^\dagger + a_i \rangle = \\ &= \frac{\sqrt{S}}{\sqrt{2N}} \langle a_{\mathbf{k}=0}^\dagger + a_{\mathbf{k}=0} \rangle = \sqrt{2} S \frac{\rho}{\sqrt{SN}}. \end{aligned} \quad (4)$$

Параметр ρ можно найти, приравняв к нулю линейные члены гамильтониана (см. уравнение (2)) с помощью сдвига (3). Однако для учета квантовых поправок воспользуемся более общим методом восприимчивости Кубо:

$$\begin{aligned} \chi &= \langle S^x(\mathbf{q}, \omega) S^x(-\mathbf{q}, \omega) \rangle \Big|_{\mathbf{q}=0, \omega=0, h_x=0} = \\ &= \frac{S}{2} \langle (a_{\mathbf{q}}^\dagger + a_{-\mathbf{q}})(a_{-\mathbf{q}}^\dagger + a_{\mathbf{q}}) \rangle_\omega \Big|_{\mathbf{q}=0, \omega=0, h_x=0} = \\ &= -\frac{S}{2} (F_{k=0} + G_{k=0} + F_{k=0}^\dagger + G_{k=0}^\dagger). \end{aligned} \quad (5)$$

Таким образом, χ представляет собой сумму запаздывающих функций Грина, взятых при $k = (\omega = 0, \mathbf{k} = 0)$, подробности см. в Приложении А. Последняя может быть получена при $h_x = 0$ с использованием стандартного диаграммного подхода.

В линейной теории спиновых волн имеем

$$\chi_0 = \frac{1}{2SJ_0}, \quad (6)$$

что дает

$$\langle S^x \rangle = \frac{h_x}{2SJ_0}, \quad (7)$$

$$\frac{\rho}{\sqrt{NS}} = \frac{h_x}{2\sqrt{2}SJ_0}. \quad (8)$$

Видно, что линейная теория спиновых волн предсказывает постоянную восприимчивость.

При учете поправок по $1/S$ поведение восприимчивости становится намного интереснее. Используя уравнение (5) с перенормированными взаимодействиями магнонов функциями Грина, получаем

$$\chi_{1/S}(h) = \frac{P(h)}{2\Delta^2(h)}, \quad (9)$$

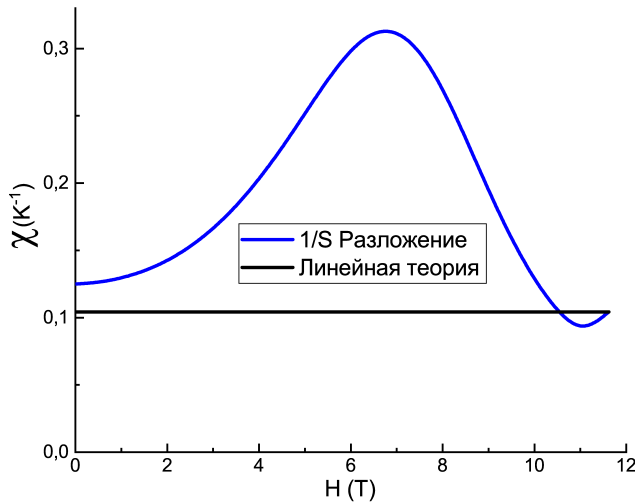


Рис. 2. Сравнение магнитной восприимчивости, рассчитанной в рамках линейной теории χ_0 (черная линия), и с учетом поправок по $1/S$ к функциям Грина, $\chi_{1/S}$ (синяя линия), как функций магнитного поля h . Использовались параметры $\alpha = \pi/60$, $D = 8$ K, $J_c = 2$ K, $J_a = 0.2$ K

где

$$P(h) = 2E_{\mathbf{k}} - 2B_{\mathbf{k}} + \Sigma_{\mathbf{k}} + \Sigma_{-\mathbf{k}} - 2\Pi_{\mathbf{k}} \Big|_{k=0}, \quad (10)$$

$$\Delta(h) = \varepsilon_{\mathbf{k}} + (\Sigma_{\mathbf{k}} - \Sigma_{-\mathbf{k}})/2 + [E_{\mathbf{k}}(\Sigma_{\mathbf{k}} + \Sigma_{-\mathbf{k}}) - 2B_{\mathbf{k}}\Pi_{\mathbf{k}}]/2\varepsilon_{\mathbf{k}} \Big|_{k=0}. \quad (11)$$

Здесь $\varepsilon_{\mathbf{k}}$ — спектр магнонов линейной теории, и, как видно, мы используем приближение для собственных энергетических частей, рассматривая их на массовой поверхности. Важно отметить, что $\Delta(h)$ — это перенормированная энергия оптического магнона с $\mathbf{k} = 0$, подробно изученная в работе [22] и имеющая немонокотное поведение в зависимости от h из-за поправок по $1/S$. Этот эффект проявляется также в восприимчивости и $\langle S^x \rangle$, как это показано на рис. 2 и 3, где результаты линейной спин-волновой теории сравниваются с результатами, полученными с использованием первых поправок по $1/S$. Видны существенные различия в соответствующих графиках, унаследованные от $\Delta(h)$.

2.3. Щель при $h_x \neq 0$.

После сдвига в бозе-операторах (3) в гамильтониане появляются члены пропорциональные ρ^n , $n \geq 1$ в дополнение к рассмотренным в Приложении А. Некоторые детали представлены в Приложении В.

Линейные по бозе-операторам члены сокращаются при правильном выборе ρ (см. предыдущий подраздел). Мы также пренебрегаем членами $\delta\mathcal{H}_3$ (и более высокими порядками в бозе-операторах),

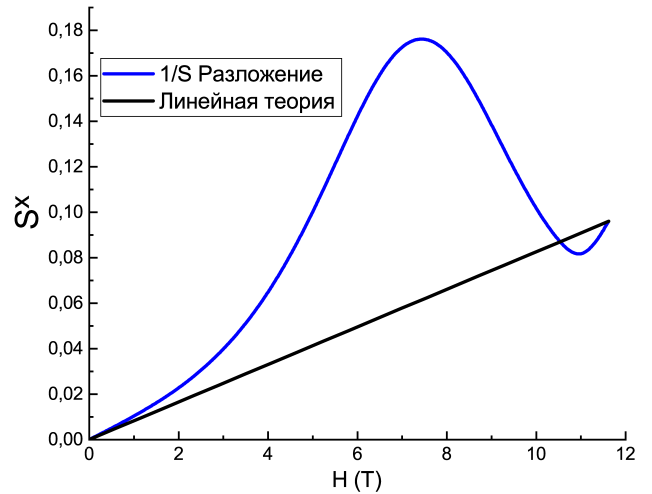


Рис. 3. Зависимость средней компоненты спина S^x от h в случае наклонного поля, рассчитанная с использованием формализма Кубо в линейной теории (черная линия) и с учетом квантовых поправок (синяя линия). Использовались параметры $\alpha = \pi/60$, $D = 8$ K, $J_c = 2$ K, $J_a = 0.2$ K

поскольку они дают малые по $1/S$ поправки. Более того, ниже предметом расчетов являются магноны с $\mathbf{k} = \mathbf{k}_0$ и минимальной энергией, которые не могут приобрести конечное время жизни из-за таких процессов.

Итак, сосредоточимся на поправках к билинейной части гамильтониана. Важно отметить, что они включают нормальные вклады и вклады от процессов переброса, которые имеют вид

$$\delta\mathcal{H}_2^N = S \sum_{\mathbf{k}} \bar{E}_{\mathbf{k}} b_{\mathbf{k}}^\dagger b_{\mathbf{k}} + S \sum_{\mathbf{k}} \bar{B}_{\mathbf{k}} \frac{b_{\mathbf{k}} b_{-\mathbf{k}} + b_{\mathbf{k}}^\dagger b_{-\mathbf{k}}^\dagger}{2}, \quad (12)$$

$$\delta\mathcal{H}_2^U = iS \sum_{\mathbf{k}} X_{\mathbf{k}} (b_{\mathbf{k}}^\dagger b_{\mathbf{k}-\mathbf{k}_0} - b_{\mathbf{k}-\mathbf{k}_0}^\dagger b_{\mathbf{k}}) + iS \sum_{\mathbf{k}} Y_{\mathbf{k}} \frac{b_{\mathbf{k}} b_{\mathbf{k}_0-\mathbf{k}} - b_{\mathbf{k}}^\dagger b_{\mathbf{k}_0-\mathbf{k}}^\dagger}{2} \quad (13)$$

соответственно. Формулы для коэффициентов представлены в Приложении В.

Далее видно, что поправки за счет нормальных слагаемых можно напрямую подставить в уравнение для магنونного спектра линейной теории (29), тогда как перебросы требуют некоторых дополнительных вычислений. Они вносят вклад как в нормальную, так и в аномальную собственно-энергетическую части. Соответствующие диаграммы показаны на рис. 4.

Однако при $\mathbf{k} = \mathbf{k}_0$ вклад в спектр дают только нормальные слагаемые, так как поправки, соответствующие процессам переброса, компенсируют друг

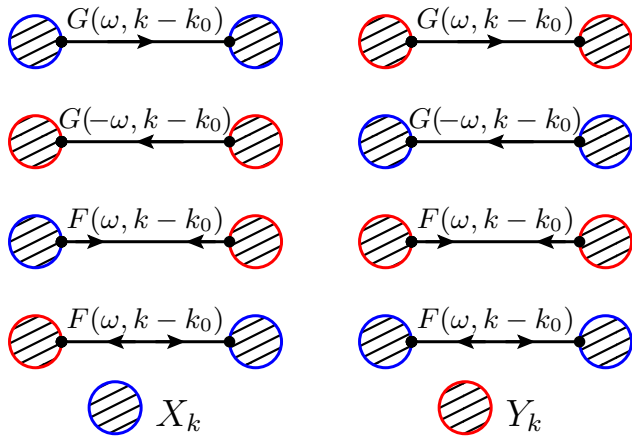


Рис. 4. Индуцированные процессами переброса поправки к собственно-энергетическим частям Σ^U (слева) и Π^U (справа). X_k и Y_k обозначают соответствующие амплитуды, см. уравнения (40) и (41)

друга (см. Приложение В). Итак, уравнение для щели в спектре выглядит так:

$$\omega_{\mathbf{k}=\mathbf{k}_0} = \Delta_{h_x} = \sqrt{2E_{\mathbf{k}_0}(\bar{E}_{\mathbf{k}_0} + \bar{B}_{\mathbf{k}_0})}. \quad (14)$$

Используя выражения для $\bar{E}_{\mathbf{k}_0}$ (38) и $\bar{B}_{\mathbf{k}_0}$ (39) и взяв значение параметра ρ , вычисленное в рамках формализма Кубо, получим

$$\Delta_{h_x} = \sqrt{2E_{\mathbf{k}_0}A_h \frac{S\rho}{\sqrt{NS}}}, \quad (15)$$

где

$$A_h = \frac{h_x \sqrt{NS}}{S\rho} + 8U_{0\mathbf{k}_0 0 - \mathbf{k}_0} + 12V_{0\mathbf{k}_0 0} + 8U_{\mathbf{k}_0 \mathbf{k}_0 0 0} + 12V_{0\mathbf{k}_0 \mathbf{k}_0}. \quad (16)$$

Первое слагаемое в уравнении (16) намного меньше остальных и существенно только вблизи критических полей h_{c1} и h_{c2} . В области промежуточных полей (на которую мы в основном нацелены) им можно пренебречь. Наконец, мы получаем следующий результат для значения щели:

$$\Delta_{h_x} = \sqrt{E_{\mathbf{k}_0}A_h \langle S^x \rangle}. \quad (17)$$

Результаты наших расчетов представлены на рис. 5 для конкретного набора параметров. Обратите внимание, что величина щели пропорциональна среднему значению S^x (см. рис. 3). Более того, поведение щели аналогично наблюдавшемуся экспериментально [20, 21].

3. МАГНИТНАЯ ВОСПРИИМЧИВОСТЬ

Здесь мы обсуждаем однородную поперечную магнитную восприимчивость системы в наклонном

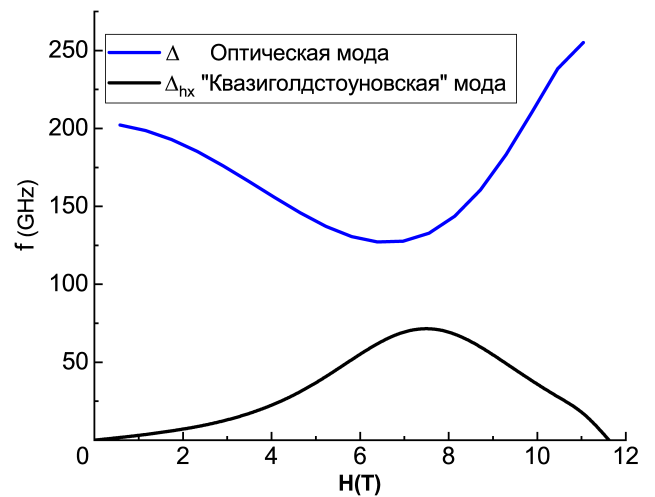


Рис. 5. Полевые зависимости частот «квазиголдстоуновских» ($\mathbf{k} = \mathbf{k}_0$; черная кривая) и «оптических» ($\mathbf{k} = 0$; синяя кривая) магнонов. Использовались параметры $\alpha = \pi/60$, $D = 8.0$ К, $J_c = 2$ К и $J_a = 0.2$ К

внешнем поле. Важным моментом здесь является значительное затухание оптического магнона с $\mathbf{k} = 0$, о чем пойдет речь ниже.

3.1. Затухание магнонов

В нашей предыдущей работе [22] нас особенно интересовала энергия оптического магнона с $\mathbf{k} = 0$. Для текущих целей затухание данной моды также становится важным. Теоретически конечное время жизни магнона связано с возможностью его распада в нашем случае на два других магнона.

Говоря конкретнее, затухание происходит из мнимых частей собственных энергий, входящих в функции Грина магнона (см. ниже уравнение (35)). Важно, что здесь можно пренебречь малыми членами, индуцированными h_x , в гамильтониане. Отделив мнимую часть соответствующего знаменателя от действительной, получим затухание в первом порядке по $1/S$:

$$\Gamma(k) = \text{Im} \left[\frac{\Sigma_k - \Sigma_{-k}}{2} + \frac{E_{\mathbf{k}}(\Sigma_k + \Sigma_{-k}) - 2B_{\mathbf{k}}\Pi_k}{2\varepsilon_k} \right]. \quad (18)$$

Соответствующие мнимые части нормальной и аномальной собственных энергий обусловлены членами \mathcal{H}_3 (см. ниже уравнение (30)), где магنون с импульсом \mathbf{k} может распасться на пару магнонов с импульсами $\mathbf{k} - \mathbf{p} + \mathbf{k}_0$ и \mathbf{p} . Ниже мы обсуждаем затухание магнона только с $\mathbf{k} = 0$ и используем приближение массовой поверхности. Соответствующее затухание зависит от h , обозначим его как $\Gamma(h)$.

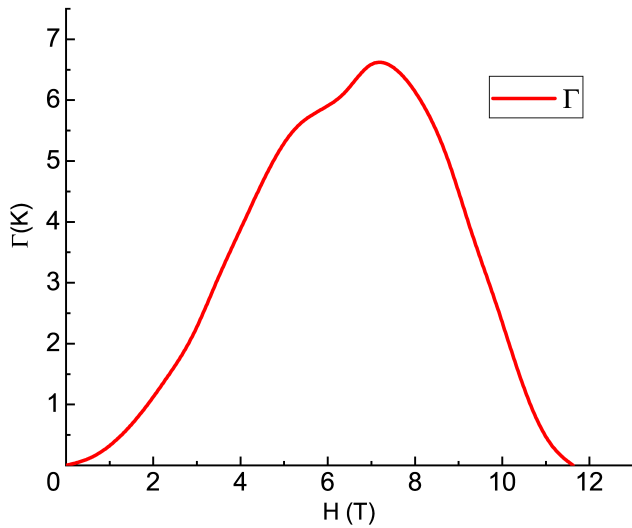


Рис. 6. Затухание $\Gamma(h)$ «оптического» магнона с $\mathbf{k} = 0$ в зависимости от внешнего магнитного поля. Использовались параметры $D = 8$ К, $J_c = 2$ К и $J_a = 0.2$ К

Наши расчеты показывают, что $\Gamma(h)$ обращается в нуль при критическом поле h_{c2} и $h = 0$ (здесь уместно напомнить, что в нашем подходе поле h_{c1} не возникает) и имеет значительный максимум вблизи центра упорядоченной фазы. Этот результат проиллюстрирован на рис. 6 для конкретного набора параметров.

3.2. Восприимчивость

Обобщение уравнения (5) для статической поперечной спиновой восприимчивости представляет собой сумму запаздывающих функций Грина:

$$\chi^\perp(\omega, \mathbf{k}) = -\frac{1}{2} (G_{\omega, \mathbf{k}}^R + G_{-\omega, -\mathbf{k}}^R + F_{\omega, \mathbf{k}}^R + F_{-\omega, -\mathbf{k}}^R), \quad (19)$$

где следует учитывать поправки от магнитного поля h_x .

В наших расчетах в уравнении (19) мы используем первый порядок по $1/S$ для собственно-энергетических частей, которые учитывают процессы переброса. В результате получается (подробности см. в Приложении С):

$$\begin{aligned} \text{Re} [\chi^\perp(\omega, \mathbf{k} = 0)] = & \\ = -\text{Re} \left\{ \frac{P(h) + 2\bar{E}_{\mathbf{k}=0} - 2\bar{B}_{\mathbf{k}=0}}{\omega^2 - (\Delta - i\Gamma)^2} + \right. & \\ \left. + \frac{K}{[(\omega + i\delta)^2 - \Delta_{h_x}^2][\omega^2 - (\Delta - i\Gamma)^2]} \right\}. & \quad (20) \end{aligned}$$

Важно отметить, что эта формула имеет два типа полюсов, соответствующих «стабильному» акустическому магнону ($\delta \rightarrow +0$) и затухающему оптическому магнону. Таким образом, их взаимное влияние определяет однородную восприимчивость как функцию частоты $\chi^\perp(\omega)$. Кроме того, решающую роль здесь играет величина затухания оптических магнов Γ , см. рис. 7.

В отсутствие затухания ($\Gamma = 0$) действительная часть восприимчивости при $\omega > 0$ имеет две гиперболические особенности, связанные с энергиями акустического и оптического магнов. Однако при увеличении затухания (что происходит вблизи центра упорядоченной фазы, см. рис. 6) качественное поведение $\text{Re} \chi^\perp(\omega)$ изменяется. Область $\text{Re} \chi^\perp(\omega) > 0$, выраженная вблизи $\omega = \Delta$ при малых Γ , исчезает. Таким образом, в нашем аналитическом рассмотрении в этой частотной области мы наблюдаем смену знака восприимчивости в той частотной области, которая в работе [21] названа «динамическим диамагнетизмом». Более того, наша интерпретация согласуется с интерпретацией из этой работы на качественном уровне, так как причиной больших Γ в наших расчетах являются двухмагнонные процессы.

4. ОБСУЖДЕНИЕ И ВЫВОДЫ

Исследован антиферромагнетик с большой одноионной анизотропией типа «легкая плоскость» в наклонном внешнем поле при малых углах наклона в упорядоченной скошенной антиферромагнитной фазе. В этом случае поперечная составляющая поля мала, и мы используем теорию линейного отклика (формализм Кубо) для вычисления соответствующих поправок к основному состоянию. Это позволяет получить поправки к гамильтониану, возникающие из-за поперечной компоненты поля. Также поперечное поле нарушает вращательную симметрию относительно тетрагональной оси. Важно отметить, что это приводит к возникновению щели в магнном спектре, которая ведет себя немонотонным образом при изменении внешнего поля. Эта особенность унаследована от немонотонного поведения энергии оптического магнона в центре зоны Бриллюэна, что было изучено в нашей предыдущей работе [22] и связано с перенормировкой этой энергии, индуцированной сильными квантовыми флуктуациями. Кроме того, мы показывали, что наш результат для зависимости щели от поля находится в хорошем качественном согласии с экспериментальными данными работы [20], где изучалось вещество DTN.

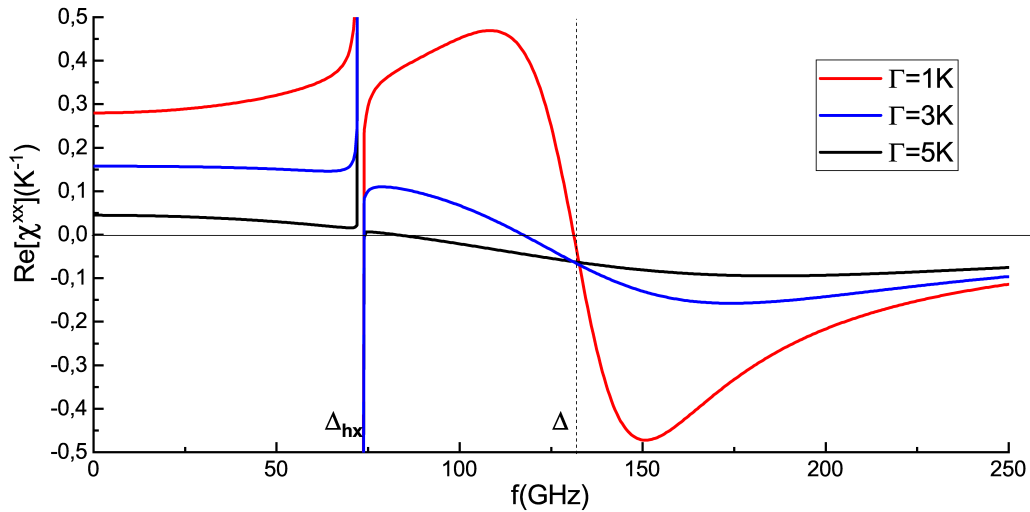


Рис. 7. Действительная часть спиновой восприимчивости χ^\perp при $H = 7.3$ Тл для различных констант затухания Γ (18). Использовались параметры $\alpha = \pi/60$, $D = 8$ К, $J_c = 2$ К и $J_a = 0.2$ К

После установления основного состояния в наклонном поле наш формализм также позволяет изучать поперечную спиновую восприимчивость. Показано, что в этом расчёте есть два принципиальных момента. Первый — значительное затухание оптических магнонов, связанное с распадом на два магнона. Второй — аккуратный учет процессов переброса в гамильтониане.

В результате, используя реалистичные параметры для DTN, мы теоретически объясняем эффект динамического диамагнетизма, который экспериментально наблюдался в работе [21]. Кроме того, в нашем выводе важную роль играют двухмагнонные процессы, что находится в согласии с интерпретацией, предложенной в этой статье.

Здесь уместно отметить, что наилучшее соответствие с экспериментальными данными не было нашей целью, и мы используем некоторые реалистичные параметры DTN только для иллюстрации. Кроме того, из-за квазиодномерного характера DTN результаты сильно зависят от значений параметров, и может также возникнуть вопрос о поправках более высокого порядка по $1/S$. Тем не менее, мы обнаружили, что наши качественные выводы верны в широком диапазоне параметров. Более того, мы можем утверждать, что использованные параметры приводят к полуколичественному согласию с экспериментальными данными.

Нашу теорию и ее результаты следует сравнить с подходом, развитым в работе [27]. Достоинства последнего заключаются в его элегантности и простоте аналитических формул на выходе. Однако он справедлив только для магнитных полей, близких к центру упорядоченной фазы и основан на малости J/D .

В нашем подходе расчеты намного более громоздкие, но методы более общие. Это позволяет рассматривать поперечную восприимчивость в рамках того же подхода, что и щель в спектре магнонов.

Благодарности. Мы благодарны А. И. Смирнову за стимулирующие обсуждения.

Финансирование. Работа выполнена при финансовой поддержке Фонда развития теоретической физики и математики «БАЗИС».

ПРИЛОЖЕНИЕ А ГАМИЛЬТОНИАН ПРИ $h_x = 0$

Здесь мы кратко напоминаем формализм, который использовался в нашем предыдущем исследовании [22] (см. также работы [12, 25]). Гамильтониан (1) можно преобразовать в бозонный, используя обычное представление спиновых операторов Холстейна – Примакова [24] в приближенной форме (позволяющей учесть первые поправки по $1/S$):

$$\begin{aligned}
 S_i^{x'} + iS_i^{y'} &= \sqrt{2S}a_i^\dagger \sqrt{1 - \frac{a_i^\dagger a_i}{2S}} \approx \\
 &\approx \sqrt{2S}a_i^\dagger \left(1 - \frac{a_i^\dagger a_i}{4S}\right), \\
 S_i^{x'} - iS_i^{y'} &= \sqrt{2S} \sqrt{1 - \frac{a_i^\dagger a_i}{2S}} a_i \approx \\
 &\approx \sqrt{2S} \left(1 - \frac{a_i^\dagger a_i}{4S}\right) a_i, \\
 S_i^{z'} &= -S + a_i^\dagger a_i
 \end{aligned}
 \tag{21}$$

в локальной системе координат, подходящей для

описания скошенного антиферромагнитного порядка ($\mathbf{k}_0 = (\pi, \pi, \pi)$ — антиферромагнитный вектор):

$$\begin{aligned} S_i^x &= S_i^{x'}, \\ S_i^y &= S_i^{y'} \cos \theta + S_i^{z'} \exp(i\mathbf{k}_0 \cdot \mathbf{R}_i) \sin \theta, \\ S_i^z &= S_i^{z'} \cos \theta - S_i^{y'} \exp(i\mathbf{k}_0 \cdot \mathbf{R}_i) \sin \theta. \end{aligned} \quad (22)$$

В результате имеем $\mathcal{H} = \sum_{n=0}^4 \mathcal{H}_n$; каждый член содержит n бозе-операторов. В явном виде

$$\mathcal{H}_1 = iS^{3/2}\sqrt{N} \left(La_{\mathbf{k}_0} - La_{\mathbf{k}_0}^\dagger \right), \quad (23)$$

$$L = \frac{1}{\sqrt{2}} \left[(2J_0 + 2\tilde{D}) \cos \theta - \frac{h_z}{S} \right] \sin \theta. \quad (24)$$

Этот член можно исключить, взяв правильный угол наклона θ , зависящий от внешнего поля. Далее, билинейная часть выглядит следующим образом:

$$\mathcal{H}_2 = S \sum_{\mathbf{k}} a_{\mathbf{k}}^\dagger a_{\mathbf{k}} E_{\mathbf{k}} + \frac{S}{2} \sum_{\mathbf{k}} (a_{\mathbf{k}} a_{-\mathbf{k}} + a_{\mathbf{k}}^\dagger a_{-\mathbf{k}}^\dagger) B_{\mathbf{k}}, \quad (25)$$

$$E_{\mathbf{k}} = S(J_0 + J_{\mathbf{k}}) \cos^2 \theta + S(J_0 + D) \sin^2 \theta, \quad (26)$$

$$B_{\mathbf{k}} = S(J_{\mathbf{k}} - D) \sin^2 \theta. \quad (27)$$

Здесь преобразование Фурье обменного взаимодействия имеет вид

$$J_{\mathbf{k}} = 2 [J_c \cos k_z + J_a (\cos k_x + \cos k_y)]. \quad (28)$$

Спектр магнонов в линейной теории определяется выражением

$$\varepsilon_{\mathbf{k}} = \sqrt{E_{\mathbf{k}}^2 - B_{\mathbf{k}}^2}. \quad (29)$$

Поскольку преобразование Фурье обменного взаимодействия $J_{\mathbf{k}}$ подчиняется свойству $J_0 = -J_{\mathbf{k}_0}$, этот спектр является бесщелевым с $\varepsilon_{\mathbf{k}_0} = 0$ в соответствии с теоремой Голдстоуна.

Также имеются части гамильтониана, ответственные за взаимодействие магнонов. Первая из них имеет вид

$$\begin{aligned} \mathcal{H}_3 &= i \frac{\sqrt{S} \sin \theta \cos \theta}{4\sqrt{2N}} \times \\ &\times \sum_{123=\mathbf{k}_0} (a_1^\dagger a_2^\dagger a_{-3} - a_{-3}^\dagger a_2 a_1) \frac{(V_1 + V_2)}{2}, \end{aligned} \quad (30)$$

$$V_{\mathbf{k}} = \left(2J_{\mathbf{k}_0} - 8J_{\mathbf{k}} + 10D - \frac{h}{S \cos \theta} \right),$$

где мы обозначаем $\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2, \mathbf{k}_3$ как 1, 2, 3, а закон сохранения импульса имеет вид

$$\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 + \mathbf{k}_3 = \mathbf{k}_0. \quad (31)$$

Вторая определяется следующим выражением:

$$\begin{aligned} \mathcal{H}_4 &= \frac{1}{N} \sum_{1234=0} U_{1234} a_1^\dagger a_2^\dagger a_{-3} a_{-4} + \\ &+ \frac{1}{N} \sum_{1234=0} V_{123} (a_1^\dagger a_2^\dagger a_3^\dagger a_{-4} + a_{-4}^\dagger a_3 a_2 a_1) \end{aligned} \quad (32)$$

с обычным законом сохранения импульса. Здесь

$$U_{1234} = \left[\frac{1 - 2 \sin^2 \theta}{2} J_{4-1} - \frac{\cos^2 \theta}{4} (J_1 + J_4) + D \left(1 - \frac{3}{2} \sin^2 \theta \right) \right], \quad (33)$$

$$V_{123} = \left[\frac{D \sin^2 \theta}{4} - \frac{(J_1 + J_2 + J_3) \sin^2 \theta}{12} \right]. \quad (34)$$

Для анализа нелинейных поправок к спектру магнонов удобно использовать нормальные ($G_{\mathbf{k}} = \langle a_{\mathbf{k}}, a_{\mathbf{k}}^\dagger \rangle_\omega$) и аномальные ($F_{\mathbf{k}}^\dagger = \langle a_{-\mathbf{k}}^\dagger, a_{\mathbf{k}}^\dagger \rangle_\omega$) функции Грина. Решение системы уравнений Дайсона для этих функций имеет вид

$$G_{\mathbf{k}} = \frac{\omega + E_{\mathbf{k}} + \Sigma_{-\mathbf{k}}}{D_{\omega, \mathbf{k}}}, \quad (35)$$

$$F_{\mathbf{k}} = -\frac{B_{\mathbf{k}} + \Pi_{\mathbf{k}}}{D_{\omega, \mathbf{k}}}, \quad (36)$$

$$\begin{aligned} D_{\mathbf{k}} &= \omega^2 - \varepsilon_{\mathbf{k}}^2 - E_{\mathbf{k}}(\Sigma_{\mathbf{k}} + \Sigma_{-\mathbf{k}}) + \\ &+ 2B_{\mathbf{k}}\Pi_{\mathbf{k}} + \omega(\Sigma_{\mathbf{k}} - \Sigma_{-\mathbf{k}}), \end{aligned} \quad (37)$$

где $\Sigma_{\mathbf{k}}, \Pi_{\mathbf{k}}$ — нормальная и аномальная собственно-энергетические части соответственно. Их можно вычислять пертурбативно.

ПРИЛОЖЕНИЕ В ПОПРАВКИ К ГАМИЛЬТОНИАНУ ПРИ МАЛЫХ h_x

При наклоне внешнего магнитного поля появляется ненулевое значение h_x . Это приводит к появлению ненулевого значения компоненты $\langle S^x \rangle$. В нашей теории это связано с параметром ρ . Ненулевое ρ дает различные дополнительные члены в гамильтониане, которые можно обозначить как $\delta\mathcal{H}$.

Линейные члены $\delta\mathcal{H}_1$ исчезают при правильном выборе ρ .

Билинейная часть $\delta\mathcal{H}_2$ может быть разделена на нормальные вклады и вклады с процессами переброса (см. уравнения (12) и (13)). Явные выражения

для соответствующих коэффициентов в $\delta\mathcal{H}_2^N$ следующие:

$$\bar{E}_{\mathbf{k}} = \frac{h_x \rho}{2S\sqrt{2NS}} + 8U_{0\mathbf{k}0-\mathbf{k}} \frac{\rho^2}{NS} + 12V_{0\mathbf{k}0} \frac{\rho^2}{NS}, \quad (38)$$

$$\bar{B}_{\mathbf{k}} = \frac{h_x \rho}{2S\sqrt{2NS}} + 8U_{\mathbf{k}\mathbf{k}00} \frac{\rho^2}{NS} + 12V_{0\mathbf{k}-\mathbf{k}} \frac{\rho^2}{NS}. \quad (39)$$

Эти члены аналогичны вкладам в формуле (25). Для $\delta\mathcal{H}_2^U$ соответствующие выражения имеют вид

$$X_{\mathbf{k}} = \sin \theta \cos \theta (V_0 + V_{\mathbf{k}}) \frac{\rho}{4\sqrt{2NS}}, \quad (40)$$

$$Y_{\mathbf{k}} = \sin \theta \cos \theta (V_{\mathbf{k}-\mathbf{k}_0} + V_{\mathbf{k}}) \frac{\rho}{4\sqrt{2NS}}. \quad (41)$$

Важно отметить, что перебросы дают поправки в нормальную и аномальную собственно-энергетические части порядка ρ^2 (они объединяются попарно, см. рис. 4):

$$\begin{aligned} \Sigma_{\mathbf{k}}^U &= X_{\mathbf{k}}^2 G_{\omega, \mathbf{k}-\mathbf{k}_0} + Y_{\mathbf{k}}^2 G_{-\omega, \mathbf{k}_0-\mathbf{k}} - \\ &- X_{\mathbf{k}} Y_{\mathbf{k}} F_{\omega, \mathbf{k}-\mathbf{k}_0} - X_{\mathbf{k}} Y_{\mathbf{k}} F_{-\omega, \mathbf{k}_0-\mathbf{k}}, \end{aligned} \quad (42)$$

$$\begin{aligned} \Pi_{\mathbf{k}}^U &= X_{\mathbf{k}}^2 F_{\omega, \mathbf{k}-\mathbf{k}_0} + Y_{\mathbf{k}}^2 F_{-\omega, \mathbf{k}_0-\mathbf{k}} - \\ &- X_{\mathbf{k}} Y_{\mathbf{k}} G_{\omega, \mathbf{k}-\mathbf{k}_0} - X_{\mathbf{k}} Y_{\mathbf{k}} G_{-\omega, \mathbf{k}_0-\mathbf{k}}. \end{aligned} \quad (43)$$

Однако видно, что при импульсе $\mathbf{k} = \mathbf{k}_0$ выполняется условие $X_{\mathbf{k}_0} = Y_{\mathbf{k}_0}$, поэтому $\Sigma_{\mathbf{k}_0}^U = -\Pi_{\mathbf{k}_0}^U$. Это означает, что поправка к энергии магнона с $\mathbf{k} = \mathbf{k}_0$ от процессов переброса отсутствует и в данном контексте важны только нормальные члены.

ПРИЛОЖЕНИЕ С ВЫВОД ПОПЕРЕЧНОЙ ВОСПРИИМЧИВОСТИ В НАКЛОННОМ ПОЛЕ

Здесь для расчетов также удобно использовать нормальную и аномальную функции Грина:

$$G_k = \langle b_{\mathbf{k}}, b_{\mathbf{k}}^\dagger \rangle_\omega; \quad F_k^\dagger = \langle b_{-\mathbf{k}}^\dagger, b_{\mathbf{k}}^\dagger \rangle_\omega, \quad (44)$$

где $k = (\omega, \mathbf{k})$. Эти функции подчиняются следующей системе уравнений Дайсона:

$$\begin{aligned} G_k &= G_k^0 + G_k^0 \Sigma_k G_k + G_k^0 (B_{\mathbf{k}} + \bar{B}_{\mathbf{k}} + \Pi_k) F_k, \\ F_k &= G_{-k}^0 (B_{\mathbf{k}} + \bar{B}_{\mathbf{k}} + \Pi_k) G_k + G_{-k}^0 \Sigma_{-k} F_k, \end{aligned} \quad (45)$$

где «голая» функция Грина имеет вид

$$G^0 = \frac{1}{\omega - E_{\mathbf{k}} - \bar{E}_{\mathbf{k}} + i\delta}. \quad (46)$$

После решения системы уравнений (45) получаем следующее выражение для нормальной и аномальной функций Грина:

$$G_k = \frac{\omega + E_{\mathbf{k}} + \bar{E}_{\mathbf{k}} + \Sigma_k}{D_{\omega, k}}, \quad (47)$$

$$F_k = -\frac{B_{\mathbf{k}} + \bar{B}_{\mathbf{k}} + \Pi_k}{D_{\omega, k}}. \quad (48)$$

Здесь знаменатель дается выражением

$$\begin{aligned} D_{\omega, k} &= \omega^2 - \varepsilon_{\mathbf{k}}^2 - E_{\mathbf{k}}(\Sigma_k + \Sigma_{-k} + 2\bar{E}_{\mathbf{k}}) + \\ &+ 2B_{\mathbf{k}}(\Pi_k + \bar{B}_{\mathbf{k}}) + \omega(\Sigma_k - \Sigma_{-k}). \end{aligned} \quad (49)$$

Для вычисления восприимчивости (19) необходимо использовать запаздывающие функции Грина G^R и F^R , которые связаны с причинными (47) следующим соотношением:

$$G_{\omega, \mathbf{k}}^R = \theta(\omega) G_{\omega, \mathbf{k}} + \theta(-\omega) G_{\omega, \mathbf{k}}^* \quad (50)$$

и аналогично для F . Действительные части запаздывающих функций равны соответствующим причинным. Итак, мы получаем

$$\begin{aligned} \text{Re}[\chi_{\omega, \mathbf{k}}^\perp] &= -\text{Re} \left\{ \frac{2E_{\mathbf{k}} + \Sigma_k + \Sigma_{-k} - 2B_{\mathbf{k}} - 2\Pi_k}{\omega^2 - (\Delta - i\Gamma)^2} + \right. \\ &\left. + \frac{2\bar{E}_{\mathbf{k}} - 2\bar{B}_{\mathbf{k}} + 2\Sigma_{\mathbf{k}}^U - 2\Pi_{\mathbf{k}}^U}{\omega^2 - (\Delta - i\Gamma)^2} \right\}. \end{aligned} \quad (51)$$

С помощью уравнений (42) и (43) при $\mathbf{k} = 0$ и уравнение (10) действительную часть однородной поперечной спиновой восприимчивости можно окончательно выразить как

$$\begin{aligned} \text{Re}[\chi_{\omega, \mathbf{k}=0}^\perp] &= -\text{Re} \left\{ \frac{P(h) + 2\bar{E}_{\mathbf{k}=0} - 2\bar{B}_{\mathbf{k}=0}}{\omega^2 - (\Delta - i\Gamma)^2} + \right. \\ &\left. + \frac{K}{[(\omega + i\delta)^2 - \Delta_{h_x}^2][\omega^2 - (\Delta - i\Gamma)^2]} \right\}, \end{aligned} \quad (52)$$

где

$$K = 2(X_{\mathbf{k}=0} + Y_{\mathbf{k}=0})^2 (\bar{E}_{\mathbf{k}_0} + \bar{B}_{\mathbf{k}_0}). \quad (53)$$

ЛИТЕРАТУРА

1. S. Sachdev, *Quantum Phase Transitions*, 2nd ed., Cambridge University Press (2011).
2. F. Mila, *European J. Phys.* **21**, 499 (2000).
3. T. Giamarchi, C. Rugg, and O. Tchernyshyov, *Nature Phys.* **4**, 198 (2008).
4. A. Zheludev and T. Roscilde, *Comptes Rendus Phys.* **14**, 740 (2013).

5. A. Oosawa and H. Tanaka, *Phys. Rev. B* **65**, 184437 (2002).
6. R. Yu, L. Yin, N. S. Sullivan et al., *Nature* **489**, 379 (2012).
7. D. Huvonen, S. Zhao, M. Mansson, T. Yankova et al., *Phys. Rev. B* **85**, 100410 (2012).
8. M. P. Fisher, P. B. Weichman, G. Grinstein et al., *Phys. Rev. B* **40**, 546 (1989).
9. L. Pollet, N. V. Prokof'ev, B. V. Svistunov et al., *Phys. Rev. Lett.* **103**, 140402 (2009).
10. A. Paduan-Filho, X. Gratens, and N. F. Oliveira, *Phys. Rev. B* **69**, 020405 (2004).
11. S. A. Zvyagin, J. Wosnitza, C. D. Batista et al., *Phys. Rev. B* **85**, 047205 (2007).
12. A. V. Sizanov and A. V. Syromyatnikov, *J. Phys.: Cond. Matt.* **23**, 146002 (2011).
13. A. V. Sizanov and A. V. Syromyatnikov, *Phys. Rev. B* **84**, 054445 (2011).
14. K. Y. Povarov, A. Mannig, G. Perren et al., *Phys. Rev. B* **96**, 40414 (2017).
15. A. Orlova, H. Mayaffre, S. Kramer et al., *Phys. Rev. Lett.* **121**, 177202 (2018).
16. V. S. Zapf, D. Zocco, B. R. Hansen et al., *Phys. Rev. Lett.* **96**, 077204 (2006).
17. E. Batyev and L. Braginsky, *Sov. Phys. JETP* **69**, 781 (1984).
18. E. Batyev, *Sov. Phys. JETP* **62**, 173 (1985).
19. L. Yin, J. S. Xia, V. S. Zapf et al., *Phys. Rev. Lett.* **101**, 187205 (2008).
20. S. A. Zvyagin, J. Wosnitza, A. K. Kolezhuk, et al., *Phys. Rev. B* **77**, 092413 (2008).
21. T. A. Soldatov, A. I. Smirnov, K. Y. Povarov et al., *Phys. Rev. B* **101**, 104410 (2020).
22. A. S. Sherbakov and O. I. Utesov, *J. Magn. Magn. Mater* **518**, 167390 (2021).
23. A. Lopez-Castro and M. R. Truter, *J. Chem. Soc.* **245**, 1309 (1963).
24. T. Holstein and H. Primakoff, *Phys. Rev.* **58**, 1098 (1940).
25. C. J. Hamer, O. Rojas, and J. Oitmaa, *Phys. Rev.* **81**, 214424 (2010).
26. A. V. Sizanov and A. V. Syromyatnikov, *Phys. Rev. B* **84**, 054445 (2011).
27. V. N. Glazkov, *JETP Lett.* **112**, 647 (2020).