

# ФИЗИКА МАГНИТНЫХ ЯВЛЕНИЙ

УДК 539.171.4: 544.226

## СПЕКТР МАГНИТНЫХ ВОЗБУЖДЕНИЙ И ЛЕГКОПЛОСКОСТНАЯ МОДЕЛЬ МАГНИТНОЙ СТРУКТУРЫ МЕТАБОРАТА МЕДИ\*

М.А.Попов, О.А.Болсуновская, Г.А.Петраковский\*

*Выполнен расчет спектра спиновых волн легкоплоскостной модели магнитной структуры метабората меди  $CuB_2O_4$ . Из сравнения с результатами неупругого рассеяния нейтронов оценены константы обменного взаимодействия.*

Интерес исследователей к оксидным соединениям меди в последние годы связан, прежде всего, с открытием высокотемпературной сверхпроводимости (ВТСП) в содержащих медь оксидных веществах, которые хотя и не являются сверхпроводящими, но имеют сходные с ВТСП фрагменты кристаллической структуры. Оксидные соединения меди характеризуются большим разнообразием типов магнитного упорядочения и магнитных свойств. Среди исследованных кристаллов этой группы были обнаружены коллинеарные трехмерные антиферромагнетики, спиновые стекла, цепочечные спин-Пайерловские магнетики и другие магнитные структуры.

Особое место среди многообразия структур занимает метаборат меди. Исследования свойств этого кристалла, обладающего сложной магнитной структурой, проводились различными методами: рассеяние нейтронов,  $\mu SR$ , магнитный резонанс и магнитные измерения [1,2]. Нейтронные исследования показали, что при температуре  $T \approx 20K$  магнитная подсистема метабората меди переходит из парамагнитного состояния в состояние легкоплоскостного слабого ферромагнетика, а при температуре  $T \approx 10K$  она преобразуется в спираль вдоль тетрагональной оси. В настоящей работе приведено сопоставление результатов неупругого рассеяния нейтронов на магнитной подсистеме метабората меди с рассчитанными спектрами элементарных возбуждений.

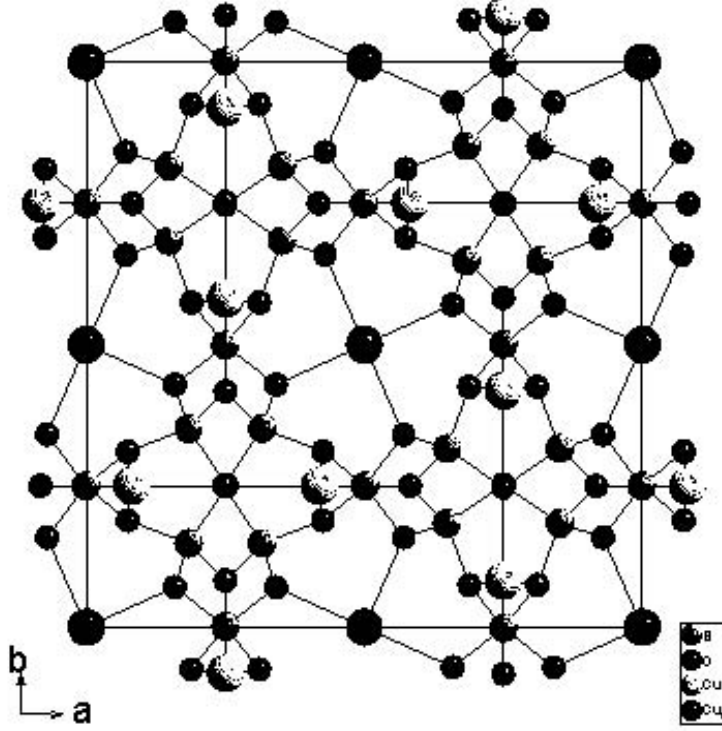
## 1. Обменные взаимодействия

Рентгенографические и нейтронографические исследования показали, что пространственная группа тетрагонального кристалла метабората меди  $CuB_2O_4$  - с параметрами решетки  $a = 11.528\text{Å}$ ,  $c = 5.607\text{Å}$ . Элементарная ячейка содержит 12 формульных единиц в кристаллохимической ячейке (рис.1). Магнитная структура кристалла состоит из двух разноразмерных подсистем. В элементарной ячейке кристалла ионы меди  $Cu^{2+}$  занимают две неэквивалентные позиции. Ионы меди, занимающие позицию 4b, находятся в центре квадрата, образованного четырьмя ионами кислорода, образуют трехмерную подсистему с экспериментально установленным легкоплоскостным антиферромагнитным упорядочением при температурах  $10 \div 20K$ . Ионы меди, занимающие позицию 8d, окружены шестью ионами кислорода, локализованными в вершинах искаженного октаэдра, образуют квазиодномерные зигзагообразные цепочки вдоль тетрагональной оси c. Обработка результатов по упругому рассеянию нейтронов при температуре  $T \approx 12K$  указала на легкоосное антиферромагнитное упорядочение внутри каждой из цепочек. Из-за отсутствия непосредственных Cu-O-Cu связей для всех обменных взаимодействий рассматриваются только Cu-O-V-O-Cu связи. Принимается во внимание влияние промежуточного бора и образование s-p гибридных орбиталей, через которые реализуются обменные взаимодействия.

Анализируя результаты неупругого рассеяния нейтронов [4], мы обратили внимание на то, что проекция расстояния между двумя ближайшими ионами меди на ось c в трехмерной подрешетке в два раза меньше, чем в квазиодномерных цепочках. Поэтому совпадение периодов спектров вдоль этой оси для обеих подсистем указывает на ферромагнитный порядок внутри цепочек с антиферромагнитным межцепочечным упорядочением. Такому упорядочению среди магнитных мод квазиодномерной подсистемы, преобразующихся по тому же двухпараметрическому представлению, что и отвечающие ферромагнитной и антиферромагнитной модам легкоплоскостной трехмерной подсистемы [5], отвечает составленная именно из плоскостных спиновых компонент. Мода же, составленная из продольных компонент, отвечает антиферромагнитному упорядочению в цепочках.

\*Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант 03-02-16701).

© М.А.Попов, Красноярский государственный университет, 2006. E-mail: rsa@iph.krasn.ru; О.А.Болсуновская, Институт физики им. Киренского СО РАН, 2006. E-mail: boa\_77@rambler.ru; Г.А.Петраковский, Институт физики им. Киренского СО РАН, 2006. E-mail: gap@iph.krasn.ru


 Рис. 1: Кристаллическая структура метабората меди  $CuB_2O_4$ 

## 2. Расчет спектра легкоплоскостной модели

Расчет спектров спиновых волн выполнен с учетом только изотропного обменного взаимодействия. Гамильтониан модели имеет соответственно вид:

$$H = \frac{1}{2} \sum_{fg} J_{fg}^b \vec{S}_f^b \vec{S}_g^b + \frac{1}{2} \sum_{fg} J_{fg}^d \vec{S}_f^d \vec{S}_g^d + \frac{1}{2} \sum_{fg} J_{fg}^{bd} \vec{S}_f^b \vec{S}_g^d,$$

где  $J_{fg}^b$  — обменные взаимодействия в трехмерной и  $J_{fg}^d$  — в квазиодномерной подсистемах, а  $J_{fg}^{bd}$  — взаимодействия между ними,  $f$  и  $g$  — положения спинов в решетке. Полагается, что слабые релятивистские взаимодействия, в том числе легкоплоскостная анизотропия, оказывают влияние на неразрешенную методом неупругого рассеяния низкочастотную часть спектра.

Так как в несоизмеримой фазе магнитная структура упорядочена в виде спирали вдоль оси  $c$ , перейдем в локальную для каждого спина систему координат:

$$\begin{aligned} S_f^x &= s_f^x \cos \theta_f \cos \phi_f - s_f^y \sin \phi_f + s_f^z \sin \theta_f \cos \phi_f, \\ S_f^y &= s_f^x \cos \theta_f \sin \phi_f + s_f^y \cos \phi_f + s_f^z \sin \theta_f \sin \phi_f, \\ S_f^z &= -s_f^x \cos \theta_f + s_f^z \cos \theta_f. \end{aligned}$$

Преобразование  $a_f^+ = \sqrt{2S}a_f$ ,  $a_f^- = \sqrt{2S}a_f^-$ ,  $a_f^z = S - a_f^+ a_f^-$  ( $S = 1/2$  для ионов  $Cu^{2+}$ ) позволяет представить гамильтониан в форме, отвечающей приближению невзаимодействующих спиновых волн [3]:

$$H_{sq} = H_0 + H_1 + H_2$$

где  $H_0$ ,  $H_1$  и  $H_2$  — нулевая, линейная и билинейная по операторам рождения и уничтожения бозе-частиц части гамильтониана. Следующие уравнения являются реализацией необходимого условия равновесия магнитной структуры  $H_1 = 0$ :

$$\sum_g J_{fg}^b S_b \sin(\phi_{bf} - \phi_{bg}) + \sin \theta \sum_g J_{fg}^{bd} S_d \sin(\phi_{bf} - \phi_{dg}) = 0 \quad (1)$$

$$\sum_g J_{fg}^{bd} S_b \sin(\phi_{df} - \phi_{bg}) + \sin \theta \sum_g J_{fg}^d S_d \sin(\phi_{df} - \phi_{dg}) = 0 \quad (2)$$

$$\cos \theta \left\{ \sum_g J_{fg}^{bd} S_b \cos(\phi_{df} - \phi_{bg}) + \sin \theta \sum_g J_{fg}^d S_d \cos(\phi_{df} - \phi_{dg}) \right\} = 0 \quad (3)$$

где  $S_b$  — намагниченность спина трехмерной подсистемы,  $S_d$  — намагниченность спина квазиодномерной подсистемы, для трехмерной подсистемы  $\theta_f = \pi/2$  и для квазиодномерной подсистемы  $\theta_f = \pm\theta$ .

Соотношения (1)-(2) описывают связь осей квантования в тетрагональной плоскости и выполняются для плосковолновой спирали  $\theta_f = q \cdot z_f$ , где  $\vec{q}$  — волновой вектор магнитной структуры, для метабората меди параллельный оси с. Соотношение (3) описывает связь этих осей вдоль тетрагональной оси.

Простейшим решением соотношения (3) является не взаимная компенсация параллельных осей с компонент отдельных полей, а отсутствие каждого из них. Такому решению отвечает легкоплоскостная модель  $\theta = \pi/2$  с гамильтонианом

$$H_{sq} = N \left( \frac{1}{2} J_{\vec{q}}^b S_b^2 + \frac{1}{2} J_{\vec{q}}^d S_d^2 + J_{\vec{q}}^{bd} S_b S_d \right) + \frac{1}{2} \sum_{\vec{k}} \vec{a}^+ \hat{A} \vec{a},$$

где

$$J_{\vec{k}} = \sum_f J_{fg} \exp \left( i \vec{k} (\vec{f} - \vec{g}) \right), \quad N = \sum_f 1,$$

$$\vec{a} = (a_{b\vec{k}}, a_{b\vec{k}}^+, a_{d\vec{k}}, a_{d\vec{k}}^+), \quad \hat{A} = \begin{bmatrix} A_{11} A_{12} A_{13} A_{14} \\ A_{12}^* A_{11} A_{14}^* A_{13}^* \\ A_{31} A_{32} A_{33} A_{34} \\ A_{32}^* A_{31}^* A_{34}^* A_{33}^* \end{bmatrix},$$

$$A_{11} = \left( -J_{\vec{q}}^b + \frac{1}{2} J_{\vec{k}}^b + \frac{1}{4} (J_{\vec{k}+\vec{q}}^b + J_{\vec{k}-\vec{q}}^b) \right) S_b - J_{\vec{q}}^{bd} S_d, \quad A_{12} = \left( \frac{1}{2} J_{\vec{k}}^b - \frac{1}{4} (J_{\vec{k}+\vec{q}}^b + J_{\vec{k}-\vec{q}}^b) \right) S_b,$$

$$A_{13} = A_{31}^* = \left( \frac{1}{2} J_{\vec{k}}^{bd} + \frac{1}{4} (J_{\vec{k}+\vec{q}}^{bd} + J_{\vec{k}-\vec{q}}^{bd}) \right) \sqrt{S_b S_d}, \quad A_{14} = A_{32} = \left( \frac{1}{2} J_{\vec{k}}^{bd} - \frac{1}{4} (J_{\vec{k}+\vec{q}}^{bd} + J_{\vec{k}-\vec{q}}^{bd}) \right) \sqrt{S_b S_d},$$

$$A_{33} = -J_{\vec{q}}^{bd} S_b + \left( -J_{\vec{q}}^d + \frac{1}{2} J_{\vec{k}}^d + \frac{1}{4} (J_{\vec{k}+\vec{q}}^d + J_{\vec{k}-\vec{q}}^d) \right) S_d, \quad A_{34} = \left( \frac{1}{2} J_{\vec{k}}^d - \frac{1}{4} (J_{\vec{k}+\vec{q}}^d + J_{\vec{k}-\vec{q}}^d) \right) S_d.$$

Уравнение движения принимает вид:

$$\omega a = [a, H_{sq}].$$

Дальнейшие расчеты сводятся к решению уравнения:

$$\omega^4 + \omega_2 b_2 + b_0 = 0,$$

где

$$b_2 = -A_{11}^2 + A_{12}^2 - 2A_{13}A_{13}^* + 2A_{14}A_{14}^* - A_{33}^2 + A_{34}^2,$$

$$b_0 = -A_{12}A_{13}^*A_{34} - 2A_{11}A_{13}A_{13}^*A_{33} - 2A_{11}A_{14}A_{14}^*A_{33} + 2A_{11}A_{13}^*A_{14}A_{34} + 2A_{11}A_{13}A_{14}^*A_{34} +$$

$$+ A_{13}^2A_{13}^{*2} + A_{12}^2A_{34}^2 - A_{12}^2A_{33}^2 - 2A_{13}A_{13}^*A_{14}A_{14}^* - A_{12}A_{13}^2A_{34} + A_{11}^2A_{33}^2 - A_{11}^2A_{34}^2 -$$

$$- A_{12}A_{14}^2A_{34} - A_{12}A_{14}^*A_{34} + 2A_{12}A_{13}A_{14}A_{33} + 2A_{12}A_{13}^*A_{14}^*A_{33} + A_{14}^2A_{14}^{*2}.$$

### 3. Сравнение с экспериментом

На рис. 2 представлен результат подгонки теоретических спектров к экспериментальным данным по неупругому рассеянию нейтронов в метаборате меди. Здесь волновой вектор  $\vec{k} = [k_1, k_2, k_3] = [k_x a, k_y a, k_z c]/2\pi$ ,  $a$  и  $c$  — параметры ортогональной элементарной ячейки этого кристалла.

Индекс в  $k_{\pm}$  означает смещение волнового вектора  $\vec{k}$  на величину  $\pm\vec{q}$  в дисперсионных соотношениях модулированной спиновой системы магнитных возбуждений. Отклонение теоретических кривых от экспериментальных данных мы объясняем простотой модели.

Константы взаимодействия модели в представлении Фурье оказались равными

$$J_{\vec{k}}^b = 9.2 \left[ \cos \left( \frac{k_1}{2} \right) + \cos \left( \frac{k_2}{2} \right) \right] \cos \left( \frac{k_3}{4} \right) \text{ meV},$$

$$J_{\vec{k}}^d = -12.2 \cos \left( \frac{k_3}{2} \right) - 1.4 \cos(k_3) \text{ meV},$$

$$J_{\vec{k}}^{bd} = 5.8 \cos \left( \frac{k_1}{4} \right) \cos \left( \frac{k_2}{4} \right) \cos \left( \frac{3k_3}{8} \right) \text{ meV}.$$

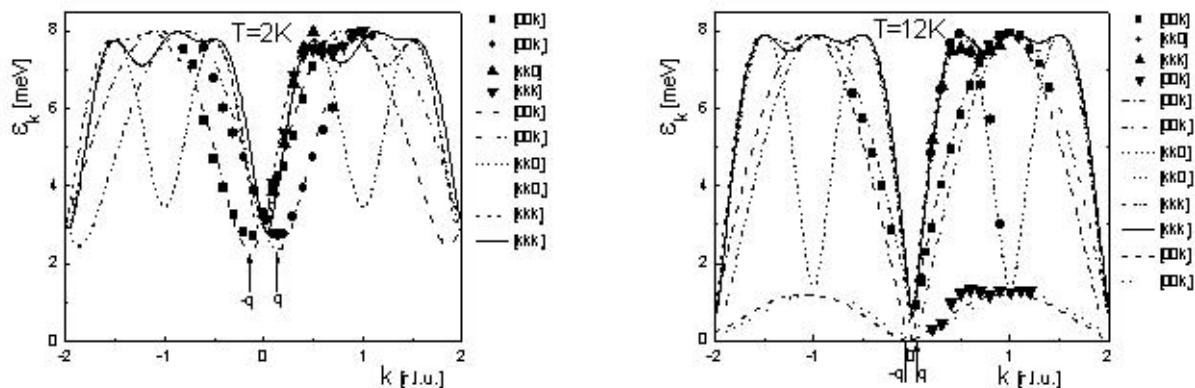


Рис. 2: Спектры возбуждений  $CuB_2O_4$  для различных температур  $T$  и направлений моментов  $\vec{k}$ . Символы — экспериментальные данные, полученные неупругим рассеянием нейтронов [4], линии — результат теоретического анализа

Эти выражения показывают, что спины трехмерной подсистемы взаимодействуют не только с ближайшими соседями, но и с третьими соседями через спины цепочек. Конкуренция между этими взаимодействиями может быть причиной возникновения несоизмерности упорядоченной фазы в метаборате меди.

Особенностью структуры метабората меди является фрустрация магнитных связей между подсистемами в соразмерной фазе — суммарное поле на каждом спине, наведенное антиферромагнитно упорядоченными спинами другой подсистемы, равно нулю. Отсутствие такого поля для одномерной подсистемы означает ее неупорядоченность,  $S_d = 0$ , и соответствующее зануление ее ветви возбуждений в рамках приближений типа Хартри-Фока [3]. Поэтому, как видно на рис. 2, при температуре  $12K$  рассчитанный в приближении невзаимодействующих спиновых волн вектор  $\vec{q}$  не равен нулю, в отличие от данных по упругому рассеянию нейтронов [1,2]. Введение ограничения  $J_{fg}^d > 0$  приводило при подгонке как к существенному росту суммы квадратов разностей экспериментальных и теоретических величин, так и к занулению вектора  $\vec{q}$ .

## Заключение

В настоящей работе проведен расчет спектров спиновых волн легкоплоскостной модели метабората меди  $CuB_2O_4$ . Установлено, что совпадение периодов спектров вдоль тетрагональной оси для квазиодномерных цепочек и трехмерной подсистемы указывает на ферромагнитный порядок внутри цепочек с антиферромагнитным межцепочечным упорядочением. Проведено сравнение с результатами неупругого рассеяния нейтронов, оценены константы обменного взаимодействия. Следует отметить, что оптические измерения, проведенные методом индуцированной магнитным полем второй оптической гармоники [6], подтвердили легкоплоскостное слабоферромагнитное упорядочение трехмерной подсистемы. В то же время в температурной зависимости интенсивности второй оптической гармоники от квазиодномерной подсистемы обнаружен вклад наведенного сильной межподрешеточной связью ферромагнитного упорядочения и индуцированный внешним полем парамагнитный вклад.

## Список литературы

- [1] ROESSLI B. *Formation of a magnetic soliton lattice in copper metaborate* / B.ROESSLI, J.SCHEFER, G.A.PETRAKOVSKII, B.OULADDIAF, M.ВОЕНМ, U.STAUB, A.VOROTINOV, L.BEZMATERNIKH // Phys. Rev. Lett. — 2001. — №86. — P. 1885-1888.
- [2] ВОЕНМ М. *Complex magnetic ground state of  $CuB_2O_4$*  / М.ВОЕНМ, В.ROESSLI, J.SCHEFER, А.С.WILLS, U.STAUB, G.A.PETRAKOVSKII // Phys. Rev. B — 2003. — №68. — P. 024405-024413.
- [3] ТЯБЛИКОВ С.В. *Методы квантовой теории магнетизма* / С.В.ТЯБЛИКОВ. — Москва: Наука, 1975. — 528 с.

- [4] ВОЕНМ М. *Magnetic structures and interactions in the insulating copper-oxygen compound CuB<sub>2</sub>O<sub>4</sub>* / М.ВОЕНМ. – Paul Scherrer Institut CH-5232 Villigen, Switzerland: PhD thesis, 2002.
- [5] ПОПОВ М.А. *Магнитные свойства метабората меди: двухпараметрическая феноменологическая модель* / М.А.ПОПОВ, Г.А.ПЕТРАКОВСКИЙ, В.И.ЗИНЕНКО // ФТТ. – 2004. – №46. – С. 478-483.
- [6] PISAREV R.V. *Magnetic-field induced second harmonic generation in CuB<sub>2</sub>O<sub>4</sub>* / R.V.PISAREV, I.SANGER, G.A.ПЕТРАКОВСКИЙ, M.FIEBIG // Phys. Rev. Lett. – 2004. – №93. – P. 37204-37207.

**MAGNETIC EXCITATIONS SPECTRA AND EASYPLANE MODEL OF THE COPPER METABORATE MAGNETIC STRUCTURE**

**М.А.Попов, О.А.Болсуновская, Г.А.Петраковский**

*The calculation of spin wave spectra of the easy-plane model of CuB<sub>2</sub>O<sub>4</sub> copper metaborate has been made. The coincidence of the spectra periods along the tetragonal c axis for the quasi-one-dimensional chains and the three-dimensional subsystem points out the ferromagnetic order inside the chains with antiferromagnetic inter-chain ordering. The exchange interaction constants were found from the comparison with the inelastic neutron scattering data.*