

DISS. ETH NO. 18845

Neutron Scattering Studies of Low-Dimensional Quantum Spin Systems

A dissertation submitted to

ETH ZÜRICH

for the degree of

Doctor of Science

presented by

NIKOLAY TSYRULIN

Dipl. Phys. MSU

born 19.11.1983

Russian citizen

accepted on the recommendation of

Prof. Dr. M. Troyer, examiner
Prof. Dr. J. Mesot, co-examiner
Dr. M. Kenzelmann, co-examiner

2010

Abstract

This thesis is devoted to experimental studies of magnetism in low dimensions. Being of great fundamental interest, low dimensional magnets support strong quantum fluctuations which can result in novel quantum excitations and novel ground states. We used neutron scattering technique to study two macroscopic quantum systems: **(A)** two-dimensional weakly-frustrated $S = 1/2$ antiferromagnet on a square lattice, $\text{Cu}(\text{pz})_2(\text{ClO}_4)_2$, and **(B)** strongly anisotropic quasi-one-dimensional $S = 1$ chain, $\text{NiCl}_2 \cdot 4\text{SC}(\text{NH}_2)_2$.

(A) A comprehensive experimental study of the two-dimensional $S = 1/2$ square-lattice antiferromagnet, $\text{Cu}(\text{pz})_2(\text{ClO}_4)_2$, was performed up to one third of the magnetic saturation field. The spin Hamiltonian of the system is determined precisely. Our experiments provide evidence for the presence of a small antiferromagnetic next-nearest neighbor interactions which enhances quantum fluctuations associated with resonating valence bonds in the square-lattice $S = 1/2$ antiferromagnet. We show that magnetic fields of the order of one third of the saturation value lead to a qualitative change of the quantum fluctuations that inverts the zone-boundary dispersion.

(B) $\text{NiCl}_2 \cdot 4\text{SC}(\text{NH}_2)_2$ is a quasi-one-dimensional anisotropic $S = 1$ quantum magnet which undergoes a field-induced quantum phase transition from a quantum paramagnetic to a three-dimensional antiferromagnetic state. This process can be treated theoretically as a Bose-Einstein condensation of magnons. We directly observe the field-induced closing of the energy gap using inelastic neutron scattering. The phase diagram and the symmetry of the antiferromagnetic order are determined, showing the order of the transverse spin components. The study of the spin dynamics in the fully saturated ferromagnetic phases revealed nearest neighbor exchange interactions. The study in the antiferromagnetic phase, on the other hand, revealed additional spin interactions that are not present outside this phase, providing

evidence of a coupling between magnetism and the crystal structure and the presence of additional spin anisotropies in the material.

Kurzfassung

In dieser Arbeit wird eine experimentelle Studie über Magnetismus in niedrigen Dimensionen vorgestellt. Es besteht ein fundamentales Interesse an niedrig-dimensionalen Magneten, da diese enorme Quantenfluktuationen begünstigen, was wiederum in neuartigen Quantenanregungs- und Grundzuständen resultieren kann. Es wurden verschiedene Techniken der Neutronenstreuung eingesetzt, um zwei makroskopische Quantensysteme zu studieren: **(A)** ein zweidimensional, schwach-frustrierter $S = 1/2$ Antiferromagnet in einem Quadratgitter, $\text{Cu}(\text{pz})_2(\text{ClO}_4)_2$, und **(B)** eine stark anisotrope quasi-eindimensionale $S = 1$ Kette, $\text{NiCl}_2 \cdot 4\text{SC}(\text{NH}_2)_2$.

(A) Eine umfassende experimentelle Studie wurde an dem System des zweidimensionalen $S = 1/2$ Quadratgitter Antiferromagneten, $\text{Cu}(\text{pz})_2(\text{ClO}_4)_2$, durchgeführt, in magnetischen Feldern von einer Stärke bis zu einem Drittel des Sättigungswertes. Der Spin Hamiltonian des Systems wurde präzise bestimmt. Unsere Experimente erbringen den Beweis der Existenz einer kleinen antiferromagnetischen Wechselbeziehung zwischen nächsten Nachbarn, welche Quantenfluktuationen begünstigt, die mit Resonanz-Valenz-Bindungen im Quadratgitter des $S = 1/2$ Antiferromagneten in Verbindung stehen. Wir zeigen, dass magnetische Felder in der Größenordnung von einem Drittel des Sättigungswertes zu einer qualitativen Veränderung der Quantenfluktuationen führen, die die Zonengrenzen Dispersion umkehren.

(B) Das quasi-eindimensionale $S = 1$ Kettensystem ist in $\text{NiCl}_2 \cdot 4\text{SC}(\text{NH}_2)_2$ realisiert und untergeht einer Feld-induzierten Quantenphasenumwandlung von einem quanten-paramagnetischen zu einem dreidimensionalen antiferromagnetischen Zustand. Dieser Prozess kann theoretisch als Bose-Einstein Verdichtung der Magnonen gesehen werden. Wir beobachten direkt das Feld-induzierte Schliessen der Energielücke bei Verwendung von inelastischer Neutronenstreuung. Das Phasendiagramm und die Symmetrie der antiferromagnetischen Ordnung wur-

den untersucht und zeigen die Anordnung der querverlaufenden Spin Komponenten. Studien der Spin-Dynamik in der völlig gesättigten ferromagnetischen Phase zeigen die Präsenz von nächste-Nachbarn Wechselwirkungen. Messungen in der Feld-induzierten antiferromagnetischen Phase, auf der anderen Seite, zeigen die Präsenz von Wechselwirkungen, die sonst nicht da sind. Diese Messungen sind daher Indikationen für eine Kopplung von Magnetismus und der Kristallstruktur sowie die Präsenz von zusätzlichen Spin-Anisotropien in dieser Phase.