

ФРУСТРИРОВАННЫЙ АНТИФЕРРОМАГНЕТИЗМ В ДВОЙНОМ ПЕРОВСКИТЕ Sr_2YRuO_6

*Е. В. Кузьмин, С. Г. Овчинников**

*Институт физики им. Л. В. Киренского Сибирского отделения Российской академии наук
660036, Красноярск, Россия*

*Д. Дж. Сингх***

Naval Research Laboratory, Washington DC, USA

Поступила в редакцию 9 декабря 2002 г.

В Sr_2YRuO_6 спины ионов Ru^{5+} образуют гранецентрированную кубическую решетку с антиферромагнитным взаимодействием ближайших соседей $J \approx 25$ мэВ. Экспериментально наблюдаемая ниже температуры Нееля $T_N = 26$ К антиферромагнитная структура первого типа соответствует четырем фрустрированным спинам из 12 ближайших соседей. В модели Гейзенберга в спин-волновом приближении фрустрации приводят к неустойчивости антиферромагнитного состояния уже при $T = 0$, которое стабилизируется за счет слабой анизотропии D или обменного взаимодействия I со вторыми соседями. Экспериментальным значениям T_N и магнитного момента подрешетки соответствуют малые значения $D/J \sim I/J \sim 10^{-3}$.

PACS: 75.10.Jm, 75.50.Ee, 75.30.Ds

1. ВВЕДЕНИЕ

Наряду с купратами и манганитами перовскито-подобные рутенаты вызывают большой интерес исследователей в последние годы. Сначала этот интерес был связан с открытием экзотической сверхпроводимости в Sr_2RuO_4 [1], единственном оксидном сверхпроводнике, изоструктурном купратам и не содержащем меди. Затем оказалось, что другие рутенаты имеют очень интересные магнитные и электрические свойства. В системе $\text{Sr}_{2-x}\text{Ca}_x\text{RuO}_4$ с ростом x наблюдается сложная последовательность структурных фазовых переходов, конкуренция ферромагнитного и антиферромагнитного обменных воздействий и переход металл–диэлектрик Мотта–Хаббарда в Ca_2RuO_4 [2, 3]. Другой рутенат, SrRuO_3 , является единственным металлическим ферромагнетиком с $T_C \approx 165$ К и намагниченностью $m \approx 1.6\mu_B$ на ион Ru среди оксидов $4d$ -металлов [4, 5]. Двойной перовскит Sr_2YRuO_6 имеет структуру эльпасолита, которая может быть получена из SrRuO_3 замещением каждого второго иона Ru на немагнитный Y, и ниже $T_N = 26$ К

ГЦК-решетка спинов Ru^{5+} упорядочивается с антиферромагнитной структурой первого типа [6, 7]. В этой структуре ферромагнитные плоскости (001) упорядочены антипараллельно вдоль оси c .

Одна из причин нашего интереса к магнитным свойствам Sr_2YRuO_6 — это малые значения T_N и магнитного момента подрешетки $m = 1.85\mu_B$ на ион Ru по сравнению с величинами обменного интеграла $J \approx 25$ мэВ и номинальным значением $m(S = 3/2) = 3\mu_B$ на ион Ru для d^3 -конфигурации Ru^{5+} . Здесь величина m измерена методом нейтронной дифракции [6, 7] и J рассчитана теоретически в работе [8]. Другая причина интереса к двойному перовскиту состоит в том, что допирование Sr_2YRuO_6 медью приводит к появлению сверхпроводимости с $T_c \approx 50$ К [9, 10]. Изучение возможного магнитного механизма сверхпроводимости в такой системе требует понимания магнитных свойств недопированного Sr_2YRuO_6 .

Ранее была предпринята попытка объяснить малость T_N за счет эффектов фрустраций в рамках модели Изинга, однако подавление T_N в модели Изинга оказалось слишком слабым [8]. В настоящей работе мы показываем, что основной эффект вносят

*E-mail: sgo@iph.krasn.ru

**D. J. Singh

флуктуации поперечных компонент спина в рамках модели Гейзенберга. При учете только ближайших соседей в спин-волновом приближении антиферромагнитное состояние оказывается неустойчивым, и для его стабилизации необходимо учитывать обмен со вторыми соседями I либо анизотропию D . Как показали наши расчеты, для получения наблюдаемых значений T_N и магнитного момента достаточно очень малых значений $I/J \sim D/J \sim 10^{-3}$.

2. ОСОБЕННОСТИ СТРУКТУРЫ И ОБМЕННОГО ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ В Sr_2YRuO_6

Специфика структуры Sr_2YRuO_6 такова, что соседние октаэдры RuO_6 не имеют общих анионов в отличие от других рутенатов и купратов (рис. 1), поэтому оправдан кластерный подход к описанию магнитной структуры, подобно тому как электронная структура Sr_2YRuO_6 в зонных расчетах из первых принципов хорошо моделируется системой кластеров RuO_6 , формирующих ГЦК-решетку [8]. С магнитной точки зрения замещение магнитного иона Ru^{5+} на немагнитный Y^{3+} есть диамагнитное замещение, поэтому ГЦК-решетка спинов в Sr_2YRuO_6 может рассматриваться как результат диамагнитного разбавления спинов в перовските SrRuO_3 с концентрацией немагнитных вакансий 0.5 и пространственным упорядочением вакансий (рис. 1б). Наличие вакансий существенно изменяет обменное взаимодействие соседних спинов Ru. В то время как для SrRuO_3 характерно ферромагнитное обменное взаимодействие, в Sr_2RuO_4 имеется сильная конкуренция ферромагнитного и антиферромагнитного взаимодействий [11], в $\text{Sr}_{2-x}\text{Ca}_x\text{RuO}_4$ тенденция к антиферромагнетизму растет с ростом x (см. обсуждение результатов в обзоре [12]), в Sr_2YRuO_6 имеется силь-

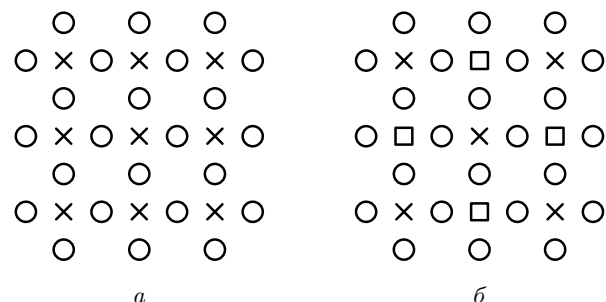


Рис. 1. Упорядоченное диамагнитное замещение каждого второго иона Ru на ион Y в SrRuO_3 (а) приводит к решетке Sr_2YRuO_6 (б): \times — Ru, \circ — O, \square — Y

ное антиферромагнитное взаимодействие. Таким образом, в различных рутенатах обменное взаимодействие сильнее варьируется по сравнению с купратами, где взаимодействие всегда носит антиферромагнитный характер.

Причиной большого разнообразия обменных взаимодействий в рутенатах является специфика электронной структуры, формируемой $(t_{2g} - p)$ - π -связями. Орбитальное вырождение t_{2g} -состояний приводит к пересекающимся трем зонам на уровне Ферми и металлическому состоянию недопированных SrRuO_3 и Sr_2RuO_4 . Оценка корреляционных эффектов в SrRuO_3 и Sr_2RuO_4 показывает, что в них имеет место режим промежуточных корреляций $U \leq W$, где U — кулоновский параметр Хаббарда, а $W = z|t|$ — полуширина зоны [12]. За счет диамагнитного разбавления при построении структуры Sr_2YRuO_6 интеграл перескока Ru–Ru между ближайшими соседями t резко подавляется, и это вещество попадает в режим сильных электронных корреляций с диэлектрическим основным состоянием. В нулевом приближении по перескоку t имеем систему независимых RuO_6 -кластеров.

Рассмотрим электронную структуру RuO_6 -кластера. Кристаллическое поле расщепляет $4d$ -уровень Ru на t_{2g} - и e_g -подуровни. Кислородные p -орбитали участвуют в $pd\pi$ -связи и $pd\sigma$ -связи с Ru. Подробный расчет молекулярных орбиталей и их сравнение с расчетом из первых принципов методом линейных присоединенных плоских волн (LAPW) дан в [8], здесь мы приведем лишь необходимые для анализа обменных взаимодействий результаты. После включения p - d -перескоков Ru–O внутри кластера получают следующие кластерные молекулярные орбитали: 13 несвязующих молекулярных орбиталей, $4 \times E_0(p_\sigma) + 9 \times E_0(p_\pi)$; 5 связующих, $2 \times E_-(E_g) + 3 \times E_-(T_{2g})$; 5 антисвязующих молекулярных орбиталей, $2 \times E_+(E_g) + 3 \times E_+(T_{2g})$. Здесь E_0 — ионные уровни, а энергии связующих и антисвязующих термов равны

$$\begin{aligned}
 E_{\pm}(E_g) &= 0.5 \left\{ E_0(p_\sigma) + E_0(e_g) \pm \right. \\
 &\quad \left. \pm \left[(E_0(p_\sigma) - E_0(e_g))^2 + 16t_\sigma^2 \right]^{1/2} \right\}, \\
 E_{\pm}(T_{2g}) &= 0.5 \left\{ E_0(p_\pi) + E_0(t_{2g}) \pm \right. \\
 &\quad \left. \pm \left[(E_0(p_\pi) - E_0(t_{2g}))^2 + 16t_\pi^2 \right]^{1/2} \right\}.
 \end{aligned}
 \tag{1}$$

Порядок уровней определяется условиями

$$E_-(T_{2g}) \approx E_-(E_g) < E_0(p_\sigma) < E_0(p_\pi) < < E_+(T_{2g}) < E_+(E_g),$$

а их заполнение 39 валентными электронами таково, что 36 электронов заполняют полностью молекулярные орбитали $E_-(T_{2g})$, $E_-(E_g)$, $E_0(p_\sigma)$, $E_0(p_\pi)$. Оставшиеся три электрона заполняют три $E_+(T_{2g})$ -орбитали с параллельными спинами, формируя высокоспиновое состояние $S = 3/2$. Симметрия T_{2g} молекулярных орбиталей в данном случае совпадает с симметрией атомных t_{2g} -орбиталей Ru.

Истинная кристаллическая решетка Sr_2YRuO_6 несколько сложнее, чем показано на рис. 1, и характеризуется разворотами RuO_6 -кластеров на угол $\varphi \approx 12^\circ$. Эти развороты приводят к моноклинной симметрии $P21/n$. Однако при анализе обменных взаимодействий ограничимся неискаженной структурой (рис. 1). Поправки от искажений оценивались в [8] и оказались малыми. С точки зрения механизма косвенного обменного взаимодействия обмен между ближайшими соседями J формируется связью Ru–O–O–Ru. Однако в терминах молекулярных орбиталей та же самая связь соседних кластеров RuO_6 обеспечивается xy - xy -перескоком с амплитудой $\tau_\sigma = 0.75t_{dd\sigma}$.

Возникающая обменная энергия на кластер может быть оценена как $2J_0 \sim \tau_\sigma^2/\Delta$, где Δ — величина обменного расщепления T_{2g} молекулярных орбиталей. Оценки параметров τ_σ и Δ из LAPW-расчетов в [8] приводят к величине $2J_0 \approx 0.05$ эВ, такое значение J соответствует также разности энергий на кластер ферромагнитного и антиферромагнитного состояний в спин-поляризованных расчетах [8]. Без учета разворотов октаэдров эта разность равняется 0.12 эВ, а с учетом моноклинного искажения решетки получается 0.095 эВ.

Магнитные свойства системы локализованных спинов будем описывать в изотропной модели Гейзенберга с гамильтонианом

$$H = -\frac{1}{2} \sum_{f,R} J(R) \mathbf{S}_f \cdot \mathbf{S}_{f+R}, \quad (2)$$

$$J(\mathbf{R}) = J(-\mathbf{R}), \quad J(0) = 0.$$

В ГЦК-решетке имеется $z = 12$ ближайших соседей с обменом $J(\mathbf{R}_1) = -J$. Учтем также обмен со следующими за ближайшими соседями спинами $J(R_2) = I$, предполагая для них ферромагнитный обмен. Обмен для следующих за бли-

жайшими соседями спинов возникает как связь Ru–O–O–Ru–O–O–Ru и может быть оценен как

$$I \sim \tau_\sigma^4/\Delta^3 \leq 10^{-2} J_0.$$

Для описания антиферромагнитного состояния введем подрешетки A (узлы α) со спином вверх и B (узлы β) со спином вниз, $\langle S_A^z \rangle = -\langle S_B^z \rangle \equiv \mathbf{S}$, где намагниченность подрешетки зависит от температуры. Для антиферромагнитного состояния первого типа имеем ферромагнитно упорядоченные плоскости xy с антиферромагнитным упорядочением плоскостей. Пусть параметр решетки $a = 1$, тогда векторы $\mathbf{R}_1 \equiv \Delta$, соединяющие ближайших соседей, имеют длину $\Delta = 1/\sqrt{2}$, а векторы $\mathbf{R}_2 \equiv \mathbf{a}$ имеют длину $a = 1$. Векторы Δ разобьем на две группы: в плоскостях xy \mathbf{d} и межплоскостные δ :

$$\mathbf{d} = \left(\pm \frac{1}{2}, \pm \frac{1}{2}, 0 \right) (xy),$$

$$\delta_1 = \left(0, \pm \frac{1}{2}, \pm \frac{1}{2} \right) (yz), \quad \delta_2 = \left(\pm \frac{1}{2}, 0, \pm \frac{1}{2} \right) (xz).$$

Распределение средних $\langle S_f^z \rangle$ в этой модели задается следующим образом:

$$\begin{aligned} \langle S_\alpha^z \rangle &= \mathbf{S}, & \langle S_{\alpha+\mathbf{d}}^z \rangle &= \mathbf{S}, & \langle S_{\alpha+\delta}^z \rangle &= -\mathbf{S}, \\ \langle S_{\alpha+\mathbf{a}}^z \rangle &= \mathbf{S}, & \langle S_\beta^z \rangle &= -\mathbf{S}, & \langle S_{\beta+\mathbf{d}}^z \rangle &= -\mathbf{S}, \\ \langle S_{\beta+\delta}^z \rangle &= \mathbf{S}, & \langle S_{\beta+\mathbf{a}}^z \rangle &= -\mathbf{S}. \end{aligned} \quad (3)$$

Ферромагнитный порядок в xy -плоскости приводит к тому, что все 4 антиферромагнитные связи в плоскости фрустрированы (энергетически невыгодны). Однако 8 межплоскостных антиферромагнитных связей дают выигрыш в энергии антиферромагнитного состояния. Так что даже в приближении молекулярного поля фрустрации понижают величину среднего поля, действующего на спин. Без учета фрустраций среднее поле $\bar{h} = 2J\bar{S} = 12J\bar{S}$, с учетом фрустраций $\bar{h} = 4J\bar{S}$. Без учета фрустраций в приближении среднего поля $T_N^{MF} = zJS(S+1)/3$, что намного выше наблюдаемой в эксперименте T_N . Понижение T_N в 3 раза за счет фрустраций в приближении молекулярного поля не решает проблемы. Аналогичный результат имеется и для модели Изинга: фрустрации понижают T_N [13]. Однако ее значение (700–900 К [8]) по-прежнему велико по сравнению с экспериментальным. Для учета флуктуаций поперечных компонент спина в следующем разделе мы рассмотрим спин-волновую теорию фрустрированного антиферромагнетика.

3. СПИН-ВОЛНОВАЯ ТЕОРИЯ ФРУСТРИРОВАННОГО АНТИФЕРРОМАГНЕТИКА НА ГЦК-РЕШЕТКЕ

Точное уравнение движения ($\hbar = 1$) для S_f^+ ли-
неаризуется в приближении Тябликова:

$$i\dot{S}_f^+ \approx \sum_R J(\mathbf{R}) (\langle S_{f+\mathbf{R}}^z \rangle S_f^+ - \langle S_f^z \rangle S_{f+\mathbf{R}}^+). \quad (4)$$

Удобно перейти к безразмерному гамильтониану
 $h = H/zJ$, тогда для антиферромагнитного состо-
яния первого типа с учетом соотношений (3) урав-
нения (4) могут быть записаны в виде ($\lambda = I/J$)

$$\begin{aligned} i\dot{S}_\alpha^+ &= \frac{\bar{S}}{z} \left[\sum_{\mathbf{d}} (S_{\alpha+\mathbf{d}}^+ - S_\alpha^+) + \sum_{\delta} (S_{\alpha+\delta}^+ + S_\alpha^+) \right] + \\ &\quad + \frac{\lambda \bar{S}}{2z_2} \sum_{\mathbf{a}} (S_\alpha^+ - S_{\alpha+\mathbf{a}}^+), \\ i\dot{S}_\beta^+ &= -\frac{\bar{S}}{z} \left[\sum_{\mathbf{d}} (S_{\beta+\mathbf{d}}^+ + S_\beta^+) + \sum_{\delta} (S_{\beta+\delta}^+ - S_\beta^+) \right] - \\ &\quad - \frac{\lambda \bar{S}}{2z_2} \sum_{\mathbf{a}} (S_\beta^+ - S_{\beta+\mathbf{a}}^+). \end{aligned} \quad (5)$$

Выполняя фурье-преобразование по подрешеткам

$$\begin{aligned} S_A^+(\mathbf{q}) &= \sqrt{2/N} \sum_{\alpha} S_\alpha^+ \exp(i\mathbf{q} \cdot \alpha), \\ S_B^+(\mathbf{q}) &= \sqrt{2/N} \sum_{\beta} S_\beta^+ \exp(i\mathbf{q} \cdot \beta), \end{aligned}$$

получаем

$$\begin{aligned} i\dot{S}_A^+(\mathbf{q}) &= \bar{S}(\alpha_q S_A^+(\mathbf{q}) + \beta_q S_B^+(\mathbf{q})), \\ i\dot{S}_B^+(\mathbf{q}) &= -\bar{S}(\alpha_q S_B^+(\mathbf{q}) + \beta_q S_A^+(\mathbf{q})), \end{aligned} \quad (6)$$

где

$$\begin{aligned} \alpha_q &= 0.33(1 + c_x c_y) + 0.5\lambda(1 - \gamma_q), \\ \beta_q &= 0.33(c_x + c_y)c_z, \\ c_i &= \cos(q_i/2), \quad i = x, y, z, \\ \gamma_q &= 0.33(\cos q_x + \cos q_y + \cos q_z). \end{aligned}$$

Для расчета термодинамических свойств используем двухвременные запаздывающие коммутаторные функции Грина при конечных температурах

$$\langle \langle S_F^+(\mathbf{q}) | S_G^-(\mathbf{q}) \rangle \rangle_\omega = G_{FG}(\mathbf{q}, \omega).$$

Здесь подрешеточные индексы « F », « G » принимают два значения A, B . Для простоты ограничимся спином $S = 1/2$. Конечно, можно построить

спин-волновую теорию и для произвольной величины спина S , в том числе $S = 3/2$ для Sr_2YRuO_6 , однако такая теория будет более громоздкой, а основные результаты для \bar{S} и T_N будут различаться несущественными множителями типа $S(S+1)$. На основе уравнений движения (6) легко получить соответствующие функции Грина:

$$\begin{aligned} G_{AA} &= \frac{2\bar{S}(\omega + \bar{S}\alpha_q)}{D(\mathbf{q}, \omega)}, \quad G_{BB} = \frac{2\bar{S}(\omega - \bar{S}\alpha_q)}{D(\mathbf{q}, \omega)}, \\ G_{AB} &= G_{BA} = -\frac{2\bar{S}^2\beta_q}{D(\mathbf{q}, \omega)}, \end{aligned} \quad (7)$$

$$\begin{aligned} D(q, \omega) &= \omega^2 - \Omega_q^2, \quad \Omega_q = \bar{S}\varepsilon_q, \\ \varepsilon_q &= (\alpha_q^2(\lambda) - \beta_q^2)^{1/2}. \end{aligned} \quad (8)$$

Стандартным образом находим спектральную плотность

$$\begin{aligned} n_{AA}(\mathbf{q}, \omega) &= -\frac{1}{\pi} \text{Im} G_{AA}(\mathbf{q}, \omega) = \\ &= \bar{S} \left[\left(1 + \frac{\alpha_q}{\varepsilon_q} \right) \delta(\omega - \Omega_q) \right] \end{aligned}$$

и поперечный спиновый коррелятор

$$\begin{aligned} C_{AA}(q) &= \langle S_A^+(q) S_A^-(\mathbf{q}) \rangle = \\ &= \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\exp(\omega/\tau)}{\exp(\omega/\tau) - 1} n_{AA}(\mathbf{q}, \omega) d\omega = \\ &= \bar{S} \left(1 + \frac{\alpha_q}{\varepsilon_q} \text{cth} \frac{\Omega_q}{2\tau} \right). \end{aligned} \quad (9)$$

Здесь $\tau = T/zJ$ — безразмерная температура. Для $S = 1/2$

$$\frac{2}{N} \sum_q C_{AA}(q) = \frac{2}{N} \sum_{\alpha} \langle S_\alpha^+ S_\alpha^- \rangle = \frac{1}{2} + \bar{S}, \quad (10)$$

так что уравнение для параметра порядка \bar{S} может быть представлено в виде

$$\bar{S}(\tau) = \frac{1/2}{I(\tau)}, \quad I(\tau) = \frac{2}{N} \sum_q \frac{\alpha_q}{\varepsilon_q} \text{cth} \frac{\bar{S}(\tau)\varepsilon_q}{2\tau}. \quad (11)$$

При $\tau = 0$ гиперболический котангенс равен единице, так что

$$\bar{S}(0) = \frac{0.5}{I_1(\lambda)}, \quad I_1(\lambda) = 2N^{-1} \sum_q \frac{\alpha_q(\lambda)}{\varepsilon_q(\lambda)}. \quad (12)$$

В другом пределе, $\tau \rightarrow \tau_N$, $\bar{S} \rightarrow 0$ ($\text{cth} x \rightarrow 1/x$ при $x \rightarrow 0$), из (11) получаем выражение для температуры Нееля:

$$\tau_N = \frac{1}{4} I_2(\lambda), \quad I_2(\lambda) = 2N^{-1} \sum_q \frac{\alpha_q(\lambda)}{\varepsilon_q^2(\lambda)}. \quad (13)$$

Рассмотрим подинтегральное выражение в I_1 и I_2 в окрестности точек зоны Бриллюэна $\Gamma = (0, 0, 0)$ и $X = (0, 0, 2\pi)$. В окрестности точки Γ можно записать

$$\alpha_q \approx \frac{1}{3} \left[2 - \frac{q_x^2 + q_y^2}{8} + \frac{\lambda q^2}{4} \right], \quad q^2 = q_x^2 + q_y^2 + q_z^2,$$

$$\beta_q \approx \frac{1}{3} \left[2 - \frac{q_x^2 + q_y^2}{8} - \frac{q_z^2}{4} \right], \quad \varepsilon_q^2 = \frac{q_z^2 + \lambda q^2}{9}$$

и под интегралом I_1 получаем

$$\frac{\alpha_q(\lambda)}{\varepsilon_q(\lambda)} = \frac{2 - (q_x^2 + q_y^2)/8 + \lambda q^2/4}{(q_z^2 + \lambda q^2)^{1/2}}. \quad (14)$$

При учете только обмена J между ближайшими соседями спектр $\lambda = 0$ становится в окрестности точки Γ одномерным с выделенным направлением z , вдоль которого чередуются спины слоев A и B . При $\lambda = 0$ интеграл I_1 логарифмически расходится, что означает $\bar{S}(0) \rightarrow 0$, т. е. неустойчивость антиферромагнитного состояния уже при $T = 0$. Интеграл I_2 в окрестности точки Γ ведет себя как $\int dq_z/q_z^2 \propto 1/q$, т. е. расходится степенным образом. В результате $T_N \rightarrow 0$. В окрестности точки X поведение интегралов I_1 и I_2 точно такое же. Таким образом, при учете только обмена ближайших соседей J эффект фрустраций настолько велик, что антиферромагнитное состояние полностью подавляется. Это и есть, по нашему мнению, основная причина малости T_N и \bar{S} в Sr_2YRuO_6 . Стабилизация антиферромагнитного состояния возможна как за счет обмена для следующих за ближайшими соседями спинов I , так и за счет анизотропии.

4. СТАБИЛИЗАЦИЯ АНТИФЕРРОМАГНИТНЫХ СОСТОЯНИЙ ЗА СЧЕТ ОБМЕНА СО ВТОРЫМИ СОСЕДЯМИ

Факт неустойчивости антиферромагнитного состояния в ГЦК-решетке известен очень давно в рамках как спин-волнового, так и кластерного приближения Бете–Пайерлса–Вейса [14–16]. В работах [17, 18] подробно рассмотрена стабилизация антиферромагнитного состояния за счет обмена со вторыми соседями. Ферромагнитный обмен I стабилизирует антиферромагнитную фазу первого типа, которая и наблюдается в Sr_2YRuO_6 , антиферромагнитный обмен I стабилизирует фазу третьего типа. Температура Нееля как функция отношения $\lambda = I/J$ в работах [17, 18] находилась только численно, графики $T_N(\lambda)$ с характерной неаналитической

зависимостью при $\lambda \rightarrow 0$ похожи на график $T_N(D)$ (см. ниже рис. 4). В то же время в работах [17, 18] утверждается, что анизотропия обменного взаимодействия сама по себе, без учета обмена I , не способна стабилизировать антиферромагнитное состояние первого типа. Это утверждение противоречит нашим результатам. Действительно, анизотропия создает щель в спектре магнонов, которая и обрезает расходимости при $\lambda \rightarrow 0$. Подробнее этот вопрос мы рассмотрим в следующем разделе.

5. СТАБИЛИЗАЦИЯ АНТИФЕРРОМАГНИТНОГО СОСТОЯНИЯ ЗА СЧЕТ АНИЗОТРОПИИ

Развороты октаэдров и моноклинное искажение решетки в Sr_2YRuO_6 могут привести к двум видам анизотропии: одноионной анизотропии типа DS_z^2 или анизотропии обменного взаимодействия. В нашей упрощенной модели с $S = 1/2$ одноионная анизотропия отсутствует, поэтому мы рассмотрим обменную анизотропию. В этом случае гамильтониан системы может быть записан в виде

$$H = -\frac{1}{2} \sum_{f,R} J(R) (S_f^+ S_{f+R}^- + \xi_R S_f^z S_{f+R}^z), \quad \xi_R \neq 1.$$

Теперь уравнение (4) трансформируется в следующее:

$$i\dot{S}_f^+ \approx \sum_R J(\mathbf{R}) (\xi_{\mathbf{R}} \langle S_{f+\mathbf{R}}^z \rangle S_f^z - \langle S_f^z \rangle S_{f+\mathbf{R}}^+).$$

В простейшем случае достаточно учесть анизотропию обмена для ближайших соседей, пренебрегая анизотропией обменов для следующих за ближайшими соседями спинов, т. е. полагаем

$$\xi_{\Delta} = 1 + D, \quad \xi_a = 1,$$

где D — безразмерный параметр анизотропии. Ввиду малости искажений в решетке можно полагать $D \ll 1$. Спин-волновая теория, описанная в разд. 3, без труда обобщается на анизотропный случай. После перенормировки функции $\alpha_q \rightarrow \alpha_q(D)$,

$$\alpha_q(\lambda, D) = 0.33(1 + D + c_x c_y) + 0.5\lambda(1 - \gamma_d), \quad (15)$$

$$\varepsilon_q(D) = (\alpha_q^2(\lambda, D) - \beta_q^2)^{1/2},$$

все остальные соотношения разд. 3 сохраняются. Параметр порядка при $T = 0$ равен

$$\bar{S}(\lambda, D) = \frac{0.5}{I_1(\lambda, D)},$$

$$I_1(\lambda, D) = \frac{2}{N} \sum_q \frac{\alpha_q(\lambda, D)}{\varepsilon_q(\lambda, D)}. \quad (16)$$

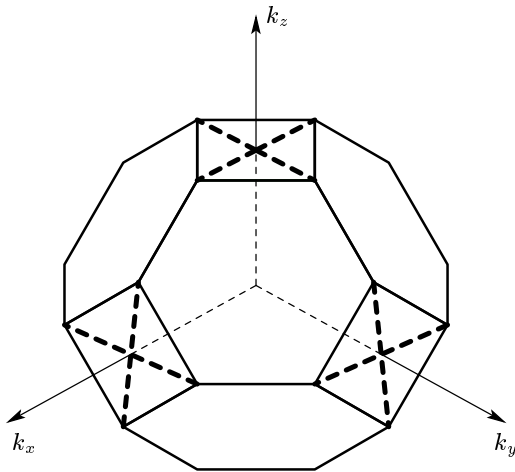


Рис. 2. Зона Бриллюэна гранецентрированной кубической решетки. Квадратами выделены опасные направления, приводящие к расходимостям магнитного момента и температуры Нееля

Для температуры Нееля получаем

$$\begin{aligned} \tau_N(\lambda, D) &= \frac{0.25}{I_2(\lambda, D)}, \\ I_2(\lambda, D) &= \frac{2}{N} \sum_q \frac{\alpha_q(\lambda, D)}{\varepsilon_q^2(\lambda, D)}. \end{aligned} \quad (17)$$

При $\lambda = 0$ и $D \rightarrow 0$ оба интеграла I_1 и I_2 расходятся, приводя к равенствам $\bar{S} = 0$ и $\tau_N = 0$. Таким образом, анизотропия сама по себе, в отсутствие обмена для следующих за ближайшими соседями спинов, стабилизирует антиферромагнитное состояние в ГЦК-решетке.

Для выделения расходящихся асимптотик аналитически вычислялись вклады в окрестности опасных точек Γ и X зоны Бриллюэна (см. рис. 2). Введем следующие обозначения для точек высокой симметрии:

$$\begin{aligned} \Gamma(0, 0, 0), & \quad L = (\pi, \pi, \pi), & \quad K = (3\pi/2, 3\pi/2, 0), \\ Z(0, 0, 2\pi), & \quad W_1(\pi, 0, 2\pi), & \quad W_2 = (0, \pi, 2\pi), \\ X = (2\pi, 0, 0), & \quad \tilde{W}_1 = (2\pi, \pi, 0), & \quad \tilde{W}_2 = (2\pi, 0, \pi), \\ Y = (0, 2\pi, 0), & \quad \tilde{W}_1^* = (\pi, 2\pi, 0), & \quad \tilde{W}_2^* = (0, 2\pi, \pi). \end{aligned}$$

Вдоль ряда направлений в зоне Бриллюэна, выделенных на рис. 2 квадратами, $\varepsilon_q = 0$ при $D = \lambda = 0$. Некоторые точки из этой совокупности являются опасными в том смысле, что интегралы I_1 и I_2 при $D = \lambda = 0$ расходятся. Далее в этом разделе ограничимся исследованием роли анизотропии D , полагая $\lambda = 0$.

В окрестности точки Γ выделим малый объем $v = (\pi/4)^3$ (напомним, что общий объем зоны Бри-

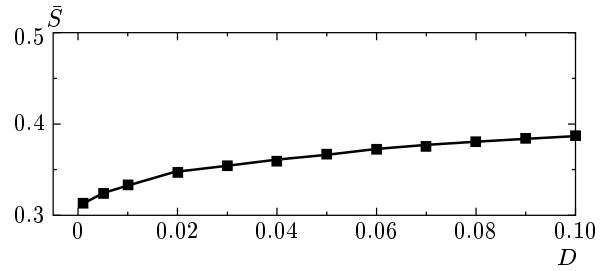


Рис. 3. Зависимость магнитного момента подрешетки \bar{S} от величины обменной анизотропии D

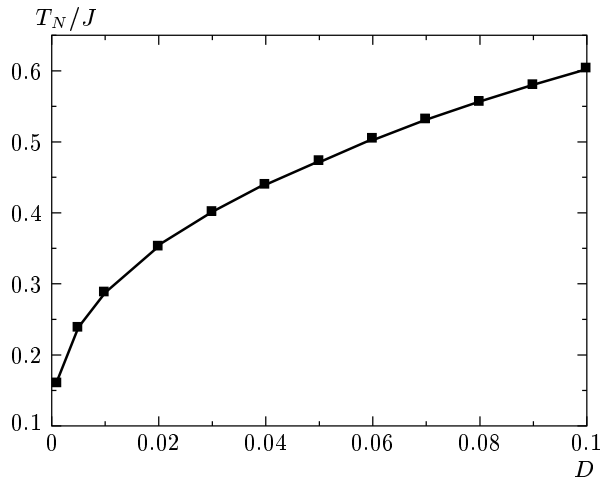


Рис. 4. Зависимость температуры Нееля от величины обменной анизотропии D

люэна $32\pi^3$), все интегралы, нормированные на объем v , будем обозначать \tilde{I} . Разлагая все косинусы в ряд, путем несложных вычислений можно аналитически выделить расходящиеся при $D \rightarrow 0$ вклады. Так, для I_1 получаем

$$\tilde{I}_1(D) \approx 0.5 \ln D - 1.9,$$

а для интеграла \tilde{I}_2 находим

$$\tilde{I}_2(D) \approx 12/\sqrt{D}.$$

Аналогичные асимптотики ($\ln D$ для I_1 и \sqrt{D} для I_2) можно получить и для других опасных точек зоны Бриллюэна, в результате находим $\bar{S}(D)$ и $T_N(D)/J$.

На рис. 3 и 4 показаны зависимости $\bar{S}(D)$ и $T_N(D)/J$ при $\lambda = 0$. Кривые, обозначенные квадратами, описываются аппроксимациями

$$\bar{S}(D) \approx \frac{1/2}{0.043 \ln D + 1.256}, \quad (18)$$

$$T_N(D) = J \begin{cases} 4\sqrt{D} / (1 + 4\sqrt{D}), & 0 < D < 0.05, \\ 0.342 + 2.6D, & 0.05 < D < 0.1. \end{cases} \quad (19)$$

6. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Наши результаты построены на исследовании приближения Тябликова, которое по существу является вариантом приближения среднего поля. Однако в отличие от тривиального среднего поля Вейсса, когда $J_{ij}\mathbf{S}_i\mathbf{S}_j \rightarrow J_{ij}\langle S_i^z \rangle S_j^z$, и которое не зависит от размерности пространства, приближение Тябликова учитывает поперечные флуктуации спиновой плотности в виде коллективных возбуждений — спиновых волн. В результате приближение Тябликова дает ответ об отсутствии дальнего порядка при конечных температурах в одномерных и двумерных системах в согласии с точной теоремой Мермина–Вагнера [17, 18]. Пока в системе есть дальний магнитный порядок и спиновые флуктуации при низких температурах могут быть описаны в теоремах спиновых волн, мы можем надеяться на то, что результаты приближения Тябликова, по крайней мере, качественно соответствуют эксперименту.

Отметим, что стабилизация антиферромагнитного состояния первого типа имеет место не для всяких знаков обмена и анизотропии, а только для ферромагнитного обмена для следующих за ближайшими соседями спинов I и анизотропии $D > 0$. Действительно, ферромагнитный обмен I препятствует фрустрациям и является внутривузловым. Напротив, антиферромагнитный обмен для следующих за ближайшими соседями спинов только усиливал бы эффект фрустраций. Что касается анизотропии, $D > 0$ означает анизотропию изинговского типа, $J_{\parallel} > J_{\perp}$. В пределе $D \rightarrow \infty$ можно пренебречь поперечными компонентами спина и получаем модель Изинга, для которой фрустрации частично подавляют антиферромагнитную фазу, но T_N и \bar{S} остаются конечными [13]. Для всех значений $D > 0$ в спектре магнонов появляется щель, что и стабилизирует антиферромагнитную фазу. Для $D < 0$ спектр магнонов $\varepsilon_q(D)$ становится мнимым при некоторых волновых векторах, что свидетельствует о неустойчивости антиферромагнитной фазы. При $D = 0$ антиферромагнитное состояние с дальним порядком неустойчиво и сменяется состоянием с ближайшим порядком типа спиновой жидкости [19, 20].

При сравнении наших расчетов с экспериментальными данными для Sr_2YRuO_6 следует иметь в

виду, что моноклинное искажение решетки и величина спина $\bar{S} = 3/2$ могут привести не только к обменной, но и к одноионной анизотропии. Возможен также и анизотропный обмен Дзялошинского–Мория. Ясно, что все анизотропные взаимодействия малы по сравнению с J , поэтому для качественного сопоставления с экспериментом ограничимся учетом обменной анизотропии с $D \ll J$. Как видно из формул (18), (19), для $T_N = 30$ К и $J = 300$ К необходимо, чтобы выполнялось условие $D = 8 \cdot 10^{-4}$. Это означает, что анизотропия обмена $J_{\parallel} - J_{\perp} = DJ = 0.24$ К крайне мала. При такой анизотропии

$$\bar{S}(8 \cdot 10^{-4}) = 0.32,$$

что составляет 64 % от номинального спина и очень хорошо согласуется с нейтронными данными по магнитному моменту рутения.

В заключение отметим, что фрустрации в ГЦК-системе с обменным взаимодействием ближайших соседей приводят к мягким магнонным модам вдоль ряда направлений в зоне Бриллюэна. В частности, в окрестности точки Γ спектр становится одномерным, поэтому неудивительны расходимости в спин-волновой теории, подобные расходимостям в низкоразмерных системах. Уже очень малых возмущений в виде ферромагнитного обмена для следующих за ближайшими соседями спинов или обменной анизотропии изинговского типа достаточно для стабилизации антиферромагнитного состояния.

Один из авторов (С. Г. Овчинников) благодарит Naval Research Laboratory за финансовую поддержку во время визита в отдел теории сложных систем в августе 2001 года, где была начата настоящая работа, И. И. Мазина и других сотрудников отдела за гостеприимство.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (грант № 00-02-16110), РФФИ-ККФН «Енисей» (грант № 02-02-97705), ИНТАС (грант № 01-0654), а также в рамках программы РАН «Квантовая макрофизика».

ЛИТЕРАТУРА

1. Y. Maeno, H. Nishimoto, K. Yoshida, S. Nishizaki, T. Fujita, J. G. Bednorz, and F. Lichtenberg, *Nature* **372**, 532 (1994).
2. S. Nakatsuji and Y. Maeno, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 2666 (2000).
3. S. Nakatsuji and Y. Maeno, *Phys. Rev. B* **62**, 6458 (2000).

4. J. J. Randall, Ward, J. Amer. Chem. Soc. **81**, 2629 (1959).
5. J. M. Longo, P. M. Raccah, and J. B. Goodenough, J. Appl. Phys. **39**, 1327 (1968).
6. P. D. Battle and W. J. Macklin, J. Sol. St. Chem. **54**, 245 (1984).
7. G. Cao, Y. Xin, C. S. Alexander, and J. E. Crow, Phys. Rev. B **63**, 184432 (2001).
8. I. I. Mazin and D. J. Singh, Phys. Rev. B **56**, 2556 (1997).
9. M. K. Wu, D. Y. Chen, F. Z. Chein, S. R. Sheen, D. C. Ling, C. Y. Tai, G. Y. Tseng, D. H. Chen, and F. C. Zhang, Z. Phys. B **102**, 37 (1997).
10. H. A. Blackstead, *Abstract of the International Conference «Modern Problems of Superconductivity»*, Yalta, Ukraine, 9–14 September (2002).
11. I. I. Mazin and D. J. Singh, Phys. Rev. Lett. **82**, 4324 (1999).
12. С. Г. Овчинников, УФН **173**, 27 (2003).
13. R. Liebmann, *Statistical Mechanics of Periodic Frustrated Ising Systems*, Springer, Berlin (1986).
14. Y. Y. Li, Phys. Rev. **84**, 721 (1951).
15. J. M. Ziman, Proc. Roy. Soc. London A **66**, 89 (1953).
16. D. ter Haar and M. E. Lines, Phil. Trans. A **255**, 1 (1962).
17. M. E. Lines, Proc. Roy. Soc. **271**, 105 (1963).
18. M. E. Lines, Phys. Rev. A **135**, 1336 (1964).
19. H. Shimara and S. Takida, J. Phys. Soc. Jpn. **60**, 2394 (1991).
20. A. Barabanov and O. Starykh, J. Phys. Soc. Jpn. **61**, 704 (1992).