

## ПСЕВДОДИПОЛЬНОЕ ВЗАИМОДЕЙСТВИЕ В ОБМЕННО-ФРУСТРИРОВАННЫХ АНТИФЕРРОМАГНЕТИКАХ

С.В.Малеев<sup>1)</sup>

Санкт-Петербургский институт ядерной физики им.Б.П.Константинова РАН  
188350 Гатчина, Россия

Поступила в редакцию 16 апреля 1998 г.

Показано, что псевдодипольное взаимодействие объясняет экспериментально наблюдаемую неколлинеарную магнитную структуру соединений  $U_2Pd_2X$  ( $X = In, Sn$ ) и  $PtBa_2Cu_3O_{6+x}$ , состоящих из двух подсистем спинов, которые не взаимодействуют в приближении среднего поля при наличии только изотропного обмена между ними.

PACS: 70.10.Hk, 75.30.Gw, 75.50.Ee

В настоящее время экспериментально обнаружено большое число антиферромагнетиков, магнитная структура которых характеризуется следующими особенностями. 1. Вся совокупность магнитных подрешеток делится на две части (подсистемы), не взаимодействующие в приближении среднего поля, если учитывать только изотропное обменное взаимодействие между ними. Такие антиферромагнетики ниже мы будем называть обменно-фрустрированными. 2. Магнитная структура в целом является неколлинеарной. Это общее утверждение иллюстрируется следующими примерами: 1) соединения  $R_2CuO_4$ , где  $R = Pr, Nd, Sm$  и  $Eu$  [1–5]. Ниже  $T_N$  спины меди в соседних плоскостях  $CuO_2$  взаимно перпендикулярны. Кроме того, при низких температурах неколлинеарно упорядочиваются и магнитные моменты редкоземельных ионов (см. [6] и ссылки в этой работе); 2) слабый антиферромагнетик с центром инверсии  $Sr_2Cu_3O_4Cl_2$  [7]. Магнитную структуру этих соединений удалось объяснить, предполагая наличие псевдодипольного взаимодействия (ПДВ) между соседними ионами [6–9]. В настоящей работе показано, что ПДВ позволяет объяснить неколлинеарную магнитную структуру, обнаруженную экспериментально в соединениях  $U_2Pd_2X$ , где  $X = In, Sn$  [10], и в  $PtBa_2Cu_3O_{6+x}$  ниже температуры  $T_T$  возникновения магнитного порядка в празеодимовой подсистеме [11–13]. Таким образом, мы приходим к выводу, что ПДВ играет важную роль в тех случаях, когда традиционные магнитные взаимодействия оказываются подавленными по той или иной причине. В случае обменно-фрустрированных антиферромагнетиков такой причиной является симметричный запрет обменного взаимодействия в рамках приближения среднего поля.

ПДВ было постулировано Ван-Флеком<sup>2)</sup> [14] в 1937 г. Его первый микроскопический вывод был дан в знаменитой статье Мориа<sup>2)</sup> [15]. Для редкоземельных металлов оно анализировалось в [16] и было использовано в [17] для описания спектра спиновых волн в празеодиме. В работе автора [18] было показано, что ПДВ в редкоземельных металлах и актинидах связано с винтовым рассеянием<sup>3)</sup> электронов проводимости

<sup>1)</sup> e-mail: Maleyev@thd.pnpi.spb.ru

<sup>2)</sup> Van-Vleck, Moriya.

<sup>3)</sup> Skew-scattering.

на локализованных орбитальных моментах  $f$  электронов. Микроскопический расчет ПДВ между спинами ионов  $\text{Cu}^{2+}$  в плоскостях  $\text{CuO}_2$  имеется в [19, 20] (см. также ссылки в этих работах). Однако вычисленная на основании этих расчетов величина щели в спектрах спиновых волн оказалась на порядок меньше экспериментально определенной в  $\text{Pr}_2\text{CuO}_4$  [9] и  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  [21]. Это расхождение, по-видимому, связано с влиянием ионов, окружающих плоскости  $\text{CuO}_2$  в этих соединениях.

Мы будем пользоваться следующим выражением для ПДВ [6, 9]:

$$H_{PD} = \frac{1}{2} \sum_{n,n'} Q_{n,n'} (\mathbf{S}_n; \hat{R}_{n,n'}) (\mathbf{S}_{n'}; \hat{R}_{n,n'}), \quad (1)$$

где  $\hat{R}_{n,n'}$  – единичный вектор вдоль направления, соединяющего спины  $\mathbf{S}_n$  и  $\mathbf{S}_{n'}$ , константы  $Q_{n,n'}$  могут иметь любой знак и убывают с расстоянием быстрее, чем  $R_{n,n'}^{-3}$ . Отметим также, что ниже мы для краткости всегда будем пользоваться термином "спин иона", не конкретизируя реальную природу локализованного момента.

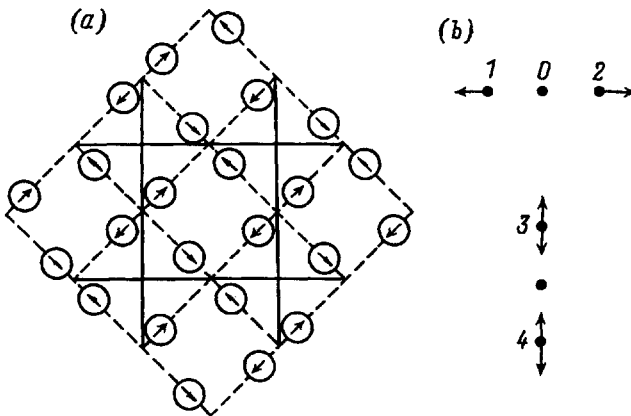


Рис. 1. а) Экспериментально определённая магнитная структура в плоскости  $c = 0$  [10]. Показаны только атомы урана, стрелки указывают направления их спинов. б) Две обменно-фрустрированные пары атомов урана. Сплошные и штрихованные стрелки соответствуют двум возможным направлениям спинов пары ионов 3 и 4 с одной и той же обменной энергией

Мы начнем с рассмотрения соединений  $\text{U}_2\text{Pd}_2\text{X}$ , в которых атомы урана расположены в базисной плоскости  $c = 0$ . Магнитная структура, возникающая при  $T_N = 41 \text{ K}$  и  $36 \text{ K}$  для  $\text{X} = \text{Sn}$  и  $\text{In}$ , соответственно, показана на рис.1а. Очевидно, в обменном приближении соседние пары ионов не взаимодействуют и система является обменно-фрустрированной. Однако ПДВ между соседними парами ионов обеспечивает дальний магнитный порядок. Действительно, рассмотрим две соседние пары ионов, показанные на рис.1б. Ограничиваясь пока ионами 1, 2 и 3, находим

$$E_{PD} = -\frac{2Q}{\rho^2 + r^2} (\mathbf{S} \cdot \boldsymbol{\rho}) (\mathbf{S}_3 \cdot \mathbf{r}), \quad (2)$$

где  $\mathbf{S}_1 = -\mathbf{S}_2 = \mathbf{S}$ ,  $\boldsymbol{\rho}$  и  $\mathbf{r}$  – координаты ионов 1 и 3, соответственно,  $\mathbf{S} \parallel \boldsymbol{\rho}$  и  $\mathbf{S}_3 \perp \boldsymbol{\rho}$ . При  $Q > 0$  эта энергия минимальна, если  $\mathbf{S}_3 \parallel \mathbf{r}$ , и мы получаем экспериментально определенную структуру, показанную на рис.1а. Вместе с тем для магнитного дипольного взаимодействия  $Q_m = -3(g\mu_B)^2(\rho^2 + r^2)^{-3/2} < 0$  и в отсутствие ПДВ должна была бы реализоваться структура, которой на рис.1б соответствуют штрихованные стрелки [10]. Очевидно, учет магнитного дипольного взаимодействия пары спинов 1 и 2

со спином 4 не меняет этого результата. Таким образом, мы видим, что в случае соединений  $U_2Pd_2X$  без учета ПДВ невозможно объяснить наблюдаемую магнитную структуру. Возможным механизмом возникновения ПДВ является уже упоминавшееся выше винтовое рассеяние электронов проводимости на  $f$  электронах урана. Если это так, то в соединениях  $U_2Pd_2X$  выше  $T_N$  должен наблюдаться аномальный эффект Холла, связанный с таким рассеянием [22].

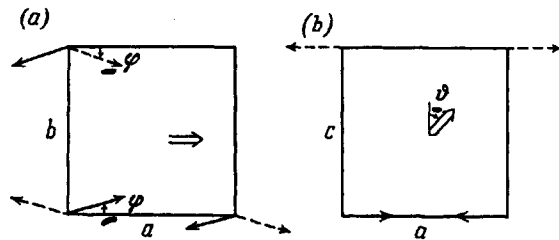


Рис.2. Магнитная структура  $PrBa_2Cu_3O_{6+x}$  ниже  $T_{Pr}$  по данным работы [12]. а) Направления спинов меди, лежащих в базисной плоскости ( $ab$ ) и принадлежащих двум соседним плоскостям  $CuO_2$ , а также проекция спинов празеодима на плоскость ( $ab$ ). Сплошные и штрихованные стрелки показывают направления спинов меди в нижней и верхней плоскостях, соответственно. Двойная стрелка – проекция спинов празеодима. б) Проекция спинов меди и празеодима на плоскость ( $ac$ )

Перейдем теперь к проблеме магнетизма  $PrBa_2Cu_3O_{6-x}$ . Как известно, это соединение при всех  $x$  является диэлектриком. Ниже  $T_N \approx 300$  К возникает антиферромагнетизм в подсистеме спинов ионов  $Cu^{2+}$ , имеющий ту же структуру что и в  $YBa_2Cu_3O_6$  [11–13]. Однако при зависящей от  $x$  температуре  $T_{Pr}$ , лежащей в интервале 10–20 К, антиферромагнетизм появляется также и в празеодимовой подсистеме и устанавливается неколлинеарный магнитный порядок, имеющий, согласно [12], вид, показанный на рис.2. При этом очевидно, что система в целом является обменно-фрустрированной, то есть в соответствующем приближении отсутствует взаимодействие между ионами меди и празеодима.

Наша цель состоит в том, чтобы продемонстрировать, что ПДВ позволяет качественно объяснить наблюдаемую неколлинеарную магнитную структуру. Следует отметить, что в настоящее время количественное описание вряд ли возможно, так как нет ясности относительно природы основного состояния ионов Pr [13, 23]. Кроме того, ниже  $T_{Pr}$  реальная магнитная структура очень чувствительна к наличию малых примесей Al и Sr [12, 13]. Отметим еще, что симметричный анализ возможных магнитных структур в соединениях  $RBa_2Cu_3O_{6+x}$  имеется в [24].

Прежде чем переходить к дальнейшему, приведем основные характеристики магнитной структуры  $PrBa_2Cu_3O_{6+x}$  для двух значений  $x$ , исследованных в [12]:  $T_N = 266$  К,  $T_{Pr} = 19 \pm 0.5$  К,  $\varphi = 30 \pm 5^\circ$ ,  $\vartheta = 35 \pm 20^\circ$  и  $T_N = 347$  К,  $T_{Pr} = 11 \pm 0.5$  К,  $\varphi = 20 \pm 5^\circ$ ,  $\vartheta = 52 \pm 6^\circ$  для  $x = 0.92$  и  $x = 0.35$ , соответственно, а углы  $\vartheta$  и  $\varphi$  показаны на рис.2а и б.

Ниже мы ограничимся рассмотрением неколлинеарной магнитной структуры в парах соседних плоскостей  $CuO_2$  и лежащей между ними плоскости, содержащей ионы празеодима (см.рис.2). Исследование упорядочения таких сильно связанных троек вдоль оси  $c$  не входит в нашу задачу. Оно связано с более слабыми взаимодействиями и, по-видимому, сильно зависит от примесей [12, 13].

Мы будем исходить из следующей модели: сильное обменное взаимодействие ответственно за коллинеарный антиферромагнетизм в плоскостях  $\text{CuO}_2$ , а также в празеодимовой плоскости. Взаимная ориентация спинов меди и празеодима и их ориентация относительно осей кристалла связана с более слабыми взаимодействиями. Будем описывать ориентацию спинов меди в плоскостях 1 и 2 и спинов празеодима сферическими координатами  $(\eta_{1,2}; \varphi_{1,2})$  и  $(\vartheta, \psi)$ , соответственно, выбирая в качестве осей  $z$  и  $x$  направления  $c$  и  $a$  (см. рис.2). Тогда для энергии основного состояния можно написать следующее выражение:

$$E = S^2 J_{\perp} [\sin \eta_1 \sin \eta_2 + \cos \eta_1 \cos \eta_2 \sin(\varphi_1 - \varphi_2)] + \quad (3)$$

$$+ AS^2 (\cos^2 \eta_1 + \cos^2 \eta_2) + \frac{P}{4} (\sin^4 \eta_1 \sin^2 2\varphi_1 + \sin^4 \eta_2 \sin^2 2\varphi_2) +$$

$$+ BK^2 \cos^2 \vartheta + \Lambda \sin \vartheta [\sin \eta_1 \sin(\psi + \varphi_1) + \sin \eta_2 \sin(\psi + \eta_2)].$$

Здесь первое слагаемое описывает обменное взаимодействие спинов меди ( $S = 1/2$ ) соседних плоскостей вдоль оси  $c$ , второе слагаемое – их одноосную анизотропию; третье слагаемое – это энергия квадратной анизотропии в плоскостях  $\text{CuO}_2$ , которая, как известно, играет в купратах важную роль [9, 19, 21]. Энергия одноосной анизотропии спинов празеодима  $K$  определяется четвертым слагаемым. Наконец, последнее слагаемое – это псевдодипольное взаимодействие спинов меди и празеодима. Его легко получить из общей формулы (1) в приближении взаимодействия ближайших соседей и  $\Lambda = 4QSKa^2(2a^2 + z^2)^{-1}$ , где  $z$  – расстояние между плоскостями  $\text{CuO}_2$ .

Энергия (3) является функцией шести переменных и пяти параметров. Полное исследование ее экстремумов при произвольном соотношении между параметрами невозможно, да и не нужно. Нам достаточно показать, что при определенном соотношении между параметрами минимуму энергии (3) соответствует неколлинеарная структура, близкая к той, которая была определена в [12].

Прежде всего заметим, что уравнения  $\partial E / \partial \eta_{1,2} = 0$  имеют решение  $\eta_{1,2} = \pi/2$ , и при достаточно большой анизотропии  $A > 0$  спины ионов меди лежат в плоскости  $ab$ . В результате вместо (3) получаем:

$$E = S^2 J_{\perp} \cos(\varphi_1 - \varphi_2) + \frac{P}{4} (\sin^2 2\varphi_1 + \sin^2 2\varphi_2) BK^2 \cos^2 \vartheta + \quad (4)$$

$$+ \Lambda [\sin(\psi + \varphi_1) + \sin(\psi + \varphi_2)] \sin \vartheta.$$

Экстремумы этой энергии определяются выражениями

$$-S^2 J_{\perp} \sin(\varphi_1 - \varphi_2) + P \sin 2\varphi_1 \cos 2\varphi_1 + \Lambda \cos(\psi + \varphi_1) = 0, \quad (5)$$

$$S^2 J_{\perp} \sin(\varphi_1 - \varphi_2) + P \sin 2\varphi_2 \cos 2\varphi_2 + \Lambda \cos(\psi + \varphi_2) = 0, \quad (6)$$

$$\{-2BK^2 \sin \vartheta + \Lambda [\sin(\psi + \varphi_1) + \sin(\psi + \varphi_2)]\} \cos \vartheta = 0, \quad (7)$$

$$[\cos(\psi + \varphi_1) + \cos(\psi + \varphi_2)] \sin \vartheta = 0. \quad (8)$$

Решения этой системы можно разделить на три класса: 1)  $\cos \vartheta = 0$ , 2)  $\sin \vartheta = 0$  и 3) угол  $\vartheta \neq 0, \pi/2$ . Очевидно, только последний случай соответствует интересующей нас экспериментальной ситуации, и мы его исследуем подробнее.

Из (7) и (8) находим:  $\varphi_1 = \varphi$ ,  $\varphi_2 = \pi - 2\psi - \varphi$ . В результате, из (5) и (6) следует  $\psi = \pi n/4$ , где  $n$  – целое число. Экспериментально наблюдаемой структуре соответствует  $\psi = 0$  и мы получаем:

$$\sin \vartheta = (\wedge/BK^2) \sin \varphi, \quad (9)$$

$$\cos 2\varphi = -[S^2 J_{\perp} + \wedge^2/2BK^2]P^{-1}. \quad (10)$$

Энергия (4) как функция  $\varphi$  и  $\vartheta$  при выполнении условий (9) и (10) и  $\psi = 0$  имеет минимум, если

$$P < 0; \quad B < 0. \quad (11)$$

Эти условия означают, что направления  $[1, 1, 0]$  и  $[0, 0, 1]$  являются осями легкого намагничивания для спинов меди и празеодима, соответственно. Поэтому в отсутствие последнего, псевдодипольного, слагаемого в (4) спины меди должны ориентироваться вдоль направлений  $[\pm 1, \pm 1, 0]$ , а спины празеодима должны быть параллельны оси  $c$ . Однако ПДВ связывает ориентации спинов двух этих подсистем и приводит к неколлинеарной структуре, показанной на рис.2.

Используя (9) и (10), энергию основного состояния можно представить в виде

$$E = -S^2 J_{\perp} + P/2 + BK^2 - P/2(1 + 2 \sin^2 \varphi) \cos 2\varphi. \quad (12)$$

Здесь первые три слагаемые – это энергия структуры со спинами, ориентированными вдоль соответствующих легких осей. Последнее слагаемое появилось в результате псевдодипольного взаимодействия, которое вызвало отклонение спинов от легких направлений. При этом, очевидно, что в силу (11)  $\cos 2\varphi < 0$ , то есть  $\varphi > 45^\circ$ .

Полученный результат не совпадает с экспериментально определенными значениями углов  $\varphi$  (см. выше). Это, по-видимому, связано со следующими обстоятельствами: 1) грубостью использованной модели, не учитывающей, в частности, реальной структуры основного состояния ионов празеодима в кристаллическом поле (см. выше и [13, 23]); 2) игнорированием квантовых флуктуаций, которые должны давать дополнительный, зависящий от  $\varphi$  и  $\vartheta$ , вклад в энергию основного состояния. Вместе с тем, главным является качественный результат: в обменно-фрустрированных антиферромагнетиках ПДВ может приводить к неколлинеарной магнитной структуре с отклонением спинов от направления легких осей.

Обсудим теперь некоторые следствия из полученных результатов.

1. Неколлинеарность соседних плоскостей  $\text{CuO}_2$  свидетельствует о малости обменного взаимодействия  $J_{\perp}$  между спинами меди вдоль оси  $c$ , которое, в силу (10), не должно превышать величины квадратной анизотропии в плоскости  $(ab)$ . Вместе с тем, в  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  это взаимодействие велико:  $J_{\perp} \simeq 100 \text{ K}$  [25]. Такое сильное уменьшение  $J_{\perp}$ , по-видимому, связано с рассмотренной в [23] гибридизацией  $\text{Pr } 4f$  и  $02p$  орбиталей. Прямое определение величины  $J_{\perp}$  в  $\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  методом рассеяния нейтронов на оптических спиновых волнах при  $T > T_{\text{Pr}}$  представляется необходимым.

2. В большинстве купратов спины меди ориентированы вдоль направления  $[1, 0, 0]$  [1–5, 21]. Вместе с тем, согласно (11), в  $\text{PrBa}_2\text{Cu}_2\text{O}_{6+x}$  легким, по-видимому, является направление  $[1, 1, 0]$ . Упругое рассеяние нейтронов при  $T > T_{\text{Pr}}$  в магнитных полях, направленных вдоль  $[1, 1, 0]$  и  $[1, 0, 0]$ , позволило бы определить тип магнитной анизотропии [1–5] и найти величину  $P$  так же, как это было сделано в [23] для  $\text{YBCO}$ . Теоретический анализ этой проблемы имеется в [9].

Итак, мы на двух новых примерах продемонстрировали, что ПДВ объясняет неколлинеарную магнитную структуру обменно-фрустрированных антиферромагнетиков. Учитывая также и результаты работ [6–9], мы можем утверждать, что ПДВ должно играть важную роль в тех случаях, когда традиционные магнитные взаимодействия по той или иной причине (например, в силу слишком высокой симметрии) не могут объяснить наблюдаемую магнитную структуру.

В заключение я хочу поблагодарить А.Т.Бузройта<sup>4)</sup>, обратившего мое внимание на проблему структуры  $R\text{V}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  и ознакомившего меня с препринтом [24]. Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант 96-2-18037а), государственной программы "Статистическая физика" (грант VIII-2) и Российской программы "Нейтронное исследование вещества".

1. I.W.Sumarlin, J.W.Lynn, T.Chattopadhyay et al., Phys. Rev. **B51**, 5824 (1995).
2. D.Petitgrand, A.H.Moudden, G.Galez, and P.Boutrouille, J. Less. Comm. Met. **164–165**, 768 (1990).
3. S.Skanthakumar, J.W.Lynn, J.L.Peng, and Z.Y.Li, Phys. Rev. **B47**, 6173 (1993).
4. S.Skanthakumar, J.W.Lynn, J.L.Peng, and Z.Y.Li, J. Appl. Phys. **73**, 6326 (1993).
5. T.Chattopadhyay, J.W.Lynn, N.Rosov et al., Phys. Rev. **B49**, 9944 (1994).
6. R.Sachidanandam, T.Yildirim, A.B.Harris et al., Phys. Rev. **B56**, 260 (1997).
7. G.C.Chou, A.Aharony, R.J.Birgeneau et al., Phys. Rev. Lett. **78**, 535 (1997).
8. P.Bourges, L.Boundarene, and D.Petitgrand, Physica **B180–181**, 128 (1992).
9. D.Petitgrand, S.V.Maleyev, Ph.Bourges, and A.Ivanov, Phys. Rev. B (to be published).
10. A.Purwanto, R.A.Robinson, L.Havel et al., Phys. Rev. **B50**, 6792 (1994).
11. S.Skanthakumar, J.W.Lynn, N.Rosov et al., Phys. Rev. **B55**, R3406 (1997).
12. A.T.Boothroyd, A.Longmore, N.H.Andersen et al., Phys. Rev. Lett. **78**, 130 (1997).
13. S.Uma, W.Schelle, E.Gmelin, et al., J. Phys. Condens. Matter **10**, L33 (1998).
14. J.Van-Vleck, Phys. Rev. **52**, 1178 (1937).
15. T.Moriya, Phys. Rev. **120**, 91 (1960).
16. T.A.Kaplan and D.H.Lyons, Phys. Rev. **129**, 2072 (1963).
17. P.-A.Lindgård, Phys. Rev. Lett. **78**, 4641 (1997).
18. С.В.Малеев, Письма в ЖЭТФ **61**, 43 (1995).
19. T.Yildirim, A.B.Harris, A.Aharony, and O.Entin-Wohlman, Phys. Rev. **B52**, 10239 (1995).
20. O.Entin-Wohlman, A.B.Harris, and A.Aharony, Phys. Rev. **B53**, 11661 (1996).
21. P.Burlet, J.Y.Henry, and L.P.Regnault, Physica **C296**, in press, 1998.
22. J.Kondo, Progr. of Theor. Phys. **27**, 772 (1962).
23. R.Fehrenbacher and T.M.Rice, Phys. Rev. Lett. **70**, 3471 (1993).
24. A.T.Boothroyd, Physica C, in print, (1998).
25. S.Shamoto, M.Sato, J.M.Tranquada, and B.J.Sternlib, Phys. Rev. **B48**, 13817 (1993).

---

<sup>4)</sup> А.Т.Boothroyd.