

НЕКОЛЛИНЕАРНЫЕ МАГНИТНЫЕ СТРУКТУРЫ В АНТИФЕРРОМАГНИТНОМ La_2CuO_4

А.С.Боровик-Романов, А.И.Буздин, Н.М.Крейнес,
С.С.Кротов

На основе симметричного анализа определена слабо-неколлинеарная антиферромагнитная структура La_2CuO_4 (D_{2h}^{18}). Показано, что возможен переход первого рода в магнитном поле в слабо-ферромагнитную фазу, сопровождающийся перестройкой исходной антиферромагнитной структуры. Полученные результаты сравниваются с экспериментом^{4,5}.

Соединение La_2CuO_4 является родоначальником серии металлооксидных соединений с высокой температурой перехода в сверхпроводящее состояние. В ряде нейтронографических исследований¹⁻⁴ было установлено, что при низких температурах (ниже 250 К) La_2CuO_4 переходит в коллинеарное антиферромагнитное состояние, структура которого изображена на рис. 1. Недавно в работах⁴⁻⁵ было высказано предположение о том, что антиферромагнитная структура не является коллинеарной; в этих же работах сообщалось об экспериментальном наблюдении скачка намагниченности, который авторы приписали переходу в состояние со слабым ферромагнетизмом. В настоящей работе на основании термодинамической теории Дзялошинского⁶ определены неколлинеарные антиферромагнитные структуры, в которые La_2CuO_4 может перейти из парамагнитного состояния путем фазового перехода второго рода, и рассмотрен возможный переход в слабоферромагнитное состояние в магнитном поле.

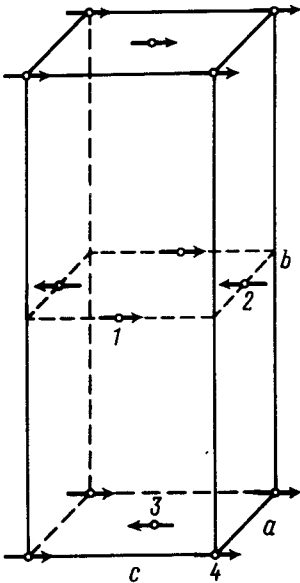


Рис. 1

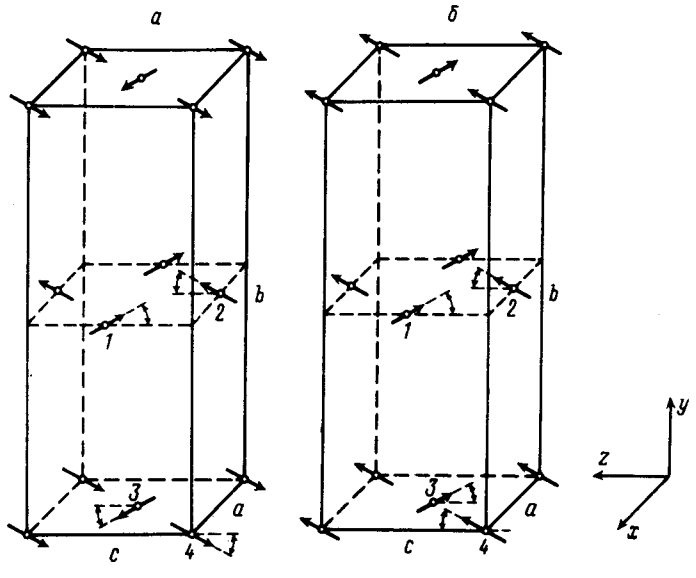


Рис. 2.

Рис. 1. Магнитная структура La_2CuO_4 ($H = 0$), определенная из экспериментов по нейтронографии¹⁻³

Рис. 2. Магнитная структура La_2CuO_4 , полученная из симметричного анализа: а – $H = 0$; б – $H > H_c$

Как видно из рис. 1, элементарная ячейка содержит 4 магнитных иона меди. Возможные коллинеарные магнитные структуры удобно представить следующими тремя векторами ан-

тиферромагнетизма L_i и вектором ферромагнетизма M :

$$\begin{aligned} L_1 &= S_1 - S_2 - S_3 + S_4 & L_3 &= S_1 + S_2 - S_3 - S_4 \\ L_2 &= S_1 - S_2 + S_3 - S_4 & M &= S_1 + S_2 + S_3 + S_4 \end{aligned} \quad (1)$$

Кристаллографическая симметрия La_2CuO_4 описывается пространственной группой D_{2h}^{18} (C_{mca}). Поскольку магнитное упорядочение происходит с изменением типа элементарной ячейки (от базоцентрированной к примитивной), при построении неприводимых представлений, ответственных за магнитный фазовый переход, необходимо рассмотреть расширенную группу симметрии (включающую помимо "точечных" преобразований и центрирующую трансляцию). Таким образом было получено 16 различных одномерных неприводимых представлений, но по одинаковым представлениям преобразуются лишь следующие пары компонент векторов L_i и M :

$$L_{1Y} \text{ и } L_{3Z}; L_{1Z} \text{ и } L_{3Y}; L_{2Z} \text{ и } M_Y; L_{2Y} \text{ и } M_Z. \quad (2)$$

Соответственно их произведения являются инвариантами и войдут в разложение термодинамического потенциала, которое можно записать в следующем виде:

$$\begin{aligned} \Phi &= \Phi_0 + \frac{A_1}{2} L_1^2 + \frac{A_2}{2} L_2^2 + \frac{A_3}{2} L_3^2 + \frac{C_1}{4} L_1^4 + \frac{C_2}{4} L_2^4 + \frac{C_3}{4} L_3^4 - \frac{a_1}{2} L_{1Z}^2 - \frac{a_2}{2} L_{2Z}^2 + \\ &+ \beta_1 L_{1Z} L_{3Y} + \beta_2 L_{1Y} L_{3Z} + \frac{B}{2} M^2 + d_1 L_{2Z} M_Y + d_2 L_{2Y} M_Z - MH. \end{aligned} \quad (3)$$

Здесь, как обычно, $A_i = \lambda_i(T - T_{Ni})$ и B определяют обменное взаимодействие. Фазовый переход происходит в то антиферромагнитное состояние, для которого T_{Ni} имеет максимальное значение. В соответствии с данными нейтронографии реализуется состояние L_{1Z} ; соответственно, мы должны считать, что T_{N1} максимально. Члены, описывающие анизотропию, выбраны также с учетом экспериментальных данных (спины в основном направлены вдоль оси Z ³). Исходя из специфической квазидвумерной структуры La_2CuO_4 , при которой обменное взаимодействие между слоями (S_1, S_2) и (S_3, S_4) очень слабо и, следовательно, T_{N1} мало отличается от T_{N2} , т. е. $T_{N1} - T_{N2} \ll T_{N1}, T_{N2}$ и можно считать $\lambda_1 = \lambda_2 = \lambda$ и $C_1 = C_2 = C$. В этих предположениях минимизация потенциала (3) при $H = 0$ приводит к решению

$$L_{1Z}^2 = \left(\frac{\lambda}{C}\right)(T_{N1} - T) \quad \text{и} \quad L_{3Y} = \frac{\beta_1}{A_3} L_{1Z}. \quad (4)$$

Таким образом, если основная антиферромагнитная структура в согласии с экспериментом определяется компонентой L_{1Z} , то возникает "слабый антиферромагнетизм" типа L_{3Y} , что соответствует скосу спинов из плоскостей (XZ) в направлении оси Y , так что если в одной плоскости они отклонились вверх, то в ближайших соседних плоскостях отклонение происходит в противоположную сторону (см. рис. 2а). Угол скоса в соответствии с (4) равен β_1/A_3 . Наличие неколлинеарного антиферромагнетизма подтверждается наблюдением щели в спектре спиновых волн. Из экспериментальных данных по инфракрасным спектрам, неупругому рассеянию нейтронов и двухмагнитному рассеянию света (см. в⁵) определена величина угла скоса $0,17^\circ$.

Если приложить магнитное поле вдоль оси Y , то возникает намагниченность

$$M_Y = H_Y/B. \quad (5)$$

При увеличении магнитного поля существует его критическое значение, при котором проигрыш в обменной энергии, связанный с переходом из состояния L_1 в состояние L_2 (см. (2)), равный $(L_0^2/2)\lambda(T_{N1} - T_{N2})$, будет перекрыт выигрышем в магнитной энергии, равным $d_1 L_0 H/B$. В нашем приближении $L_1(T) \approx L_2(T)$. Эту величину в дальнейшем мы будем обозначать $L_0(T)$. Сравнивая значения термодинамических потенциалов для обеих антиферромагнитных структур, мы получаем следующее выражение для критического поля H_c перехода (первого рода) из антиферромагнитной структуры L_{1Z} (с примесью L_{3Y} , рис. 2а) в состояние со слабым ферромагнетизмом (рис. 2б):

$$H_c = L_0(T)(T_{N1} - T_{N2})\lambda B/2d_1. \quad (6)$$

Линейная связь между H_c и $L_0(T)$ согласуется с экспериментальным результатом⁵. При $H > H_c$ вместо (5) намагниченность будет следовать закону

$$M_Y = \frac{1}{B}(d_1 L_0 + H_Y). \quad (7)$$

Таким образом при переходе в поле в слабоферромагнитное состояние должен иметь место скачок намагниченности, величина которого, как следует из (7), пропорциональна $L_0(T)$. Из экспериментальных данных⁵ находим значение $H_D = d_1 L_0 = 80$ кЭ при $T=0$. В соответствии с формулами (5) и (7) наклон в зависимости $M(H)$ при $H < H_c$ и $H > H_c$ одинаков, что согласуется с данными работ^{4,5}. Стоит отметить, что в случае упорядочения типа L_1 (без примеси L_2) магнитная структура представляет собой "антиферромагнитное" чередование ферромагнитно упорядоченных плоскостей (YZ), при возникновении фазы L_2 будем иметь чередование ферромагнитно упорядоченных плоскостей (XY).

Анализ данных экспериментов по ЯКР на ^{139}La в антиферромагнитной фазе La_2CuO_4 ⁷ также свидетельствует в пользу более сложной магнитной структуры, чем определяемой лишь вектором L_1 . Согласно⁷ в ядрах ^{139}La возникает локальное магнитное поле с отличной от нуля составляющей по оси Y . Предложенная в настоящей работе неколлинеарная антиферромагнитная структура как раз и приводит к появлению на узлах La чередующегося по направлению поля H_Y , при этом H_Y имеет тот же знак, что и скос магнитных моментов в ближайшем к данному атому La слою атомов Cu .

Таким образом, выводы термодинамической теории качественно согласуются с экспериментом^{4,5}. Имеется два существенных расхождения наших результатов с теоретическими посылками работы⁵: 1. Углы скоса в неколлинеарной антиферромагнитной ($L_{1Z}L_{3Y}$) и слабоферромагнитной фазах ($L_{2Z}M_Y$) отнюдь не должны совпадать. 2. Переход под действием поля в слабоферромагнитную фазу должен сопровождаться перестройкой обменной структуры (см. рис. 2б). Антиферромагнитная структура каждого из слоев (S_1, S_2) и (S_3, S_4) при этом остается неизменной. Однако взаимное расположение спинов в соседних слоях меняется на обратное. В принципе изменение энергии при этом может быть порядка обменной. Однако, учитывая слоистость рассматриваемой структуры, можно предположить, что обменное взаимодействие между слоями существенно меньше основного "внутрислойного" обменного взаимодействия. Для согласования с экспериментом величина $(T_{N1} - T_{N2})/T_{N1}$ должна быть много меньше 1. Подобного рода переход наблюдался Н.М.Крейнес в CoSO_4 (D_{2h}^{16})⁴. Следует подчеркнуть, что изменение магнитной структуры при этом переходе в La_2CuO_4 легко проконтролировать с помощью нейтронографии в поле. Кроме того, выше точки Нелля T_{N1} внешнее магнитное поле должно индуцировать в La_2CuO_4 антиферромагнитное упорядочение типа L_2 , что приводит к анизотропной восприимчивости χ выше T_{N1} и к аномальному росту χ_Y (см. ^{8,9}).

В несверхпроводящем соединении $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$ по данным рассеяния нейтронов¹⁰ наблюдалась похожая на обнаруженную в La_2CuO_4 антиферромагнитная структура. Однако в си-

лу более высокой точечной симметрии соединения $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$ (D_{2h}^{11}) неколлинеарные структуры, подобные рассмотренным выше, в этом случае возникать не должны.

В заключение, приносим благодарность И.Е.Дзялошинскому за полезное обсуждение работы, а также М.Кастнеру и А.Ахарони за предоставление своих препринтов и дискуссию.

Литература

1. *Vakhnin D., Sinha S.K., Moncton D.E. et al.* Phys. Rev. Lett., 1987, **58**, 2802.
2. *Shirane G., Endoh Y., Birgeneau R.J. et al.* Phys. Rev. Lett., 1987, **59**, 1613.
3. *Freltoft T., Remeika J.P., Moncton D.E. et al.* Phys. Rev., 1987, **B36**, 826.
4. *Birgeneau R.J., Kastner M.A., Aharony A. et al.* Preprint, 1988.
5. *Thio T., Thurston T.R., Preyer N.W. et al.* Preprint, 1988.
6. Дзялошинский И.Е. ЖЭТФ, 1957, **40**, 1548.
7. *Furo I., Janossy A.* Jap. J. Appl. Phys., 1987, **26**, L1307.
8. Крейнес Н.М. ЖЭТФ, 1961, **40**, 762.
9. Крейнес Н.М. ЖЭТФ, 1958, **35**, 1391.
10. *Tranquada J. M., Cox D.E., Kunnmann W. et al.* Phys. Rev. Lett., 1988, **60**, 156.
11. *Hewat A.W., Capponi Y.Y., Chailout C.* Sol. St. Comm., 1987, **64**, 301.

Институт физических проблем
Академии наук СССР

Поступила в редакцию
4 апреля 1988 г.