

Gd_2CuO_4 的远红外反铁磁共振理论

李 涛 吴杭生

(中国科学技术大学物理系, 合肥 230026)

(1995年5月12日收到)

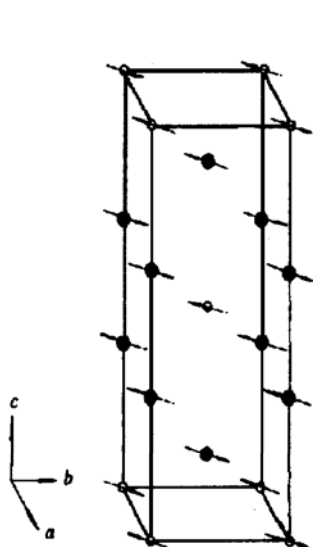
提出一个适用于奈耳温度 6.4 K 以下, Gd_2CuO_4 的远红外反铁磁共振理论. 理论预言的结果与 Kaplan 等的实验符合.

PACC: 7470V; 7650; 7550E

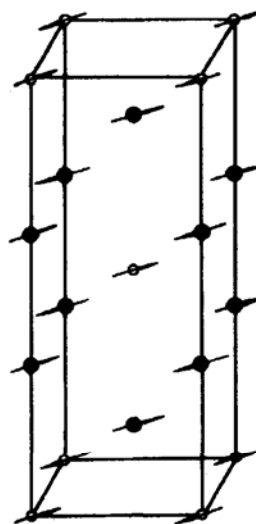
1

最近, Gd_2CuO_4 成为人们广泛研究的对象. 这一方面是由于它具有复杂而有趣的磁性质^[1-7]. 另一方面是由于它不像同结构的其它化合物(如 Nd_2CuO_4)那样因掺入 Ce 或 Th 而成为高温超导体^[8], 因而 Gd_2CuO_4 磁性质的研究将有助于澄清磁性与高温超导电性间的关系.

Gd_2CuO_4 是具有四角对称的晶体结构^[9]. 它包含 Gd^{3+} 和 Cu^{2+} 两个磁性子体系, 它们的奈耳点分别为 6.4 和 285 K^[3,4]. 比热和中子散射实验表明^[1,3,4], 这两个反铁磁相变过程是相互独立的. 图 1(a) 示出由中子散射实验得到的 Gd_2CuO_4 在 6.4 K 以下的磁结构^[3,4]. 除了上述两个相变外, 在 20 K 左右, Gd_2CuO_4 将发生一个由低温反铁磁相到高温



(a) 由中子散射实验测定的 Gd_2CuO_4 的磁结构



(b) Kaplan 等采用的磁结构

图 1 ●为 Gd; ○为 Cu

弱铁磁相的二级相变^[1,2,5-7]. 另外, 在 6.4 到 20 K 这一温区, Gd_2CuO_4 具有十分复杂的磁性^[7]. 这可能是由于 Gd 自旋涨落引起 Cu 自旋重新取向所致.

远红外反铁磁共振是研究自旋间相互作用和各向异性性能的重要手段. 1993 年, Kaplan 等测量了 Gd_2CuO_4 的远红外反铁磁共振谱^[10]. 他们发现, 未加外场时, Gd_2CuO_4 有两条在 a - o 平面内激活的谱线, 1.4 K 时它们分别位于 3 和 16.5 cm^{-1} . 当加入垂直于 a - b 平面的磁场时, 在 6 和 7.4 cm^{-1} 处将出现另外两条在 a - b 平面内微弱激活的谱线. 为了解释这些谱线, 他们提出了一个包括四个 Gd 子格和两个 Cu 子格的六子格模型^[10]. 但是这一模型没有能够解释谱线频率与磁场的依赖关系. 另外他们采用的磁结构(见图 1(b))是与中子散射实验相矛盾的.

本文根据如图 1(a)所示的 Gd_2CuO_4 的晶体结构和磁结构, 给出了一个适用于 6.4 K 以下的 Gd_2CuO_4 的远红外反铁磁共振理论, 用它可以很好地解释 Kaplan 等的实验.

2

实验表明, Gd^{3+} 子体系是三维反铁磁. 它由一系列铁磁性的 (001) Gd 层构成, 沿 c 方向这些铁磁层呈反铁磁堆积(参见图 1(a)). 而 Cu^{2+} 子体系是准二维反铁磁. 在 CuO_2 平面内 Cu 自旋间存在强的反铁磁耦合, 不同 CuO_2 面内的 Cu 自旋其耦合是很弱的. 取 x 轴沿 $[110]$ 方向, y 轴沿 $[\bar{1}10]$ 方向, z 轴与 c 轴重合, 并用 σ 和 S 代表 Cu 和 Gd 的自旋算符, 体系的哈密顿量可表示如下:

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_{\text{Cu}} + \mathcal{H}_{\text{Gd}} + \mathcal{H}_{\text{Cu-Gd}} + \mathcal{H}_{\text{Z}}, \quad (1)$$

$\mathcal{H}_{\text{Cu}}$ 代表 Cu 子体系的哈密顿量, 它由下式给出:

$$\mathcal{H}_{\text{Cu}} = J \sum_{\langle i,j \rangle} \sigma_i \cdot \sigma_j - \sum_i \sigma_i \cdot H_{\text{ai}}. \quad (2)$$

在此处及下文中, $\sum_{\langle i,j \rangle}$ 代表近邻求和, $\sum_i$ 代表对格点求和. $\mathcal{H}_{\text{Cu}}$ 中的第一项代表同一个 CuO_2 面内 Cu 自旋间的反铁磁耦合能量, J 为交换积分. $\mathcal{H}_{\text{Cu}}$ 的第二项代表各向异性能. 这里, 我们引入了一个大小为 H_{a} 的各向异性场 H_{ai} , 对于沿 $[110]$ 和 $[\bar{1}\bar{1}0]$ 方向排列的 Cu 自旋, H_{ai} 分别指向 $[110]$ 和 $[\bar{1}\bar{1}0]$ 方向. 由于不同 CuO_2 面内 Cu 自旋间的耦合很弱, 我们在 $\mathcal{H}_{\text{Cu}}$ 中没有考虑这一相互作用.

$\mathcal{H}_{\text{Gd}}$ 代表 Gd 子体系的哈密顿量, 它由下式给出:

$$\begin{aligned} \mathcal{H}_{\text{Gd}} = & \sum_{\langle i,j \rangle} J_{ij} S_i \cdot S_j + J_z \sum_i (S_i^z)^2 \\ & + J_{xy} \sum_i (S_i^x)^2 (S_i^y)^2, \end{aligned} \quad (3)$$

其中第一项代表 Gd 自旋间的交换能量, J_{ij} 为交换积分, 它依赖于近邻自旋对的位置. 如图 2 所示, 位于同一个 Gd 层上的近邻对, J_{ij} 等于 J_1 ;

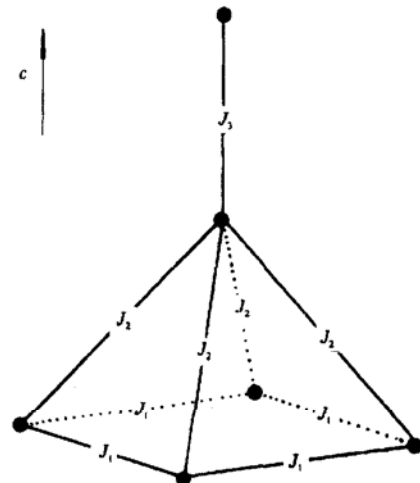


图 2 三种近邻 Gd 自旋和相应的交换积分

位于相邻两个 Gd 层上的近邻对, 它的数值为 J_2 ; 而沿 c 轴方向的近邻对, 它的数值为 J_3 . 需要指出的是为了保证 a - b 平面内 Gd 自旋的铁磁排列, 这三个耦合常数必须满足 $J_1 < J_2/2$ 的条件^[11]. $\mathcal{H}_{\text{Gd}}$ 的后两项分别为 Gd 子体系的易面各向异性能和易轴各向异性能, 由于 Gd_2CuO_4 的四角对称性, 易轴各向异性能被取为对于 a 轴和 b 轴对称的形式. 类似的各向异性能曾被文献[3]的作者所采用.

$\mathcal{H}_{\text{Cu-Gd}}$ 代表 Cu-Gd 相互作用, 它由下式给出:

$$\mathcal{H}_{\text{Cu-Gd}} = J_{\text{Cu-Gd}} \sum_{\langle i,j \rangle} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{\sigma}_j. \quad (4)$$

由于 Gd_2CuO_4 的四角对称性, 在 $\mathcal{H}_{\text{Cu-Gd}}$ 中假设 Cu 自旋与近邻 Gd 自旋间的耦合强度是相同的. 在未加外场时, Cu, Gd 自旋将都位于 a - b 平面内. 这样, 每个 Cu(Gd) 自旋将与数量相同的带有相反方向的 Gd(Cu) 自旋近邻, 从而 Gd(Cu) 自旋对于 Cu(Gd) 自旋的作用将是完全抵消的. 因此, 在我们的模型中, 没有外场时 Cu 与 Gd 是没有耦和的. 这是我们的模型与 Kaplan 等的模型的一个重要区别. 比热和中子散射实验中 Cu, Gd 子体系所表现出的独立性以及下面我们对光谱实验的分析表明, 我们对于 Cu-Gd 相互作用的假设更能反映 Gd_2CuO_4 中 Cu-Gd 相互作用的真实情况. 当加入垂直于 a - b 平面的磁场时, Cu, Gd 自旋将偏出 a - b 平面从而获得一个沿磁场方向的铁磁分量. 这时 Cu 与 Gd 的相互作用将不再抵消. 下面将会看到这一相互作用将对远红外反铁磁共振谱线在磁场中的行为产生重要的影响.

最后, $\mathcal{H}_Z$ 代表磁场中自旋的 Zeeman 能, 它由下式给出:

$$\mathcal{H}_Z = -g\mu_B \left(\sum_i \mathbf{S}_i + \sum_i \mathbf{\sigma}_i \right) \cdot \mathbf{H}. \quad (5)$$

3

前面已经指出, Gd^{3+} 子体系是一个三维反铁磁, 根据图 1(a), Gd 自旋可以看作是位于两套相互交错的体心格子上, 其中位于同一个体心格子上的所有 Gd 自旋都具有相同的方向, 而位于不同体心格子上的 Gd 自旋其方向是相反的. 据此, 我们将 Gd 自旋占据的位置分为四个子格. 它们分别代表这两套体心格子的体心位置和顶角位置, 经过这样的划分, 平行于 a - b 平面的同一个平面中铁磁排列的所有 Gd 自旋将属于同一个子格. 应当指出, 由于我们采用如图 1(a) 所示的磁结构, Gd 子体系被划分为四个子格是很自然的, 而不需要像 Kaplan 等那样, 人为地假设在零磁场下, Gd 自旋存在隐藏成角 (hidden canting). 至于 Cu^{2+} 子体系, 它是一个准二维的反铁磁, 我们按习惯的做法将它划分为两个子格. 采用标准的线性化运动方程方法^[12-15], 可以得到零波矢的自旋波的频率和激活性. 我们的模型给出四个 Gd 的模式和两个 Cu 的模式. 经过复杂的运算, 可以得到

$$\hbar\omega_{\text{Gd}}^c = 2m_{\text{Gd}}^2 \cos^2 \alpha \sqrt{J_{xy}(4J_2 + J_3 + J_z)}, \quad (6)$$

$$\hbar\omega_{\text{Gd}}^{ab} = 2m_{\text{Gd}} \sqrt{[(4J_2 + J_3) + J_{xy}m_{\text{Gd}}^2 \cos^2 \alpha][J_z \cos^2 \alpha + (4J_2 + J_3) \sin^2 \alpha]}, \quad (7)$$

$$\hbar\omega_{\text{Gd}}^a = 2m_{\text{Gd}} \sqrt{[4J_2 + J_{xy}m_{\text{Gd}}^2 \cos^2 \alpha][(J_3 + J_z) \cos^2 \alpha + 4J_2 \sin^2 \alpha]}, \quad (8)$$

$$\hbar\omega_{\text{Gd}}^0 = 2m_{\text{Gd}} \sqrt{[J_3 + J_{xy}m_{\text{Gd}}^2 \cos^2 \alpha][(4J_2 + J_z) \cos^2 \alpha + J_3 \sin^2 \alpha]}, \quad (9)$$

$$\hbar\omega_{\text{Cu}}^c = \sqrt{H_a \left(8Jm_{\text{Cu}}\cos\beta + \frac{H_a}{\cos^2\beta} \right)}, \quad (10)$$

$$\hbar\omega_{\text{Cu}}^{ab} = \sqrt{(H_a + 8Jm_{\text{Cu}}\sin^2\beta\cos\beta) \left(8J_{\text{Cu}}m_{\text{Cu}}\cos\beta + \frac{H_a}{\cos^2\beta} \right)}, \quad (11)$$

由于计算过于冗长,但涉及的数学是初等的,我们略去了推导步骤.这里 α 和 β 分别表示 Gd 自旋和 Cu 自旋的倾斜角(canting angle),即它们的平衡方向与 a - b 平面的夹角.它们由如下的平衡方程决定:

$$2(4J_1 + J_2 + J_z)m_{\text{Gd}}\sin\alpha + 4J_{\text{Cu-Gd}}m_{\text{Cu}}\sin\beta = g\mu_B H, \quad (12)$$

$$8J_{\text{Cu}}m_{\text{Cu}}\sin\beta + H_a\tan\beta + 8J_{\text{Cu-Gd}}m_{\text{Gd}}\sin\alpha = g\mu_B H, \quad (13)$$

其中 m_{Gd} 和 m_{Cu} 分别代表 Gd 自旋和 Cu 自旋平均磁距的大小.由于 $T_N^{\text{Cu}} \gg T_N^{\text{Gd}}$,所以在低于 T_N^{Gd} 的温区内, m_{Cu} 可以被认为是一个常数,其值为 $1/2$.而 m_{Gd} 由下式给出:

$$m_{\text{Gd}}(t) = \frac{7}{2}B_{7/2}(x), \quad (14)$$

其中 $x = \frac{2}{3t}m_{\text{Gd}}(t)$, $B_J(x)$ 为 $J = 7/2$ 的布里渊函数^[15],而 $t = T/T_N^{\text{Gd}}$ 为约化温度.

在上述六个模式中, ω_{Cu}^c 和 ω_{Gd}^c 沿 c 轴激活, ω_{Cu}^{ab} 和 ω_{Gd}^{ab} 在 a - b 平面内激活,而 ω_{Gd}^0 和 ω_{Cu}^0 是不激活的.图 3(a) 示出在磁场中这六个模式的频率和实验观测到的谱线频率的拟合,其中实线代表在 a - b 平面内激活的模式,而虚线代表在 a - b 平面内不激活的模式.作为对比,图 3(b) 中示出 Kaplan 等的结果.

在我们的计算中,各参数的取值由表 1 给出.我们采用的 J 的数

表 1 数值计算中采用的参数

参数	数值/meV	参数	数值/meV
J_1	7.0×10^{-3}	J_{xy}	6.7×10^{-5}
J_2	4.8×10^{-2}	J	130.0
J_3	7.3×10^{-2}	H_a	8.2×10^{-3}
J_z	1.2×10^{-2}	$J_{\text{Cu-Gd}}$	5.5×10^{-2}

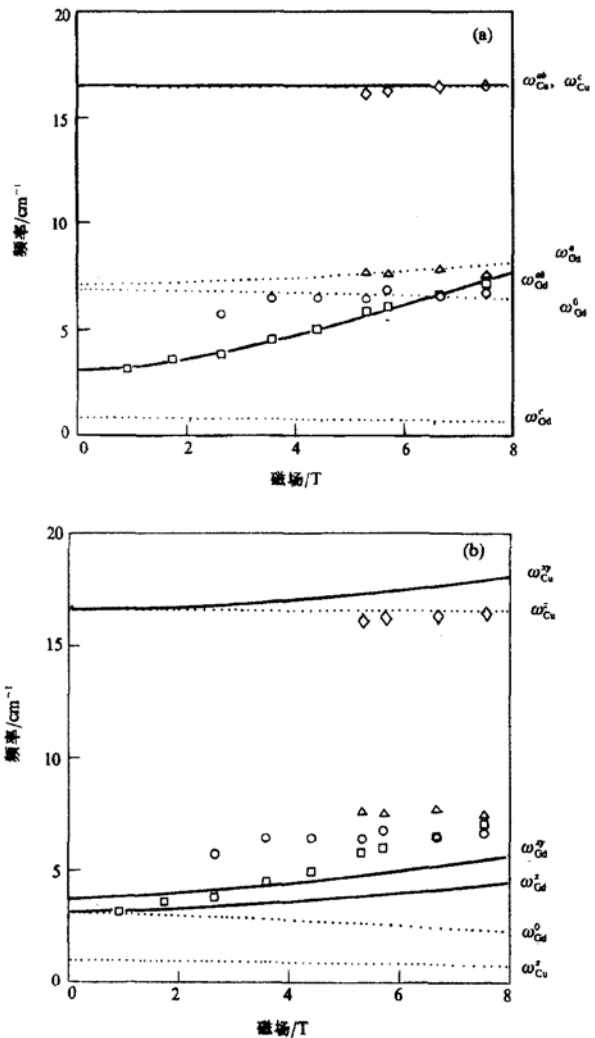


图 3 各模式的频率与磁场的关系 $\square, \circ, \triangle$ 和 $\diamond$ 代表实验点;实线和虚线代表根据本文理论(图(a))和 Kaplan 等的理论(图(b))计算出的曲线

值与中子散射实验^[16]及双磁子 Raman 散射实验^[17]是一致的. J_1 , J_2 和 J_3 的数值, 我们是根据 Gd_2CuO_4 磁化率^[1]和饱和磁场^[3]等实验选取的(例如, 由我们的参数计算得到的饱和磁场将是 16 T, 接近于实验值 11 T). 而 J_z , H_a 和 J_{xy} 的数值, 则分别由拟合 $\omega_{\text{Gd}}^{\text{ab}}$ 和 $\omega_{\text{Cu}}^{\text{ab}}$ 的零场频率以及微波区域的反铁磁共振实验结果^[3]得到. 至于 $J_{\text{Cu-Gd}}$ 的数值, 将在下面给予说明.

由于 Gd 自旋间的耦合远小于 Cu 自旋间的耦合, 强度最大的 3 cm^{-1} 谱线将对应于 Gd 的共振模式 $\omega_{\text{Gd}}^{\text{ab}}$. 而 16.5 cm^{-1} 谱线将对应于 Cu 的共振模式 $\omega_{\text{Cu}}^{\text{ab}}$. 从图 3 中可以看到, 我们的模型正确地给出了这两个主要激活模式的频率与磁场的依赖关系. 而这正是 Kaplan 等的模型所不能解释的. 下面我们说明, 这一差异来源于两个模型对 Cu-Gd 相互作用的不同假设. 由于在我们的模型中, Cu 与 Gd 的相互作用是反铁磁型的, Gd 自旋在外场中获得的铁磁分量将在 Cu 自旋上产生一个与外场方向相反的有效场, 因此, 如果适当选取 Cu-Gd 相互作用的强度, 外场对 Cu 子体系的影响将完全被这一有效场所抵消. 在这种情况下, Cu 子体系的性质将与外场的强度无关. 在我们的模型中, Cu-Gd 相互作用的强度 $J_{\text{Cu-Gd}}$ 正是根据这一原则选取的. 因而我们的模型能够很自然地解释 $\omega_{\text{Cu}}^{\text{ab}}$ 与外场几乎无关的实验事实. 在 Kaplan 等的模型中, Cu 与 Gd 也存在着反铁磁耦合, 但不同的是, 他们模型中 Cu 和 Gd 即使在外场时也存在不为零的耦合. 实际上, 他们正是利用这一不为零的耦合来解释 $\omega_{\text{Cu}}^{\text{ab}}$ 的零场位置的. 因而在他们的模型中, Cu-Gd 相互作用的强度将直接被 $\omega_{\text{Cu}}^{\text{ab}}$ 的零场频率所决定. 从而我们不可能通过调整这一相互作用强度来有效地抵消外场对 Cu 子体系的影响. 这就是在他们的模型中, $\omega_{\text{Cu}}^{\text{ab}}$ 随外场过快上升的原因. 对于 Gd 子体系而言, 由于 Cu 自旋间具有很强的反铁磁耦合, Cu 自旋在外场中的倾斜角 β 是很小的, 因而它的铁磁分量以及由此作用于 Gd 自旋上的有效场也将是很小的. 因此在我们的模型中, Gd 子体系可以近似看成是不受 Cu 子体系的影响. 而在 Kaplan 等的模型中, 由于 Cu 与 Gd 在无外场时就已存在不为零的耦合, Cu 子体系将对 Gd 子体系产生重要的影响. 我们认为这正是他们的模型不能解释 $\omega_{\text{Gd}}^{\text{ab}}$ 在外场中巨大频移的根本原因. 通过以上分析可以看到, 在 Gd 的奈耳温度以下, 无外场时引入 Cu-Gd 耦合是不合理的.

至于 $\omega_{\text{Gd}}^{\text{a}}$ 和 $\omega_{\text{Gd}}^{\text{b}}$, 图 3 表明, 理论曲线与实验是较好地符合的. 但需要指出的是, 在我们的模型中, 这两个模式并不激活. 我们发现, 为了使这两个模式具有 a - b 平面内的激活性, 必须认为四个 Gd 子格中的自旋所处的环境略有不同(例如四个 Gd 子格的易面各向异性 J_z 略有不同). 由于这两条谱线的强度十分微弱, 这种差异将是十分微小的, 因而它对谱线频率的影响也将是十分微小的, 这就是我们在模型中没有考虑这一差异的原因. 另外, 我们的模型还给出了两个沿 c 轴激活的模式 $\omega_{\text{Cu}}^{\text{c}}$ 和 $\omega_{\text{Gd}}^{\text{c}}$, 其中 $\omega_{\text{Gd}}^{\text{c}}$ 已在微波区域的反铁磁共振实验中观测到^[3, 18].

- [1] J. D. Thompson, S. W. Cheong, S. E. Brown, Z. Fisk, S. B. Oseroff, M. Tovar, D. C. Vier and S. Schultz, *Phys. Rev.*, **B39**(1989), 6660.
- [2] S. B. Oseroff, D. Rao, M. F. Hundley, F. Wright, D. C. Vier, S. Schultz, Z. Fisk, S. W. Cheong, J. D. Thompson and M. Tovar, *Phys. Rev.*, **B41**(1990), 1934.
- [3] T. Chattopadhyay, P. J. Brown, A. A. Stepanov, P. Wyder, J. Voivon, A. I. Zvyagin, S. N. Barilo, D. I. Zhigunov

- and I. Zobjkalo, *Phys. Rev.*, **B44**(1991), 9486.
- [4] T. Chattopadhyay, P. J. Brown, B. Roessli, A. A. Stepenov, S. N. Barilo and D. I. Zhigunov, *Phys. Rev.*, **B46**(1992), 5731.
- [5] A. A. Stepenov, G. Fillion, I. M. Vitebsky, T. Chattopadhyay, A. Deville, P. Wyder, P. J. Brown, B. Gaillard, S. N. Barilo and D. I. Zhigunov, *Phys. Rev.*, **B49**(1993), 12979.
- [6] T. Ishii and A. Matsuda, *Solid State Commun.*, **75**(1994), 765.
- [7] P. W. Klaunt, *Phys. Rev.*, **B50**(1994), 13009.
- [8] Y. Y. Xue, P. H. Hor, R. L. Meng, Y. K. Tao, Y. Y. Sun, Z. J. Huang, L. Gao and C. W. Chu, *Physica*, **C165**(1990), 357.
- [9] K. A. Kubat-Martin, Z. Fisk and R. R. Ryan, *Acta Cryst.*, **C44**(1988), 1518.
- [10] S. G. Kaplan, T. W. Noh, A. J. Sievers, S. W. Cheong and Z. Fisk, *Phys. Rev.*, **B47**(1993), 5300.
- [11] J. M. Smart, *Rev. Mod. Phys.*, **25**(1953), 327.
- [12] F. Keffer and C. Kittle, *Phys. Rev.*, **85**(1952), 329.
- [13] G. F. Herrmann, *Phys. Rev.*, **133**(1964), A1334.
- [14] T. Nagamiya and K. Yosida, *Adv. Phys.*, **4**(1955), 1.
- [15] F. Keffer, *Handbook der Physik*, edited by S. Flügge (Springer, Berlin, 1966), Vol. 18, Pt. 2, p. 1.
- [16] G. Aeppli, S. M. Hayden, H. A. Mook, Z. Fisk, S. W. Cheong, D. Rytz, J. P. Remeika, G. P. Espinosa and A. S. Cooper, *Phys. Rev. Lett.*, **62**(1989), 2052.
- [17] S. W. Cheong, J. D. Thompson and Z. Fisk, *Phys. Rev.*, **B39**(1989), 4395.
- [18] A. I. Zvyagin, M. I. Kobets, V. A. Pashchenko, A. A. Stepenov and E. N. Khatosko, *Physica*, **B165-166**(1990), 1321.

THEORY OF FAR-INFRAD ANTIFERROMAGNETIC RESONANCE IN Gd_2CuO_4

LI TAO WU HANG-SHENG

(Department of Physics, University of Science and Technology of China, Hefei 230026)

(Received 12 May 1995)

ABSTRACT

In the present paper, a theory of far-infrad antiferromagnetic resonance for Gd_2CuO_4 is presented. The result predicted by theory agrees well with that of Kaplan *et al.* experiment.

PACC: 7470V; 7650; 7550E