Письма в ЖЭТФ, том 95, вып. 4, с. 211 – 215 © 2012 г. 25 февраля

Влияние негейзенберговского кольцевого обмена на магнитный механизм высокотемпературной сверхпроводимости

Е. И. Шнейдер[1)], *С. Г. Овчинников, А. В. Шнуренко*

Институт физики им. Киренского СО РАН, 660036 Красноярск, Россия

Поступила в редакцию 13 декабря 2011 г.

В настоящей работе исследовано влияние негейзенберговского четырехспинового кольцевого обмена на температуру сверхпроводящего перехода в системах с сильными электронными корреляциями. Показано, что кольцевой обмен может заметно подавлять вклад гейзенберговского обмена в сверхпроводящее спаривание.

В высокотемпературных сверхпроводящих (ВТСП) купратах четырехспиновый кольцевой обмен в CuO_2-плоскости всего в 3–5 раз меньше гейзенберговского обмена [1–14]. Поэтому возникает вопрос о том, насколько существенно его влияние на куперовское спаривание за счет магнитных взаимодействий. Поясним, каким образом кольцевой обмен возникает в теории для спинов 1/2. Хорошо известно, что ВТСП на основе оксидов меди относятся к классу систем с сильными электронными корреляциями (СЭК). Наиболее простой моделью для них является модель Хаббарда [15]. Последняя описывает расщепление исходной электронной зоны на две хаббардовские подзоны. Гамильтониан модели содержит всего два параметра: интеграл перескока t между ближайшими узлами и энергию одноузельного кулоновского отталкивания U. К сожалению, несмотря на кажущуюся простоту модели, ее свойства хорошо изучены только для случая одномерной цепочки [16]. В режиме сильных электронных корреляций ($t \ll U$) модель Хаббарда может быть упрощена [17–20] путем исключения межзонных переходов по теории возмущения [21]. Соответствующий эффективный низкоэнергетический гамильтониан рассматривают далее в усеченном гильбертовом пространстве, не содержащем двухчастичных состояний. Таким образом, в преобразованном гамильтониане исключено исходное локальное кулоновское взаимодействие. Однако взамен него появляется бесконечный ряд, описывающий дальнодействующие обмены. В простейшем случае гейзенберговского предела $t/U \to 0$ ограничиваются $t{-}J$-моделью [17, 18]. Она содержит только первую поправку к энергии основного состояния нередуцированного гамильтониана:

$$\mathrm{H}_{t-J} = t \sum_{i \neq j, \sigma} \tilde{a}_{i\sigma}^{+} \tilde{a}_{j\sigma} + \sum_{\langle ij \rangle} J_{ij} \left(\mathbf{S}_i \mathbf{S}_j - \frac{1}{4} n_i n_j \right). \quad (1)$$

Здесь $\tilde{a}_{i\sigma}^{+} = a_{i\sigma}^{+}(1 - n_{i\bar{\sigma}})$ – проекционный оператор рождения электрона на узле i со спином σ, $n_{i\sigma} = \tilde{a}_{i\sigma}^{+}\tilde{a}_{i\sigma}$ – оператор числа электронов, $\mathbf{S}_i$ – оператор спина: $\mathbf{S}_i \equiv (S_i^+, S_i^-, S_i^z) = (a_{i\sigma}^{+} a_{i\bar{\sigma}}, a_{i\bar{\sigma}}^{+} a_{i\sigma}, (n_{i\sigma} - n_{i\bar{\sigma}})/2)$, где $\bar{\sigma} = -\sigma$, $J_{ij} = 2t_{ij}^2/U$ – эффективный обменный интеграл для ближайших соседей. Следует отметить, что, помимо гейзенберговского обмена J, в том же порядке теории возмущения возникают трехузельные слагаемые $H_{(3)}$, пропорциональные множителю $t_{ij}t_{jk}/U$ и описывающие процессы перескока электрона между тремя узлами с переворотом спина или сохранением спиновой проекции на промежуточном узле. По сравнению с $t{-}J$-моделью (1) эти вклады качественно меняют спектр квазичастиц в нормальной фазе [22, 23] и существенно подавляют критическую температуру в сверхпроводящей [24, 25]. Поэтому они должны быть учтены при последовательном построении теории.

В режиме промежуточных корреляций, где мобильность электронов растет, необходимо учитывать поправки более высокого порядка к выражению (1), то есть $\sim t(t/U)^3$. Как было показано [19, 20, 26], если опустить постоянные члены, то они имеют следующий вид:

$$\begin{aligned} H_{(4)} = {} & J_1 \sum_{\langle ij_1 \rangle} \mathbf{S}_i \mathbf{S}_{j_1} + J_2 \sum_{\langle ij_2 \rangle} \mathbf{S}_i \mathbf{S}_{j_2} + J_3 \sum_{\langle ij_3 \rangle} \mathbf{S}_i \mathbf{S}_{j_3} + \\ & + J_c \sum_{\langle ijkl \rangle} \{ (\mathbf{S}_i \mathbf{S}_j)(\mathbf{S}_k \mathbf{S}_l) + (\mathbf{S}_i \mathbf{S}_l)(\mathbf{S}_k \mathbf{S}_j) - \\ & - (\mathbf{S}_i \mathbf{S}_k)(\mathbf{S}_j \mathbf{S}_l) \}. \end{aligned} \quad (2)$$

Индексы j_1, j_2, j_3 нумеруют первые, вторые и третьи соседи для узла i. Узлы i, j, k, l соответствуют четырем спинам, циркулирующим по часовой стрел-

[1)] e-mail: shneyder@iph.krasn.ru

ке в элементарном квадратном плакете Cu_4O_4. Первые три слагаемых в приведенном выражении имеют структуру, аналогичную обменному взаимодействию в уравнении (1). Таким образом, их учет лишь ренормирует обменный интеграл. Три последних слагаемых во второй строке уравнения (2) описывают так называемый четырехспиновый кольцевой обмен с параметром $J_c \sim t_{ij}^4/U^3$.

Впервые существенная роль многочастичного кольцевого обмена была отмечена для квантового кристалла ^{3}He при анализе его необычных магнитных свойств [27]. Вскоре после открытия купратных сверхпроводников Roger и Delrieu предположили, что в данных соединениях кольцевой обмен также может быть сопоставим с гейзенберговским [13]. Причина этого заключается в том, что величина кулоновского отталкивания на одном узле меди для проводящих дырок в CuO-плоскости намного больше разницы одноэлектронных состояний на кислороде и меди. Это благоприятствует обмену через промежуточный кислород.

Авторами [13] было показано, что в реалистичной для купратов многозонной модели Эмери в случае половинного заполнения разложение гамильтониана по параметру t_{pd}/V_{pd} при больших величинах кулоновского отталкивания дырок на одном узле U_d воспроизводит эффективный спиновый гамильтониан с доминантным вкладом от четырехспинового кольцевого обмена. Здесь V_{pd} – кулоновское отталкивание между атомами кислорода и меди, t_{pd} – соответствующий интеграл перескока. Расчеты с помощью точной диагонализации малых кластеров [8, 14] подтвердили существенную, хотя и не лидирующую роль кольцевого обмена в купратных сверхпроводниках. Для $\Delta = E_p - E_d = 1.2$ эВ, где Δ – энергия переноса заряда, были получены сопоставимые эффективные гейзенберговский и кольцевой обмены: $J \approx 0.7$ эВ и $J_c \approx 0.5$ эВ.

Действительно, оказалось, что целый ряд экспериментальных наблюдений в купратах не поддается объяснению в рамках обычного гейзенберговского гамильтониана и может быть описан только с учетом процессов четырехспинового кольцевого обмена [1–4, 13]. Конечная величина кольцевого обмена порядка $(0.2-0.5)\,J$ требуется для воспроизведения аномальной структуры спектров спиновых возбуждений, полученных как с помощью неупругого рассеяния света [1, 2, 8, 28, 29], так и в экспериментах по неупругому рассеянию поляризованных нейтронов [3–6].

Авторы [3], например, обратили внимание на то, что в рамках спин-волновой теории добавление к гейзенберговскому гамильтониану с обменом на ближайших узлах более дальних взаимодействий спинов, а также четырехспинового кольцевого обмена (2) качественно меняет спектр магнонов [30] вдоль границы зоны Бриллюэна. Для регистрации дисперсии спиновых возбуждений именно на границе зоны впервые был применен метод позиционно-чувствительной спектроскопии рассеянных нейтронов с высоким k-волновым разрешением. Анализ экспериментальных спектров, полученных для соединения La_2CuO_4 ниже температуры Нееля, убедительно показал недостаточность модели Гейзенберга для описания наблюдаемых спиновых возбуждений. Дальнейшие независимые исследования спин-спиновых корреляций в том же соединении в парамагнитной фазе [5] продемонстрировали, что хорошее согласие наблюдаемого температурного поведения статической восприимчивости и зависимости, рассчитанной методом высокотемпературного разложения гамильтониана, возможно только с учетом четырехцентрового обменного взаимодействия. Полученная при этом амплитуда кольцевого обмена $J_c \approx 0.25J$ согласуется как с оценкой авторов [3], где $J_c \approx 0.27J$, так и с результатами расчетов [10, 11] из первых принципов, где $J_c/J \sim 0.3$.

Так как в купратах магнитные взаимодействия являются одними из основных среди кандидатов на механизмы сверхпроводящего спаривания, при величине кольцевого обмена, сопоставимой с гейзенберговским, важно понимать, каким образом кольцевой обмен влияет на свойства куперовского спаривания. В настоящей работе мы рассмотрели данную проблему, оценив влияние четырехспинового обмена J_c на температуру сверхпроводящего перехода.

Согласно сделанным выше замечаниям, исследуемый гамильтониан представляет собой сумму $t-J$-модели, записанной с учетом трехузельных коррелированных перескоков, и четырехспинового кольцевого обмена $H_{(4)}$:

$$H = H_{t-J^*} + H_{(4)} = H_{t-J} + H_{(3)} + H_{(4)}. \qquad (3)$$

Выражение (3) удобно переписать в представлении X-операторов Хаббарда, так как последние позволяют автоматически учитывать в расчетах ограничение на заполнение двухчастичных состояний. Операторы Хаббарда определяются как $X_i^{pq} = |p\rangle\langle q|$, где векторы $|p\rangle$ и $|q\rangle$ описывают возможные состояния в решетке. В дырочном представлении для купратов, допированных дырками, $|p\rangle = \{|\sigma\rangle, |\mathrm{S}\rangle\}$ с проекцией спина $\sigma = \pm 1/2$, то есть состояния $|p\rangle$ формируют верхнюю хаббардовскую зону дырок. Состояние $|\sigma\rangle$ с одной дыркой на узле i соответствует конфигурациям медь-кислородных орбиталей с заполнением d^9p^6,

$d^{10}p^5$. Синглетное состояние $|p\rangle = |S\rangle$ с двумя дырками на одном узле соответствует конфигурациям d^8p^6, d^9p^5 и $d^{10}p^4$. В новом представлении вклады H_{t-J}, $H_{(3)}$ и $H_{(4)}$ имеют следующий вид:

$$\begin{aligned} H_{t-J} &= \sum_{i\sigma}\left[(\varepsilon_1-\mu)X_i^{\sigma\sigma}+(\varepsilon_2-2\mu)X_i^{SS}\right]+ \\ &+\sum_{\langle ij\rangle\sigma}\tilde{t}_{ij}X_i^{S\bar{\sigma}}X_j^{\bar{\sigma}S}+\sum_{\langle ij\rangle\sigma}H^J_{ij,\sigma}, \\ H_{(3)} &= \sum_{\langle ijm\rangle\sigma}\frac{t_{ij}t_{jm}}{U_{\text{eff}}}\left(X_i^{S\bar{\sigma}}X_j^{\sigma\sigma}X_m^{\bar{\sigma}S}-X_i^{S\sigma}X_j^{\sigma\bar{\sigma}}X_m^{\bar{\sigma}S}\right), \\ H_{(4)} &= J_c\sum_{\substack{\langle ijkl\rangle\\ \sigma\sigma'}}\left(\tilde{H}^J_{ij\sigma}\tilde{H}^J_{kl\sigma'}+\tilde{H}^J_{il\sigma}\tilde{H}^J_{kj\sigma'}-\tilde{H}^J_{ik\sigma}\tilde{H}^J_{jl\sigma'}\right). \end{aligned} \tag{4}$$

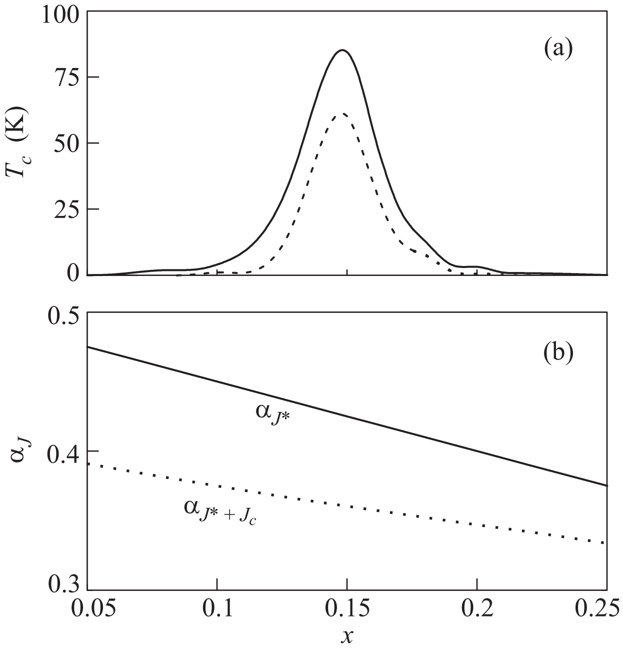
Здесь $\tilde{t}_{ij}$ и t_{ij} – внутризонный и межзонный интегралы перескока, μ – химпотенциал. Для краткости мы ввели обозначения $H^J_{ij,\sigma} = \frac{1}{2}J_{ij}\left(X_i^{\sigma\bar{\sigma}}X_j^{\bar{\sigma}\sigma}-X_i^{\sigma\sigma}X_j^{\bar{\sigma}\bar{\sigma}}\right)$ и $\tilde{H}^J_{ij,\sigma} = H^J_{ij,\sigma}+\frac{1}{4}n_in_j$, где $n_i = X_i^{\sigma\sigma}+X_i^{\bar{\sigma}\bar{\sigma}}$.

Нормальная $G(\mathbf{k},E)$ и аномальная $F(\mathbf{k},E)$ функции Грина были определены в обобщенном приближении Хартри–Фока с помощью метода неприводимых линейных операторов [31, 32]. Известно, что в купратных сверхпроводниках ближний антиферромагнитный порядок сохраняется вплоть до оптимального допирования и существенно влияет на формирование квазичастичных свойств в областях как слабого, так и оптимального допирования [33]. В то же время при низких температурах характерные времена спиновой динамики намного больше соответствующих времен для электронов [34–36]. Поэтому мы учли в массовом операторе только статические спиновые корреляционные функции, то есть пренебрегли динамикой ближнего антиферромагнитного порядка, но рассмотрели его пространственную неоднородность $\Sigma(\mathbf{k},\omega)\to\Sigma(\mathbf{k})$. Для $t-J^*$-модели процедура вычислений, явный вид массового оператора, сделанное приближение и полученные результаты подробно описаны в работах [37, 38]. Средние, возникающие как вклады от кольцевого негейзенберговского обмена при расцеплении уравнений для функций Грина, мы упростили, выделяя из произведения четырех операторов двухоператорную спиновую функцию $c_{\mathbf{q}} = \sum_i\langle\mathbf{S}_i\mathbf{S}_j\rangle\exp\left[-i\left(R_i-R_j\right)\mathbf{q}\right]$. Заметим, что мы предполагали изотропию спиновой жидкости, поэтому $c_{ij} = 3\left\langle S_i^zS_j^z\right\rangle = \frac{3}{2}\left\langle X_i^{\sigma\bar{\sigma}}X_j^{\bar{\sigma}\sigma}\right\rangle$. Поправки к дисперсии квазичастиц от негейзенберговского обмена $H_{(4)}$ в нормальной фазе пропорциональны произведению $J_c(\mathbf{k},\mathbf{q})\,c_{\mathbf{k}}c_{\mathbf{q}}$. При характерных значениях параметра кольцевого обмена, $J_c\sim 0.3J$, и спиновой функции для ближайших соседей, $c_{\mathbf{k}}\sim -0.3$, они составляют всего несколько процентов и не меняют вида дисперсии и плотности состояний. Основной вклад кольцевого обмена заключается в перенормировке константы связи сверхпроводящего спаривания в уравнении на T_c. При выводе последнего мы учли, что для симметричных решений, соответствующих синглетному спариванию, параметр порядка обладает следующим свойством: $\Delta_k = \Delta_{-k}$. Обратим внимание также и на то, что с учетом выражения (2) фурье-образ параметра гейзенберговского обмена включает соседей вплоть до третьей координационной сферы. Однако в конечном уравнении на T_c вклад вторых соседей пропадает, так как он не соответствует $d_{x^2-y^2}$-симметрии щели. Вклад третьих соседей, генерирующих следующую гармонику щели, мы отбрасываем в силу его малости. В итоге для теории типа БКШ уравнение на температуру сверхпроводящего перехода можно представить в виде, аналогичном уравнению в $t-J$-модели:

$$1 = \tilde{J}\frac{1}{N}\sum_{\mathbf{p}}\frac{(\cos p_x-\cos p_y)^2}{\xi_{\mathbf{p}}}\tanh\frac{\xi_{\mathbf{p}}}{2k_{\mathrm{B}}T_c}. \tag{5}$$

Здесь $\xi_{\mathbf{p}}$ – дисперсия квазичастиц в сверхпроводящей фазе, k_{B} – постоянная Больцмана. Выделим в перенормированной константе связи вклады гейзенберговского обмена, трехцентровых перескоков и кольцевого обмена отдельными слагаемыми: $\tilde{J} = \left(1-\frac{1+x}{2}+c_{01}\frac{J_c}{J}\right)J$. Антиферромагнитный спиновый коррелятор c_{01} для ближайших соседей имеет знак минус. Поэтому кольцевой обмен, так же как и трехцентровые перескоки, подавляет сверхпроводящее спаривание, индуцированное гейзенберговским обменом. Из приведенного выражения видно, что вклад кольцевого обмена в константу связи на порядок меньше гейзенберговского. Однако при последовательном построении теории, то есть с учетом трехцентровых взаимодействий, его относительная роль возрастает. Так, при характерных значениях параметров системы LSCO [39] и $J_c = (0.27-0.3)J$ кольцевой обмен понижает максимум критической температуры в $t-J$-модели всего на 5–7%. В то же время максимум критической температуры в $t-J^*-J_c$-модели уменьшается на 25–30% по сравнению с $t-J^*$-моделью (рис. a). Соответствующее изменение константы связи в единицах гейзенберговского обмена показано на рис. b. Заметим также, что кольцевой обмен максимален в области слабого допирования x, где он подавляет сверхпроводимость. С ростом x его роль уменьшается вследствие разрушения ближнего магнитного порядка.

Как известно, еще одним механизмом, компенсирующим гейзенберговский обменный вклад в куперовское спаривание, является межузельное кулоновское взаимодействие. С одной стороны, межузельное



Влияние кольцевого обмена на концентрационные зависимости температуры сверхпроводящего перехода (a) и константы спаривания (b). Учет кольцевого обмена $J_c = 0.27J$ (пунктирная линия) понижает максимум T_c на 25%

кулоновское взаимодействие, так же как и обменное, пропорционально квадрату перекрытия орбит соседних атомов, то есть оно имеет тот же порядок величин и может в значительной степени подавлять сверхпроводимость, индуцированную гейзенберговским обменом [40, 41]. С другой стороны, нельзя заранее утверждать, что учет межузельного кулоновского взаимодействия будет компенсировать также и вклад кольцевого обмена. Исходя из структуры гамильтониана кольцевого обмена можно предположить обратное [42]. Тогда относительная роль кольцевого обмена будет еще больше приведенных оценок.

Работа выполнена при финансовой поддержке грантов НШ-1044.2012.2 и РФФИ (# 12-02-00040), программы # 20 Президиума РАН "Квантовые мезоскопические и неупорядоченные структуры", интеграционного проекта СО РАН–УрО РАН, проекта СФУ # г/б С-11, проекта ФЦП ГК # П891. Один из авторов (ЕИШ) благодарит за поддержку Фонд некоммерческих программ "Династия".

1. S. Sugai, M. Sato, T. Kobayashi et al., Phys. Rev. B **42**, 1045 (1990).
2. J. Lorenzana, J. Eroles, and S. Sorella, Phys. Rev. Lett. **83**, 5122 (1999).
3. R. Coldea, S.M. Hayden, G. Aeppli et al., Phys. Rev. Lett. **86**, 5377 (2001).
4. A.A. Katanin and A.P. Kampf, Phys. Rev. B **66**, 100403 (2002).
5. A.M. Toader, J.P. Goff, M. Roger et al., Phys. Rev. Lett. **94**, 197202 (2005).
6. A.M. Toader, J.P. Goff, M. Roger et al., Phys. Rev. Lett.**97**, 049702 (2006).
7. S. Brehmer, H.-J. Mikeska, M. Müller et al., Phys. Rev. B **60**, 329 (1999).
8. H.J. Schmidt and Y. Kuramoto, Physica (Amsterdam) C **167**, 263 (1990).
9. Y. Muzino, T. Tohyama, and S. Maekawa, J. Low Temp. Phys. **117**, 389 (1999).
10. C.J. Calzado and J.-P. Malrieu, Phys. Rev. B **63**, 214520 (2001).
11. E. Müller-Hartmann, A. Reischl, Eur. Phys. J. B **28**, 173 (2002).
12. C.J. Calzado, C. Graaf, E. Bordas et al., Phys. Rev. B **67**, 132409 (2003).
13. M. Roger and J.M. Delrieu, Phys. Rev. B **39**, 2299 (1989).
14. E.R. Gagliano, C.A. Balseiro, and M. Avignon, Europhys. Lett. **12** 259 (1990).
15. J. Hubbard, Proc. R. Soc. (London) A **276**, 238 (1963).
16. E.H. Lieb and F.Y. Wu, Phys. Rev. Lett. **20**, 1445 (1968).
17. L. Bulaevskii, E. Nagaev, and D. Khomskii, JETP **27**, 836 (1968).
18. K.A. Chao, J. Spalek, and A.M. Oles, J. Phys. C **10**, L271 (1977).
19. M. Takahashi, J. Phys. C: Solid State Phys. **10**, 1289 (1977).
20. A.H. MacDonald, S.M. Girvin, and D. Yoshioka, Phys. Rev. B **37**, 9753 (1988); **41**, 2565 (1990); **43**, 6209 (1991).
21. Н.Н. Боголюбов, *Лекции по квантовой статистике*, Киев: Наук. Думка, 1949, 298 с.
22. S.G. Ovchinnikov, E.I. Shneyder, and M.M. Korshunov, J. Phys.: Condens. Matter **23**, 045701 (2011).
23. В.В. Вальков, Д.М. Дзебисашвили, ЖЭТФ **127**, 686 (2005).
24. V.Yu. Yushankhay, G.M. Vujicic, and R.B. Zakula, Phys. Lett. A **151**, 254 (1990).
25. В.В. Вальков, Т.А. Валькова, Д.М. Дзебисашвили, С.Г. Овчинников, Письма в ЖЭТФ **75**, 450 (2002).
26. P.A.M. Dirac, Proc. R. Soc. A **123**, 714 (1929).
27. D.J. Thouless, Proc. Phys. Soc. (London) **86**, 893 (1965).
28. K.B. Lyons, P.A. Fleury, L.F. Schneemeyer, and J.V. Waszczak, Phys. Rev. Lett. **60**, 732 (1988).
29. J.D. Perkins, J.M. Graybeal, M.A. Kastner et al., Phys. Rev. Lett. **71**, 1621 (1993).

30. A. Chubukov, E. Gagliano, and C. Balseiro, Phys. Rev. B **45**, 7889 (1992).
31. С. В. Тябликов, *Методы квантовой теории магнетизма*, М.: Наука, 1975.
32. N. M. Plakida, V. Yu. Yushankhay, and I. V. Stasyuk, Physica C **162**, 787 (1989).
33. T. R. Thurston, R. J. Birgeneau, M. A. Kastner et al., Phys. Rev. B **40**, 4585 (1989).
34. S. M. Haden, G. Aeppli, H. A. Mook et al., Phys. Rev. Lett. **66**, 821 (1991).
35. D. Mihailovic and V. V. Kabanov, Supercon. In Complex Systems **114**, 331 (2005).
36. N. Doiron-Leyrand, C. Proust, D. LeBoeuf et al., Nature **447**, 565 (2007).
37. M. M. Korshunov and S. G. Ovchinnikov, Eur. Phys. J. B **57**, 271 (2007).
38. С. Г. Овчинников, М. М. Коршунов, Е. И. Шнейдер, ЖЭТФ **136**, 898 (2009).
39. M. M. Korshunov, V. A. Gavrichkov, S. G. Ovchinnikov et al., Phys. Rev. B **72**, 165104 (2005).
40. A. S. Alexandrov and V. V. Kabanov, Phys. Rev. Lett. **106**, 136403 (2011).
41. N. M. Plakida, arXiv: 1110.6715v1.
42. Э. Л. Нагаев, *Магнетики со сложными обменными взаимодействиями*, М.: Наука, 1988, 232 с.