



UNIVERZITET U NOVOM SADU  
PRIRODNO-MATEMATIČKI FAKULTET  
DEPARTMAN ZA FIZIKU



mr Milica Rutonjski

# Teorijska istraživanja osobina jako korelisanih kvazi-dvodimenzionalnih nedopiranih kuprata

-doktorska disertacija-

Novi Sad, 2011.



*Lazi i Andriji*



## *Predgovor*

*Tokom poslednjih decenija, u fizici kondenzovane materije posebna pažnja se posvećuje kvazi-dvodimenzionalnim kupratnim antiferomagnetima, s obzirom da se radi o jedinjenjima koja pri dopiranju pokazuju efekat visokotemperaturske superprovodnosti. Postoje brojne, kako eksperimentalne, tako i teorijske studije koje se odnose na ponašanje ovih jedinjenja u nedopiranom stanju, budući da se smatra da postoji veza između svojstava nedopiranih jedinjenja i mehanizma njihovog prelaska u superprovodno stanje. Cilj ove doktorske disertacije jeste da doprinese takvim istraživanjima.*

*Neposrednu motivaciju za izučavanje navedene grupe jedinjenja predstavljali su prvenstveno eksperimentalni radovi sa rezultatima koje smo pokušali teorijski da reprodukujemo, kao i teorijski radovi na osnovu kojih smo upoređivali naše rezultate sa rezultatima koje daju druge teorije i drugi modeli. Najveći deo sprovedenih analiza odnosi se na jedinjenja  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  i  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$ , koja su najviše izučavana u literaturi. Za ove sisteme izvršeno je iscrpno istraživanje magnetnih i termodinamičkih osobina, kao što su magnonski spektar, magnetizacija, unutrašnja energija, magnonska specifična toplota, magnetna susceptibilnost itd. Na osnovu dobijenih rezultata, pokušali smo da izdvojimo svojstva koja su zajednička za ovu grupu jedinjenja, da ukažemo na osobenosti svakog od njih i zaključimo koji su od uvedenih parametara dominantni za njihovo ponašanje.*

*Svoju zahvalnost dugujem svim članovima Katedre za teorijsku fiziku koji su me tokom godina svojom predanošću za rad i brojnim korisnim savetima bodrili i usmeravali u naučnom razvoju, podstičući me na putu prerastanja naučnih pokušaja u doktorsku disertaciju. Posebno se zahvaljujem mom mentoru, profesoru Milanu Pantiću, na svesrdnoj pomoći, koja se ogledala kako u izboru teme aktuelne u savremenoj teorijskoj fizici kondenzovane materije, tako i u kritičkom pristupu, brojnim savetima i neumornom praćenju izrade ove doktorske disertacije, od njenih početaka do završnog oblika. Takođe, svojom pomoći neizmerno me je zadužio profesor Mario Škrinjar, koji mi je otvorio vrata bavljenja naučnim radom, dao mi na tom putu prve lekcije, i uvek sa puno strpljenja bio spreman da pomogne.*

*Novi Sad, april 2011. godine*

*mr Milica Rutonjski*



# Sadržaj

Uvod	9
<b>1 „Roditeljska” jedinjenja visokotemperaturnskih superprovodnika kao primer kvazi-dvodimenzionalnih kupratnih antiferomagneta</b>	<b>13</b>
1.1 Zašto baš kvazi-dvodimenzionalni kupratni antiferomagneti . . . . .	13
1.2 Primeri visokotemperaturnskih superprovodnih kupratnih oksida . . . . .	15
<b>2 Antiferomagnetni kupratni oksidi <math>\text{La}_2\text{CuO}_4</math> i <math>\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6</math></b>	<b>19</b>
2.1 Kristalna i magnetna struktura $\text{La}_2\text{CuO}_4$ . . . . .	19
2.2 Efektivni hamiltonijan za $\text{La}_2\text{CuO}_4$ . . . . .	22
2.3 Magnetna struktura i efektivni hamiltonijan za $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$ . . . . .	24
<b>3 Osnovi teorijskih pristupa izučavanju kvazi-dvodimenzionalnih antiferomagnetnih kupratnih oksida</b>	<b>27</b>
3.1 Osnovno stanje antiferomagnetnog Hajzenbergovog modela . . . . .	27
3.2 Teorija linearnih spinskih talasa (LSW) . . . . .	29
3.3 Grinove funkcije (GF); tjablikovsko i Kalenovo deкупlovanje . . . . .	30
3.4 Aproksimacija srednjeg (molekuskog) polja (MFA) . . . . .	33
<b>4 Analiza u okviru teorije linearnih spinskih talasa</b>	<b>35</b>
4.1 Spektar elementarnih ekscitacija u $\text{La}_2\text{CuO}_4$ . . . . .	35
4.2 Goldstonov mod . . . . .	40
4.3 Magnetizacija podrešetke . . . . .	41
4.4 Magnonski doprinos specifičnoj toploti . . . . .	44
4.4.1 Niskotemperaturnsko ponašanje u okviru dugotalasne aproksimacije . . . . .	45
4.5 Magnetna susceptibilnost $\text{La}_2\text{CuO}_4$ . . . . .	46
<b>5 Analiza u okviru metoda Grinovih funkcija</b>	<b>49</b>
5.1 Određivanje magnonskog spektra kupratnog antiferomagneta $\text{La}_2\text{CuO}_4$ . . . . .	49
5.1.1 Goldstonov mod . . . . .	56
5.1.2 Magnonski spektar u tetragonalnoj fazi $\text{La}_2\text{CuO}_4$ . . . . .	56
5.2 Magnonske energije $\text{La}_2\text{CuO}_4$ u okolini apsolutne nule; analiza rezultata . . . . .	57
5.3 Magnonski spektar dvoslojnog kupratnog antiferomagneta $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$ . . . . .	60
5.4 Temperaturna zavisnost magnetizacije podrešetke nedopiranih kupratnih antiferomagneta; Nelova temperatura . . . . .	62

5.4.1	Izraz za magnetizaciju podrešetke $\text{La}_2\text{CuO}_4$ u tjablikovskoj aproksimaciji; magnetizacija na apsolutnoj nuli . . . . .	62
5.4.2	Magnetizacija na visokim temperaturama; Nelova temperatura; kritični parametar $\beta$ . . . . .	64
5.4.3	Nelova temperatura za ortorombnu i tetragonalnu strukturu $\text{La}_2\text{CuO}_4$ . . . . .	65
5.4.4	Ponašanje magnetizacije $\text{La}_2\text{CuO}_4$ u blizini apsolutne nule . . . . .	69
5.4.5	Temperaturska zavisnost magnetizacije podrešetke za $\text{La}_2\text{CuO}_4$ u intervalu temperatura od apsolutne nule do Nelove temperature . . . . .	71
5.4.6	Temperaturska zavisnost magnetizacije podrešetke za $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$ u intervalu temperatura od apsolutne nule do Nelove temperature . . . . .	73
5.5	Magnonski doprinos specifičnoj toploti kupratnih antiferomagneta $\text{La}_2\text{CuO}_4$ i $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$ . . . . .	74
5.5.1	Izračunavanje temperaturske zavisnosti magnonske specifične toplote kupratnog antiferomagneta $\text{La}_2\text{CuO}_4$ . . . . .	75
5.5.2	Magnonska specifična toplota kupratnog antiferomagnetnog $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$ . . . . .	77
5.5.3	Analiza rezultata . . . . .	79
5.6	Magnetna susceptibilnost kvazi-dvodimenzionalnih kupratnih antiferomagneta . . . . .	82
5.6.1	Magnetna susceptibilnost $\text{La}_2\text{CuO}_4$ . . . . .	82
5.6.2	Magnetna susceptibilnost u paramagnetnoj fazi ( $\theta \geq \theta_N$ ) . . . . .	84
5.6.3	Magnetna susceptibilnost u oblasti antiferomagnetnog uređenja ( $\theta \leq \theta_N$ ) . . . . .	85
5.6.4	Magnetna susceptibilnost $\text{La}_2\text{CuO}_4$ u aproksimaciji srednjeg polja (MFA) . . . . .	86
5.6.5	Analiza rezultata . . . . .	88
5.6.6	Magnetna susceptibilnost $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$ . . . . .	90
<b>6</b>	<b>Bogoljubovljeva nejednakost i spontana magnetizacija kvazi-dvodimenzionalnih kupratnih antiferomagneta</b> . . . . .	<b>93</b>
6.1	Ispitivanje dugodometnog uređenja za spinski izotropne modele jedinjenja tipa $\text{La}_2\text{CuO}_4$ po ugledu na dokaz Mermin-Vagnerove teoreme . . . . .	93
6.1.1	Poređenje sa strukturama tipa $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$ i $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$ . . . . .	98
<b>7</b>	<b>Zaključak</b> . . . . .	<b>99</b>
<b>A</b>	<b>Magnetizacija podrešetke u aproksimaciji srednjeg polja</b> . . . . .	<b>103</b>
<b>B</b>	<b>Napomene vezane za integraciju u inverznom prostoru</b> . . . . .	<b>105</b>



# Uvod

Otkrićem visokotemperaturske superprovodnosti u keramičkom oksidu bakra, lantana i barijuma 1986. godine [1] započinje niz kako eksperimentalnih istraživanja novih materijala s takvim svojstvima, tako i pokušaja nalaženja teorijskog modela koji bi opisao njihovo ponašanje. Iako je do danas postavljeno više teorija koje bi trebalo da objasne visokotemperatursku superprovodnost, traganje za novim visokotemperaturskim superprovodnicima bilo je i jeste u najvećoj meri empirijsko, budući da jedinstvena teorija koja bi mogla da ukaže na pravac razvoja takvih materijala još uvek nije poznata.

Proučavanjem visokotemperaturskih superprovodnika u nedopiranoj fazi primećeno je da oni imaju zajedničke strukturne karakteristike za koje se pretpostavlja da igraju značajnu ulogu u mehanizmu prelaska ovih materijala u superprovodno stanje. Iz tog razloga, u teorijskim istraživanjima ovih materijala u poslednjih nekoliko decenija velika pažnja se posvećuje izučavanju njihovih osobina upravo u nedopiranom režimu. Naime, struktura „roditeljskih” jedinjenja visokotemperaturskih kupratnih superprovodnika (kao što su  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ ,  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$ ,  $\text{Nd}_2\text{CuO}_4$ ,  $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$  itd.) karakteriše se slojevitom građom čiji je osnovni zajednički strukturni konstituent jedna ili više bliskih  $\text{CuO}_2$  ravni, koje predstavljaju pravougaone rešetke bakarnih jona, povezanih među sobom jonima kiseonika. Širi pregled najpoznatijih visokotemperaturskih kupratnih superprovodnika, njihove kristalne i magnetne strukture i faznih dijagrama može se naći u [2–5]. Važna osobina perovskitnih bakarnih oksida je antiferomagnetno uređenje spinova bakra u  $\text{CuO}_2$  ravnima. Jaka interakcija izmene spinova šupljina na jonima bakra  $\text{Cu}^{2+}$ , posredno preko jona kiseonika, dovodi do trodimenzionalnog antiferomagnetnog uređenja, sa relativno visokim Neelovim temperaturama  $T_N = 300 - 500$  K. Eksperimentalno je utvrđeno da je Cu – Cu interakcija izmene unutar ravni za nekoliko redova veličine veća od Cu – Cu interakcije između susednih ravni, usled čega se ova jedinjenja mogu smatrati kvazi-dvodimenzionalnim.

Predmet ove doktorske disertacije je teorijsko istraživanje osobina jako korelisanih kvazi-dvodimenzionalnih nedopiranih kuprata, koji su interesantni kako zbog svoje superprovodnosti, što ih čini privlačnim sa stanovišta tehnološke primene, tako i sa strogo teorijskog aspekta, budući da se mogu relativno uspešno aproksimirati dvodimenzionalnim spinskim Hajzenbergovim antiferomagnetom, modelom od fundamentalnog značaja u statističkoj fizici. Pažnja će prvenstveno biti posvećena proučavanju magnetnih osobina nedopiranog  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ , jedinjenja koje na niskim temperaturama, pri dopiranju sa Ba, Sr ili Ca prelazi u superprovodno stanje

i koje je tipičan predstavnik kvazi-dvodimenzionalnih kupratnih antiferomagneta sa jednom  $\text{CuO}_2$  ravni koja se ponavlja (eksperimentalno je pokazano da  $\text{Nd}_2\text{CuO}_4$  i  $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$  poseduju strukturu sličnu strukturi  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ ). Pored toga, za  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  postoji mnoštvo eksperimentalnih studija koje ukazuju na potrebu za nalaženjem teorijskog modela koji bi dobro opisivao magnetna svojstva ovog jedinjenja u nedopiranom režimu u opsegu temperatura od apsolutne nule do Nelove temperature ( $T_N$ ). Teorija spinskih talasa daje slaganje sa eksperimentalno dobijenim rezultatima samo na niskim temperaturama, dok je teorija Švingerovih bozona bolja, ali i ona daje dobro slaganje samo do temperatura  $0.8 T_N$ . Prema tome, nameće se potreba za teorijskim modelom koji bi dao slaganje sa eksperimentom i na temperaturama bliskim  $T_N$  i istovremeno razrešio neusaglašenost u literaturi po pitanju prirode (tipa) interakcije drugih suseda u ravni (fero- ili antiferomagnetna). Dalje, u okviru ovog modela potrebno je analizirati niskotemperaturno ponašanje svojstava kao što su magnetizacija i magnonski udeo u specifičnoj toploti, s obzirom na moguću vezu sa mehanizmom prelaska u superprovodno stanje. Takođe, s obzirom da je u literaturi posvećena pažnja i određivanju magnetne susceptibilnosti ovog jedinjenja, korisno je proveriti kakvi rezultati slede iz modelnog hamiltonijana uvedenog u ovom radu. Pored  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ , većinu navedenih svojstava ispitivaćemo i za  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$ , kupratni antiferomagnet čija magnetna elementarna ćelija sadrži dve bliske  $\text{CuO}_2$  ravni, koji je u nedopiranom stanju u literaturi manje izučavan, ali je zarad pokušaja nalaženja zajedničkih svojstava ove grupe kuprata značajno ukazati na sličnosti i razlike između magnetnih karakteristika ova dva jedinjenja. S obzirom da je naša pažnja prvenstveno usmerena na one karakteristike kvazi-dvodimenzionalnih kupratnih antiferomagneta za koje su dostupni eksperimentalni podaci, iz zaista bogate literature posvećene ovim jedinjenjima u najvećoj smo meri konsultovali radove u kojima su dati eksperimentalni podaci koje smo pokušali teorijski da reprodukujemo, kao i teorijske radove sa kojima smo mogli da uporedimo rezultate dobijene različitim metodama. Navešćemo sada, u kraćim crtama, one zaključke iz literature koji su predstavljali neposrednu motivaciju za naše istraživanje, i izložiti koje smo analize izvršili u cilju sticanja opšte slike o magnetnim svojstvima nedopiranih kupratnih antiferomagneta.

Jedna od polaznih tačaka u našem istraživanju bio je rad Coldea *et al.* [6] u kojem je dat spektar elementarnih ekscitacija  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  na niskim temperaturama (10 K), dobijen neelastičnim neutronske rasejanjem. U tom radu slaganje sa eksperimentom dobijeno je na dva načina. Spektar je najpre reprodukovao na osnovu Hajzenbergovog hamiltonijana sa feromagnetnom interakcijom između drugih suseda u ravni ("*next-nearest-neighbours*" (NNN) interakcija), što je u kontradikciji sa teorijskim pretpostavkama [7], koje predviđaju antiferomagnetnu NNN interakciju. Stoga je urađen drugi fit, koristeći spinski hamiltonijan dobijen razvojem Habardovog hamiltonijana, što je takođe dalo dobro slaganje sa eksperimentom, ovoga puta sa antiferomagnetnom NNN interakcijom. Prema tome, pitanje znaka NNN interakcije ostalo je otvoreno, što ukazuje na neophodnost nezavisne provere vrednosti dobijenih za integrale izmene. U tom cilju reprodukuvaćemo eksperimentalno dobijeni magnonski spektar u okviru teorije linearnih spinskih talasa (*Linear Spin-Wave theory*, LSW) i pomoću metoda Grinovih funkcija (*Green's functions*, GF) koristeći Hajzenbergov model sa drugim i trećim susedima, i pokazaćemo da je analiza Nelove temperature ta koja uvodi strogo ograničenje na izbor, kako modela, tako i parametara. Pri tome ćemo za dobijanje magnonskog spektra na niskim temperaturama koristiti Kalenovu aproksimaciju [8] za dekuplovanje viših Grinovih funkcija, dok ćemo za određivanje kritične temperature GF višeg reda dekuplovati tjablikovskom aproksimacijom [9]. Naše rezultate za Nelovu temperaturu upoređićemo sa eksperimentalno određenom vrednošću [10, 11] i ispitati zavisnost kritične temperature od različitih

parametara sistema, kako bi utvrdili koji od njih ima ključnu ulogu u uspostavljanju trodimenzionalnog dugodometnog uređenja.

Dalje, fazni dijagram  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  pokazuje da se u nedopiranoj fazi ovo jedinjenje na niskim temperaturama karakteriše ortorombnom strukturom, a da u tetragonalnu strukturu prelazi tek na temperaturi  $T_{st} = 530$  K (za razliku od  $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$  kod kojeg nije detektovan strukturni prelaz u ortorombnu strukturu sve do bar 10 K). U literaturi, pak, često se izučava tetragonalna struktura [6, 12, 13] čak i na niskim temperaturama, što je uslovljeno kako malom razlikom u parametrima između ove dve faze, tako i činjenicom da  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  u superprovodnom stanju u određenom opsegu koncentracija primesa ima tetragonalnu strukturu. Stoga je interesantno analizirati obe strukture, kako na niskim, tako i na visokim temperaturama i proveriti da li je i kada opravdano zamenjivati ortorombnu strukturu tetragonalnom. Pokazaće se da odatle (konkretno iz ispitivanja zavisnosti Nelove temperature od spinske anizotropije) proističu zanimljivi zaključci vezano za egzistenciju dugodometnog uređenja kod tetragonalnih sistema tipa  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ , uključujući slučajeve koji nisu obuhvaćeni Mermin-Vagnerovom teoremom [14] koja definiše uslove odsustva spontane magnetizacije za jedno(1D)- i dvodimenzionalni (2D) Hajzenbergov model. Videćemo da je polazeći od poznate Bogoljubovljeve nejednakosti [15] moguće analitički ispitati uticaj strukture na egzistenciju spontane magnetizacije u sistemima gorenavedenog tipa.

Zatim, u literaturi se mogu naći rezultati za ponašanje magnetizacije  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  u blizini apsolutne nule (Matsumara *et al.* [16]) dobijeni korišćenjem nuklearne magnetne rezonance, kao i neutronsom difrakcijom dobijena temperaturska zavisnost magnetizacije (u temperaturskom intervalu između apsolutne nule i Nelove temperature) za  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  i  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$  (Keimer *et al.* [10]). Stoga ćemo u okviru GF metoda ispitati ponašanje magnetizacije za oba jedinjenja i uporediti naše rezultate sa eksperimentom i sa rezultatima drugih teorija. Za slučaj  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  sprovedemo račun i u okviru LSW teorije, u cilju poređenja spinskog i bozonskog prilaza. Analiziraćemo takođe zavisnost magnetizacije podrešetke  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  od dimenzionalnosti, kao i prisustva i veličine interakcije drugih suseda, kako bi utvrdili uticaj frustracije na osnovna magnetna svojstva ovog jedinjenja. Posebna pažnja biće posvećena ispitivanju niskotemperaturske magnetizacije, kako u okviru spinskog, tako i bozonskog prilaza. Predmet analize biće i visokotemperatursko ponašanje (kritični eksponent  $\beta$ ).

Dalje, u literaturi se mogu naći radovi u kojima je procenjivan magnonski udeo u specifičnoj toploti  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  [17–20], s obzirom da se oduzimanjem tog doprinosa od ukupne specifične toplote nedopiranog uzorka može proceniti fononski udeo, prisutan i u superprovodnom uzorku. Koristeći naš model, procenićemo magnonsku specifičnu toplotu posmatranog jedinjenja u okviru GF metoda, posebno razmatrajući zavisnost od dimenzionalnosti i frustracije. Ispitaćemo niskotemperatursko ponašanje u dugotalasnoj aproksimaciji, kao i ponašanje u blizini temperature faznog prelaza (kritični eksponent  $\alpha$ ). Uzimajući u obzir da se u literaturi uglavnom razmatra jednostavan 2D model sa interakcijom najbližih suseda u okviru teorije linearnih spinskih talasa, izračunaćemo popravku koju na LSW rezultat daje naš 3D ortorombni model sa planarnom frustracijom, analizirajući zasebno niskotemperatursko ponašanje. Račun ćemo u okviru GF metoda sprovesti i za  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$ , u cilju ispitivanja sličnosti u ponašanju ova dva jedinjenja.

Jedno od svojstava kupratnih antiferomagneta kojem se u literaturi takođe posvećuje pažnja jeste magnetna susceptibilnost nedopiranog  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ , za koju postoje eksperimentalne [21] i teorijske [22, 23] studije. S obzirom da se u navedenim teorijskim radovima eksperimentalno dobijena temperaturska zavisnost reprodukuje pomoću modelnog hamiltonijana u kojem je uzeta

interakcija Đalošinski-Morija, ispitaćemo kakvo slaganje sa eksperimentom daje naš model u kome je navedena interakcija zanemarena, i utvrditi granice primenljivosti koje to pojednostavljenje postavlja našem modelu. Zarad poređenja sa teorijskim rezultatima u literaturi, ispitaćemo paralelnu magnetnu susceptibilnost najpre u okviru LSW teorije, za koju se očekuje da daje dobar opis na niskim temperaturama, a zatim u okviru GF metoda (u tjablikovskoj aproksimaciji) i u aproksimaciji srednjeg polja (*Mean-Field Approximation*, MFA) kako na temperaturama ispod kritične, tako i u paramagnetnoj fazi. Za  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$  će usled složenosti biti dat samo MFA rezultat.

Doktorska disertacija je koncipirana na sledeći način: u Poglavlju 1 dat je kraći prikaz struktura i osobina nekih poznatih visokotemperaturnih superprovodnika, zajedno sa odgovarajućim faznim dijagramima i modelima koji opisuju mehanizam realizacije električne provodnosti u tim jedinjenjima. Detaljniji opis kristalne i magnetne strukture kupratnih antiferomagnetna  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  i  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$ , na koje se odnosi najveći deo teorijske analize u radu, dat je u Poglavlju 2. U istom poglavlju navedeni su efektivni Hajzenbergovi hamiltonijani za oba jedinjenja, u kojima su sažete dominantne interakcije izmene i koji predstavljaju polaznu tačku u određivanju magnetnih i termodinamičkih veličina razmatranih u radu. U Poglavlju 3 date su osnovne napomene vezane za Hajzenbergov antiferomagnet, kao i kraći opis primenjenih teorijskih pristupa: teorije linearnih spinskih talasa, metoda Grinovih funkcija i aproksimacije srednjeg (molekulskog) polja. Posebno su opisane tjablikovska i Kalenova aproksimacija, koje su korišćene za dekoplovanje Grinovih funkcija višeg reda. Poglavlje 4 sadrži analizu brojnih magnetnih svojstava (magnonskog spektra, magnetizacije podrešetke, magnonskog udela u specifičnoj toploti, paralelne magnetne susceptibilnosti)  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  u okviru teorije linearnih spinskih talasa. Rezultati su upoređeni sa postojećim eksperimentalnim podacima, na osnovu čega je procenjena granica važenja ove teorije u datom slučaju. Pored toga, izvršeno je poređenje sa rezultatima LSW teorije za jednostavan model posmatranog jedinjenja (kvadratna rešetka bez planarne frustracije), često korišćen u literaturi. Analiza navedenih svojstava za  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  i  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$  u okviru metoda Grinovih funkcija, zajedno sa poređenjima sa eksperimentalnim rezultatima kao i rezultatima drugih teorija navedenim u literaturi, data je u Poglavlju 5. U okviru tog poglavlja izvršeno je i ispitivanje tetragonalne strukture  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  i data ocena opravdanosti aproksimacije ortorombne strukture tetragonalnom. Magnetna susceptibilnost izračunata je i u aproksimaciji srednjeg polja, zarad poređenja sa MFA rezultatima dobijenim u literaturi za model  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  sa interakcijom Đalošinski-Morija. Pri tome treba naglasiti da je analiza  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  iscrpnija od analize rezultata dobijenih za  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$ , s obzirom da oskudni eksperimentalni podaci i teorijski rezultati za nedopirano jedinjenje ograničavaju mogućnost komparativne analize. Poglavlje 6 je strogo analitičkog karaktera i sadrži dokaz, zasnovan na upotrebi Bogoljubovljeve nejednakosti, nepostojanja spontane magnetizacije na konačnim temperaturama za izotropne tetragonalne sisteme tipa  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ . Osnovni zaključci istraživanja sažeti su u Poglavlju 7.

---

# Poglavlje 1

## „Roditeljska” jedinjenja visokotemperaturnskih superprovodnika kao primer kvazi-dvodimenzionalnih kupratnih antiferomagneta

Od otkrića visokotemperaturnskih superprovodnika velika pažnja posvećuje se osobenostima ovih jedinjenja u izolatorskoj fazi, u cilju objašnjenja njihovog prelaska u superprovodno stanje. S obzirom da je zajednička strukturna karakteristika ovih jedinjenja postojanje  $\text{CuO}_2$  ravni, koje su u nedopiranoj fazi antiferomagnetno uređene i okarakterisane integralima izmene za nekoliko redova veličine većim od onih između susednih ravni, to se ova jedinjenja smatraju kvazi-dvodimenzionalnim i mogu se relativno dobro opisati dvodimenzionalnim antiferomagnetnim Hajzenbergovim modelom. Ipak, kao što će biti pokazano, korektan opis kupratnih antiferomagneta mora uzeti u obzir trodimenzionalno (3D) antiferomagnetno uređenje „roditeljskih” jedinjenja visokotemperaturnskih superprovodnika, koje je rezultat zajedničkog uticaja jake interakcije izmene i male spinske anizotropije unutar ravni, i slabe interplanarne interakcije.

### 1.1 Zašto baš kvazi-dvodimenzionalni kupratni antiferomagneti

Pojava superprovodnosti otkrivena je 1911. godine, kada je holandski fizičar Kamerling Onnes (*Kamerlingh Onnes*) ustanovio da ispod kritične temperature  $T_C \approx 4.2 \text{ K}$  otpor žive (Hg) opada čak  $10^7$  puta u odnosu na vrednost koja odgovara sobnoj temperaturi. Za ovim otkrićem usledio je niz istraživanja kojima je utvrđeno da superprovodne osobine, na temperaturama ispod kritične, pokazuje oko dvadeset metalnih elemenata (Nb, Pb, In...) i oko hiljadu jedinjenja i legura. Zastoj u istraživanjima nastupio je početkom sedamdesetih godina prošlog veka kada se, nakon otkrića superprovodnosti kod  $\text{Nb}_3\text{Ge}$  na temperaturama ispod  $T_C \approx 23.2 \text{ K}$ , na osnovu izvesnih teorijskih predviđanja mislilo da se u nastojanjima da se dobiju što više vrednosti kritičnih temperatura ne može dalje otići. Međutim, istraživanja keramičkih oksida sa kristalnom strukturom tipa perovskita dovela su sredinom osamdesetih godina do značajnog prodora Milerovim (*Müller*) i Bednorcovim (*Bednorz*) otkrićem superprovodnosti [1] u keramičkom oksidu bakra, lantana i barijuma ( $\text{La}_2\text{CuO}_4$  dopiran barijumom) na temperaturama ispod čak

$T_C \approx 30$  K. Dalja ispitivanja su pokazala da se ovo jedinjenje (kraće zvano LMCO, gde je sa M označen metal kojim se dopira) može dopirati i drugim primesama (Ca, Sr), čime se kritična temperatura menja.

Otkriće superprovodnog keramičkog oksida LMCO označava početak sintetisanja i izučavanja visokotemperaturnih superprovodnika. Usledilo je otkriće superprovodnosti u jedinjenju  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  sa kritičnom temperaturom  $T_C \approx 77$  K [2, 3]. Otada, sintetizovani su uzorci mnogobrojnih superprovodnika bakarnih oksida. Neki od njih su zajedno sa svojim kritičnim temperaturama prikazani u Tabeli 1.

TABELA 1

Materijal	$T_C$ (K)
$\text{HgBa}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{8+x}$	133
$\text{Tl}_2\text{Ca}_2\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10}$	125
$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$	92
$\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$	89
$\text{La}_{1.85}\text{Sr}_{0.15}\text{CuO}_4$	39
$\text{Nd}_{1.85}\text{Ce}_{0.15}\text{CuO}_4$	24

Posmatranjem kristalne strukture superprovodnih bakarnih oksida uočava se sličnost sa kristalnom strukturom perovskita [24]. Perovskitna struktura je karakteristična za jedinjenja sa hemijskom formulom  $\text{ABO}_3$ . Idealnu strukturu perovskita čini kubna kristalna rešetka, kod koje nemetalni anjoni kiseonika formiraju oktaedar oko nemetalnog katjona B, pri čemu osam takvih oktaedara okružuju metalni katjon A većeg radijusa. Takva struktura nazvana je perovskitna jer je otkrivena kod minerala perovskita  $\text{CaTiO}_3$  i zadržala je to ime premda je kasnije utvrđeno da je struktura  $\text{CaTiO}_3$  ortorombna. Istraživanja su pokazala da veoma mali broj oksida tipa perovskita ima na sobnim temperaturama jednostavnu kubnu strukturu, ali da mnogi od njih trpe prelaz u istu na višim temperaturama. Takođe, za perovskite je karakteristična promena kristalografskog sistema u tetragonalni ili ortorombni pri dodavanju male količine primesa.

Imajući u vidu strukturu perovskita, struktura superprovodnih bakarnih oksida može se posmatrati kao da je sastavljena od blokova perovskitne strukture, pomerenih jednih u odnosu na druge ili umetnutih između različitih slojeva. Pri tome se uočava da je **zajednički strukturni element superprovodnih bakarnih oksida jedna ili više bliskih, međusobno paralelnih  $\text{CuO}_2$  ravni**, razdvojenih slojevima drugih atoma (La, O, Ba, Y...). U tim ravnima atomi bakra su u kvadratnoj ili pravougaonoj koordinaciji pri čemu rastojanje Cu–O iznosi približno 0.19 nm. Eksperimentalno je utvrđeno da kritična temperatura bakarnih oksida zavisi od broja bliskih susednih  $\text{CuO}_2$  ravni i to tako što raste sa povećanjem tog broja od jedan do tri<sup>1</sup>, pri čemu je primećeno da s daljim povećanjem tog broja dolazi do zasićenja u rastu kritične temperature. Slojevi koji razdvajaju  $\text{CuO}_2$  primaju elektrone iz  $\text{CuO}_2$  ravni ili ih predaju istima, usled čega ove ravni postaju elektronski aktivne, tj. u njima se javlja provodnost šupljinskog (p), odnosno elektronskog (n) tipa.

Ova svojstva  $\text{CuO}_2$  ravni ukazuju na bitnu povezanost pojave superprovodnosti sa procesima koji se dešavaju u  $\text{CuO}_2$  ravnima visokotemperaturnih superprovodnika, te se često problem izučavanja njihove strukture pojednostavljuje ograničavanjem na analizu  $\text{CuO}_2$  ravni,

<sup>1</sup>Na primer, jedinjenje  $\text{Tl}_2\text{Ca}_2\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10}$ , čija je kritična temperatura visoka i iznosi  $T_C \approx 125$  K, ima u svojoj strukturi tri bliske  $\text{CuO}_2$  ravni.

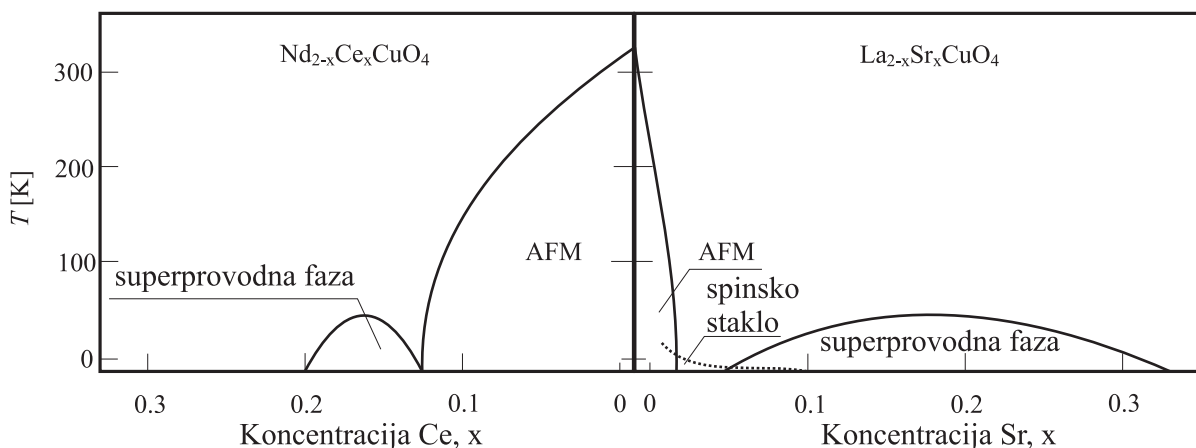
što je opravdano s obzirom da su integrali izmene u tim ravnima za nekoliko redova veličine veći od integrala izmene između susednih ravni, usled čega se ova jedinjenja tretiraju kao kvazi-dvodimenzionalna.

Druga bitna karakteristika superprovodnih bakarnih oksida je **antiferomagnetno dugodometno uređenje** nedopiranih jedinjenja. Antiferomagnetno (AFM) uređenje podrazumeva (prema Nelu) skup dve ili više različito orijentisanih feromagnetnih podrešetki, pri čemu se najbliži susedi nalaze u čvorovima koji pripadaju različitim podrešetkama (detaljnije u odeljku 3.1). Pri dopiranju, dugodometno uređenje spinova biva uništeno, ali je eksperimentalno (neelastičnim neutronske raseljanjem) utvrđeno da se u superprovodnoj fazi zadržava kratkodometno uređenje spinova koje je na malim rastojanjima blisko onom uočeno u nedopiranom stanju ispod Nelove temperature. S obzirom na to da se antiferomagnetne korelacije javljaju i u superprovodnoj fazi, antiferomagnetizam ovih jedinjenja često se povezuje sa njihovom superprovodnošću, te je velik broj radova posvećen upravo izučavanju magnetnih osobina nedopiranih („roditeljskih”) jedinjenja visokotemperaturnih superprovodnih kupratnih oksida.

## 1.2 Primeri visokotemperaturnih superprovodnih kupratnih oksida

Premda će u ovoj doktorskoj disertaciji pažnja biti posvećena roditeljskim jedinjenjima visokotemperaturnih kupratnih superprovodnika, u ovom odeljku će zarad sticanja opštije slike biti dati fazni dijagrami dopiranih jedinjenja i ukratko će biti navedeni mehanizmi realizacije električne provodnosti u  $\text{CuO}_2$  ravnima ovih jedinjenja.

Fazni dijagrami  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  i  $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$  pokazuju veliku sličnost (Slika 1.). Oba jedinjenja su u nedopiranom stanju antiferomagnetno uređena sa sličnim Nelovim temperaturama, s tom razlikom što je antiferomagnetna faza stabilnija za  $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$  (narušava se tek za koncentraciju primesa od  $x \simeq 0.12$ ). Sa daljim porastom koncentracije primesa, kod oba jedinjenja se na niskim temperaturama javlja superprovodna faza sa najvišom kritičnom temperaturom koja odgovara koncentraciji primesa od oko  $x \simeq 0.15$ .



Sl. 1: Poređenje faznih dijagrama za  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  i  $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$  [2]

Interesantno je uporediti načine na koje se u  $\text{CuO}_2$  ravnima realizuje električna provodnost u ova dva jedinjenja. U slučaju  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  metalno stanje postiže se tako što se

joni trovalentnog lantana ( $\text{La}^{3+}$ ) zamenjuju dvovalentnim stroncijumom ( $\text{Sr}^{2+}$ ). Usled toga, radi očuvanja električne neutralnosti, dolazi do odlaženja elektrona iz  $\text{CuO}_2$  ravni, tačnije iz  $p$ -ljuski kiseonikovih jona  $\text{O}^{2-}$  koji prelaze u  $\text{O}^-$  stanje sa jednom šupljinom u  $p$ -ljusci. Za razliku od  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ ,  $\text{CuO}_2$  ravni  $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$  se dopiraju elektronima. Naime, trovalentni neodijum ( $\text{Nd}^{3+}$ ) zamenjuje se četvorovalentnim cerijumom ( $\text{Ce}^{4+}$ ) zbog čega se višak elektrona prenosi u  $\text{CuO}_2$  ravan. Smatra se (videti referencu [4]) da se ti elektroni smeštaju na bakarne jone  $\text{Cu}^{2+}$  čime oni prelaze u stanje  $\text{Cu}^+$  sa popunjenom  $d$ -ljuskom. U ovom, kao i u prethodnom slučaju, znak Holovog (*Hall*) koeficijenta potvrdio je o kojoj se vrsti nosilaca naelektrisanja radi. Zanimljivo je zapaziti (Sl. 1.) da kod jedinjenja koja se dopiraju elektronima, superprovodna faza postoji u mnogo užem opsegu koncentracija primesa.

Za razliku od prethodno opisanih jedinjenja,  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  se karakteriše time što poseduje  $\text{CuO}_2$  ravni koje nisu samostalne, već se nalaze u grupama od po dve [2,3]. Ove ravni razdvojene su jonima itrijuma, koji s njima čine jako povezan  $\text{CuO}_2 - \text{Y}^{3+} - \text{CuO}_2$  dvosloj. Parovi  $\text{CuO}_2$  ravni su međusobno razdvojeni slojevima atoma Cu, Ba i O, koji obrazuju „rezervoar naelektrisanja”.

U strukturi  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  postoje dve vrste mesta za atome bakra:

- Cu1 u okviru jednodimenzionalnih struktura duž  $b$ -pravaca elementarne ćelije, tzv. Cu1-O1 lanaca
- Cu2 u okviru  $\text{CuO}_2$  ravni

i tri vrste mesta za atome kiseonika:

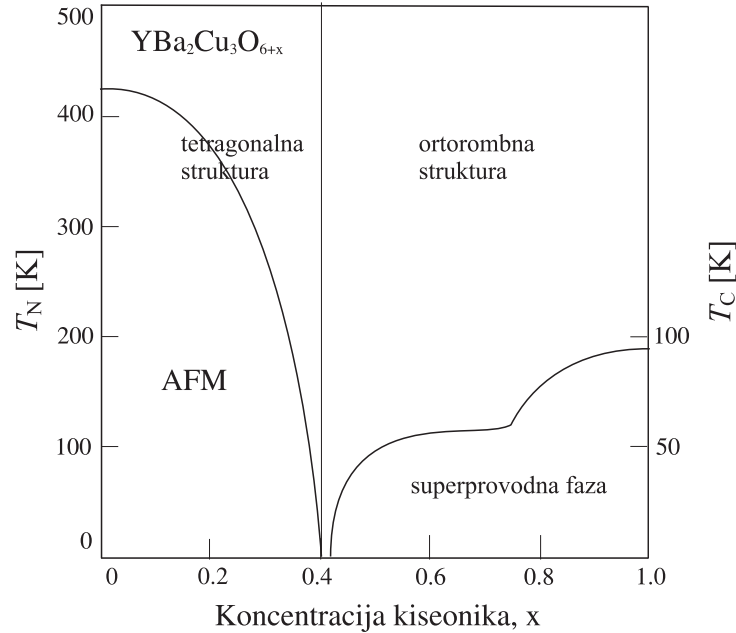
- O1 u okviru Cu1-O1 lanaca
- O2 i O3 u okviru  $\text{CuO}_2$  ravni
- O4, tzv. apeksni kiseonik, čiji je položaj između Cu1 i Cu2

U nedopiranom jedinjenju, atomi bakra u  $\text{CuO}_2$  ravnima su u kvadratno planarnoj koordinaciji (vezani su sa dva O2 i O3 kiseonikova atoma) i nalaze se u stanju  $\text{Cu}^{2+}$ . Za razliku od njih, atomi bakra na mestima Cu1 vezani su sa dva apeksna kiseonika O4 i nalaze se u  $\text{Cu}^+$  stanju. Prema tome,  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  poseduje antiferomagnetno uređenje koje potiče od spinova šupljina bakarnih jona u  $\text{CuO}_2$  ravnima, s obzirom da joni bakra na mestima Cu1 nemaju magnetni moment.

Za razliku od prethodno opisanih jedinjenja, metalno stanje se kod  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  postiže dopiranjem kiseonikovim atomima. Promene koje pri tome nastaju mogu se pratiti na faznom dijagramu ovog jedinjenja (Slika 2.). Pri dopiranju, sve do koncentracije  $x \simeq 0.2$  održava se čisto antiferomagnetno stanje, jer se atomi kiseonika s jednakom verovatnoćom raspoređuju u oba pravca (  $a$  i  $b$  ) elementarne ćelije, formirajući samo monomere  $\text{Cu}^{2+} - \text{O}^{2-} - \text{Cu}^{2+}$ . S povećanjem koncentracije kiseonika ( $0.2 < x < 0.4$ ), formiraju se fragmenti lanaca (Cu – O – Cu – O – Cu) koji su još uvek slučajno orjentisani tako da kristalna struktura ostaje tetragonalna. U ovom opsegu koncentracija kiseonikovih atoma antiferomagnetno stanje se naziva dopiranim, jer se u  $\text{CuO}_2$  ravnima javlja mala koncentracija šupljina. Ova činjenica se objašnjava time što da bi se formirali  $\text{O}^{2-}$  joni duž Cu1-O1 lanaca, treba dovesti elektrone iz drugih delova kristala, najverovatnije [4] iz  $\text{CuO}_2$  ravni. Sa povećanjem koncentracije kiseonikovih atoma ( $x \simeq 0.4$ ), fragmenti lanaca počinju da se uređuju u pravcu  $b$  elementarne ćelije, obrazujući tako superstrukturu s naizmeničnim smenjivanjem skoro popunjenih i



skoro praznih Cu1–O1 lanaca. Ovo je praćeno značajnim povećanjem koncentracije šupljina u CuO<sub>2</sub> ravnima. Usled izmenske interakcije spinova bakra sa spinovima novonastalih šupljina u *p*-luskama kiseonikovih atoma u tim ravnima, u sistemu dolazi do narušavanja antiferomagnetnog uređenja i on prelazi u metalno stanje koje na niskim temperaturama postaje superprovodno. S obzirom na asimetriju između pravaca *a* i *b*, pri koncentraciji  $x \simeq 0.4$  dolazi do strukturnog prelaza iz tetragonalne u ortorombnu strukturu.



Sl. 2: Fazni dijagram YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>6+x</sub> [2]

Ako dalje dopiramo YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>6+x</sub> kiseonikom, atomi kiseonika će, formirajući u početku samo kratke fragmente, popunjavati prazne Cu1–O1 lance u gorespomenutoj superstrukturi, te se koncentracija šupljina u CuO<sub>2</sub> ravnima ne povećava, što je u zavisnosti kritične temperature od koncentracije kiseonika opisano pojavom ravnog platoa na temperaturi  $T_C \simeq 60$  K. Sa daljim povećanjem koncentracije kiseonika, ovi se fragmenti produžuju obrazujući lance, čime se opet povećava koncentracija šupljina u CuO<sub>2</sub> ravnima.

Nažalost, nemoguće je ispitati da li se može dobiti viša kritična temperatura povećanjem koncentracije kiseonikovih atoma iznad  $x = 1$ , jer je za  $x = 1$  struktura lanaca u potpunosti dovršena.

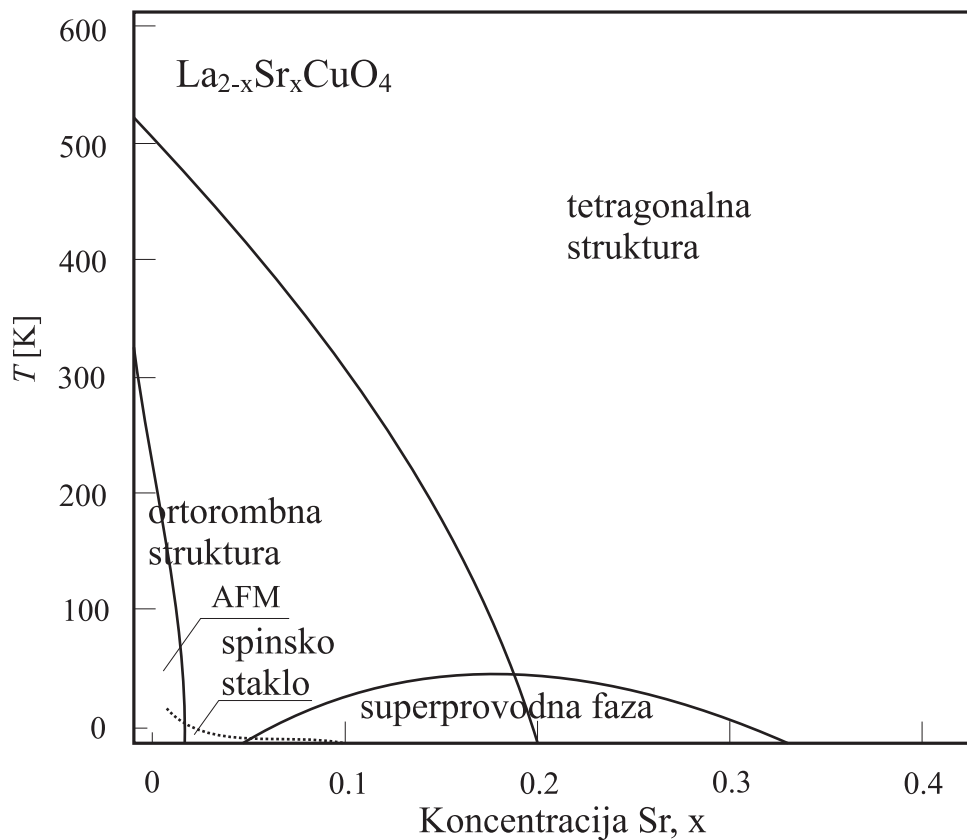


## Poglavlje 2

# Antiferomagnetni kupratni oksidi $\text{La}_2\text{CuO}_4$ i $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$

### 2.1 Kristalna i magnetna struktura $\text{La}_2\text{CuO}_4$

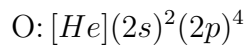
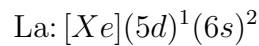
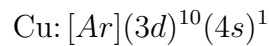
S obzirom da će u ovoj doktorskoj disertaciji najveća pažnja biti posvećena ispitivanju elementarnih ekscitacija i termodinamičkih osobina  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ , detaljnije ćemo opisati njegovu kristalnu strukturu i magnetno uređenje. U tom cilju, posmatraćemo fazni dijagram dopiranog jedinjenja  $\text{La}_{2-x}\text{M}_x\text{CuO}_4$  (Slika 3.).



Sl. 3: Fazni dijagram  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  u zavisnosti od koncentracije stroncijuma [2]

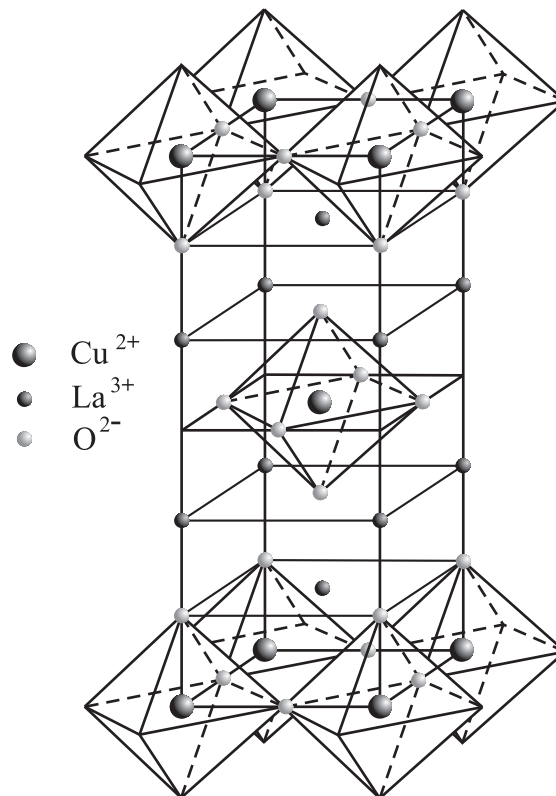
Sa faznog dijagrama vidi se da na temperaturama iznad  $T_{st} = 530$  K  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  kristališe u tetragonalnom kristalografskom sistemu, sa konstantama rešetke  $a_t = b_t \simeq 0.378$  nm i  $c_t \simeq 1.32$  nm [2]. Pri snižavanju temperature dolazi do strukturnog prelaza iz tetragonalne u ortorombnu kristalnu strukturu, usled zakretanja  $\text{CuO}_6$  oktaedara oko odgovarajuće ose simetrije u  $\text{CuO}_2$  ravni<sup>1</sup>. Na nižim temperaturama strukturni prelazi nisu detektovani, te se može zaključiti da nedopirani  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  na temperaturama ispod  $T_{st}$  kristališe u ortorombnom kristalografskom sistemu, sa konstantama rešetke  $a_o = 0.534$  nm,  $b_o = 0.541$  nm i  $c_o = 1.314$  nm [25,26].

Razmotrimo sada elektronske konfiguracije elemenata koji obrazuju ovo jedinjenje:



U kristalu, lantan se nalazi u  $\text{La}^{3+}$  stanju koje odgovara stabilnoj konfiguraciji ksenona, kiseonik u  $\text{O}^{2-}$  stanju kojem odgovara popunjena p-ljuska, a bakar, s obzirom da se mora očuvati električna neutralnost, mora biti u  $\text{Cu}^{2+}$  stanju.

Kristalnu strukturu  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  (Slika 4.) čine samostalne  $\text{CuO}_2$  ravni, na međusobnom rastojanju koje iznosi približno 0.66 nm, razdvojene jedna od druge sa dva nemagnetna LaO sloja (tzv. „rezervoar naelektrisanja”). Joni bakra u  $\text{CuO}_2$  ravnima obrazuju pravougaonu mrežu koja je u odnosu na susednu ravan smaknuta za  $a_e/2$ .



Sl. 4: Kristalografska elementarna ćelija  $\text{La}_2\text{CuO}_4$

<sup>1</sup>Ovakvi prelazi registrovani su i kod dopiranja  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  sa Ba i Ca.

Svaki jon bakra okružen je sa šest jona kiseonika: četiri u ravni i dva duž  $z$ -ose (tzv. apeksni kiseonici). Ovi joni kiseonika obrazuju oko bakra oktaedar, slično perovskitnoj strukturi. Rastojanje između bakra i kiseonika u ravni iznosi približno 0.19 nm, a u pravcu  $z$ -ose približno<sup>2</sup> 0.24 nm, što znači da je oktaedar izdužen u  $z$ -pravcu. Izduženje ovog oktaedra može se objasniti analiziranjem elektronske strukture  $CuO_2$  ravni. Naime, energetski nivo 3d-stanja izolovanog bakarnog jona se u kristalu cepa na podnivo zbog interakcije sa kristalnim (ligandnim) poljem. U polju sferne simetrije, energija 3d-nivoa je petostruko degenerisana, ali se u polju kubne simetrije petostruki 3d-nivo cepa na triplet niže i dublet više energije. Pri smanjenju simetrije od kubne do tetragonalne triplet se cepa na dublet niže i singlet više energije, a dublet na dva singleta. Smanjenje energije koje nastaje pri skidanju degeneracije tog dubleta (efekat Jana-Telera (*Jahn-Teller*)) daje značajan doprinos [2] u izduženju  $CuO_6$  oktaedara u posmatranom jedinjenju.

Premda  $La_2CuO_4$  nije superprovodan, kada se dopira sa Ba, Sr ili Ca pokazuje superprovodnost na temperaturama ispod kritične. Najzanimljivije je jedinjenje sa Sr jer pokazuje najviše vrednosti kritične temperature. Promene koje nastaju pri dopiranju Sr mogu se pratiti na faznom dijagramu. Naime, kao što je već rečeno (poglavlje 1.2), zamena  $La^{3+}$  sa  $Sr^{2+}$  dovodi do prelaska elektrona iz  $CuO_2$  ravni u „rezervoar naelektrisanja”. Ovo se realizuje tako što elektroni napuštaju jone kiseonika  $O^{2-}$  zbog čega ovi prelaze u stanje  $O^-$  sa šupljinom u p-ljusci<sup>3</sup>. Usled izmenske interakcije [2] između spinova na bakarnim jonima i spinova novonastalih šupljina, dolazi do brzog razgrađivanja antiferomagnetnog uređenja, te već pri koncentracijama  $x \simeq 0.02$  dugodometno antiferomagnetno uređenje nestaje, a na niskim temperaturama se javlja faza spinskog stakla<sup>4</sup>. Daljim povećavanjem koncentracije Sr ( $x \simeq 0.04$ ),  $La_{2-x}Sr_xCuO_4$  prelazi u metalno stanje. Za koncentraciju Sr između  $x \simeq 0.06$  i  $x \simeq 0.25 - 0.30$ , javlja se na niskim temperaturama superprovodna faza. Maksimalna vrednost kritične temperature  $T_C^{max} = 40$  K odgovara tzv. „optimalnoj” koncentraciji Sr od  $x \simeq 0.15$ <sup>5</sup>.

Gore je rečeno da se bakar u  $La_2CuO_4$  nalazi kao  $Cu^{2+}$  jon. To znači da svaki atom bakra otpušta dva elektrona, jedan 4s- i jedan 3d-elektron, usled čega u 3d-ljusci (preciznije u  $d_{x^2-y^2}$  orbitali) ostaje jedna šupljina sa spinom  $S = \frac{1}{2}$ . Spinovi nepopunjenih d-ljuski koji su lokalizovani u čvorovima kristalne rešetke obrazuju magnetnu rešetku i povezani su međusobno kvantnomehaničkim silama izmene kojima odgovaraju integrali izmene  $J$ . Neutronsom difrakcijom utvrđeno je da su spinovi unutar  $CuO_2$  ravni antiferomagnetno orijentisani (kuplovani). Magnetna struktura  $La_2CuO_4$  u ortorombnoj fazi zajedno sa dominantnim interakcijama izmene prikazana je na Slici 5. Sa slike se vidi da se kristalografska i magnetna jedinična ćelija pokla-

<sup>2</sup>Ovo rastojanje je slično za mnoge bakarne okside.

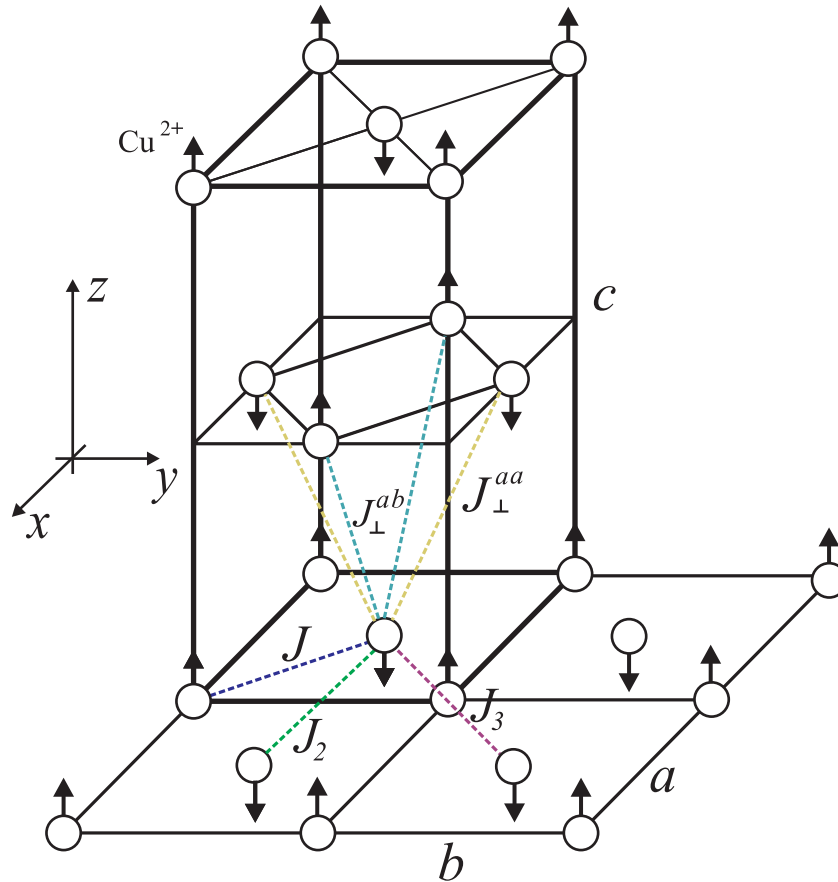
<sup>3</sup>Usled jakog kulonovskog odbijanja koje bi postojalo između dve šupljine kada bi elektroni odlazili iz d-orbitale bakra, energetski je povoljniji prelazak elektrona iz p-ljuski kiseonika.

<sup>4</sup>Spinsko staklo je magnetni materijal u kojem se ispod određene temperature (temperature mržnjenja  $T_f$ ) uspostavlja termodinamički neravnotežno metastabilno magnetno stanje koje se odlikuje „zamrznutom” raspodelom nasumično orijentisanih lokalizovanih magnetnih momenata (spinova) bez uspostavljanja dugometnog uređenja. Takvo ponašanje je posledica prisustva datog fiksiranog (*quenched*) skupa spinskih interakcija  $J_{ij}$  takvog da se ovi sistemi karakterišu frustracijom [27].

U slučaju lantanida, verovatni uzrok pojave spinskog stakla jeste interakcija između spinova bakarnih jona i spinova šupljina koje se dopiranjem uvode u sistem.

<sup>5</sup>Pri dopiranju sa Ba ili Sr maksimalne kritične temperature ( $T_c^{max} = 30$  K i  $T_c^{max} = 20$  K, respektivno) postižu se takođe pri koncentraciji primesa od  $x \simeq 0.15$ .

paju i da se karakterišu zapreminom  $abc$ .



Sl. 5: Magnetna elementarna ćelija  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ . Prikazani su samo  $\text{Cu}^{2+}$  joni. Smer strelice označava usmerenost spina na datom čvoru kristalne rešetke. Crtkastim linijama su prikazane dominantne interakcije izmene u ravni i između susednih  $\text{CuO}_2$  ravni. Parametri elementarne ćelije označeni su sa  $a$ ,  $b$  i  $c$ .

Dugodometno AFM uređenje postoji u temperaturnom opsegu od apsolutne nule do Nelove temperature (Sl. 3.) iznad koje sistem spinova prelazi u paramagnetno stanje. Nelova temperatura za ovo jedinjenje je određena neutronsom difrakcijom i iznosi  $T_N \simeq 325(5)$  K [10, 11].

## 2.2 Efektivni hamiltonijan za $\text{La}_2\text{CuO}_4$

Da bi se za sistem uređenih spinova opisanih u poglavlju 2.1 napisao efektivni hamiltonijan, bitno je identifikovati dominantne interakcije izmene. Kada je započeto sa teorijskim proučavanjem magnetnih osobina  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ , pošlo se od 2D Hajzenbergovog modela u kome je uzeta samo interakcija najbližih suseda u ravni, opisana integralom izmene  $J$ . Takav model je sa zadovoljavajućom tačnošću opisivao spektar elementarnih ekscitacija dobijen u prvim eksperimentima, izvedenim sa neutronima energija 2–50 meV. Međutim, teorijski pristup koji je uključivao i interakciju izmene drugih suseda u ravni predviđao je da se u blizini granice prve Brillouinove (*Brillouin*) zone (BZ) mora javiti osobitost u disperziji kao posledica te interakcije. S obzirom da su u početku eksperimenti izvođeni sa detektorima male tačnosti u određivanju položaja rasejanih neutrona, to su izmereni spektri zapravo predstavljali srednje

vrednosti na velikim oblastima recipročnog prostora i uticaj interakcije izmene drugih suseda nije se mogao registrovati. Korišćenjem epitermalnih neutrona energije 0.1 – 1.0 eV i detektora osetljivosti veće za red veličine, merenja spektra spinskih talasa duž granice Brillouenove zone potvrdila su teorijska predviđanja [6]. Prema tome, potpuniji opis magnetizma u  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  zahteva uračunavanje interakcija koje nisu sadržane u 2D hamiltonijanu sa interakcijom prvih suseda. Tako se u hamiltonijan uvode interakcija drugih i trećih suseda u ravni, opisane integralima izmene  $J_2$  i  $J_3$  respektivno, kao i interakcija između  $\text{CuO}_2$  ravni, opisana integralima izmene  $J_\perp$ . Uobičajeno je da se ne uračunava interakcija između drugih suseda u pravcu normalnom na  $\text{CuO}_2$  ravni, jer je za ovaj tip jedinjenja interplanarna interakcija mnogo manja od intraplanarne ( $J_\perp \ll J$ ), budući da se interakcija između susednih ravni ostvaruje posredstvom dva nemagnetna LaO sloja.

U hamiltonijan se može uvesti i antisimetrična interakcija izmene Đalošinski-Morija (*Dzyaloshinski-Moriya*, DM) [25, 26] (opisana integralom izmene  $J_{DM}$ ) koja potiče od male rotacije  $\text{CuO}_6$  oktaedara izazvane strukturnim prelazom iz tetragonalne u ortorombnu fazu. Pri tome dolazi do zakretanja spinova koji su do tada ležali u ravni, usled čega svaka  $\text{CuO}_2$  ravan ispoljava slabi feromagnetizam. Feromagnetni momenti susednih  $\text{CuO}_2$  ravni su antiferomagnetno uređeni, te je feromagnetni moment sistema u celini jednak nuli. Ova interakcija ne javlja se kod svih kupratnih antiferomagnetna:  $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$ , na primer, za razliku od  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ , zadržava tetragonalnu strukturu sve do bar 10 K, tj. u tom temperaturnom opsegu ne dolazi do strukturnog prelaza koji bi doveo do pojave DM interakcije [5]. U našem modelnom hamiltonijanu DM interakcija biće zanemarena iz razloga koji će biti kasnije navedeni (videti odeljak 5.4.4).

Radi kasnije analize zapisaćemo modelni hamiltonijan pomoću spinskih operatora  $\hat{S}^\pm$  i  $\hat{S}^z$ , vršeci rotaciju ose kvantizacije  $b$  podrešetke za ugao  $\pi$ , usled čega važi:

$$\hat{S}^{\pm(b)} \rightarrow \hat{S}^{\mp(b)}, \quad \hat{S}^{z(b)} \rightarrow -\hat{S}^{z(b)}. \quad (2.1)$$

Tada hamiltonijan posmatranog sistema spinova u spoljašnjem magnetnom polju glasi:

$$\begin{aligned} \hat{H} = & J \sum_{\mathbf{n}_a, \delta_1} \left[ \frac{1}{2} (\hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{+(a)} \hat{S}_{\mathbf{n}_a + \delta_1}^{+(b)} + \hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{-(a)} \hat{S}_{\mathbf{n}_a + \delta_1}^{-(b)}) - (1 + \eta) \hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{z(a)} \hat{S}_{\mathbf{n}_a + \delta_1}^{z(b)} \right] + \\ & + \sum_{\substack{\mathbf{n}_\alpha \\ (\alpha=a,b)}} \sum_{\substack{\delta_i \\ (i=2,3)}} \frac{J_i}{2} \left[ \frac{1}{2} (\hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha}^{+(\alpha)} \hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha + \delta_i}^{-(\alpha)} + \hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha}^{-(\alpha)} \hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha + \delta_i}^{+(\alpha)}) + \hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha}^{z(\alpha)} \hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha + \delta_i}^{z(\alpha)} \right] + \\ & + J_\perp^{ab} \sum_{\mathbf{n}_a, \delta_\perp^{ab}} \left[ \frac{1}{2} (\hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{+(a)} \hat{S}_{\mathbf{n}_a + \delta_\perp^{ab}}^{+(b)} + \hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{-(a)} \hat{S}_{\mathbf{n}_a + \delta_\perp^{ab}}^{-(b)}) - \hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{z(a)} \hat{S}_{\mathbf{n}_a + \delta_\perp^{ab}}^{z(b)} \right] + \\ & + \sum_{\substack{\mathbf{n}_\alpha, \delta_\perp^{\alpha\alpha} \\ (\alpha=a,b)}} \frac{J_\perp^{\alpha\alpha}}{2} \left[ \frac{1}{2} (\hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha}^{+(\alpha)} \hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha + \delta_\perp^{\alpha\alpha}}^{-(\alpha)} + \hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha}^{-(\alpha)} \hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha + \delta_\perp^{\alpha\alpha}}^{+(\alpha)}) + \hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha}^{z(\alpha)} \hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha + \delta_\perp^{\alpha\alpha}}^{z(\alpha)} \right] + \\ & - g\mu_B \mathcal{H} \left[ \sum_{\mathbf{n}_a} \hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{z(a)} - \sum_{\mathbf{n}_b} \hat{S}_{\mathbf{n}_b}^{z(b)} \right]. \quad (2.2) \end{aligned}$$

Prvi član u izrazu (2.2) opisuje interakciju izmene susednih spinova u ravni, pri čemu  $\mathbf{n}_\alpha$  označava položaj datog spina u podrešetki  $\alpha$  ( $\alpha = a, b$ ), a  $\delta_1$  označava vektor koji povezuje uočeni spin sa njemu najbližim susedima u ravni. Pozitivni parametar  $\eta$  predstavlja spinsku anizotropiju i definiše luku osu magnetizacije duž pozitivnog smera  $z$ -ose.

Drugim članom je opisana interakcija između drugih i trećih suseda u ravni. Nadalje ćemo pretpostavljati da je  $J_2 = J_3$ , tj. da su integrali izmene interakcije drugih i trećih suseda

međusobno jednaki [6, 12], što se može smatrati opravdanim uzimajući u obzir da se obe interakcije ostvaruju posredstvom dve Cu–O–Cu veze. Faktor  $1/2$  se pojavljuje usled toga što se svaki par spinova računa dva puta. Pretpostavljena priroda interakcije je antiferomagnetna. Kasnije će biti pokazano da je ta pretpostavka tačna, usled čega se posmatrani sistem odlikuje frustracijom koja dovodi do feromagnetnog uređenja drugih i trećih suseda (Sl. 5).

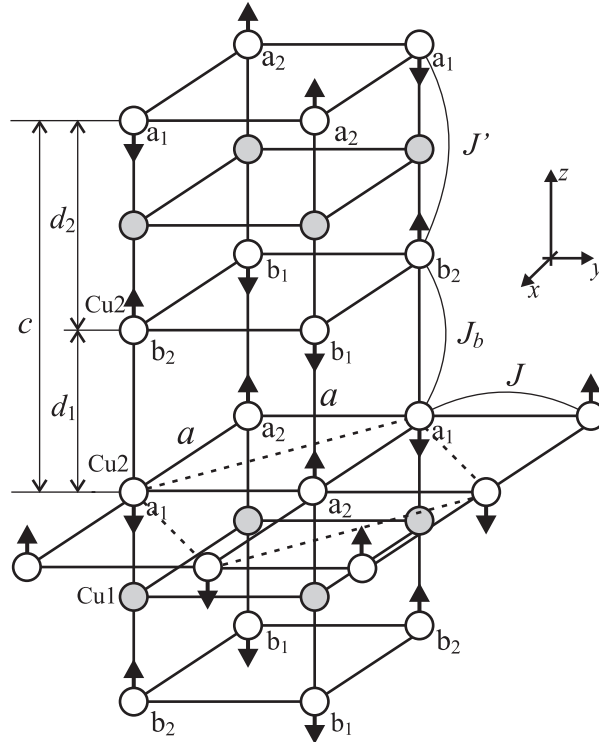
Treći i četvrti član opisuju interakciju uočenog spina sa najbližim spinovima u susednim ravnima. Slično prethodnom članu, i ovde je pretpostavljeno da uočeni spin *interaguje* antiferomagnetno sa svih osam najbližih suseda u susednim ravnima, dok je feromagnetno *sparivanje* sa četiri od njih posledica frustracije. Pri tome ćemo pretpostaviti da je  $J_{\perp}^{aa} = J_{\perp}^{bb}$ .

Poslednji član u hamiltonijanu opisuje interakciju sa spoljašnjim magnetnim poljem jačine  $\mathcal{H}$  usmerenim duž  $+z$  ose. U tom članu  $g$  je Landeov faktor elektrona, a  $\mu_B$  Borov magneton.

## 2.3 Magnetna struktura i efektivni hamiltonijan za $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$

S obzirom da su brojna magnetna i termodinamička svojstva (magnonski spektar, magnetizacija podrešetke, unutrašnja energija, specifična toplota, paralelna susceptibilnost) u radu izračunata za dvoslojni kupratni antiferomagnet  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$ , u ovom odeljku ćemo ukratko opisati magnetnu strukturu i dati efektivni hamiltonijan u kome su sadržane dominantne interakcije izmene tog jedinjenja.

Magnetna elementarna ćelija  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$  prikazana je na Slici 6.



Sl. 6: Antiferomagnetna struktura  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$ . Prikazani su  $\text{Cu}^{2+}$  (Cu2) i  $\text{Cu}^+$  (Cu1) joni. Smer strelice označava usmerenost spina na datom čvoru kristalne rešetke. Dominantni integrali izmene dati su oznakama  $J$ ,  $J_b$  i  $J'$ . Parametri elementarne kristalografske ćelije označeni su sa  $a$ ,  $d_1$ ,  $d_2$  i  $c$ . Magnetna jedinična ćelija označena je isprekidanim linijama.



Sa slike se vidi da je reč o magnetnoj superrešetki koja sadrži četiri podrešetke označene sa  $a_{1/2}$  i  $b_{1/2}$ . Pri tome su spinovi u podrešetkama  $a_2$  i  $b_2$  okrenuti u pozitivnom, a spinovi u podrešetkama  $a_1$  i  $b_1$  u negativnom smeru  $z$ -ose. Sa  $d_1$  označeno je rastojanje između dve  $\text{CuO}_2$  ravni koje formiraju dvosloj, dok  $d_2$  označava rastojanje između dva susedna dvosloja. Konstanta rešetke u pravcu  $z$ -ose data je sa  $c = d_1 + d_2$ , a u ravni je označena sa  $a$ . S obzirom da  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$  kristališe u tetragonalnom kristalografskom sistemu (videti Sl. 2.), očito je da se za razliku od  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  zapremina kristalografske i magnetne elementarne ćelije ovde razlikuju. Prva iznosi  $a^2c$ , dok je zapremina druge  $2a^2c$ .

Interakcija izmene između najbližih suseda u ravni označena je sa  $J$ ,  $J_b$  predstavlja interakciju između najbližih suseda u dve susedne  $\text{CuO}_2$  ravni koje obrazuju dvosloj, dok  $J'$  označava interakciju između najbližih suseda koji pripadaju dvama susednim dvoslojima.

Dvoslojni antiferomagnet  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$  u spoljašnjem magnetnom polju jačine  $\mathcal{H}$  koje deluje u pozitivnom smeru  $z$ -ose opisujemo 3D anizotropnim Hajzenbergovim hamiltonijanom:

$$\begin{aligned}
\hat{H} = & J \sum_{\substack{\mathbf{n}_{\alpha_1, \delta_1} \\ \alpha=a,b}} \left\{ \frac{1}{2} \left( \hat{S}_{\mathbf{n}_{\alpha_1}}^{+(\alpha_1)} \hat{S}_{\mathbf{n}_{\alpha_1+\delta_1}}^{+(\alpha_2)} + H.c. \right) - (1 + \eta) \hat{S}_{\mathbf{n}_{\alpha_1}}^{z(\alpha_1)} \hat{S}_{\mathbf{n}_{\alpha_1+\delta_1}}^{z(\alpha_2)} \right\} + \\
& + J_b \sum_{\mathbf{n}_{a_1}} \left\{ \frac{1}{2} \left( \hat{S}_{\mathbf{n}_{a_1}}^{+(a_1)} \hat{S}_{\mathbf{n}_{a_1+\delta_\perp}}^{+(b_2)} + H.c. \right) - \hat{S}_{\mathbf{n}_{a_1}}^{z(a_1)} \hat{S}_{\mathbf{n}_{a_1+\delta_\perp}}^{z(b_2)} \right\} + \\
& + J_b \sum_{\mathbf{n}_{a_2}} \left\{ \frac{1}{2} \left( \hat{S}_{\mathbf{n}_{a_2}}^{+(a_2)} \hat{S}_{\mathbf{n}_{a_2+\delta_\perp}}^{+(b_1)} + H.c. \right) - \hat{S}_{\mathbf{n}_{a_2}}^{z(a_2)} \hat{S}_{\mathbf{n}_{a_2+\delta_\perp}}^{z(b_1)} \right\} + \\
& + J' \sum_{\mathbf{n}_{b_1}} \left\{ \frac{1}{2} \left( \hat{S}_{\mathbf{n}_{b_1}}^{+(b_1)} \hat{S}_{\mathbf{n}_{b_1+\delta'_\perp}}^{+(a_2)} + H.c. \right) - \hat{S}_{\mathbf{n}_{b_1}}^{z(b_1)} \hat{S}_{\mathbf{n}_{b_1+\delta'_\perp}}^{z(a_2)} \right\} + \\
& + J' \sum_{\mathbf{n}_{b_2}} \left\{ \frac{1}{2} \left( \hat{S}_{\mathbf{n}_{b_2}}^{+(b_2)} \hat{S}_{\mathbf{n}_{b_2+\delta'_\perp}}^{+(a_1)} + H.c. \right) - \hat{S}_{\mathbf{n}_{b_2}}^{z(b_2)} \hat{S}_{\mathbf{n}_{b_2+\delta'_\perp}}^{z(a_1)} \right\} - \\
& - g\mu_B \mathcal{H} \sum_{\mathbf{n}_{a_2}} \hat{S}_{\mathbf{n}_{a_2}}^{z(a_2)} + g\mu_B \mathcal{H} \sum_{\mathbf{n}_{a_1}} \hat{S}_{\mathbf{n}_{a_1}}^{z(a_1)} - g\mu_B \mathcal{H} \sum_{\mathbf{n}_{b_2}} \hat{S}_{\mathbf{n}_{b_2}}^{z(b_2)} + g\mu_B \mathcal{H} \sum_{\mathbf{n}_{b_1}} \hat{S}_{\mathbf{n}_{b_1}}^{z(b_1)}. \quad (2.3)
\end{aligned}$$

Prvi član u hamiltonijanu opisuje interakciju između najbližih suseda u ravni. Za razliku od  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ , zarad jednostavnosti ovde nećemo uvoditi interakciju sa drugim, odnosno trećim susedima. Parametar  $\eta$  označava spinsku anizotropiju u ravni. Drugi i treći član opisuju interakciju između najbližih suseda u okviru jednog dvosloja, dok četvrti i peti član sadrže interakciju najbližih suseda koji pripadaju dvama susednim dvoslojima. Poslednji član opisuje interakciju sa spoljašnjim magnetnim poljem jačine  $\mathcal{H}$ .



# Poglavlje 3

## Osnovi teorijskih pristupa izučavanju kvazi-dvodimenzionalnih antiferomagnetnih kupratnih oksida

### 3.1 Osnovno stanje antiferomagnetnog Hajzenbergovog modela

S obzirom da ćemo u opisu kvazi-dvodimenzionalnih kupratnih antiferomagneta koristiti Hajzenbergov model (odjeljak 2.2) razmotrićemo kratko osobenosti osnovnog stanja tog modela [28, 29]. U tom cilju, poći ćemo od izotropnog AFM Hajzenbergovog modela sa interakcijom najbližih suseda koji zapisujemo kao sumu  $z$ - $z$  i  $x$ - $y$  članova:

$$\hat{H} = \hat{H}_{zz} + \hat{H}_{\pm} = J \sum_{\langle i,j \rangle} \hat{S}_i^z \hat{S}_j^z + \frac{J}{2} \sum_{\langle i,j \rangle} (\hat{S}_i^+ \hat{S}_j^- + \hat{S}_i^- \hat{S}_j^+), \quad (3.1)$$

gde je  $J > 0$ . Energija veze jednog para spinova na susednim čvorovima data je sa

$$E_{ij} = J \mathbf{S}_i \mathbf{S}_j = -JS(S+1) + \frac{J}{2} (\mathbf{S}_i + \mathbf{S}_j)^2. \quad (3.2)$$

Ova energija je minimalna ako dva spina čine singlet  $|\mathbf{S}_i + \mathbf{S}_j| = 0$  i tada iznosi

$$(E_{ij})_{min.} = -JS(S+1). \quad (3.3)$$

Za razliku od feromagneta gde je energija veze minimalna kada su oba spina usmerena duž pozitivne  $z$ -ose, kod antiferomagneta minimum energije veze *ne* postiže se za par suprotno usmerenih spinova ( $S_i^z = S$ ,  $S_j^z = -S$ ). Energija veze koja odgovara takvom stanju iznosi  $-JS^2$ , što se razlikuje od (3.3). Pored toga, ovo stanje nije svojstveno stanje hamiltonijana (3.1), što je lako pokazati ako na to stanje delujemo transverzalnim delom interakcije izmene. Strogo antiparalelnom uređenju odgovara energija samo od  $z$ - $z$  članova hamiltonijana. Da bismo dobili pravo osnovno stanje, moramo dozvoliti da  $z$  komponenta spina fluktuiraju tako da doprinos energiji sistema daju i  $x$ - $y$  članovi, što dovodi do dodatnog sniženja enegije veze za  $-JS$ . Prema tome, za razliku od feromagnetnog osnovnog stanja koje je istovremeno svojstveno stanje svih  $\hat{S}_j^z$ , osnovno stanje antiferomagneta karakteriše se kvantnim fluktuacijama.

Pređimo sada sa pojedinačne veze na magnetnu rešetku. Poznavanje  $(E_{ij})_{min.}$  omogućava nam da grubo procenimo donju granicu za energiju osnovnog stanja:

$$\epsilon_{gr.st.}^{AFM} > \sum_{\langle ij \rangle} (E_{ij})_{min.} = -JS(S+1) \frac{Nz}{2}, \quad (3.4)$$

gde je  $N$  broj čvorova kristalne rešetke, a  $z$  broj najbližih suseda uočenog spina. Važno je uočiti da je gornji izraz uvek nejednačina, s obzirom da za razliku od feromagneta kod antiferomagneta ne mogu sve energije veze biti istovremeno minimizirane. Činjenica da uočeni spin može da formira singlet samo sa jednim od svojih suseda vodi ka boljoj proceni donje granice energije AFM osnovnog stanja. Posmatrajmo, naime, hamiltonijan kao sumu hamiltonijana pojedinačnih čvorova:

$$\hat{H} = \frac{1}{2} J \sum_j \hat{H}_j, \quad (3.5)$$

gde  $\hat{H}_j$  opisuje interakciju spina  $\hat{S}_j$  sa svojih  $z$  suseda  $\hat{S}_m$ :

$$\hat{H}_j = \hat{S}_j \cdot \sum_m \hat{S}_m = \frac{1}{2} \left[ \left( \hat{S}_j + \sum_m \hat{S}_m \right)^2 - S(S+1) - \left( \sum_m \hat{S}_m \right)^2 \right]. \quad (3.6)$$

Najniža energija  $E_j^0$  hamiltonijana  $\hat{H}_j$  se dobija ako se uzme da je ukupni spin  $z$  susednih spinova maksimalan, tj.  $\sum_m \hat{S}_m = zS(zS+1)$ , a ukupni spin klastera od  $z+1$  spinova minimalan, tj.  $(z-1)S$ . Tada je

$$E_j^0 = -zS^2 \left( 1 + \frac{1}{zS} \right), \quad (3.7)$$

odakle se za energiju osnovnog stanja ukupnog hamiltonijana  $\hat{H}$  dobija

$$\epsilon_{gr.st.}^{AFM} > -JS \left( S + \frac{1}{z} \right) \frac{Nz}{2}, \quad (3.8)$$

što je bolja procena u odnosu na izraz (3.4).

Gornja granica za energiju osnovnog stanja data je energijom klasičnog Nelovog stanja  $\Psi_N$ , koje se definiše kao stanje sa maksimalnom magnetizacijom podrešetke, tj. svi spinovi podrešetke  $a$  leže duž  $+z$  ose, a svi spinovi podrešetke  $b$  duž  $-z$  ose. Energija koja odgovara tom stanju sadrži samo doprinos longitudinalnih članova u hamiltonijanu i data je izrazom

$$\langle \Psi_N | \hat{H} | \Psi_N \rangle = \langle \Psi_N | \hat{H}_{zz} | \Psi_N \rangle = -JS^2 \frac{Nz}{2}. \quad (3.9)$$

Prema tome, interval energija osnovnog stanja Hajzenbergovog antiferomagneta određen je relacijama (3.8) i (3.9) i može se zapisati kao:

$$-1 - \frac{1}{zS} < \frac{\epsilon_{gr.st.}^{AFM}}{JS^2 Nz/2} < -1. \quad (3.10)$$

Vidi se da je aproksimacija energije osnovnog stanja energijom Nelovog stanja tim bolja (tj. kvantni efekat je tim manje izražen) što je gornji interval uži, tj. što je proizvod  $zS$  veći (visoka dimenzionalnost i/ili velika vrednost spina). Štaviše, ispostavlja se da je u tom slučaju i aproksimacija osnovnog stanja Nelovim stanjem opravdana. Posledice uzimanja  $\Psi_N$  kao osnovnog stanja mogu se sagledati u okviru teorije antiferomagnetnih spinskih talasa, čije će postavke u najkraćim crtama biti date u narednom odeljku.

## 3.2 Teorija linearnih spinskih talasa (LSW)

Kvaziklasična teorija antiferomagnetnih spinskih talasa se zasniva na ideji da je prelazak sa klasičnog limita ( $S \rightarrow \infty$ ) na konačne (čak i male) vrednosti spinova moguć, a da pri tome dugodometno uređenje opstaje uprkos kvantnim fluktuacijama. Suštinka razlika u odnosu na teoriju FM spinskih talasa jeste da je sada pravo osnovno stanje nepoznato, te je cilj ove teorije da ispita opravdanost aproksimacije osnovnog stanja klasičnim Nelovim stanjem.

Osnovna postavka teorije spinskih talasa je da se pobuđenja u spinskom sistemu kreiraju smanjenjem  $z$ -projekcije spina za jedan ( $S_j^z = S \rightarrow S_j^z = S - 1$ ), pri čemu se ta perturbacija prostire kroz kristal u vidu tzv. spinskog talasa. Spinski talas odgovara bozonskoj kvazičestici, magnonu, usled čega se u hamiltonijanu sistema prelazi sa spinskih na bozonske operatore. Pri definisanju ovog prelaza treba voditi računa o tome da broj bozonskih pobuđenja na zadatom čvoru ne sme biti veći od  $2S$ . Ovaj uslov je ispunjen ako se spinski operatori  $\hat{S}_j^\pm$  izraze preko bozonskih koristeći transformaciju Holštajn-Primakova (HP) (*Holstein-Primakoff*). Za slučaj antiferomagneta definišemo dve vrste HP bozona: na podrešetki  $a$  definišu se kao kod feromagneta:

$$\hat{S}_{aj}^+ = \sqrt{2S} \left( 1 - \frac{\hat{a}_j^\dagger \hat{a}_j}{2S} \right)^{\frac{1}{2}} \hat{a}_j, \quad \hat{S}_{aj}^- = \sqrt{2S} \hat{a}_j^\dagger \left( 1 - \frac{\hat{a}_j^\dagger \hat{a}_j}{2S} \right)^{\frac{1}{2}}, \quad (3.11)$$

dok na podrešetki  $b$  kreacija bozona odgovara porastu  $z$ -projekcije spina:

$$\hat{S}_{bj}^+ = \sqrt{2S} \hat{b}_j^\dagger \left( 1 - \frac{\hat{b}_j^\dagger \hat{b}_j}{2S} \right)^{\frac{1}{2}}, \quad \hat{S}_{bj}^- = \sqrt{2S} \left( 1 - \frac{\hat{b}_j^\dagger \hat{b}_j}{2S} \right)^{\frac{1}{2}} \hat{b}_j. \quad (3.12)$$

Iz gornjih relacija lako se dobija da je

$$\hat{S}_{aj}^z = S - \hat{a}_j^\dagger \hat{a}_j, \quad \hat{S}_{bj}^z = S - \hat{b}_j^\dagger \hat{b}_j, \quad (3.13)$$

što odgovara polaznoj postavci prema kojoj je broj bozona na datom čvoru jednak smanjenju  $z$ -projekcije spina na istom.

Ako pretpostavimo da je temperatura dovoljno niska, srednji broj pobuđenja na uočenom čvoru je mali, te važi:

$$\frac{\langle \hat{a}_j^\dagger \hat{a}_j \rangle}{S} = \frac{\langle \hat{n}_j \rangle}{S} \ll 1. \quad (3.14)$$

Tada je korenu funkciju u HP transformaciji moguće razviti u red:

$$\left( 1 - \frac{\hat{a}_j^\dagger \hat{a}_j}{2S} \right)^{\frac{1}{2}} \approx 1 - \frac{\hat{a}_j^\dagger \hat{a}_j}{4S} - \frac{\hat{a}_j^\dagger \hat{a}_j \hat{a}_j^\dagger \hat{a}_j}{32S^2} - \dots \quad (3.15)$$

Ako u hamiltonijan (3.1) uvedemo bozonske operatore date relacijama (3.11)–(3.13) koristeći razvoj u red (3.15), aproksimativni hamiltonijan će imati sledeći oblik:

$$\hat{H} = -\frac{Nz}{2} JS^2 + \hat{H}_0 + \hat{H}_1, \quad (3.16)$$

gde je prvi sabirak klasična Nelova energija. Drugi sabirak je bilinearan po boze-operatorima i daje energiju magnona prisutnih u sistemu. Deo hamiltonijana označan sa  $\hat{H}_1$  sadrži članove

višeg reda koji opisuju magnonsku interakciju. S obzirom da je izraz (3.16) dobijen pod pretpostavkom niskih temperatura, tj. malog broja pobuđenja, magnonsku interakciju možemo zanemariti, što se svodi na aproksimaciju korene funkcije u HP transformaciji jedinicom. Tako se uvodi teorija linearnih spinskih talasa, poznata kao Blohova aproksimacija, u okviru koje je prelaz sa spinskih na boze-operatore dat sledećim izrazima:

$$\hat{S}_{aj}^+ \approx \sqrt{2S} \hat{a}_j, \quad \hat{S}_{aj}^- \approx \sqrt{2S} \hat{a}_j^\dagger, \quad \hat{S}_{bj}^+ \approx \sqrt{2S} \hat{b}_j^\dagger, \quad \hat{S}_{bj}^- \approx \sqrt{2S} \hat{b}_j. \quad (3.17)$$

Ako sada izvršimo Furije-transformaciju hamiltonijana (3.16) u kome smo zanemarili poslednji član, videćemo da se, za razliku od feromagnetna, ne dobija dijagonalni hamiltonijan. Stoga je potrebno uvesti nove boze-operatore ( $\hat{\alpha}_{\mathbf{k}}^{(\dagger)}, \hat{\beta}_{\mathbf{k}}^{(\dagger)}$ ) koji predstavljaju kombinaciju starih, a dijagonalizuju hamiltonijan, što omogućava Bogoljubovljeva transformacija (videti detaljnije odeljak 4.1). Dijagonalizovani hamiltonijan je oblika

$$\hat{H} = E_0 + \sum_{\mathbf{k}} E_{LSW}(\mathbf{k}) \left[ \hat{\alpha}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{\alpha}_{\mathbf{k}} + \hat{\beta}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{\beta}_{\mathbf{k}} \right], \quad (3.18)$$

gde  $E_0$  predstavlja energiju osnovnog stanja koja je *niža* od energije Nelovog stanja (kao što predviđa izraz (3.10)). Drugi sabirak daje ukupnu energiju antiferomagnetnih magnona i ukazuje na činjenicu da je *magnonski spektar dvostruko degenerisan*. Ovo je posledica postuliranja Nelovog stanja. Naime, operator  $\hat{\alpha}^\dagger$  ( $\hat{\beta}^\dagger$ ) uzrokuje  $\Delta S_{tot}^z = -1$  ( $\Delta S_{tot}^z = 1$ ). Uzimajući Nelovo stanje za osnovno, sistem postaje anizotropan, ali zadržava aksijalnu simetriju u odnosu na rotaciju oko  $z$ -ose, što osigurava degeneraciju  $\Delta S_{tot}^z = \pm 1$  ekscitacije.

Linearna teorija spinskih talasa biće primenjena na određivanje spektra magnonskih energija, kao i niza drugih fizičkih veličina kupratnog antiferomagnetna  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ , u poglavlju 4, gde će biti pokazano da ova teorija daje zadovoljavajuće rezultate u oblasti niskih temperatura, dok je za korektan opis šireg temperaturnog intervala (od apsolutne nule do kritične temperature) potrebno primeniti teoriju Grinovih funkcija, o kojoj će biti reči u narednom odeljku.

### 3.3 Grinove funkcije (GF); tjablikovsko i Kalenovo dekuplovanje

Metod Grinovih funkcija (GF) pokazuje se kao zadovoljavajući u širokom temperaturnom intervalu (od apsolutne nule do temperature faznog prelaza), te će u ovom radu biti zastupljen u velikoj meri. Najveći značaj ovog metoda ogleda se u činjenici da poznavanje Grinovih funkcija omogućava nalaženje korelacionih funkcija oblika  $\langle \hat{A}\hat{B} \rangle_{\mathbf{k}}$  koristeći spektralnu teoremu datu relacijom

$$\langle \hat{A}\hat{B} \rangle_{\mathbf{k}} = \lim_{\mu \rightarrow 0} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\langle \langle \hat{A} | \hat{B} \rangle \rangle_{\hbar\omega+i\mu} - \langle \langle \hat{A} | \hat{B} \rangle \rangle_{\hbar\omega-i\mu}}{1 - \exp(-\hbar\omega/\theta)} d\omega, \quad (3.19)$$

gde je

$$\langle \langle \hat{A} | \hat{B} \rangle \rangle_{\hbar\omega} = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \theta(t-t') \langle [\hat{A}(t), \hat{B}(t')] \rangle e^{i\omega(t-t')} d(t-t') \quad (3.20)$$

Grinova funkcija u energetske reprezentaciji<sup>1</sup>. Treba istaći da realni deo pola Grinove funkcije određuje energiju elementarnih ekscitacija sistema, dok recipročna vrednost imaginarnog dela

<sup>1</sup>Da bismo upotrebili relaciju (3.19), potrebno je primeniti identitet  $\frac{1}{x-a \pm i\mu} = \mathcal{P} \frac{1}{x-a} \mp i\pi\delta(x-a)$ .

određuje vreme života tih ekscitacija. Samu Grinovu funkciju određujemo iz jednačine kretanja koja u energetsnoj reprezentaciji ima sledeći oblik:

$$\hbar\omega\langle\langle\hat{A}|\hat{B}\rangle\rangle_{\hbar\omega} = \frac{i\hbar}{2\pi}\langle[\hat{A}, \hat{B}]\rangle + \langle\langle[\hat{A}, \hat{H}|\hat{B}]\rangle\rangle_{\hbar\omega}. \quad (3.21)$$

Ako se zadržimo na Grinovoj funkciji  $\langle\langle\hat{S}_g^\pm|\hat{B}\rangle\rangle$ , značajnoj za problematiku razmatranu u ovom radu, i potražimo njenu jednačinu kretanja, uočavamo da se u toj jednačini pojavljuju Grinove funkcije višeg reda, koje potiču od komutatora operatora  $\hat{S}_g^\pm$  sa hamiltonijanom. Da bi se ove funkcije odredile, trebalo bi ispisati njihove jednačine kretanja u kojima figurišu Grinove funkcije još višeg reda. Prema tome, izračunavanje Grinovih funkcija bi dovelo do beskonačnog niza jednačina kretanja gde se u svakoj sledećoj Grinova funkcija izražava preko Grinove funkcije višeg reda. Kako je problem rešavanja ovog beskonačnog niza jednačina u opštem slučaju nerešiv, to se za određivanje Grinovih funkcija višeg reda koriste razne aproksimacije za koje je zajedničko to da se zasnivaju na dekuplovanju Grinovih funkcija višeg reda, tj. na predstavljanju Grinovih funkcija višeg reda preko Grinovih funkcija nižeg reda.

U ovom radu biće korišćena dva dekuplovanja, tjablikovsko i Kalenovo. Tjablikovsko dekuplovanje [9], poznato još i kao aproksimacija haotičnih faza (*Random Phase Approximation*, RPA), definisano je relacijom

$$\langle\langle\hat{S}_g^z\hat{S}_f^+|\hat{B}\rangle\rangle \xrightarrow{g \neq f} \langle\hat{S}^z\rangle\langle\langle\hat{S}_f^+|\hat{B}\rangle\rangle \quad (3.22)$$

i zasniva se na zanemarivanju korelacija longitudinalnih i transverzalnih spinskih komponenti na različitim čvorovima magnetne kristalne rešetke, pri čemu se operator  $\hat{S}_g^z$  zamenjuje svojom srednjom vrednošću  $\langle\hat{S}^z\rangle$  koja zbog translatorne invarijantnosti ne zavisi od čvora.

Ispostavlja se da za dobijanje magnonskog spektra na niskim temperaturama bolje rezultate daje Kalenovo dekuplovanje [8] (*Callen Approximation*, CA), koje će ovde biti opisano za feromagnete sa spinom  $S = \frac{1}{2}$ . Operator  $\hat{S}_g^z$  u tom slučaju možemo zapisati u jednom od sledeća dva oblika:

$$\hat{S}_g^z = S - \hat{S}_g^- \hat{S}_g^+, \quad (3.23)$$

$$\hat{S}_g^z = \frac{1}{2} (\hat{S}_g^+ \hat{S}_g^- - \hat{S}_g^- \hat{S}_g^+). \quad (3.24)$$

Ako jednačinu (3.23) pomnožimo proizvoljnim parametrom  $\alpha$ , a jednačinu (3.24) sa  $(1 - \alpha)$  i saberemo ih, dobijamo

$$\hat{S}_g^z = \alpha S + \frac{1}{2}(1 - \alpha)\hat{S}_g^+ \hat{S}_g^- - \frac{1}{2}(1 + \alpha)\hat{S}_g^- \hat{S}_g^+. \quad (3.25)$$

Zamenom relacije (3.25) u Grinovu funkciju oblika (3.22), koristeći pravilo simetričnog dekuplovanja

$$\langle\langle\hat{S}_g^- \hat{S}_g^+ \hat{S}_f^+|\hat{B}\rangle\rangle \xrightarrow{g \neq f} \langle\hat{S}_g^- \hat{S}_g^+\rangle\langle\langle\hat{S}_f^+|\hat{B}\rangle\rangle + \langle\hat{S}_g^- \hat{S}_g^+\rangle\langle\langle\hat{S}_g^+|\hat{B}\rangle\rangle \quad (3.26)$$

i analogno za Grinovu funkciju  $\langle\langle\hat{S}_g^+ \hat{S}_g^- \hat{S}_f^+|\hat{B}\rangle\rangle$ , dobijamo

$$\langle\langle\hat{S}_g^z \hat{S}_f^+|\hat{B}\rangle\rangle \xrightarrow{g \neq f} \langle\hat{S}^z\rangle\langle\langle\hat{S}_f^+|\hat{B}\rangle\rangle - \alpha\langle\hat{S}_g^- \hat{S}_g^+\rangle\langle\langle\hat{S}_g^+|\hat{B}\rangle\rangle. \quad (3.27)$$

Analizom ovog izraza vidi se da

- za  $\alpha = 1$ , izraz (3.27) odgovara dekuplovanju Grinove funkcije na osnovu identiteta (3.23),
- za  $\alpha = 0$ , izraz (3.27) odgovara dekuplovanju Grinove funkcije na osnovu identiteta (3.24) i svodi se na tjablikovsko dekuplovanje,
- za  $\alpha = -1$ , izraz (3.27) odgovara dekuplovanju Grinove funkcije na osnovu identiteta  $\hat{S}_g^z = -S + \hat{S}_g^+ \hat{S}_g^-$ .

Prema tome, zavisno od vrednosti  $\alpha$  možemo dobiti pozitivnu, negativnu ili nultu korekciju na tjablikovsko dekuplovanje. Stoga se u izboru parametra  $\alpha$  treba rukovoditi fizičkim kriterijumom. Naime, s obzirom da operator  $\hat{S}_g^- \hat{S}_g^+$  u izrazu (3.23) jeste operator koji se pri dekuplovanju tretira aproksimativno, a predstavlja odstupanje operatora  $\hat{S}_g^z$  od maksimalne vrednosti spina  $S$ , ima smisla koristiti tu jednačinu kada je to odstupanje malo, tj. kada je  $\langle \hat{S}^z \rangle \approx S$ , a to je na niskim temperaturama. S druge strane, s obzirom da operator  $1/2(\hat{S}_g^+ \hat{S}_g^- - \hat{S}_g^- \hat{S}_g^+)$  opisuje odstupanje  $\hat{S}_g^z$  od nule, to je dekuplovanje na osnovu (3.24) smisleno kada je to odstupanje malo, tj. kada je  $\langle \hat{S}^z \rangle \approx 0$ , a to je na temperaturama bliskim temperaturi faznog prelaza. Prema [8], najbolje slaganje sa eksperimentalnim rezultatima u celom temperaturskom intervalu od apsolutne nule do Kirijeve temperature daje vrednost

$$\alpha = \frac{\langle \hat{S}^z \rangle}{S}, \quad \text{za } S = \frac{1}{2}, \quad (3.28)$$

za koju se jednačina (3.25) svodi na

$$\hat{S}_g^z = \langle \hat{S}^z \rangle + \left( \frac{S - \langle \hat{S}^z \rangle}{2S} \hat{S}_g^+ \hat{S}_g^- - \frac{S + \langle \hat{S}^z \rangle}{2S} \hat{S}_g^- \hat{S}_g^+ \right), \quad (3.29)$$

pri čemu sada operator u zagradi (koji se pri dekuplovanju tretira aproksimativno) predstavlja odstupanje  $\hat{S}^z$  od  $\langle \hat{S}^z \rangle$ , koje je podjednako u celom temperaturskom intervalu.

Konačno, jednačina koja definiše Kalenovo dekuplovanje za feromagnete sa spinom  $S = \frac{1}{2}$  glasi

$$\langle \langle \hat{S}_g^z \hat{S}_f^\pm | \hat{B} \rangle \rangle \xrightarrow{g \neq f} \langle \hat{S}^z \rangle \langle \langle \hat{S}_f^\pm | \hat{B} \rangle \rangle - \frac{\langle \hat{S}^z \rangle}{S} \langle \hat{S}_g^\mp \hat{S}_f^\pm \rangle \langle \langle \hat{S}_g^\pm | \hat{B} \rangle \rangle. \quad (3.30)$$

Slično se može pokazati da je za antiferomagnetike sa spinom  $S = \frac{1}{2}$  Kalenovo dekuplovanje dato izrazom

$$\langle \langle \hat{S}_g^z \hat{S}_f^\pm | \hat{B} \rangle \rangle \xrightarrow{g \neq f} \langle \hat{S}^z \rangle \langle \langle \hat{S}_f^\pm | \hat{B} \rangle \rangle - \frac{\langle \hat{S}^z \rangle}{S} \langle \hat{S}_g^\pm \hat{S}_f^\pm \rangle \langle \langle \hat{S}_g^\mp | \hat{B} \rangle \rangle. \quad (3.31)$$

Složenijom analizom Kalen je pokazao [8] da u opštem slučaju, za  $S \neq \frac{1}{2}$ , parametar  $\alpha$  treba definisati kao

$$\alpha = \frac{1}{2S} \frac{\langle \hat{S}^z \rangle}{S}. \quad (3.32)$$



### 3.4 Aproksimacija srednjeg (molekulskog) polja (MFA)

Aproksimacija srednjeg polja, koja se često koristi kao najjednostavnija aproksimacija, sastoji se u tome da se spinski operator na  $i$ -tom čvoru kristalne rešetke,  $\hat{S}_i$ , predstavi preko svoje srednje vrednosti  $\langle \hat{S}_i \rangle$  i odstupanja od iste (tzv. fluktuacije) kao

$$\hat{S}_i = \langle \hat{S}_i \rangle + (\hat{S}_i - \langle \hat{S}_i \rangle). \quad (3.33)$$

Tada se proizvod komponenata spinskih operatora može zapisati u obliku

$$\begin{aligned} \hat{S}_i^\alpha \hat{S}_j^\beta &= (\hat{S}_i^\alpha - \langle \hat{S}_i^\alpha \rangle)(\hat{S}_j^\beta - \langle \hat{S}_j^\beta \rangle) + \hat{S}_i^\alpha \langle \hat{S}_j^\beta \rangle + \langle \hat{S}_i^\alpha \rangle \hat{S}_j^\beta - \langle \hat{S}_i^\alpha \rangle \langle \hat{S}_j^\beta \rangle \approx \\ &\approx \hat{S}_i^\alpha \langle \hat{S}_j^\beta \rangle + \langle \hat{S}_i^\alpha \rangle \hat{S}_j^\beta - \langle \hat{S}_i^\alpha \rangle \langle \hat{S}_j^\beta \rangle, \end{aligned} \quad (3.34)$$

gde je iskorišćena osnovna pretpostavka srednjeg polja  $\hat{S}_i^\alpha \approx \langle \hat{S}_i^\alpha \rangle$  i  $\hat{S}_j^\beta \approx \langle \hat{S}_j^\beta \rangle$  usled čega je proizvod fluktuacija zanemaren. Da bismo videli posledice ove aproksimacije, primenićemo je na jednostavan model opisan Hajzenbergovim izotropnim antiferomagnetnim hamiltonijanom sa interakcijom najbližih suseda u ravni u spoljašnjem magnetnom polju (prvi član u hamiltonijanu (2.2) u kojem je uzeto da je  $\eta = 0$ ):

$$\begin{aligned} \hat{H}_{nn} &= J \sum_{\mathbf{n}_a, \delta_1} \left[ \frac{1}{2} (\hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{+(a)} \hat{S}_{\mathbf{n}_a + \delta_1}^{+(b)} + \hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{-(a)} \hat{S}_{\mathbf{n}_a + \delta_1}^{-(b)}) - \hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{z(a)} \hat{S}_{\mathbf{n}_a + \delta_1}^{z(b)} \right] - \\ &- g\mu_B \mathcal{H} \left[ \sum_{\mathbf{n}_a} \hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{z(a)} - \sum_{\mathbf{n}_b} \hat{S}_{\mathbf{n}_b}^{z(b)} \right]. \end{aligned} \quad (3.35)$$

Koristeći aproksimaciju (3.34) i zanemarujući transverzalne srednje vrednosti ( $\langle \hat{S}_j^\pm \rangle = 0$ ), gornji hamiltonijan postaje:

$$\begin{aligned} \hat{H}_{nn}^{MFA} &= -J \sum_{\mathbf{n}_a, \delta_1} \left[ \hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{z(a)} \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_a + \delta_1}^{z(b)} \rangle + \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{z(a)} \rangle \hat{S}_{\mathbf{n}_a + \delta_1}^{z(b)} - \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{z(a)} \rangle \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_a + \delta_1}^{z(b)} \rangle \right] - \\ &- g\mu_B \mathcal{H} \left[ \sum_{\mathbf{n}_a} \hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{z(a)} - \sum_{\mathbf{n}_b} \hat{S}_{\mathbf{n}_b}^{z(b)} \right]. \end{aligned} \quad (3.36)$$

Uzimajući u obzir translatornu invarijantnost rešetke usled čega srednja vrednost magnetizacije podrešetke ne zavisi od čvora ( $\langle \hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{z(a)} \rangle = \langle \hat{S}^{z(a)} \rangle$ ;  $\langle \hat{S}_{\mathbf{n}_a + \delta_1}^{z(b)} \rangle = \langle \hat{S}^{z(b)} \rangle$ ), kao i činjenicu da je broj najbližih suseda u ravni  $z$ , prethodni izraz dobija sledeći oblik:

$$\begin{aligned} \hat{H}_{nn}^{MFA} &= -Jz \langle \hat{S}^{z(b)} \rangle \sum_{\mathbf{n}_a} \hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{z(a)} - J \langle \hat{S}^{z(a)} \rangle \sum_{\mathbf{n}_a, \delta_1} \hat{S}_{\mathbf{n}_a + \delta_1}^{z(b)} + JNz \langle \hat{S}^{z(a)} \rangle \langle \hat{S}^{z(b)} \rangle - \\ &- g\mu_B \mathcal{H} \left[ \sum_{\mathbf{n}_a} \hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{z(a)} - \sum_{\mathbf{n}_b} \hat{S}_{\mathbf{n}_b}^{z(b)} \right]. \end{aligned} \quad (3.37)$$

Jednačina kretanja Grinove funkcije  $\langle \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_a'}^{+(a)} | \hat{S}_{\mathbf{n}_a''}^{-(a)} \rangle \rangle$  (koja omogućava određivanje korelacione funkcije potrebne za izračunavanje magnetizacije) u energetske reprezentaciji glasi:

$$\hbar\omega \langle \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_a'}^{+(a)} | \hat{S}_{\mathbf{n}_a''}^{-(a)} \rangle \rangle = \frac{i\hbar}{2\pi} \langle \langle [\hat{S}_{\mathbf{n}_a'}^{+(a)}, \hat{S}_{\mathbf{n}_a''}^{-(a)}] \rangle \rangle + \langle \langle [\hat{S}_{\mathbf{n}_a'}^{+(a)}, \hat{H}_{nn}^{MFA}] | \hat{S}_{\mathbf{n}_a''}^{-(a)} \rangle \rangle. \quad (3.38)$$

Koristeći relacije za spinske operatore izračunavamo traženi komutator

$$[\hat{S}_{\mathbf{n}_a'}^{+(a)}, \hat{H}_{nn}^{MFA}] = Jz \langle \hat{S}^{z(b)} \rangle \hat{S}_{\mathbf{n}_a'}^{+(a)} + g\mu_B \mathcal{H} \hat{S}_{\mathbf{n}_a'}^{+(a)} \quad (3.39)$$

te izraz (3.38) postaje:

$$\begin{aligned} \hbar\omega \langle \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_{a'}}^{+(a)} | \hat{S}_{\mathbf{n}_{a''}}^{-(a)} \rangle \rangle &= \frac{i\hbar}{\pi} \langle \hat{S}^{z(a)} \rangle \delta_{\mathbf{n}_{a'}, \mathbf{n}_{a''}} + Jz \langle \hat{S}^{z(b)} \rangle \langle \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_{a'}}^{+(a)} | \hat{S}_{\mathbf{n}_{a''}}^{-(a)} \rangle \rangle + \\ &+ g\mu_B \mathcal{H} \langle \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_{a'}}^{+(a)} | \hat{S}_{\mathbf{n}_{a''}}^{-(a)} \rangle \rangle, \end{aligned} \quad (3.40)$$

odakle je

$$(\hbar\omega - g\mu_B \mathcal{H} - Jz \langle \hat{S}^{z(b)} \rangle) \langle \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_{a'}}^{+(a)} | \hat{S}_{\mathbf{n}_{a''}}^{-(a)} \rangle \rangle = \frac{i\hbar}{\pi} \langle \hat{S}^{z(a)} \rangle \delta_{\mathbf{n}_{a'}, \mathbf{n}_{a''}}. \quad (3.41)$$

Nakon prostorne Furije-transformacije, prethodni izraz postaje

$$(\hbar\omega - g\mu_B \mathcal{H} - Jz \langle \hat{S}^{z(b)} \rangle) G_{\mathbf{k}}(\omega) = 2 \langle \hat{S}^{z(a)} \rangle \Rightarrow G_{\mathbf{k}}(\omega) = \frac{i\hbar}{\pi} \frac{\langle \hat{S}^{z(a)} \rangle}{\hbar\omega - \hbar\omega^{MFA}}, \quad (3.42)$$

gde je  $\hbar\omega^{MFA}$  disperziona relacija koja ne poseduje zavisnost od talasnog vektora  $\mathbf{k}$ :

$$\hbar\omega^{MFA} = \mu_B \mathcal{H} + Jz \langle \hat{S}^{z(b)} \rangle. \quad (3.43)$$

Zaključak da je u MF aproksimaciji disperziona relacija nezavisna od talasnog vektora biće korišćen u poglavlju 5.6.4.

---

# Poglavlje 4

## Analiza u okviru teorije linearnih spinskih talasa

### 4.1 Spektar elementarnih ekscitacija u $\text{La}_2\text{CuO}_4$

U cilju određivanja LSW spektra elementarnih ekscitacija u  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ , polazimo od hamiltonijana (2.2) u kome zamenjujemo spinske operatore boze-operatorima u Blohovoju aproksimaciji, koristeći relacije (3.13) i (3.17). Tom zamenom dobijamo sledeći hamiltonijan, bilinearan po boze-operatorima:

$$\begin{aligned}
\hat{H} \approx & -(1 + \eta)JS^2z\frac{N}{2} + (J_{\perp}^{aa} - J_{\perp}^{ab})S^2z\frac{N}{2} + J_2S^2Nz + \\
& + JS \sum_{\mathbf{n}_a, \delta_1} \left[ \hat{a}_{\mathbf{n}_a} \hat{b}_{\mathbf{n}_a + \delta_1} + \hat{a}_{\mathbf{n}_a}^{\dagger} \hat{b}_{\mathbf{n}_a + \delta_1}^{\dagger} \right] + \\
& + (1 + \eta)JS \sum_{\mathbf{n}_a, \delta_1} \left[ \hat{a}_{\mathbf{n}_a}^{\dagger} \hat{a}_{\mathbf{n}_a} + \hat{b}_{\mathbf{n}_a + \delta_1}^{\dagger} \hat{b}_{\mathbf{n}_a + \delta_1} \right] + \\
& - 2J_2Sz \sum_{\mathbf{n}_a} \hat{a}_{\mathbf{n}_a}^{\dagger} \hat{a}_{\mathbf{n}_a} - 2J_2Sz \sum_{\mathbf{n}_b} \hat{b}_{\mathbf{n}_b}^{\dagger} \hat{b}_{\mathbf{n}_b} + \\
& + J_2S \sum_{\substack{\mathbf{n}_a, \delta_i \\ i=2,3}} \hat{a}_{\mathbf{n}_a}^{\dagger} \hat{a}_{\mathbf{n}_a + \delta_i} + J_2S \sum_{\substack{\mathbf{n}_b, \delta_i \\ i=2,3}} \hat{b}_{\mathbf{n}_b}^{\dagger} \hat{b}_{\mathbf{n}_b + \delta_i} + \\
& + J_{\perp}^{ab}S \sum_{\mathbf{n}_a, \delta_{\perp}^{ab}} \left[ \hat{a}_{\mathbf{n}_a} \hat{b}_{\mathbf{n}_a + \delta_{\perp}^{ab}} + \hat{a}_{\mathbf{n}_a}^{\dagger} \hat{b}_{\mathbf{n}_a + \delta_{\perp}^{ab}}^{\dagger} \right] + \\
& + J_{\perp}^{ab}S \sum_{\mathbf{n}_a, \delta_{\perp}^{ab}} \left[ \hat{a}_{\mathbf{n}_a}^{\dagger} \hat{a}_{\mathbf{n}_a} + \hat{b}_{\mathbf{n}_a + \delta_{\perp}^{ab}}^{\dagger} \hat{b}_{\mathbf{n}_a + \delta_{\perp}^{ab}} \right] + \\
& - J_{\perp}^{aa}Sz \sum_{\mathbf{n}_a} \hat{a}_{\mathbf{n}_a}^{\dagger} \hat{a}_{\mathbf{n}_a} - J_{\perp}^{aa}Sz \sum_{\mathbf{n}_b} \hat{b}_{\mathbf{n}_b}^{\dagger} \hat{b}_{\mathbf{n}_b} + \\
& + J_{\perp}^{aa}S \sum_{\mathbf{n}_a, \delta_{\perp}^{aa}} \hat{a}_{\mathbf{n}_a}^{\dagger} \hat{a}_{\mathbf{n}_a + \delta_{\perp}^{aa}} + J_{\perp}^{aa}S \sum_{\mathbf{n}_b, \delta_{\perp}^{aa}} \hat{b}_{\mathbf{n}_b}^{\dagger} \hat{b}_{\mathbf{n}_b + \delta_{\perp}^{aa}} + \\
& + g\mu_B\mathcal{H} \left[ \sum_{\mathbf{n}_a} \hat{a}_{\mathbf{n}_a}^{\dagger} \hat{a}_{\mathbf{n}_a} - \sum_{\mathbf{n}_b} \hat{b}_{\mathbf{n}_b}^{\dagger} \hat{b}_{\mathbf{n}_b} \right], \tag{4.1}
\end{aligned}$$

gde smo iskoristili

$$\sum_{\delta_1} = \sum_{\delta_2} = \sum_{\delta_3} = \sum_{\delta_{\perp}^{ab}} = \sum_{\delta_{\perp}^{aa}} = z = 4; \quad \sum_{\mathbf{n}_{\alpha}} = \frac{N_{\alpha}}{2}. \quad (4.2)$$

Zarad dobijanja disperzione relacije preći ćemo u hamiltonijanu (4.1) u impulsni prostor, uvodeći Furije-transforme operatora  $\hat{a}_{\mathbf{n}}^{(\dagger)}$  relacijama:

$$\begin{aligned} \hat{a}_{\mathbf{n}} &= \frac{1}{\sqrt{N_{\alpha}}} \sum_{\mathbf{k}} \hat{a}_{\mathbf{k}} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{n}}, \\ \hat{a}_{\mathbf{n}}^{\dagger} &= \frac{1}{\sqrt{N_{\alpha}}} \sum_{\mathbf{k}} \hat{a}_{\mathbf{k}}^{\dagger} e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{n}}. \end{aligned} \quad (4.3)$$

Koristeći činjenicu da je  $N_a = N_b$  i definiciju Kronekerovog simbola

$$\frac{1}{N_a} \sum_{\mathbf{n}_a} e^{i(\mathbf{k}\pm\mathbf{q})\cdot\mathbf{n}_a} = \delta_{\mathbf{k}\mp\mathbf{q},0} \quad (4.4)$$

dolazimo do sledećeg hamiltonijana:

$$\begin{aligned} \hat{H}_{LSW} &= -(1+\eta)JS^2z\frac{N}{2} + (J_{\perp}^{aa} - J_{\perp}^{ab})S^2z\frac{N}{2} + J_2S^2Nz + \\ &+ \sum_{\mathbf{k}} \epsilon_{LSW}(\mathbf{k})(\hat{a}_{\mathbf{k}}^{\dagger}\hat{a}_{\mathbf{k}} + \hat{b}_{\mathbf{k}}^{\dagger}\hat{b}_{\mathbf{k}}) + \sum_{\mathbf{k}} I_{LSW}(\mathbf{k})(\hat{a}_{\mathbf{k}}^{\dagger}\hat{b}_{-\mathbf{k}}^{\dagger} + \hat{a}_{\mathbf{k}}\hat{b}_{-\mathbf{k}}) + \\ &+ h \sum_{\mathbf{k}} (\hat{a}_{\mathbf{k}}^{\dagger}\hat{a}_{\mathbf{k}} - \hat{b}_{\mathbf{k}}^{\dagger}\hat{b}_{\mathbf{k}}). \end{aligned} \quad (4.5)$$

U izrazu (4.5) koristimo sledeće oznake:

$$\epsilon_{LSW}(\mathbf{k}) = JSz \left[ (1+\eta) - 2\lambda_2 + \lambda_2(\gamma_2(\mathbf{k}) + \gamma_3(\mathbf{k})) + \lambda_{\perp}^{ab} - \lambda_{\perp}^{aa} + \lambda_{\perp}^{aa}\gamma_{\perp}^{aa}(\mathbf{k}) \right], \quad (4.6)$$

$$I_{LSW}(\mathbf{k}) = JSz(\gamma_1(\mathbf{k}) + \lambda_{\perp}^{ab}\gamma_{\perp}^{ab}(\mathbf{k})), \quad (4.7)$$

$$h = g\mu_B\mathcal{H}, \quad (4.8)$$

gde su veličine  $\lambda$  redukovani integrali izmene ( $\lambda_2 = J_2/J$ ,  $\lambda_{\perp}^{ab/aa} = J_{\perp}^{ab/aa}/J$ ), a veličine  $\gamma(\mathbf{k})$  geometrijski faktori definisani na sledeći način:

$$\gamma_1(\mathbf{k}) = \frac{1}{z} \sum_{\delta_1} e^{i\delta_1\cdot\mathbf{k}} = \cos \frac{k_x a}{2} \cos \frac{k_y b}{2}, \quad (4.9)$$

$$\gamma_2(\mathbf{k}) = \frac{1}{z} \sum_{\delta_2} e^{i\delta_2\cdot\mathbf{k}} = \frac{1}{2}(\cos k_x a + \cos k_y b), \quad (4.10)$$

$$\gamma_3(\mathbf{k}) = \frac{1}{z} \sum_{\delta_3} e^{i\delta_3\cdot\mathbf{k}} = \cos k_x a \cos k_y b, \quad (4.11)$$

$$\gamma_{\perp}^{ab}(\mathbf{k}) = \frac{1}{z} \sum_{\delta_{\perp}^{ab}} e^{i\delta_{\perp}^{ab}\cdot\mathbf{k}} = \cos \frac{k_x a}{2} \cos \frac{k_z c}{2}, \quad (4.12)$$

$$\gamma_{\perp}^{aa}(\mathbf{k}) = \frac{1}{z} \sum_{\delta_{\perp}^{aa}} e^{i\delta_{\perp}^{aa} \cdot \mathbf{k}} = \cos \frac{k_y b}{2} \cos \frac{k_z c}{2}. \quad (4.13)$$

Hamiltonijan (4.5), koji sadrži operatorske proizvode  $\hat{a}_{\mathbf{k}}^{\dagger} \hat{b}_{-\mathbf{k}}^{\dagger}$  i  $\hat{a}_{\mathbf{k}} \hat{b}_{-\mathbf{k}}$  koji ne održavaju broj magnona, može se dijagonalizovati „u-v” transformacijom Bogoljubova [30]. Ova transformacija se sastoji u uvođenju novih boze-operatora  $\hat{A}_{\mathbf{k}}$  i  $\hat{B}_{\mathbf{k}}$  relacijama:

$$\begin{aligned} \hat{a}_{\mathbf{k}} &= u_{\mathbf{k}} \hat{A}_{\mathbf{k}} + v_{\mathbf{k}} \hat{B}_{-\mathbf{k}}^{\dagger}, & \hat{b}_{\mathbf{k}} &= v_{\mathbf{k}} \hat{A}_{-\mathbf{k}}^{\dagger} + u_{\mathbf{k}} \hat{B}_{\mathbf{k}}, \\ \hat{a}_{\mathbf{k}}^{\dagger} &= u_{\mathbf{k}} \hat{A}_{\mathbf{k}}^{\dagger} + v_{\mathbf{k}} \hat{B}_{-\mathbf{k}}, & \hat{b}_{\mathbf{k}}^{\dagger} &= v_{\mathbf{k}} \hat{A}_{-\mathbf{k}} + u_{\mathbf{k}} \hat{B}_{\mathbf{k}}^{\dagger}, \end{aligned} \quad (4.14)$$

gde su  $u_{\mathbf{k}}$  i  $v_{\mathbf{k}}$  parne i realne funkcije koje zadovoljavaju uslov

$$u_{\mathbf{k}}^2 - v_{\mathbf{k}}^2 = 1. \quad (4.15)$$

Ako u (4.5) uvedemo transformaciju (4.14), dobijamo

$$\begin{aligned} \hat{H}_{LSW} &= -(1 + \eta)JS^2z \frac{N}{2} + (J_{\perp}^{aa} - J_{\perp}^{ab})S^2z \frac{N}{2} + J_2S^2Nz + \\ &+ \sum_{\mathbf{k}} \left( [\epsilon_{LSW}(\mathbf{k}) + h]v_{\mathbf{k}}^2 + [\epsilon_{LSW}(\mathbf{k}) - h]v_{\mathbf{k}}^2 \right) + \sum_{\mathbf{k}} 2I_{LSW}(\mathbf{k})u_{\mathbf{k}}v_{\mathbf{k}} + \\ &+ \sum_{\mathbf{k}} \hat{A}_{\mathbf{k}}^{\dagger} \hat{A}_{\mathbf{k}} \left( [\epsilon_{LSW}(\mathbf{k}) + h]u_{\mathbf{k}}^2 + [\epsilon_{LSW}(\mathbf{k}) - h]v_{\mathbf{k}}^2 + 2u_{\mathbf{k}}v_{\mathbf{k}}I_{LSW}(\mathbf{k}) \right) + \\ &+ \sum_{\mathbf{k}} \hat{B}_{\mathbf{k}}^{\dagger} \hat{B}_{\mathbf{k}} \left( [\epsilon_{LSW}(\mathbf{k}) + h]u_{\mathbf{k}}^2 + [\epsilon_{LSW}(\mathbf{k}) - h]v_{\mathbf{k}}^2 + 2u_{\mathbf{k}}v_{\mathbf{k}}I_{LSW}(\mathbf{k}) \right) + \\ &+ \sum_{\mathbf{k}} \left( 2\epsilon_{LSW}(\mathbf{k})u_{\mathbf{k}}v_{\mathbf{k}} + I_{LSW}(\mathbf{k})[u_{\mathbf{k}}^2 + v_{\mathbf{k}}^2] \right) \left( \hat{A}_{\mathbf{k}}^{\dagger} \hat{B}_{-\mathbf{k}}^{\dagger} + \hat{A}_{\mathbf{k}} \hat{B}_{-\mathbf{k}} \right). \end{aligned} \quad (4.16)$$

Funkcije  $u_{\mathbf{k}}$  i  $v_{\mathbf{k}}$  određujemo iz jednačine (4.15) i uslova da nedijagonalni član u hamiltonijanu (4.16) postane jednak nuli:

$$2\epsilon_{LSW}(\mathbf{k})u_{\mathbf{k}}v_{\mathbf{k}} + I_{LSW}(\mathbf{k})[u_{\mathbf{k}}^2 + v_{\mathbf{k}}^2] = 0. \quad (4.17)$$

Rešenje tog sistema jednačina glasi:

$$\begin{aligned} u_{\mathbf{k}} &= \sqrt{\frac{1}{2} \left[ \frac{\epsilon_{LSW}(\mathbf{k})}{\sqrt{\epsilon_{LSW}^2(\mathbf{k}) - I_{LSW}^2(\mathbf{k})}} + 1 \right]}, \\ v_{\mathbf{k}} &= -\sqrt{\frac{1}{2} \left[ \frac{\epsilon_{LSW}(\mathbf{k})}{\sqrt{\epsilon_{LSW}^2(\mathbf{k}) - I_{LSW}^2(\mathbf{k})}} - 1 \right]}. \end{aligned} \quad (4.18)$$

Ako uvedemo funkcije (4.18) u hamiltonijan (4.16), dobijamo dijagonalni hamiltonijan

$$\hat{H}_{LSW} = E_0 + \sum_{\mathbf{k}} \left[ E_{LSW}^A(\mathbf{k}) \hat{A}_{\mathbf{k}}^{\dagger} \hat{A}_{\mathbf{k}} + E_{LSW}^B(\mathbf{k}) \hat{B}_{\mathbf{k}}^{\dagger} \hat{B}_{\mathbf{k}} \right], \quad (4.19)$$

gde je  $E_0$  energija osnovnog stanja, data sa

$$\begin{aligned} E_0 &= -(1 + \eta)JS^2z \frac{N}{2} + (J_{\perp}^{aa} - J_{\perp}^{ab})S^2z \frac{N}{2} + J_2S^2Nz + \\ &+ \sum_{\mathbf{k}} \left( \sqrt{\epsilon_{LSW}^2(\mathbf{k}) - I_{LSW}^2(\mathbf{k})} - \epsilon_{LSW}(\mathbf{k}) \right), \end{aligned} \quad (4.20)$$

dok su  $E_{LSW}^{A/B}(\mathbf{k})$  energije magnona u prisustvu spoljašnjeg magnetnog polja

$$E_{LSW}^{A/B}(\mathbf{k}) = \sqrt{\epsilon_{LSW}^2(\mathbf{k}) - I_{LSW}^2(\mathbf{k})} \pm h. \quad (4.21)$$

Iz izraza (4.21) vidimo da u prisustvu spoljašnjeg magnetnog polja postoje dve magnonske grane, dok u odsustvu polja postoji jedna, dvostruko degenerisana, koju ćemo označavati  $E_{LSW}(\mathbf{k})$ . Pored toga, treba ukazati na činjenicu da u LSW pristupu energija magnona ne zavisi od temperature.

S obzirom da je intraplanarna interakcija kod posmatranog jedinjenja dominantna, razmotrićemo najpre 2D model u odsustvu spoljašnjeg magnetnog polja ( $h = 0$ ) i ispitati da li se u okviru tog modela može korektno reprodukovati eksperimentalno dobijeni magnonski spektar. Ako u (4.6) i (4.7) zamenimo  $\lambda_{\perp}^{ab} = \lambda_{\perp}^{aa} = 0$ , tada se (4.21) svodi na izraz za magnonske energije u kojem figurišu parametri  $J$ ,  $\eta$  i  $\lambda_2$ :

$$E_{LSW}^{(2D)}(\mathbf{k}) = JSz\sqrt{[(1 + \eta) - 2\lambda_2 + \lambda_2(\gamma_2(\mathbf{k}) + \gamma_3(\mathbf{k}))]^2 - \gamma_1^2(\mathbf{k})}. \quad (4.22)$$

Proces određivanja parametara zasniva se na poznavanju eksperimentalnih podataka o spektru elementarnih ekscitacija u  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ . U tu svrhu koristićemo magnonski spektar dobijen neelastičnim rasejanjem neutrona na  $T = 10$  K u Coldea *et al.* [6]. Uzimajući dve eksperimentalno određene vrednosti za magnonske energije, možemo na osnovu (4.22) naći parametre  $J$  i  $\lambda_2$  za nekoliko različitih vrednosti parametra spinske anizotropije  $\eta$ .

Eksperimentalne vrednosti za magnonsku energiju u tačkama  $(\pi, 0)$  i  $(\pi, -\pi)$  prve Brillouinove zone (BZ) iznose:

$$\begin{aligned} E_1 &= E(\pi, 0) = 292 \pm 7 \text{ meV}, \\ E_2 &= E(\pi, -\pi) = 314 \pm 7 \text{ meV}. \end{aligned} \quad (4.23)$$

Vodeći računa da su geometrijski faktori u tim tačkama

$$\gamma_1(\mathbf{k})|_{(\pi,0)} = \gamma_2(\mathbf{k})|_{(\pi,0)} = 0, \quad \gamma_3(\mathbf{k})|_{(\pi,0)} = -1, \quad (4.24)$$

$$\gamma_1(\mathbf{k})|_{(\pi,-\pi)} = 0, \quad \gamma_2(\mathbf{k})|_{(\pi,-\pi)} = -1, \quad \gamma_3(\mathbf{k})|_{(\pi,-\pi)} = 1, \quad (4.25)$$

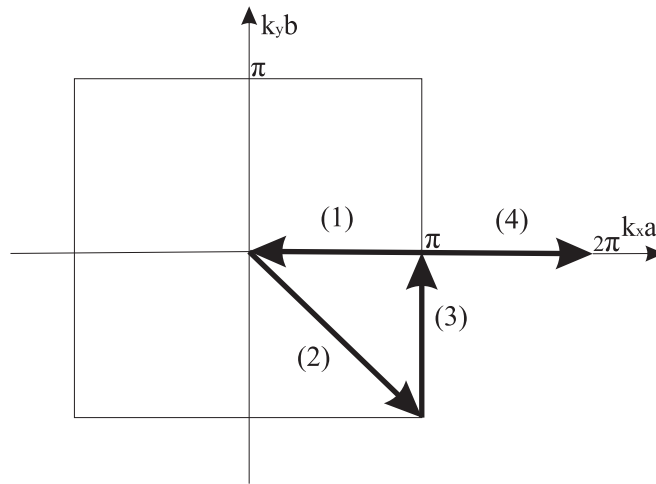
izraz (4.22) daje sledeće skupove parametara:

TABELA 2:

Izračunati parametri modelnog hamiltonijana za različite vrednosti parametra  $\eta$  u LSW pristupu

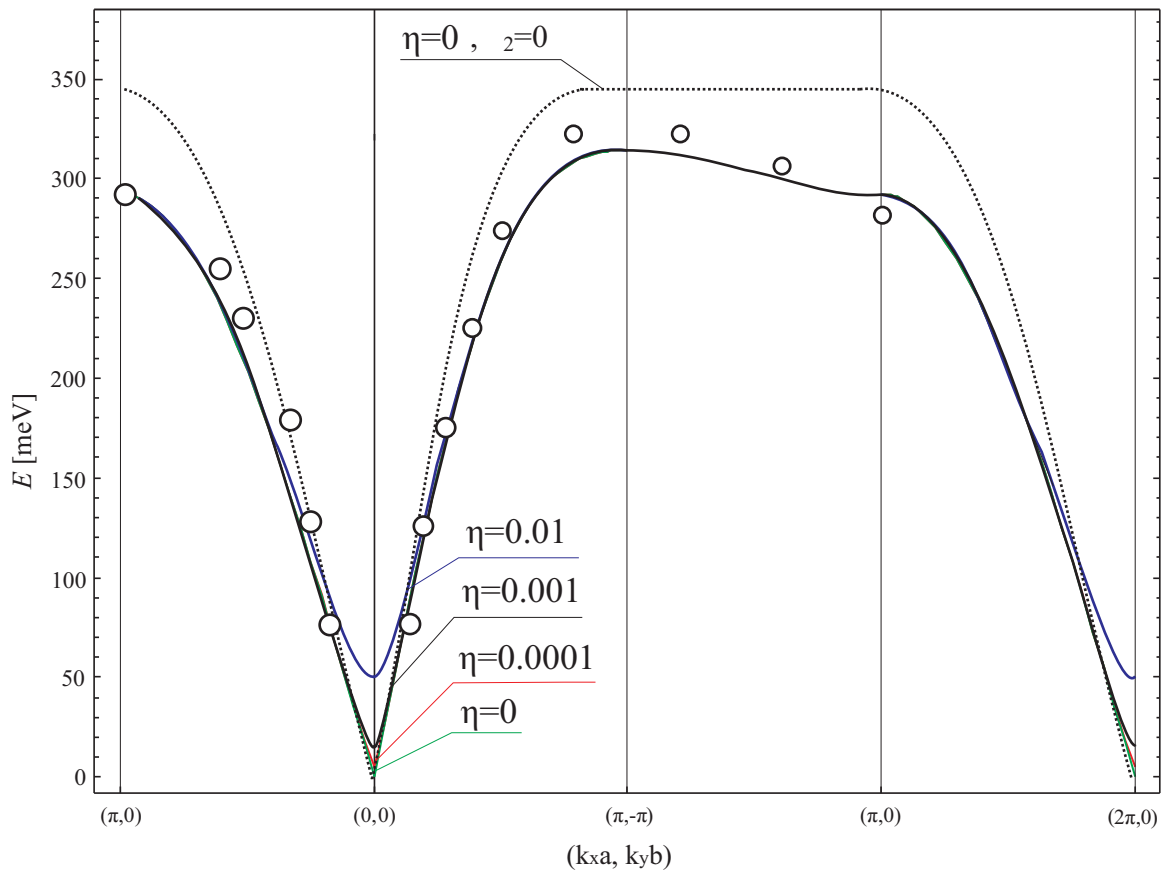
$\eta$	0	$10^{-4}$	$5 \cdot 10^{-4}$	$10^{-3}$	$5 \cdot 10^{-3}$	$10^{-2}$
$J$	179	178.982	178.911	178.821	178.109	177.228
$\lambda_2$	0.06145	0.06146	0.06148	0.06151	0.06176	0.06207

Da bismo uporedili teorijske rezultate sa eksperimentom, računaćemo disperziju duž onih pravaca u 2D AFM Brillouinovoj zoni duž kojih su u [6] merene magnonske energije, a koji su prikazani na Slici 7.



Sl. 7: 2D AFM Brillouinova zona za ortorombnu strukturu  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  zajedno sa „stazom” duž koje je meren/računat spektar magnonskih energija.

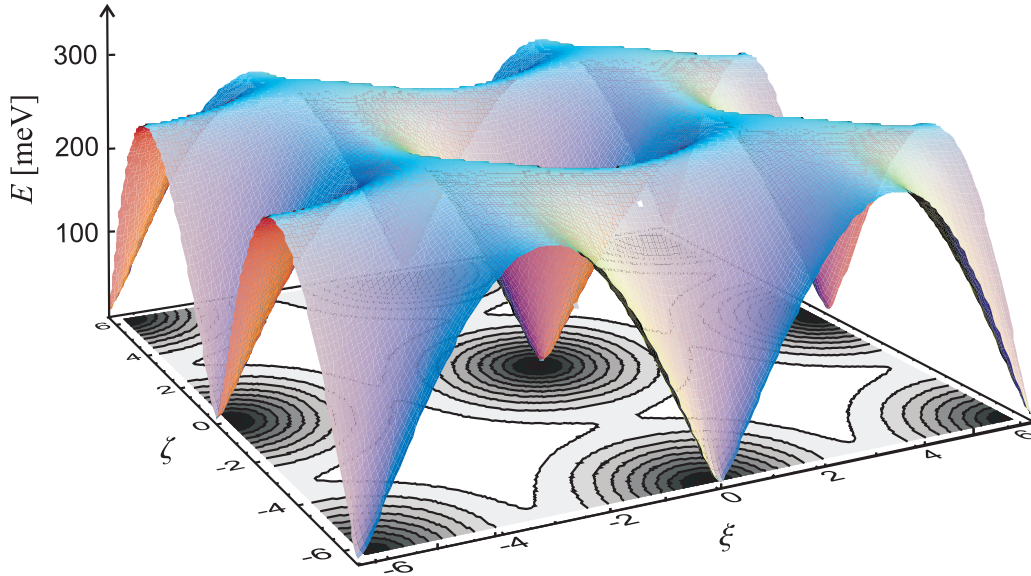
Disperzija magnonskih energija izračunata na osnovu (4.22) za različite skupove parametara iz Tabele 2. zajedno sa eksperimentalnim rezultatima preuzetim iz [6] prikazana je na Slici 8.



Sl. 8: Spektar magnonskih energija u ortorombnoj fazi  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  duž pravaca visoke simetrije u 2D AFM BZ. Kružići predstavljaju eksperimentalne podatke dobijene neelastičnim rasejanjem neutrona na  $T = 10\text{ K}$  [6]. Pune linije su teorijske krive izračunate pomoću izraza (4.22) za skupove SW parametara  $(\eta, J, \lambda_2)$  iz Tabele 2. Tačkasta kriva predstavlja disperzionu relaciju u odsustvu NNN interakcije.

Vidi se da je slaganje eksperimentalnih rezultata i disperzije koju daje naš model relativno dobro, ukazujući na opravdanost aproksimacije 3D ortorombne strukture 2D modelom na niskim temperaturama. Posebno je značajno ukazati da disperziona relacija u kojoj nije uračunata NNN interakcija ( $\lambda_2 = 0$ ) dobro opisuje eksperimentalne podatke na nižim energijama (do otprilike 150 meV), dok za više energije znatno odstupa od eksperimenta. Takođe, oblik te disperzione krive pokazuje da se bez uračunavanja NNN interakcije ne može reprodukovati osobenost disperzije na granici Brillouene zone. Ovi zaključci slažu se sa tvrdnjama iznesenim u [6].

Na Slici 9. prikazana je površina  $E(k_x, k_y)$ , koja oslikava periodičnost magnonskih energija u impulsnom prostoru.



Sl. 9: Spektar magnonskih energija u tri dimenzije, za skup parametara koji odgovara vrednosti  $\eta = 10^{-3}$  iz Tabele 2. Na  $x$  i  $y$  osi prikazani su redukovani talasni vektori  $\xi = a k_x$  i  $\zeta = a k_y$ , respektivno. Prva Brillouenova zona odgovara oblasti  $-\pi \leq (\xi, \zeta) \leq \pi$ .

## 4.2 Goldstonov mod

Razmotrimo sada magnonsku energiju u blizini centra Brillouene zone ( $\mathbf{k} \approx 0$ ). Ako izraze (4.9), (4.10) i (4.11) razvijemo po talasnom vektoru koristeći aproksimaciju  $\cos x \approx 1 - x^2/2$  i zadržimo članove kvadratne po komponentama talasnog vektora, dobićemo:

$$\gamma_1(\mathbf{k} \approx 0) \approx 1 - \frac{(k_x a)^2}{8} - \frac{(k_y b)^2}{8}, \quad (4.26)$$

$$\gamma_2(\mathbf{k} \approx 0) \approx 1 - \frac{(k_x a)^2}{4} - \frac{(k_y b)^2}{4}, \quad (4.27)$$

$$\gamma_3(\mathbf{k} \approx 0) \approx 1 - \frac{(k_x a)^2}{2} - \frac{(k_y b)^2}{2}. \quad (4.28)$$



Zamenom (4.26)-(4.28) u jednačinu (4.22), pri čemu ponovo zadržavamo samo članove kvadratne po komponentama talasnog vektora, dolazimo do izraza za 2D magnonsku energiju u blizini centra BZ:

$$E_{LSW}(\mathbf{k} \approx 0) \approx JSz \sqrt{(1 + \eta)^2 - \frac{3}{2}(1 + \eta)\lambda_2 [(k_x a)^2 + (k_y b)^2]} - \left(1 - \frac{(k_x a)^2}{4} - \frac{(k_y b)^2}{4}\right). \quad (4.29)$$

Iz (4.29) se vidi da kad  $|\mathbf{k}| \rightarrow 0$  za  $\eta = 0$  energija magnona iščezava, tj. postoji Goldstonov mod (zeleno kriva na Sl. 7). Naime, ako hamiltonijan sistema ima višu simetriju od osnovnog stanja tog sistema, govorimo o spontanom narušavanju simetrije koje je praćeno pojavom bezmasenih bozona, tzv. Goldstonovih bozona, čija energija teži nuli sa talasnim vektorom (Goldstonova teorema). Kako je za spinski izotropan model Hajzenbergov hamiltonijan invarijantan u odnosu na rotaciju u odnosu na bilo koju tačku u prostoru, a osnovno stanje sistema zbog usmerenosti spinova invarijantno u odnosu na rotaciju oko određene ose, zaključujemo da u tom slučaju dolazi do spontanog narušavanja simetrije, usled čega se kao goldstonovske čestice javljaju magnoni čija energija prema (4.29) teži nuli sa talasnim vektorom<sup>1</sup>. Za  $\eta \neq 0$  (ili u prisustvu spoljašnjeg magnetnog polja) simetrija hamiltonijana postaje jednaka simetriji osnovnog stanja sistema te uslovi pod kojima važi gornja teorema nisu više ispunjeni, usled čega se pojavljuje gep u centru Brillouene zone, koji raste sa porastom spinske anizotropije (videti Sl. 7.). S obzirom da Mermin-Vagnerova teorema za spinski izotropan 2D model negira postojanje spontane magnetizacije na konačnim temperaturama, u izotropnom slučaju dugodometno uređenje postoji samo na apsolutnoj nuli, a uvođenje spinske anizotropije postaje ključno za postojanje dugodometnog uređenja na temperaturama višim od nule.

### 4.3 Magnetizacija podrešetke

Magnetizacija podrešetke (svejedno koje) je na proizvoljnoj temperaturi u odsustvu magnetnog polja data izrazom:

$$\langle \hat{S}^{z(a)} \rangle = S - \langle \hat{a}_n^\dagger \hat{a}_n \rangle = S - \frac{1}{N_a} \sum_{\mathbf{k}} \langle \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}} \rangle. \quad (4.30)$$

Srednja vrednost  $\langle \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}} \rangle$  računa se pomoću (4.14):

$$\begin{aligned} \langle \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}} \rangle &= u_{\mathbf{k}}^2 \langle \hat{A}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{A}_{\mathbf{k}} \rangle + v_{\mathbf{k}}^2 \langle \hat{B}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{B}_{\mathbf{k}} \rangle = \\ &= \frac{u_{\mathbf{k}}^2}{\exp[\beta E_{LSW}(\mathbf{k})] - 1} + \frac{v_{\mathbf{k}}^2}{1 - \exp[-\beta E_{LSW}(-\mathbf{k})]}, \end{aligned} \quad (4.31)$$

gde je  $\beta = 1/\theta = 1/k_B T$ .

Kada u (4.30) ubacimo (4.31) i izraze za  $u_{\mathbf{k}}$  i  $v_{\mathbf{k}}$  dobijamo:

$$\langle \hat{S}_{LSW}^{z(a)} \rangle = S - \frac{1}{N_a} \sum_{\mathbf{k}} \left[ \frac{1}{2} \frac{\epsilon(\mathbf{k})}{E_{LSW}(\mathbf{k})} \coth \frac{E_{LSW}(\mathbf{k})}{2\theta} - \frac{1}{2} \right]. \quad (4.32)$$

<sup>1</sup>Prostorna anizotropija (u odsustvu spinske) dopušta postojanje Goldstonovog moda.

Na apsolutnoj nuli, prethodni izraz postaje:

$$\begin{aligned}\langle \hat{S}_{LSW}^{z(a)} \rangle_0 &= S - \frac{1}{N_a} \sum_{\mathbf{k}} \left[ \frac{1}{2} \frac{\epsilon(\mathbf{k})}{E_{LSW}(\mathbf{k})} - \frac{1}{2} \right] \\ &= S - \delta \langle \hat{S}_{LSW}^{z(a)} \rangle_0,\end{aligned}\tag{4.33}$$

gde  $\delta \langle \hat{S}_{LSW}^{z(a)} \rangle_0$  označava kvantne fluktuacije na  $T = 0$  K. Za različite skupove parametara ( $\eta$ ,  $J$ ,  $\lambda_2$ ) izračunata je magnetizacija u osnovnom stanju (Tabela 3.):

TABELA 3:

Spontana magnetizacija na apsolutnoj nuli za različite vrednosti parametara ( $\eta$ ,  $J$ ,  $\lambda_2$ ) u LSW pristupu

$\eta$	0	$10^{-4}$	$5 \cdot 10^{-4}$	$10^{-3}$	$5 \cdot 10^{-3}$	$10^{-2}$
$\langle \hat{S}_{LSW}^{z(a)} \rangle_0$	0.23686	0.24146	0.24989	0.25602	0.28021	0.29671

Podaci iz Tabele 3. ukazuju da sa porastom spinske anizotropije kvantne fluktuacije na  $T = 0$  K opadaju. S obzirom da se radi o 2D modelu, treba naglasiti da je u skladu sa Mermin-Vagnerovom teoremom spontana magnetizacija spinski izotropnog modela ( $\eta = 0$ ) na konačnim temperaturama jednaka nuli.

Nastavak analize proširićemo na 3D model, pri čemu ćemo se ograničiti na skup parametara koji odgovara vrednosti  $\eta = 10^{-3}$ , s obzirom da je to vrednost za koju će analiza u okviru metoda Grinovih funkcija (Poglavlje 4, [31, 32]) pokazati da daje najbolje slaganje sa eksperimentalnim rezultatima na visokim temperaturama (bliskim  $T_N$ ). Najpre ćemo za skup parametara ( $10^{-3}$ , 178.821, 0.06151) ispitati zavisnost spontane magnetizacije na apsolutnoj nuli od veličine međuravanske interakcije, opisane parametrima  $\lambda_{\perp}^{ab}$  i  $\lambda_{\perp}^{aa}$ . Rezultati su prikazani u Tabeli 4:

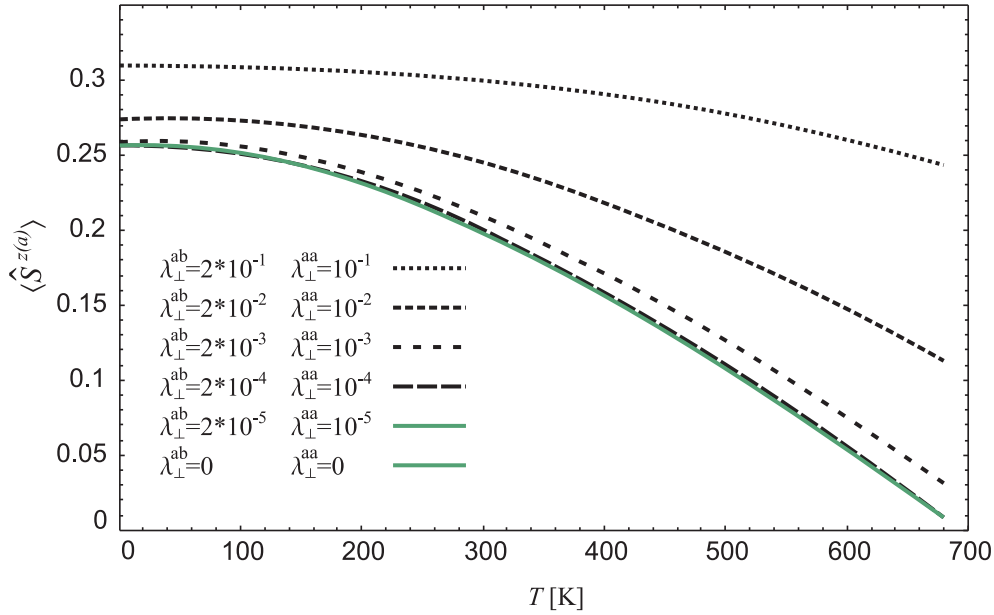
TABELA 4:

Spontana magnetizacija na apsolutnoj nuli za različite vrednosti interplanarne interakcije izmene  $\lambda_{\perp}^{ab}$  i  $\lambda_{\perp}^{aa}$  za skup parametara  $\eta = 10^{-3}$ ,  $J = 178.821$ ,  $\lambda_2 = 0.06151$  u LSW pristupu

$\lambda_{\perp}^{ab}$	0	$2 \cdot 10^{-5}$	$2 \cdot 10^{-4}$	$2 \cdot 10^{-3}$	$2 \cdot 10^{-2}$	$2 \cdot 10^{-1}$
$\lambda_{\perp}^{aa}$	0	$10^{-5}$	$10^{-4}$	$10^{-3}$	$10^{-2}$	$10^{-1}$
$\langle \hat{S}_{LSW}^{z(a)} \rangle_0$	0.25602	0.25606	0.256372	0.259124	0.274073	0.30958

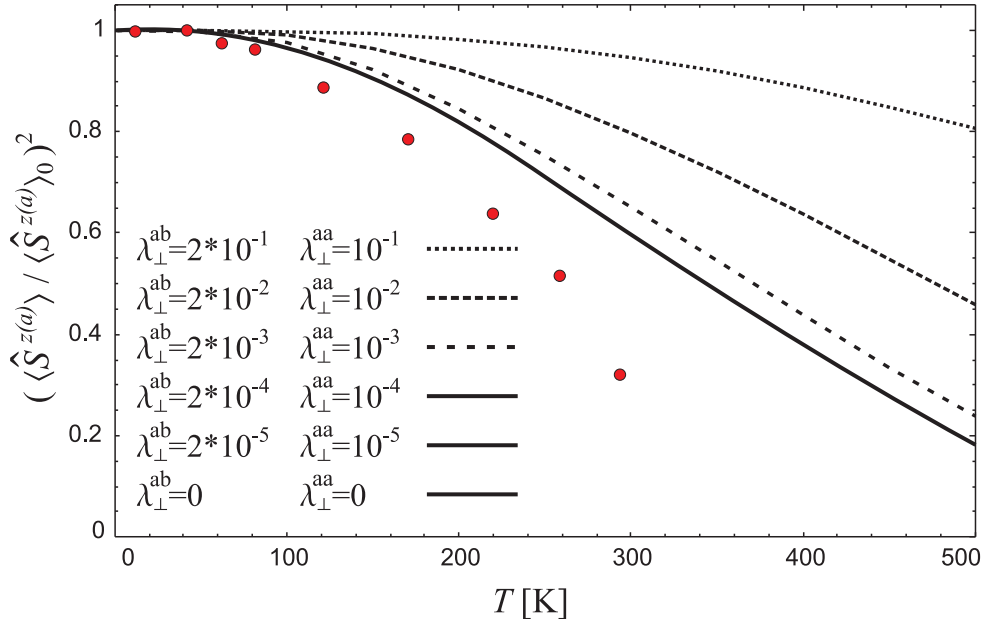
Iz Tabele 4. se vidi da se  $\langle \hat{S}_{LSW}^{z(a)} \rangle_0$  povećava sa veličinom međuravanske interakcije izmene, s obzirom da uređenost sistema raste.

Temperaturska zavisnost spontane magnetizacije u širem temperaturskom intervalu data je na Slici 10. Sa grafika (kao i sa Slike 11. prikazane na sledećoj strani) se može uočiti da LSW teorija znatno precenjuje neutronsom difrakcijom određenu vrednost Nelove temperature  $T_N = 325 \pm 5$  K [10, 11]. To je posledica zanemarivanja magnonske interakcije (viših članova u razvoju u red korene funkcije (3.15)) koje je opravdano samo na niskim temperaturama, kada je broj pobuđenja u sistemu mali.



Sl. 10: Temperaturska zavisnost spontane magnetizacije u LSW pristupu za skup parametara  $\eta = 10^{-3}$ ,  $J = 178.821$  meV,  $\lambda_2 = 0.06151$ . (Krive za  $\lambda_{\perp} \sim 10^{-5}$  i  $\lambda_{\perp}^{ab} = \lambda_{\perp}^{aa} = 0$  poklapaju se na datoj rezoluciji.)

S obzirom na činjenicu da su u referenci [10] dati eksperimentalni podaci za zavisnost kvadrata relativne magnetizacije  $(\langle \hat{S}^{z(a)} \rangle / \langle \hat{S}^{z(a)} \rangle_0)^2$  od temperature za nedopirani  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ , uporedili smo naše rezultate za različite vrednosti integrala interplanarne interakcije izmene sa rezultatima eksperimenta (Slika 11).



Sl. 11: Temperaturska zavisnost kvadrata relativne magnetizacije. Kružići predstavljaju eksperimentalne rezultate preuzete iz [10], dok su krivama dati rezultati LSW analize za različite vrednosti parametara  $\lambda_{\perp}^{ab}$  i  $\lambda_{\perp}^{aa}$ .

Sa grafika se vidi da LSW teorija daje rezultate koji se slažu sa eksperimentom do  $T \approx 0.3T_N$ . U tom temperaturskom opsegu najbolje slaganje se postiže za  $0 \leq \lambda_{\perp}^{ab(aa)} \leq 10^{-4}$ .

Kako je tim intervalom obuhvaćen i 2D model, nameće se zaključak o kvazi-dvodimenzionalnoj prirodi posmatranog jedinjenja, mada će analiza u okviru metoda Grinovih funkcija pokazati da je za ispravan opis ponašanja  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  i na višim temperaturama (bliskim  $T_N$ ) neophodno uključiti konačne međuravanske integrale izmene.

## 4.4 Magnonski doprinos specifičnoj toploti

Magnonski doprinos specifičnoj toploti u  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  računat je u literaturi uglavnom u okviru LSW teorije [19,20]. Premda će naša pažnja biti usmerena prvenstveno na određivanje magnonske specifične toplote u okviru metoda Grinovih funkcija (videti odeljak 5.5), činjenica da u referencama [19,20] autori koriste pojednostavljeni model sa kvadratnom rešetkom i uračunavaju samo interakciju izmene najbližih suseda u ravni, navela nas je da pokušamo da popravimo rezultate LSW teorije time što ćemo ovu teoriju primeniti na 3D ortorombni model sa planarnom frustracijom.

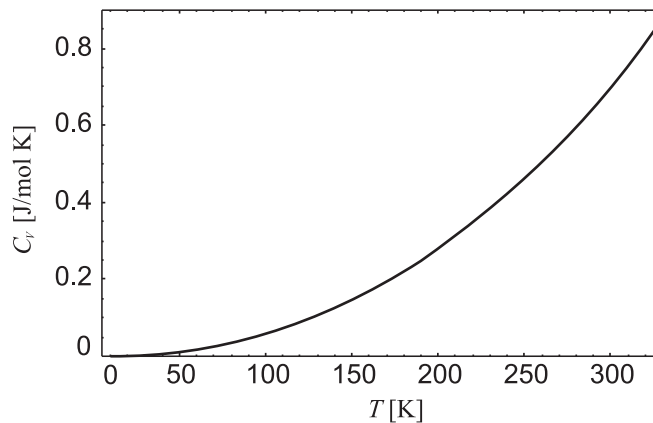
U tom cilju, usrednjićemo izraz (4.19) po Gibsovom ansamblu i time dobiti unutrašnju energiju  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  na temperaturi  $T$  u odsustvu spoljašnjeg magnetnog polja:

$$\begin{aligned} U_{LSW} = \langle \hat{H}_{LSW} \rangle &= E_0 + \sum_{\mathbf{k}} E_{LSW}(\mathbf{k}) \left( \langle \hat{A}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{A}_{\mathbf{k}} \rangle + \langle \hat{B}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{B}_{\mathbf{k}} \rangle \right) = \\ &= E_0 + 2 \sum_{\mathbf{k}} \frac{E_{LSW}(\mathbf{k})}{\exp\left(\frac{E_{LSW}(\mathbf{k})}{\theta}\right) - 1}. \end{aligned} \quad (4.34)$$

Magnonska specifična toplota definiše se kao izvod unutrašnje energije po temperaturi:

$$C_V^{LSW}(T) = \frac{dU_{LSW}}{dT} = 2 \sum_{\mathbf{k}} \frac{E_{LSW}^2(\mathbf{k})}{\left[\exp\left(\frac{E_{LSW}(\mathbf{k})}{\theta}\right) - 1\right]^2} \exp\left(\frac{E_{LSW}(\mathbf{k})}{\theta}\right) \frac{k_B}{\theta^2}. \quad (4.35)$$

Izraz (4.35) omogućava nam da prikažemo grafički temperatursku zavisnost magnonske specifične toplote u intervalu od apsolutne nule do Nelove temperature. Pri tome ćemo koristiti sledeći skup parametara:  $J = 178.821$  meV;  $\lambda_2 = 0.06151$ ;  $\eta = 10^{-3}$ ;  $\lambda_{\perp}^{ab} = 2 \cdot 10^{-4}$ ;  $\lambda_{\perp}^{aa} = 10^{-4}$ . Rezultat je dat na Slici 12.



Sl. 12: Zavisnost magnonske specifične toplote od temperature za  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  u okviru LSW teorije.

Sa slike se vidi da LSW teorija ne daje divergenciju, već samo diskontinuitet kad  $T \rightarrow T_N$ . Zarad poređenja sa vrednostima koje se navode u literaturi, iskoristićemo podatak iz [17], gde

je za magnonsku specifičnu toplotu na  $T = 40$  K data vrednost  $1.8$  mJ/K mol. Naš model na toj temperaturi daje  $2.9$  mJ/K mol. Međutim, ako u naše izraze stavimo  $\lambda_2 = 0$  i  $\lambda_{\perp}^{ab(aa)} = 0$ , rezultati će se svesti na one iz [17, 20]. Prema tome, 3D model sa planarnom frustracijom daje blago povećanje magnonske specifične toplote u poređenju sa jednostavnim 2D modelom često korišćenim u literaturi.

#### 4.4.1 Niskotemperatursko ponašanje u okviru dugotalasne aproksimacije

Imajući u vidu da se u literaturi često ispituje niskotemperatursko ponašanje magnonske specifične toplote u okviru LSW teorije, primenićemo dugotalasnu aproksimaciju ( $\mathbf{k} \rightarrow 0$ ) na izraz za magnonsku specifičnu toplotu (4.35).

U tom cilju, najpre treba aproksimirati geometrijske faktore (4.9)-(4.13) izrazima koji važe u blizini centra Brilloueneve zone. Približni izrazi za geometrijske faktore u ravni dati su jednačinama (4.26)-(4.28), dok su međuravanski geometrijski faktori u dugotalasnoj aproksimaciji dati sa

$$\gamma_{\perp}^{ab}(\mathbf{k} \approx 0) \approx 1 - \frac{(k_x a)^2}{8} - \frac{(k_y c)^2}{8}, \quad (4.36)$$

$$\gamma_{\perp}^{aa}(\mathbf{k} \approx 0) \approx 1 - \frac{(k_x b)^2}{8} - \frac{(k_y c)^2}{8}. \quad (4.37)$$

S obzirom da se radi o 3D modelu, možemo posmatrati izotropni magnet ( $\eta = 0$ ), što predstavlja pojednostavljenje opravdano eksperimentalnim podacima koji ukazuju da je gep koji se pojavljuje u spektru elementarnih ekscitacija veoma mali [6, 16]. Tada izraz za energiju elementarnih ekscitacija glasi:

$$E_{LSW}(\mathbf{k} \approx 0) = JSz \sqrt{X(k_x a)^2 + Y(k_y b)^2 + Z(k_z c)^2}, \quad (4.38)$$

gde su korišćene oznake

$$X = (1 + \lambda_{\perp}^{ab}) \left( \frac{1}{4} + \frac{1}{4} \lambda_{\perp}^{ab} - \frac{3}{2} \lambda_2 \right), \quad (4.39)$$

$$Y = (1 + \lambda_{\perp}^{ab}) \left( \frac{1}{4} - \frac{1}{4} \lambda_{\perp}^{aa} - \frac{3}{2} \lambda_2 \right), \quad (4.40)$$

$$Z = (1 + \lambda_{\perp}^{ab}) \left( \frac{1}{4} \lambda_{\perp}^{ab} - \frac{1}{4} \lambda_{\perp}^{aa} \right). \quad (4.41)$$

Kada izraz (4.38) ubacimo u jednačinu (4.34) i izvršimo prelaz sa sume na integral, dobijamo sledeći izraz za unutrašnju energiju u blizini centra Brilloueneve zone:

$$U_{LSW} \approx E_0 + \frac{1}{\pi^2} \frac{JSz}{\sqrt{XYZ}} \int_0^{r^*} \frac{r^3 dr}{\exp\left(\frac{JSz}{k_B T} r\right) - 1}, \quad (4.42)$$

gde je  $r = \sqrt{X(k_x a)^2 + Y(k_y b)^2 + Z(k_z c)^2}$ , dok je sa  $r^*$  označen poluprečnik sfere čija je zapremina jednaka zapremini prve Brilloueneve zone. Ako u gornji integral uvedemo smenu

$x = \frac{JSz}{k_B T} r$ , tada možemo uzeti da gornja granica integracije teži beskonačnosti kad  $T \rightarrow 0$ , te izraz (4.42) postaje

$$U_{LSW} \approx E_0 + \frac{1}{\pi^2} \frac{1}{\sqrt{XYZ}} \frac{(k_B T)^4}{(JSz)^3} \int_0^\infty \frac{x^3 dx}{\exp(x) - 1}. \quad (4.43)$$

Vrednost integrala koji se pojavljuje u izrazu (4.43) iznosi  $\pi^4/15$ , te konačno izraz za magnonsku specifičnu toplotu po molu u dugotalasnoj aproksimaciji glasi:

$$C_V^{LSW} \approx \frac{dU_{LSW}}{dT} = \frac{4\pi^2}{15} \frac{1}{\sqrt{XYZ}} \frac{k_B^4}{(JSz)^3} N_A T^3 = B' T^3, \quad (4.44)$$

gde je  $B' = 3.89 \cdot 10^{-7} \text{ J/K}^4 \text{ mol}$ .

Ovaj rezultat ukazuje na trodimenzionalnost modela i predstavlja blagu popravku u poređenju sa kvadratnom zavisnošću dobijenom u [19, 20] za 2D model sa interakcijom izmene samo prvih suseda u ravni.

## 4.5 Magnetna susceptibilnost $\text{La}_2\text{CuO}_4$

Izuzetno značajno svojstvo posmatranih jedinjenja koje se, za razliku od magnonske specifične toplote, može eksperimentalno određivati predstavlja paralelna magnetna susceptibilnost. Iako najbolje slaganje sa eksperimentom daje metod Grinovih funkcija (videti poglavlje 5.6.1), na niskim temperaturama uobičajeno je koristiti teoriju linearnih spinskih talasa. Reference u kojima se teorijski izučava magnetna susceptibilnost  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  [22, 23] porede rezultate više teorija, od kojih je jedna LSW teorija, te ćemo zarad poređenja sa zaključima tamo iznetim i mi primeniti i tu teoriju.

Polazna tačka u izračunavanju paralelne susceptibilnosti biće izrazi za magnetizacije podrešetke  $a$  i  $b$  u prisustvu slabog spoljašnjeg magnetnog polja koje deluje duž pravca spontane magnetizacije. Magnetizacija podrešetke  $a$  računa se na osnovu izraza (4.30), pri čemu je srednja vrednost  $\langle \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}} \rangle$  u prisustvu polja data relacijom:

$$\langle \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}} \rangle = \frac{u_{\mathbf{k}}^2}{\exp[\beta E_{LSW}^A(\mathbf{k})] - 1} + \frac{v_{\mathbf{k}}^2}{1 - \exp[-\beta E_{LSW}^B(-\mathbf{k})]}, \quad (4.45)$$

gde su magnonske energije  $E_{LSW}^{A/B}(\mathbf{k})$  definisane izrazom (4.21). Koristeći (4.45), magnetizacija podrešetke  $a$  dobija sledeći oblik:

$$\begin{aligned} \langle \hat{S}_{LSW}^{z(a)} \rangle &= S - \frac{1}{N_a} \sum_{\mathbf{k}} \left[ \frac{1}{2} \frac{\epsilon_{LSW}(\mathbf{k})}{\sqrt{\epsilon_{LSW}^2(\mathbf{k}) - I_{LSW}^2(\mathbf{k})}} \left( \frac{1}{\exp\left(\frac{\sqrt{\epsilon_{LSW}^2(\mathbf{k}) - I_{LSW}^2(\mathbf{k})} + h}{\theta}\right) - 1} + \right. \right. \\ &+ \left. \frac{1}{1 - \exp\left(-\frac{\sqrt{\epsilon_{LSW}^2(\mathbf{k}) - I_{LSW}^2(\mathbf{k})} - h}{\theta}\right)} \right) + \frac{1}{2} \left( \frac{1}{\exp\left(\frac{\sqrt{\epsilon_{LSW}^2(\mathbf{k}) - I_{LSW}^2(\mathbf{k})} + h}{\theta}\right) - 1} - \right. \\ &+ \left. \left. \frac{1}{1 - \exp\left(-\frac{\sqrt{\epsilon_{LSW}^2(\mathbf{k}) - I_{LSW}^2(\mathbf{k})} - h}{\theta}\right)} \right) \right]. \end{aligned} \quad (4.46)$$

Analogno se određuje magnetizacija podrešetke  $b$  za koju se dobija sledeći izraz:

$$\begin{aligned} \langle \hat{S}_{LSW}^{z(b)} \rangle = & S - \frac{1}{N_b} \sum_{\mathbf{k}} \left[ \frac{1}{2} \frac{\epsilon_{LSW}(\mathbf{k})}{\sqrt{\epsilon_{LSW}^2(\mathbf{k}) - I_{LSW}^2(\mathbf{k})}} \left( \frac{1}{\exp(\frac{\sqrt{\epsilon_{LSW}^2(\mathbf{k}) - I_{LSW}^2(\mathbf{k})} - h}{\theta}) - 1} + \right. \right. \\ & \left. \left. + \frac{1}{1 - \exp(-\frac{\sqrt{\epsilon_{LSW}^2(\mathbf{k}) - I_{LSW}^2(\mathbf{k})} + h}{\theta})} \right) + \frac{1}{2} \left( \frac{1}{\exp(\frac{\sqrt{\epsilon_{LSW}^2(\mathbf{k}) - I_{LSW}^2(\mathbf{k})} - h}{\theta}) - 1} - \right. \right. \\ & \left. \left. + \frac{1}{1 - \exp(-\frac{\sqrt{\epsilon_{LSW}^2(\mathbf{k}) - I_{LSW}^2(\mathbf{k})} + h}{\theta})} \right) \right], \end{aligned} \quad (4.47)$$

pri čemu je  $N_a = N_b$ .

U antiferomagnetno uređenoj oblasti u prisustvu spoljašnjeg polja moguće je magnetizacije podrešetke izraziti na sledeći način:

$$\langle \hat{S}_{LSW}^{z(a)} \rangle = \langle \hat{S}_{LSW}^z \rangle + \chi_{LSW} \cdot h, \quad \langle \hat{S}_{LSW}^{z(b)} \rangle = \langle \hat{S}_{LSW}^z \rangle - \chi_{LSW} \cdot h, \quad (4.48)$$

gde je  $\langle \hat{S}_{LSW}^z \rangle$  magnetizacija obe podrešetke u odsustvu polja data izrazom (4.32). Magnetnu susceptibilnost možemo jednostavno dobiti tražeći razliku magnetizacije podrešetke  $a$  i  $b$  na osnovu izraza (4.48), koristeći relacije (4.46) i (4.47):

$$\chi_{LSW} \cdot h = \frac{1}{4N_a} \sum_{\mathbf{k}} \left( \coth \frac{\sqrt{\epsilon_{LSW}^2(\mathbf{k}) - I_{LSW}^2(\mathbf{k})} - h}{2\theta} - \coth \frac{\sqrt{\epsilon_{LSW}^2(\mathbf{k}) - I_{LSW}^2(\mathbf{k})} + h}{2\theta} \right) \quad (4.49)$$

Pretpostavka slabog spoljašnjeg magnetnog polja omogućava razvoj u red  $\coth(x + yh) \approx \coth x - (y/\sinh^2 x)h$ , nakon čega iz izraza (4.49) dobijamo sledeću relaciju za magnetnu susceptibilnost:

$$\chi_{LSW} = \frac{1}{4\theta} \frac{1}{N_a} \sum_{\mathbf{k}} \frac{1}{\sinh^{-2} \frac{\sqrt{\epsilon_{LSW}^2(\mathbf{k}) - I_{LSW}^2(\mathbf{k})}}{2\theta}}. \quad (4.50)$$

Ovaj izraz biće osnova za numeričku analizu magnetne susceptibilnosti u okviru LSW teorije. Zarad lakšeg poređenja sa rezultatima koje daje metod Grinovih funkcija (u RP i MF aproksimaciji), grafički prikaz zavisnosti date izrazom (4.50) biće dat zajedno sa rezultatima druga dva pristupa na Slici 29., u poglavlju 5.6.5.

LSW analiza u slučaju  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$  daje u toj meri komplikovane izraze za magnonske energije da je s njima nemoguće analitički operisati. Stoga je paralelna susceptibilnost tog jedinjenja računata samo u okviru MFA aproksimacije (odeljak 5.6.6).





# Poglavlje 5

## Analiza u okviru metoda Grinovih funkcija

### 5.1 Određivanje magnonskog spektra kupratnog antiferomagneta $\text{La}_2\text{CuO}_4$

Imajući u vidu da je spektar elementarnih ekscitacija kupratnog antiferomagneta  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  eksperimentalno određen neelastičnim rasejanjem neutrona na temperaturi od 10 K [6], naš cilj je prvenstveno da reprodukujemo taj spektar pomoću modela opisanog efektivnim hamiltonijanom (2.2), a zatim da proverimo da li parametri koji daju validan magnonski spektar mogu korektno opisati posmatrani sistem i na višim temperaturama.

Polazna tačka za određivanje spektra elementarnih ekscitacija sistema spinova nepopunjenih  $3d$ -ljuski  $\text{Cu}^{2+}$  jona u  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  biće hamiltonijan (2.2). S obzirom na to da ćemo koristiti metod spinskih Grinovih funkcija, poći ćemo od Hajzenbergovih jednačina kretanja za  $\hat{S}^\pm$  operatore. Konkretno, ispisaćemo sistem od dve jednačine kretanja za operatore  $\hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{+(a)}$  i  $\hat{S}_{\mathbf{n}_b}^{-(b)}$ , kao i pridružen sistem jednačina za adjungovane operatore  $\hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{-(a)}$  i  $\hat{S}_{\mathbf{n}_b}^{+(b)}$ . Koristeći te jednačine, sastavićemo sistem jednačina kretanja za Grinove funkcije  $\langle\langle \hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha}^{\pm(\alpha)} | \hat{B} \rangle\rangle$  gde je  $\alpha = a, b$ , a  $\hat{B}$  proizvoljan operator. Taj sistem glasi<sup>1</sup>:

$$\begin{aligned}
 E \langle\langle \hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{+(a)} | \hat{B} \rangle\rangle &= \frac{i\hbar}{2\pi} \langle[\hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{+(a)}, \hat{B}]\rangle + \\
 &+ J \sum_{\delta_1} \left( \langle\langle \hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{z(a)} \hat{S}_{\mathbf{n}_a+\delta_1}^{-(b)} | \hat{B} \rangle\rangle + (1 + \eta) \langle\langle \hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{+(a)} \hat{S}_{\mathbf{n}_a+\delta_1}^{z(b)} | \hat{B} \rangle\rangle \right) + \\
 &+ J_2 \sum_{\substack{\delta_i \\ i=2,3}} \left( \langle\langle \hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{z(a)} \hat{S}_{\mathbf{n}_a+\delta_i}^{+(a)} | \hat{B} \rangle\rangle - \langle\langle \hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{+(a)} \hat{S}_{\mathbf{n}_a+\delta_i}^{z(a)} | \hat{B} \rangle\rangle \right) + \\
 &+ J_\perp^{ab} \sum_{\delta_\perp^{ab}} \left( \langle\langle \hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{z(a)} \hat{S}_{\mathbf{n}_a+\delta_\perp^{ab}}^{-(b)} | \hat{B} \rangle\rangle + \langle\langle \hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{+(a)} \hat{S}_{\mathbf{n}_a+\delta_\perp^{ab}}^{z(b)} | \hat{B} \rangle\rangle \right) + \\
 &+ J_\perp^{aa} \sum_{\delta_\perp^{aa}} \left( \langle\langle \hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{z(a)} \hat{S}_{\mathbf{n}_a+\delta_\perp^{aa}}^{+(a)} | \hat{B} \rangle\rangle - \langle\langle \hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{+(a)} \hat{S}_{\mathbf{n}_a+\delta_\perp^{aa}}^{z(a)} | \hat{B} \rangle\rangle \right) + \\
 &+ g\mu_B \mathcal{H} \langle\langle \hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{+(a)} | \hat{B} \rangle\rangle, \tag{5.1}
 \end{aligned}$$

<sup>1</sup>Radi jednostavnosti, indeks  $E$  koji označava da su GF u energetske reprezentaciji je izostavljen.

$$\begin{aligned}
E\langle\langle\hat{S}_{\mathbf{n}_b}^{-(b)}|\hat{B}\rangle\rangle &= \frac{i\hbar}{2\pi}\langle[\hat{S}_{\mathbf{n}_b}^{-(b)},\hat{B}]\rangle + \\
&+ J\sum_{\delta_1}\left(-\langle\langle\hat{S}_{\mathbf{n}_b}^{z(b)}\hat{S}_{\mathbf{n}_b+\delta_1}^{+(a)}|\hat{B}\rangle\rangle - (1+\eta)\langle\langle\hat{S}_{\mathbf{n}_b}^{-(b)}\hat{S}_{\mathbf{n}_b+\delta_1}^{z(a)}|\hat{B}\rangle\rangle\right) + \\
&+ J_2\sum_{\substack{\delta_i \\ i=2,3}}\left(-\langle\langle\hat{S}_{\mathbf{n}_b}^{z(b)}\hat{S}_{\mathbf{n}_b+\delta_i}^{-(b)}|\hat{B}\rangle\rangle + \langle\langle\hat{S}_{\mathbf{n}_b}^{-(b)}\hat{S}_{\mathbf{n}_b+\delta_i}^{z(b)}|\hat{B}\rangle\rangle\right) + \\
&+ J_{\perp}^{ab}\sum_{\delta_{\perp}^{ab}}\left(-\langle\langle\hat{S}_{\mathbf{n}_b}^{z(b)}\hat{S}_{\mathbf{n}_b+\delta_{\perp}^{ab}}^{+(a)}|\hat{B}\rangle\rangle - \langle\langle\hat{S}_{\mathbf{n}_b}^{-(b)}\hat{S}_{\mathbf{n}_b+\delta_{\perp}^{ab}}^{z(a)}|\hat{B}\rangle\rangle\right) + \\
&+ J_{\perp}^{bb}\sum_{\delta_{\perp}^{bb}}\left(-\langle\langle\hat{S}_{\mathbf{n}_b}^{z(b)}\hat{S}_{\mathbf{n}_b+\delta_{\perp}^{bb}}^{-(b)}|\hat{B}\rangle\rangle + \langle\langle\hat{S}_{\mathbf{n}_b}^{-(b)}\hat{S}_{\mathbf{n}_b+\delta_{\perp}^{bb}}^{z(b)}|\hat{B}\rangle\rangle\right) + \\
&+ g\mu_B\mathcal{H}\langle\langle\hat{S}_{\mathbf{n}_b}^{-(b)}|\hat{B}\rangle\rangle, \tag{5.2}
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
E\langle\langle\hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{-(a)}|\hat{B}\rangle\rangle &= \frac{i\hbar}{2\pi}\langle[\hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{-(a)},\hat{B}]\rangle + \\
&+ J\sum_{\delta_1}\left(-\langle\langle\hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{z(a)}\hat{S}_{\mathbf{n}_a+\delta_1}^{+(b)}|\hat{B}\rangle\rangle - (1+\eta)\langle\langle\hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{-(a)}\hat{S}_{\mathbf{n}_a+\delta_1}^{z(b)}|\hat{B}\rangle\rangle\right) + \\
&+ J_2\sum_{\substack{\delta_i \\ i=2,3}}\left(-\langle\langle\hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{z(a)}\hat{S}_{\mathbf{n}_a+\delta_i}^{-(a)}|\hat{B}\rangle\rangle + \langle\langle\hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{-(a)}\hat{S}_{\mathbf{n}_a+\delta_i}^{z(a)}|\hat{B}\rangle\rangle\right) + \\
&+ J_{\perp}^{ab}\sum_{\delta_{\perp}^{ab}}\left(-\langle\langle\hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{z(a)}\hat{S}_{\mathbf{n}_a+\delta_{\perp}^{ab}}^{+(b)}|\hat{B}\rangle\rangle - \langle\langle\hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{-(a)}\hat{S}_{\mathbf{n}_a+\delta_{\perp}^{ab}}^{z(b)}|\hat{B}\rangle\rangle\right) + \\
&+ J_{\perp}^{aa}\sum_{\delta_{\perp}^{aa}}\left(-\langle\langle\hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{z(a)}\hat{S}_{\mathbf{n}_a+\delta_{\perp}^{aa}}^{-(a)}|\hat{B}\rangle\rangle + \langle\langle\hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{-(a)}\hat{S}_{\mathbf{n}_a+\delta_{\perp}^{aa}}^{z(a)}|\hat{B}\rangle\rangle\right) + \\
&- g\mu_B\mathcal{H}\langle\langle\hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{-(a)}|\hat{B}\rangle\rangle, \tag{5.3}
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
E\langle\langle\hat{S}_{\mathbf{n}_b}^{+(b)}|\hat{B}\rangle\rangle &= \frac{i\hbar}{2\pi}\langle[\hat{S}_{\mathbf{n}_b}^{+(b)},\hat{B}]\rangle + \\
&+ J\sum_{\delta_1}\left(\langle\langle\hat{S}_{\mathbf{n}_b}^{z(b)}\hat{S}_{\mathbf{n}_b+\delta_1}^{-(a)}|\hat{B}\rangle\rangle + (1+\eta)\langle\langle\hat{S}_{\mathbf{n}_b}^{+(b)}\hat{S}_{\mathbf{n}_b+\delta_1}^{z(a)}|\hat{B}\rangle\rangle\right) + \\
&+ J_2\sum_{\substack{\delta_i \\ i=2,3}}\left(\langle\langle\hat{S}_{\mathbf{n}_b}^{z(b)}\hat{S}_{\mathbf{n}_b+\delta_i}^{+(b)}|\hat{B}\rangle\rangle - \langle\langle\hat{S}_{\mathbf{n}_b}^{+(b)}\hat{S}_{\mathbf{n}_b+\delta_i}^{z(b)}|\hat{B}\rangle\rangle\right) + \\
&+ J_{\perp}^{ab}\sum_{\delta_{\perp}^{ab}}\left(\langle\langle\hat{S}_{\mathbf{n}_b}^{z(b)}\hat{S}_{\mathbf{n}_b+\delta_{\perp}^{ab}}^{-(a)}|\hat{B}\rangle\rangle + \langle\langle\hat{S}_{\mathbf{n}_b}^{+(b)}\hat{S}_{\mathbf{n}_b+\delta_{\perp}^{ab}}^{z(a)}|\hat{B}\rangle\rangle\right) + \\
&+ J_{\perp}^{bb}\sum_{\delta_{\perp}^{bb}}\left(\langle\langle\hat{S}_{\mathbf{n}_b}^{z(b)}\hat{S}_{\mathbf{n}_b+\delta_{\perp}^{bb}}^{+(b)}|\hat{B}\rangle\rangle - \langle\langle\hat{S}_{\mathbf{n}_b}^{+(b)}\hat{S}_{\mathbf{n}_b+\delta_{\perp}^{bb}}^{z(b)}|\hat{B}\rangle\rangle\right) + \\
&- g\mu_B\mathcal{H}\langle\langle\hat{S}_{\mathbf{n}_b}^{+(b)}|\hat{B}\rangle\rangle. \tag{5.4}
\end{aligned}$$

Osnovni problem sa jednačinama oblika (5.1)–(5.4) sastoji se u dekuplovanju Grinovih funkcija višeg reda. Na niskim temperaturama, pogodno je koristiti Kalenovo dekuplovanje [8]

(videti odeljak 3.3). Ovde će biti korišćena modifikovana varijanta Kalenovog dekuplovanja koja se za  $S = \frac{1}{2}$  zasniva na identitetu  $\hat{S}_g^z = S - \hat{S}_g^- \hat{S}_g^+$  i za feromagnetno kuplovane spinove glasi:

$$\langle\langle \hat{S}_g^z \hat{S}_f^\pm | \hat{B} \rangle\rangle \xrightarrow{g \neq f} S \left[ \left( 1 - \frac{1}{S} \langle \hat{S}_g^- \hat{S}_g^+ \rangle \right) \langle\langle \hat{S}_f^\pm | \hat{B} \rangle\rangle - \frac{1}{S} \langle \hat{S}_g^\mp \hat{S}_f^\pm \rangle \langle\langle \hat{S}_g^\pm | \hat{B} \rangle\rangle \right], \quad (5.5)$$

dok za antiferomagnetno kuplovane spinove važi izraz:

$$\langle\langle \hat{S}_g^z \hat{S}_f^\pm | \hat{B} \rangle\rangle \xrightarrow{g \neq f} S \left[ \left( 1 - \frac{1}{S} \langle \hat{S}_g^- \hat{S}_g^+ \rangle \right) \langle\langle \hat{S}_f^\pm | \hat{B} \rangle\rangle - \frac{1}{S} \langle \hat{S}_g^\pm \hat{S}_f^\pm \rangle \langle\langle \hat{S}_g^\mp | \hat{B} \rangle\rangle \right]. \quad (5.6)$$

Ovde ćemo, primera radi, navesti jednačine kretanja koje se dobijaju dekuplovanjem (5.1) i (5.2), dok se preostale dve jednačine dobijaju analogno.

$$\begin{aligned} E \langle\langle \hat{S}_{n_a}^{+(a)} | \hat{B} \rangle\rangle &= \frac{i\hbar}{2\pi} \langle[\hat{S}_{n_a}^{+(a)}, \hat{B}] \rangle + \\ &+ JS \sum_{\delta_1} \left[ \left( 1 - \frac{1}{S} \langle \hat{S}_{n_a}^{-(a)} \hat{S}_{n_a}^{+(a)} \rangle \right) \langle\langle \hat{S}_{n_a+\delta_1}^{-(b)} | \hat{B} \rangle\rangle - \frac{1}{S} \langle \hat{S}_{n_a}^{-(a)} \hat{S}_{n_a+\delta_1}^{-(b)} \rangle \langle\langle \hat{S}_{n_a}^{+(a)} | \hat{B} \rangle\rangle + \right. \\ &+ (1 + \eta) \left( 1 - \frac{1}{S} \langle \hat{S}_{n_a+\delta_1}^{-(b)} \hat{S}_{n_a+\delta_1}^{+(b)} \rangle \right) \langle\langle \hat{S}_{n_a}^{+(a)} | \hat{B} \rangle\rangle - \frac{1 + \eta}{S} \langle \hat{S}_{n_a+\delta_1}^{+(b)} \hat{S}_{n_a}^{+(a)} \rangle \langle\langle \hat{S}_{n_a+\delta_1}^{-(b)} | \hat{B} \rangle\rangle \left. \right] + \\ &+ J_2 S \sum_{\substack{\delta_i \\ i=2,3}} \left[ \left( 1 - \frac{1}{S} \langle \hat{S}_{n_a}^{-(a)} \hat{S}_{n_a}^{+(a)} \rangle \right) \langle\langle \hat{S}_{n_a+\delta_i}^{+(a)} | \hat{B} \rangle\rangle - \frac{1}{S} \langle \hat{S}_{n_a}^{-(a)} \hat{S}_{n_a+\delta_i}^{+(a)} \rangle \langle\langle \hat{S}_{n_a}^{+(a)} | \hat{B} \rangle\rangle - \right. \\ &- \left( 1 - \frac{1}{S} \langle \hat{S}_{n_a+\delta_i}^{-(a)} \hat{S}_{n_a+\delta_i}^{+(a)} \rangle \right) \langle\langle \hat{S}_{n_a}^{+(a)} | \hat{B} \rangle\rangle + \frac{1}{S} \langle \hat{S}_{n_a+\delta_i}^{-(a)} \hat{S}_{n_a}^{+(a)} \rangle \langle\langle \hat{S}_{n_a+\delta_i}^{+(a)} | \hat{B} \rangle\rangle \left. \right] + \\ &+ J_{\perp}^{ab} S \sum_{\delta_{\perp}^{ab}} \left[ \left( 1 - \frac{1}{S} \langle \hat{S}_{n_a}^{-(a)} \hat{S}_{n_a}^{+(a)} \rangle \right) \langle\langle \hat{S}_{n_a+\delta_{\perp}^{ab}}^{-(b)} | \hat{B} \rangle\rangle - \frac{1}{S} \langle \hat{S}_{n_a}^{-(a)} \hat{S}_{n_a+\delta_{\perp}^{ab}}^{-(b)} \rangle \langle\langle \hat{S}_{n_a}^{+(a)} | \hat{B} \rangle\rangle - \right. \\ &+ \left( 1 - \frac{1}{S} \langle \hat{S}_{n_a+\delta_{\perp}^{ab}}^{-(b)} \hat{S}_{n_a+\delta_{\perp}^{ab}}^{+(b)} \rangle \right) \langle\langle \hat{S}_{n_a}^{+(a)} | \hat{B} \rangle\rangle - \frac{1}{S} \langle \hat{S}_{n_a+\delta_{\perp}^{ab}}^{+(b)} \hat{S}_{n_a}^{+(a)} \rangle \langle\langle \hat{S}_{n_a+\delta_{\perp}^{ab}}^{-(b)} | \hat{B} \rangle\rangle \left. \right] + \\ &+ J_{\perp}^{aa} S \sum_{\delta_{\perp}^{aa}} \left[ \left( 1 - \frac{1}{S} \langle \hat{S}_{n_a}^{-(a)} \hat{S}_{n_a}^{+(a)} \rangle \right) \langle\langle \hat{S}_{n_a+\delta_{\perp}^{aa}}^{+(a)} | \hat{B} \rangle\rangle - \frac{1}{S} \langle \hat{S}_{n_a}^{-(a)} \hat{S}_{n_a+\delta_{\perp}^{aa}}^{+(a)} \rangle \langle\langle \hat{S}_{n_a}^{+(a)} | \hat{B} \rangle\rangle - \right. \\ &- \left( 1 - \frac{1}{S} \langle \hat{S}_{n_a+\delta_{\perp}^{aa}}^{-(a)} \hat{S}_{n_a+\delta_{\perp}^{aa}}^{+(a)} \rangle \right) \langle\langle \hat{S}_{n_a}^{+(a)} | \hat{B} \rangle\rangle + \frac{1}{S} \langle \hat{S}_{n_a+\delta_{\perp}^{aa}}^{-(a)} \hat{S}_{n_a}^{+(a)} \rangle \langle\langle \hat{S}_{n_a+\delta_{\perp}^{aa}}^{+(a)} | \hat{B} \rangle\rangle \left. \right] + \\ &+ g\mu_B \mathcal{H} \langle\langle \hat{S}_{n_a}^{+(a)} | \hat{B} \rangle\rangle; \end{aligned} \quad (5.7)$$

$$\begin{aligned} E \langle\langle \hat{S}_{n_b}^{-(b)} | \hat{B} \rangle\rangle &= \frac{i\hbar}{2\pi} \langle[\hat{S}_{n_b}^{-(b)}, \hat{B}] \rangle + \\ &+ JS \sum_{\delta_1} \left[ - \left( 1 - \frac{1}{S} \langle \hat{S}_{n_b}^{-(b)} \hat{S}_{n_b}^{+(b)} \rangle \right) \langle\langle \hat{S}_{n_b+\delta_1}^{+(a)} | \hat{B} \rangle\rangle + \frac{1}{S} \langle \hat{S}_{n_b}^{+(b)} \hat{S}_{n_b+\delta_1}^{+(a)} \rangle \langle\langle \hat{S}_{n_b}^{-(b)} | \hat{B} \rangle\rangle - \right. \\ &- (1 + \eta) \left( 1 - \frac{1}{S} \langle \hat{S}_{n_b+\delta_1}^{-(a)} \hat{S}_{n_b+\delta_1}^{+(a)} \rangle \right) \langle\langle \hat{S}_{n_b}^{-(b)} | \hat{B} \rangle\rangle + \frac{1 + \eta}{S} \langle \hat{S}_{n_b+\delta_1}^{-(a)} \hat{S}_{n_b}^{-(b)} \rangle \langle\langle \hat{S}_{n_b+\delta_1}^{+(a)} | \hat{B} \rangle\rangle \left. \right] + \\ &+ J_2 S \sum_{\substack{\delta_i \\ i=2,3}} \left[ - \left( 1 - \frac{1}{S} \langle \hat{S}_{n_b}^{-(b)} \hat{S}_{n_b}^{+(b)} \rangle \right) \langle\langle \hat{S}_{n_b+\delta_i}^{-(b)} | \hat{B} \rangle\rangle + \frac{1}{S} \langle \hat{S}_{n_b}^{+(b)} \hat{S}_{n_b+\delta_i}^{-(b)} \rangle \langle\langle \hat{S}_{n_b}^{-(b)} | \hat{B} \rangle\rangle + \right. \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& + \left( 1 - \frac{1}{S} \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_b + \delta_i}^{-(b)} \hat{S}_{\mathbf{n}_b + \delta_i}^{+(b)} \rangle \langle \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_b}^{-(b)} | \hat{B} \rangle \rangle - \frac{1}{S} \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_b + \delta_i}^{+(b)} \hat{S}_{\mathbf{n}_b}^{-(b)} \rangle \langle \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_b + \delta_i}^{-(b)} | \hat{B} \rangle \rangle \right] + \\
& + J_{\perp}^{ab} S \sum_{\delta_{\perp}^{ab}} \left[ - \left( 1 - \frac{1}{S} \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_b}^{-(b)} \hat{S}_{\mathbf{n}_b}^{+(b)} \rangle \right) \langle \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_b + \delta_{\perp}^{ab}}^{+(a)} | \hat{B} \rangle \rangle + \frac{1}{S} \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_b}^{+(b)} \hat{S}_{\mathbf{n}_b + \delta_{\perp}^{ab}}^{+(a)} \rangle \langle \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_b}^{-(b)} | \hat{B} \rangle \rangle - \right. \\
& - \left. \left( 1 - \frac{1}{S} \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_b + \delta_{\perp}^{ab}}^{-(a)} \hat{S}_{\mathbf{n}_b + \delta_{\perp}^{ab}}^{+(a)} \rangle \right) \langle \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_b}^{-(b)} | \hat{B} \rangle \rangle + \frac{1}{S} \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_b + \delta_{\perp}^{ab}}^{-(a)} \hat{S}_{\mathbf{n}_b}^{-(b)} \rangle \langle \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_b + \delta_{\perp}^{ab}}^{+(a)} | \hat{B} \rangle \rangle \right] + \\
& + J_{\perp}^{bb} S \sum_{\delta_{\perp}^{bb}} \left[ - \left( 1 - \frac{1}{S} \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_b}^{-(b)} \hat{S}_{\mathbf{n}_b}^{+(b)} \rangle \right) \langle \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_b + \delta_{\perp}^{bb}}^{-(b)} | \hat{B} \rangle \rangle + \frac{1}{S} \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_b}^{+(b)} \hat{S}_{\mathbf{n}_b + \delta_{\perp}^{bb}}^{-(b)} \rangle \langle \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_b}^{-(b)} | \hat{B} \rangle \rangle + \right. \\
& + \left. \left( 1 - \frac{1}{S} \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_b + \delta_{\perp}^{bb}}^{-(b)} \hat{S}_{\mathbf{n}_b + \delta_{\perp}^{bb}}^{+(b)} \rangle \right) \langle \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_b}^{-(b)} | \hat{B} \rangle \rangle - \frac{1}{S} \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_b + \delta_{\perp}^{bb}}^{+(b)} \hat{S}_{\mathbf{n}_b}^{-(b)} \rangle \langle \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_b + \delta_{\perp}^{bb}}^{-(b)} | \hat{B} \rangle \rangle \right] + \\
& + g\mu_B \mathcal{H} \langle \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_b}^{-(b)} | \hat{B} \rangle \rangle. \tag{5.8}
\end{aligned}$$

Nakon dekuplovanja GF višeg reda izvršićemo prostornu Furije transformaciju, pri čemu će se pojaviti sledeći prelazi:

$$\sum_{\delta_{\alpha}} \langle \hat{S}_{\mathbf{n} + \delta_{\alpha}}^{\mu} \hat{S}_{\mathbf{n}}^{\nu} \rangle \langle \langle \hat{S}_{\mathbf{n} + \delta_{\alpha}}^{\mu/\nu} | \hat{B} \rangle \rangle \longrightarrow \frac{1}{N_{\alpha}} \sum_{\mathbf{k}} \tilde{\gamma}_{\alpha}(\mathbf{k} + \mathbf{q}) \Phi^{\mu\nu}(\mathbf{k}) \langle \langle \hat{S}^{\mu/\nu} | \hat{B} \rangle \rangle_{\mathbf{q}}, \tag{5.9}$$

$$\sum_{\delta_{\alpha}} \langle \hat{S}_{\mathbf{n} + \delta_{\alpha}}^{\mu} \hat{S}_{\mathbf{n}}^{\nu} \rangle \langle \langle \hat{S}_{\mathbf{n}}^{\mu/\nu} | \hat{B} \rangle \rangle \longrightarrow \frac{1}{N_{\alpha}} \sum_{\mathbf{k}} \tilde{\gamma}_{\alpha}(\mathbf{k}) \Phi^{\mu\nu}(\mathbf{k}) \langle \langle \hat{S}^{\mu/\nu} | \hat{B} \rangle \rangle_{\mathbf{q}}, \tag{5.10}$$

$$\sum_{\delta_{\alpha}} \langle \hat{S}_{\mathbf{n}}^{\mu} \hat{S}_{\mathbf{n}}^{\nu} \rangle \langle \langle \hat{S}_{\mathbf{n} + \delta_{\alpha}}^{\mu/\nu} | \hat{B} \rangle \rangle \longrightarrow \frac{1}{N_{\alpha}} \sum_{\mathbf{k}} \Phi^{\mu\nu}(\mathbf{k}) \langle \langle \hat{S}^{\mu/\nu} | \hat{B} \rangle \rangle_{\mathbf{q}} \tilde{\gamma}_{\alpha}(\mathbf{q}), \tag{5.11}$$

$$\sum_{\delta_{\alpha}} \langle \langle \hat{S}_{\mathbf{n} + \delta_{\alpha}}^{\mu} | \hat{B}_{\mathbf{m}} \rangle \rangle \longrightarrow \tilde{\gamma}_{\alpha}(\mathbf{k}) \langle \langle \hat{S}^{\mu} | \hat{B} \rangle \rangle_{\mathbf{k}}, \tag{5.12}$$

$$\sum_{\delta_{\alpha}} \langle \langle \hat{S}_{\mathbf{n}}^{\mu} | \hat{B}_{\mathbf{m}} \rangle \rangle \longrightarrow z_{\alpha} \langle \langle \hat{S}^{\mu} | \hat{B} \rangle \rangle_{\mathbf{k}}. \tag{5.13}$$

U izrazima (5.9)–(5.12) korišćene su sledeće oznake:

$$\Phi^{\mu\nu}(\mathbf{k}) = \langle \hat{S}^{\mu} \hat{S}^{\nu} \rangle_{\mathbf{k}}, \tag{5.14}$$

$$\tilde{\gamma}_{\alpha}(\mathbf{k}) = z_{\alpha} \gamma_{\alpha}(\mathbf{k}), \quad \gamma_{\alpha}(\mathbf{k}) = \sum_{\delta_{\alpha}} e^{i\mathbf{k} \cdot \delta_{\alpha}}, \tag{5.15}$$

gde  $\alpha$  opisuje vrstu interakcije izmene, te u skladu s tim  $\delta_{\alpha}$  može biti  $\delta_{\alpha} = \delta_1; \delta_2; \delta_3; \delta_{\perp}^{ab/aa}$ . Veličina  $z_{\alpha}$  označava broj najbližih suseda za datu interakciju i uvek iznosi četiri (videti Sl. 5), dok su  $\mu, \nu = +, -$ . Geometrijski faktori  $\gamma_{\alpha}(\mathbf{k})$  su za ortorombnu strukturu  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  već definisani relacijama (4.9)–(4.13).

Nakon prostorne Furije-transformacije, sistem koji čine jednačine (5.7) i (5.8) postaje:

$$(E - \epsilon_{CA}^{(1)}(\mathbf{k})) \langle \langle \hat{S}^{+(a)} | \hat{B} \rangle \rangle_{\mathbf{k}} - I_{CA}(\mathbf{k}) \langle \langle \hat{S}^{-(b)} | \hat{B} \rangle \rangle_{\mathbf{k}} = \frac{i\hbar}{2\pi} \langle [\hat{S}^{+(a)}, \hat{B}] \rangle_{\mathbf{k}}, \tag{5.16}$$

$$I_{CA}(\mathbf{k}) \langle \langle \hat{S}^{+(a)} | \hat{B} \rangle \rangle_{\mathbf{k}} + (E + \epsilon_{CA}^{(2)}(\mathbf{k})) \langle \langle \hat{S}^{-(b)} | \hat{B} \rangle \rangle_{\mathbf{k}} = \frac{i\hbar}{2\pi} \langle [\hat{S}^{-(b)}, \hat{B}] \rangle_{\mathbf{k}}, \tag{5.17}$$

gde su uvedene sledeće oznake:

$$\epsilon_{CA}^{(1)}(\mathbf{k}) = \epsilon_{CA}(\mathbf{k}) + g\mu_B\mathcal{H}, \quad (5.18)$$

$$\epsilon_{CA}^{(2)}(\mathbf{k}) = \epsilon_{CA}(\mathbf{k}) - g\mu_B\mathcal{H}, \quad (5.19)$$

$$\begin{aligned} \epsilon_{CA}(\mathbf{k}) = & Jz [(1 + \eta)S - (1 + \eta)\Phi - \Phi_1 - \lambda_2(2S - 2\Phi + \Phi_2 + \Phi_3) - \\ & - \lambda_{\perp}^{ab}(-S + \Phi + \Phi_{\perp}^{ab}) - \lambda_{\perp}^{aa}(S - \Phi + \Phi_{\perp}^{aa}) + \gamma_2(\mathbf{k})\lambda_2(S - \Phi + \Phi_2) + \\ & + \gamma_3(\mathbf{k})\lambda_2(S - \Phi + \Phi_3) + \gamma_{\perp}^{aa}(\mathbf{k})\lambda_{\perp}^{aa}(S - \Phi + \Phi_{\perp}^{aa})], \end{aligned} \quad (5.20)$$

$$I_{CA}(\mathbf{k}) = Jz[\gamma_1(\mathbf{k})(S - \Phi - (1 + \eta)\Phi_1) + \gamma_{\perp}^{ab}(\mathbf{k})\lambda_{\perp}^{ab}(S - \Phi - \Phi_{\perp}^{ab})]. \quad (5.21)$$

Veličine  $\Phi$  definisane su sledećim izrazima:

$$\Phi = \frac{1}{N_a} \sum_{\mathbf{k}} \langle \hat{S}^{-(b)} \hat{S}^{+(b)} \rangle_{\mathbf{k}} = \frac{1}{N_a} \sum_{\mathbf{k}} \langle \hat{S}^{-(a)} \hat{S}^{+(a)} \rangle_{\mathbf{k}}, \quad (5.22)$$

$$\Phi_1 = \frac{1}{N_a} \sum_{\mathbf{k}} \gamma_1(\mathbf{k}) \langle \hat{S}^{-(a)} \hat{S}^{-(b)} \rangle_{\mathbf{k}} = \frac{1}{N_a} \sum_{\mathbf{k}} \gamma_1(\mathbf{k}) \langle \hat{S}^{+(a)} \hat{S}^{+(b)} \rangle_{\mathbf{k}}, \quad (5.23)$$

$$\Phi_i = \frac{1}{N_a} \sum_{\mathbf{k}} \gamma_i(\mathbf{k}) \langle \hat{S}^{-(a)} \hat{S}^{+(a)} \rangle_{\mathbf{k}} = \frac{1}{N_a} \sum_{\mathbf{k}} \gamma_i(\mathbf{k}) \langle \hat{S}^{-(b)} \hat{S}^{+(b)} \rangle_{\mathbf{k}}, \quad i = 2, 3, \quad (5.24)$$

$$\Phi_{\perp}^{aa} = \frac{1}{N_a} \sum_{\mathbf{k}} \gamma_{\perp}^{aa}(\mathbf{k}) \langle \hat{S}^{-(a)} \hat{S}^{+(a)} \rangle_{\mathbf{k}} = \frac{1}{N_a} \sum_{\mathbf{k}} \gamma_{\perp}^{bb}(\mathbf{k}) \langle \hat{S}^{-(b)} \hat{S}^{+(b)} \rangle_{\mathbf{k}}, \quad \gamma_{\perp}^{aa}(\mathbf{k}) = \gamma_{\perp}^{bb}(\mathbf{k}), \quad (5.25)$$

$$\Phi_{\perp}^{ab} = \frac{1}{N_a} \sum_{\mathbf{k}} \gamma_{\perp}^{ab}(\mathbf{k}) \langle \hat{S}^{-(a)} \hat{S}^{-(b)} \rangle_{\mathbf{k}} = \frac{1}{N_a} \sum_{\mathbf{k}} \gamma_{\perp}^{ab}(\mathbf{k}) \langle \hat{S}^{+(a)} \hat{S}^{+(b)} \rangle_{\mathbf{k}}, \quad (5.26)$$

gde su gornje jednakosti posledica realnosti koeficijenata u polaznom hamiltonijanu. Napomenimo da je pri dobijanju sistema (5.16)–(5.17) korišćena relacija

$$\sum_{\mathbf{k}} F(\mathbf{k})\gamma(\mathbf{k} + \mathbf{q}) = \gamma(\mathbf{q}) \sum_{\mathbf{k}} F(\mathbf{k})\gamma(\mathbf{k}) \quad (5.27)$$

koja važi kada je  $F(\mathbf{k})$  parna funkcija po komponentama talasnog vektora.

Analogno gornjem postupku može se dobiti sistem jednačina koji proizilazi iz dekuplovanja jednačina (5.3) i (5.4).

Determinanta sistema (5.16)–(5.17) glasi

$$D_1(E) = \begin{vmatrix} E - \epsilon_{CA}^{(1)}(\mathbf{k}) & -I_{CA}(\mathbf{k}) \\ I_{CA}(\mathbf{k}) & E + \epsilon_{CA}^{(2)}(\mathbf{k}) \end{vmatrix}, \quad (5.28)$$

dok determinanta adjungovanog sistema zadovoljava relaciju

$$D_2(E) = D_1(-E). \quad (5.29)$$

Polovi Grinovih funkcija su određeni nulama gornjih determinanti. Determinanta (5.28) daje

$$g\mu_B\mathcal{H} \pm \sqrt{\epsilon_{CA}^2(\mathbf{k}) - I_{CA}^2(\mathbf{k})}, \quad (5.30)$$

dok su nule adjungovanog sistema

$$-g\mu_B\mathcal{H} \mp \sqrt{\epsilon_{CA}^2(\mathbf{k}) - I_{CA}^2(\mathbf{k})}. \quad (5.31)$$

Polovi sa pozitivnim predznakom definišu magnonske energije. Znači, u prisustvu slabog spoljašnjeg magnetnog polja, postoje sledeće dve grane magnonskih energija:

$$E_1(\mathbf{k}) = \sqrt{\epsilon_{CA}^2(\mathbf{k}) - I_{CA}^2(\mathbf{k})} + g\mu_B\mathcal{H}, \quad (5.32)$$

$$E_2(\mathbf{k}) = \sqrt{\epsilon_{CA}^2(\mathbf{k}) - I_{CA}^2(\mathbf{k})} - g\mu_B\mathcal{H}, \quad (5.33)$$

tako da se gornje determinante, koje će nam služiti za određivanje Grinovih funkcija, mogu zapisati kao

$$D_1(E) = (E - E_1(\mathbf{k}))(E + E_2(\mathbf{k})), \quad (5.34)$$

$$D_2(E) = (E + E_1(\mathbf{k}))(E - E_2(\mathbf{k})). \quad (5.35)$$

U odsustvu spoljašnjeg magnetnog polja  $E_1(\mathbf{k}) = E_2(\mathbf{k})$ , te je

$$D_1(E) = D_2(E) = E^2 - E^2(\mathbf{k}), \quad (5.36)$$

gde je

$$E(\mathbf{k}) = \sqrt{\epsilon_{CA}^2(\mathbf{k}) - I_{CA}^2(\mathbf{k})}. \quad (5.37)$$

pozitivni pol Grinovih funkcija i predstavlja magnonsku energiju.

Da bismo odredili veličine  $\Phi$ ,  $\Phi_i$  ( $i = 1, 2, 3$ ),  $\Phi_{\perp}^{ab}$  i  $\Phi_{\perp}^{aa}$  koje figurišu u izrazu za energiju elementarnih ekscitacija, potrebno je naći korelacione funkcije  $\Phi^{\mu\nu}(\mathbf{k}) = \langle \hat{S}^{\mu} \hat{S}^{\nu} \rangle_{\mathbf{k}}$  preko kojih su one date, a koje se (korelacione funkcije) određuju spektralnom teoremom (videti relaciju (3.19)). U tom cilju, treba izračunati Grinove funkcije  $\langle \langle \hat{S}^{+(a)} | \hat{S}^{-(a)} \rangle \rangle_{\mathbf{k}}$  i  $\langle \langle \hat{S}^{-(b)} | \hat{S}^{-(a)} \rangle \rangle_{\mathbf{k}}$ . Prema tome, konkretizovaćemo operator  $\hat{B}$  kroz operator  $\hat{S}^{-(a)}$  ( $\hat{B} \equiv \hat{S}^{-(a)}$ ), usled čega sistem (5.16)–(5.17) u odsustvu spoljašnjeg magnetnog polja postaje:

$$(E - \epsilon_{CA}(\mathbf{k})) \langle \langle \hat{S}^{+(a)} | \hat{S}^{-(a)} \rangle \rangle_{\mathbf{k}} - I_{CA}(\mathbf{k}) \langle \langle \hat{S}^{-(b)} | \hat{S}^{-(a)} \rangle \rangle_{\mathbf{k}} = \frac{i\hbar}{\pi} \langle \hat{S}^{z(a)} \rangle, \quad (5.38)$$

$$I_{CA}(\mathbf{k}) \langle \langle \hat{S}^{+(a)} | \hat{B} \rangle \rangle_{\mathbf{k}} + (E + \epsilon_{CA}(\mathbf{k})) \langle \langle \hat{S}^{-(b)} | \hat{B} \rangle \rangle_{\mathbf{k}} = 0. \quad (5.39)$$

Rešavanjem sistema (5.38)–(5.39) po Grinovim funkcijama  $\langle \langle \hat{S}^{+(a)} | \hat{S}^{-(a)} \rangle \rangle_{\mathbf{k}}$  i  $\langle \langle \hat{S}^{-(b)} | \hat{S}^{-(a)} \rangle \rangle_{\mathbf{k}}$  dobija se:

$$\langle \langle \hat{S}^{+(a)} | \hat{S}^{-(a)} \rangle \rangle_{\mathbf{k}} = \frac{i\hbar}{\pi} \langle \hat{S}^{z(a)} \rangle \left( \frac{A(\mathbf{k})}{E - E(\mathbf{k})} + \frac{B(\mathbf{k})}{E + E(\mathbf{k})} \right), \quad (5.40)$$

$$\langle\langle \hat{S}^{-(b)} | \hat{S}^{-(a)} \rangle\rangle_{\mathbf{k}} = \frac{i\hbar}{\pi} \langle \hat{S}^{z(a)} \rangle \left( \frac{C(\mathbf{k})}{E - E(\mathbf{k})} + \frac{D(\mathbf{k})}{E + E(\mathbf{k})} \right), \quad (5.41)$$

gde su korišćene sledeće oznake:

$$A(\mathbf{k}) = \frac{1}{2} + \frac{\epsilon_{CA}(\mathbf{k})}{2\sqrt{\epsilon_{CA}^2(\mathbf{k}) - I_{CA}^2(\mathbf{k})}}, \quad B(\mathbf{k}) = \frac{1}{2} - \frac{\epsilon_{CA}(\mathbf{k})}{2\sqrt{\epsilon_{CA}^2(\mathbf{k}) - I_{CA}^2(\mathbf{k})}}, \quad (5.42)$$

$$C(\mathbf{k}) = -\frac{I_{CA}(\mathbf{k})}{2\sqrt{\epsilon_{CA}^2(\mathbf{k}) - I_{CA}^2(\mathbf{k})}}, \quad D(\mathbf{k}) = \frac{I_{CA}(\mathbf{k})}{2\sqrt{\epsilon_{CA}^2(\mathbf{k}) - I_{CA}^2(\mathbf{k})}}. \quad (5.43)$$

Pri tome treba napomenuti da je, prema relaciji (5.22):

$$\langle \hat{S}^{z(a)} \rangle = S - \Phi. \quad (5.44)$$

Poznavajući navedene Grinove funkcije, korišćenjem spektralne teoreme dobijaju se sledeće dve korelacione funkcije:

$$\langle \hat{S}^{-(a)} \hat{S}^{+(a)} \rangle_{\mathbf{k}} = (S - \Phi) \left( \frac{\epsilon_{CA}(\mathbf{k})}{\sqrt{\epsilon_{CA}^2(\mathbf{k}) - I_{CA}^2(\mathbf{k})}} \coth \frac{E(\mathbf{k})}{2\theta} - 1 \right), \quad (5.45)$$

$$\langle \hat{S}^{-(a)} \hat{S}^{-(b)} \rangle_{\mathbf{k}} = -(S - \Phi) \frac{I_{CA}(\mathbf{k})}{\sqrt{\epsilon_{CA}^2(\mathbf{k}) - I_{CA}^2(\mathbf{k})}} \coth \frac{E(\mathbf{k})}{2\theta}. \quad (5.46)$$

Sada možemo odrediti veličine  $\Phi$  definisane relacijama (5.22)–(5.26):

$$\Phi = \frac{(S - \Phi)}{N_a} \sum_{\mathbf{k}} \left( \frac{\epsilon_{CA}(\mathbf{k})}{\sqrt{\epsilon_{CA}^2(\mathbf{k}) - I_{CA}^2(\mathbf{k})}} \coth \frac{E(\mathbf{k})}{2\theta} - 1 \right), \quad (5.47)$$

$$\Phi_1 = -\frac{(S - \Phi)}{N_a} \sum_{\mathbf{k}} \gamma_1(\mathbf{k}) \frac{I_{CA}(\mathbf{k})}{\sqrt{\epsilon_{CA}^2(\mathbf{k}) - I_{CA}^2(\mathbf{k})}} \coth \frac{E(\mathbf{k})}{2\theta}, \quad (5.48)$$

$$\Phi_i = \frac{(S - \Phi)}{N_a} \sum_{\mathbf{k}} \gamma_i(\mathbf{k}) \left( \frac{\epsilon_{CA}(\mathbf{k})}{\sqrt{\epsilon_{CA}^2(\mathbf{k}) - I_{CA}^2(\mathbf{k})}} \coth \frac{E(\mathbf{k})}{2\theta} - 1 \right), \quad i = 2, 3, \quad (5.49)$$

$$\Phi_{\perp}^{aa} = \frac{(S - \Phi)}{N_a} \sum_{\mathbf{k}} \gamma_{\perp}^{aa}(\mathbf{k}) \left( \frac{\epsilon_{CA}(\mathbf{k})}{\sqrt{\epsilon_{CA}^2(\mathbf{k}) - I_{CA}^2(\mathbf{k})}} \coth \frac{E(\mathbf{k})}{2\theta} - 1 \right), \quad (5.50)$$

$$\Phi_{\perp}^{ab} = -\frac{(S - \Phi)}{N_a} \sum_{\mathbf{k}} \gamma_{\perp}^{ab}(\mathbf{k}) \frac{I_{CA}(\mathbf{k})}{\sqrt{\epsilon_{CA}^2(\mathbf{k}) - I_{CA}^2(\mathbf{k})}} \coth \frac{E(\mathbf{k})}{2\theta}. \quad (5.51)$$

Važno je primetiti da su gornji izrazi samousaglašeni, jer sve veličine  $\Phi$  zavise od energije elementarnih ekscitacija  $E(\mathbf{k})$  koja opet sa svoje strane zavisi od svih veličina  $\Phi$ .

### 5.1.1 Goldstonov mod

Od posebnog je značaja ispitati ponašanje magnonske energije u blizini centra Brillouene zone. U tom cilju, pojednostavićemo dodatno naš model uzimajući da se radi o 2D ( $\lambda_{\perp}^{ab} = \lambda_{\perp}^{aa} = 0$ ) spinski izotropnom ( $\eta = 0$ ) modelu. Ako iskoristimo aproksimacije geometrijskih faktora  $\gamma(\mathbf{k})$  date izrazima (4.26)–(4.28) i izraz (5.20) zapišemo u sledećem obliku, podesnijem za primenu tih aproksimacija

$$\begin{aligned} \epsilon_{CA}(\mathbf{k}) &= Jz[S - \Phi - \Phi_1 - \lambda_2(S - \Phi)(2 - \gamma_2(\mathbf{k}) - \gamma_3(\mathbf{k})) - \\ &\quad - \lambda_2\Phi_2(1 - \gamma_2(\mathbf{k})) - \lambda_2\Phi_3(1 - \gamma_3(\mathbf{k}))], \end{aligned} \quad (5.52)$$

dobijamo da je energija elementarnih ekscitacija za  $\mathbf{k} \approx 0$  određena relacijom

$$\begin{aligned} E(\mathbf{k} \approx 0) &\approx Jz \left[ (S - \Phi - \Phi_1)^2 + \lambda_2^2 [(k_x a)^2 + (k_y b)^2]^2 (9/16 (S - \Phi)^2 + \right. \\ &\quad \left. + 1/16 \Phi_2^2 + 1/4 \Phi_3^2) - (S - \Phi - \Phi_1)^2 (1 - 1/4((k_x a)^2 + (k_y b)^2)) \right]^{\frac{1}{2}}, \end{aligned} \quad (5.53)$$

odakle vidimo da je

$$\lim_{\mathbf{k} \rightarrow 0} E(\mathbf{k}) = 0. \quad (5.54)$$

Prema tome, spinski izotropan 2D ortorombni model  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  poseduje Goldstonov mod.

### 5.1.2 Magnonski spektar u tetragonalnoj fazi $\text{La}_2\text{CuO}_4$

Poznato je da  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  kristališe na visokim temperaturama u tetragonalnom kristalografskom sistemu sa parametrima ćelije veoma sličnim onima u ortorombnoj fazi (videti odeljak 2.1), te mnogi autori [6, 12, 13] ispituju magnetna i termodinamička svojstva ovog jedinjenja koristeći model sa tetragonalnom strukturom. Premda je ispravno razmatrati ortorombni model, s obzirom da dugodometno antiferomagnetno uređenje postoji samo u ortorombnom kristalografskom sistemu (videti Sl. 3.), zarad poređenja naših rezultata sa onima datim u literaturi, kao i zarad izvesnih teorijskih razmatranja vezanih za egzistenciju dugodometnog uređenja u zavisnosti od strukture, mi ćemo prethodni račun sprovesti i za tetragonalnu strukturu  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ . Pri tome treba naglasiti da se, za razliku od ortorombne strukture, kod tetragonalne strukture kristalografska i magnetna elementarna ćelija ne poklapaju. Prva je zapreminski centrirana i ima zapreminu  $a^2c$ , a druga je površinski centrirana sa zapreminom  $2a^2c$ .

Postupkom analognim onom sprovedenom za ortorombnu fazu, polazeći od efektivnog hamiltonijana (2.2) u kome je  $J_{\perp}^{ab} = J_{\perp}^{\alpha\alpha}$ , ( $\alpha = a, b$ ), za energiju elementarnih ekscitacija u odsustvu spoljašnjeg magnetnog polja dobija se izraz (5.37), pri čemu su veličine koje figurišu u tom izrazu date relacijama (5.20)–(5.26), dok je razlika u odnosu na ortorombnu strukturu sadržana u geometrijskim faktorima  $\gamma(\mathbf{k})$  koji u ovom slučaju glase:

$$\gamma_1(\mathbf{k})_{tetra} = \frac{1}{2}(\cos k_x a + \cos k_y a), \quad (5.55)$$

$$\gamma_2(\mathbf{k})_{tetra} = \cos k_x a \cos k_y a, \quad (5.56)$$

$$\gamma_3(\mathbf{k})_{tetra} = \frac{1}{2}(\cos 2k_x a + \cos 2k_y a), \quad (5.57)$$



$$\gamma_{\perp}^{ab}(\mathbf{k})_{tetra} = \cos \frac{a}{2}(k_x + k_y) \cos \frac{k_z c}{2}, \quad (5.58)$$

$$\gamma_{\perp}^{aa}(\mathbf{k})_{tetra} = \gamma_{\perp}^{bb}(\mathbf{k})_{tetra} = \cos \frac{a}{2}(k_x - k_y) \cos \frac{k_z c}{2}. \quad (5.59)$$

Koristeći ove izraze, biće moguće uporediti kako magnonski spektar, tako i Nelovu temperaturu, za obe strukture posmatranog jedinjenja.

## 5.2 Magnonske energije $\text{La}_2\text{CuO}_4$ u okolini apsolutne nule; analiza rezultata

S obzirom na činjenicu da ćemo parametre našeg modela određivati koristeći magnonski spektar dobijen na veoma niskoj temperaturi  $T = 10$  K, preuzet iz reference Coldea *et al.* [6], posebno ćemo ispisati izraz za energiju elementarnih ekscitacija  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  na apsolutnoj nuli. Analogno LSW analizi, proverićemo da li se eksperimentalni magnonski spektar može reprodukovati pomoću 2D modela, te pod pretpostavkama uvedenim u odeljku 5.1.1 (2D spinski izotropan model), izraz (5.37) prelazi u

$$E(\mathbf{k}; 0) = \sqrt{\epsilon_{CA}^2(\mathbf{k}; 0) - I_{CA}^2(\mathbf{k}; 0)}, \quad (5.60)$$

gde su veličine  $\epsilon_{CA}(\mathbf{k}; 0)$  i  $I_{CA}(\mathbf{k}; 0)$  date sledećim relacijama:

$$\begin{aligned} \epsilon_{CA}(\mathbf{k}; 0) = & Jz[S - \Phi(0) - \Phi_1(0) - \lambda_2(2S - 2\Phi(0) + \Phi_2(0) + \Phi_3(0)) + \\ & + \gamma_2(\mathbf{k})\lambda_2(S - \Phi(0) + \Phi_2(0)) + \gamma_3(\mathbf{k})\lambda_2(S - \Phi(0) + \Phi_3(0))], \end{aligned} \quad (5.61)$$

$$I_{CA}(\mathbf{k}; 0) = Jz\gamma_1(\mathbf{k})(S - \Phi(0) - \Phi_1(0)). \quad (5.62)$$

Pri tome su veličine  $\Phi$  na apsolutnoj nuli koje figurišu u gornjim relacijama sada date sledećim izrazima:

$$\Phi(0) = 1 - \frac{1}{\frac{1}{N_a} \sum_{\mathbf{k}} \frac{\epsilon_{CA}(\mathbf{k}; 0)}{\sqrt{\epsilon_{CA}^2(\mathbf{k}; 0) - I_{CA}^2(\mathbf{k}; 0)}}}, \quad (5.63)$$

$$\Phi_1(0) = -\frac{(S - \Phi(0))}{N_a} \sum_{\mathbf{k}} \gamma_1(\mathbf{k}) \frac{I_{CA}(\mathbf{k}; 0)}{\sqrt{\epsilon_{CA}^2(\mathbf{k}; 0) - I_{CA}^2(\mathbf{k}; 0)}}, \quad (5.64)$$

$$\Phi_i(0) = \frac{(S - \Phi(0))}{N_a} \sum_{\mathbf{k}} \gamma_i(\mathbf{k}) \left( \frac{\epsilon_{CA}(\mathbf{k}; 0)}{\sqrt{\epsilon_{CA}^2(\mathbf{k}; 0) - I_{CA}^2(\mathbf{k}; 0)}} - 1 \right), \quad i = 2, 3. \quad (5.65)$$

Izrazi (5.60)–(5.65) biće osnova za izračunavanje parametara modela  $J$  i  $\lambda_2$ .

Analogno metodu koji je korišćen u odeljku 4.1 prilikom analize u okviru teorije linearnih spinskih talasa, uzimamo dve eksperimentalne vrednosti magnonskih energija, date relacijom (4.23), u tačkama  $(\pi, 0)$  i  $(\pi, -\pi)$  prve Brillouinove zone u kojima su geometrijski faktori za

ortorombnu strukturu dati relacijama (4.24)–(4.25). Tada su energije u navedenim tačkama date izrazima:

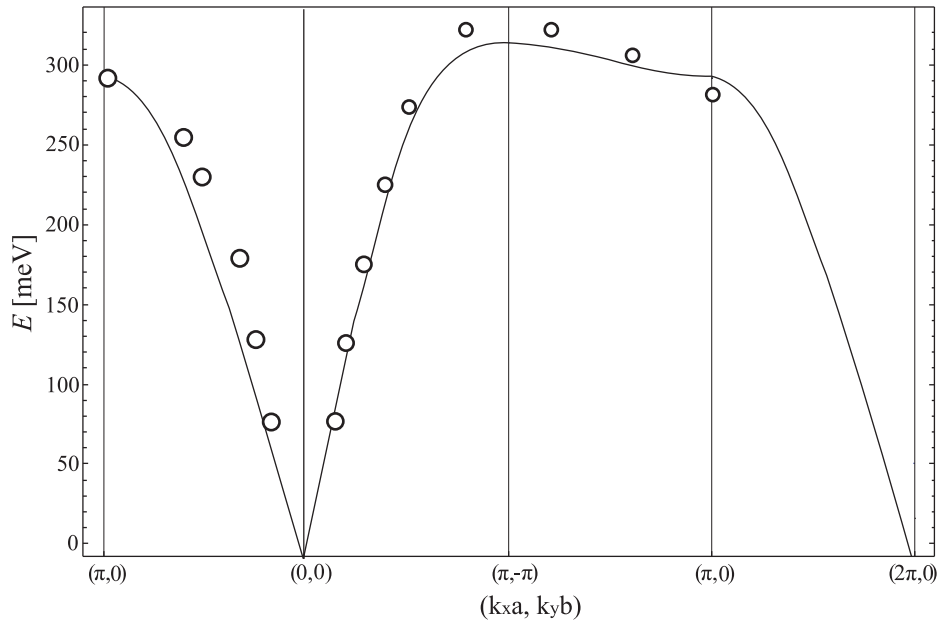
$$E^{(1)}(\mathbf{k}; 0) = J_z[S - \Phi(0) - \Phi_1(0) - \lambda_2(3(S - \Phi(0)) + \Phi_2(0) + 2\Phi_3(0))], \quad (5.66)$$

$$E^{(2)}(\mathbf{k}; 0) = J_z[S - \Phi(0) - \Phi_1(0) - 2\lambda_2(S - \Phi(0) + \Phi_2(0))]. \quad (5.67)$$

Da bismo izračunali parametre  $J$  i  $\lambda_2$  treba primeniti samousaglašenu proceduru određivanja veličina  $\Phi$  definisanih jednačinama (5.63)–(5.65), koja daje sledeće vrednosti [31]:

$$J = 141 \text{ meV } (\pm 5\%), \quad \lambda_2 = 0.0942 (\pm 10\%), \quad (5.68)$$

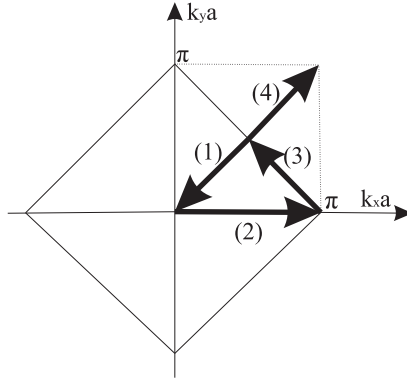
što predstavlja vrednosti bliske onima koje se navode u literaturi ([11], [33] i reference [5,11,12] navedene u [33]). Koristeći ovako dobijene parametre, izrazi (5.60)–(5.62) nam omogućavaju da prikazemo spektar magnonskih energija  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  duž pravaca visoke simetrije (prikazanih na Sl. 6.) u 2D AFM Brilluonovoj zoni. Taj spektar, zajedno sa eksperimentalnim podacima preuzetim iz [6] dat je na Slici 13.



Sl. 13: Spektar magnonskih energija u ortorombnoj fazi  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  duž pravaca visoke simetrije u 2D AFM BZ. Kružići predstavljaju eksperimentalne podatke preuzete iz [6].

Zapažamo relativno dobro slaganje sa eksperimentalnim rezultatima, što ukazuje na korektnost izbora dominantnih interakcija izmene sadržanih u efektivnom modelnom hamiltonijanu. Činjenica da je magnonski spektar izračunat za dvodimenzionalni model potvrđuje stav o kvazi-dvodimenzionalnosti posmatranog jedinjenja.

Da bismo dobili spektar elementarnih ekscitacija za tetragonalnu strukturu, moramo uzeti Brilluonovu zonu za tetragonalni kristalografski sistem (videti Sliku 14.), zajedno sa „stazom” koja odgovara onoj uzetoj za ortorombnu strukturu. Tako, na primer, tačka sa koordinatama  $(\pi, 0)$  u ortorombnoj BZ odgovara tački  $(\pi/2, \pi/2)$  u tetragonalnoj BZ, tačka  $(\pi, -\pi)$  odgovara tački  $(\pi, 0)$  itd.



Sl. 14: 2D AFM Brillouenova zona za tetragonalnu strukturu  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  zajedno sa „stazom” koja odgovara onoj uzetoj za ortorombnu strukturu (prikazanoj na Sl. 7.).

Račun analogan onom sprovedenom za ortorombnu strukturu daje magnonski spektar sličan prethodnom, što ukazuje na činjenicu da je **na niskim temperaturama ponašanje sistema u dve dimenzije gotovo identično za obe strukture.**

U literaturi [6, 12, 13] slaganje sa izmerenim magnonskim spektrom dobijeno je za različite skupove parametara  $J$ ,  $\lambda_2$  i integrala izmene ciklične interakcije  $J_C$ . Polazna tačka u navedenim radovima bio je Habardov (*Hubbard*) model, čiji razvoj daje efektivni spinski hamiltonijan sa članovima višeg reda, koji proističu iz koherentnog kretanja elektrona između NN, NNN, NNNN itd. spinova [34]. Ako se perturbacioni red razvije do reda  $t^4$  (četiri preskoka), efektivni hamiltonijan će sadržati sledeće integrale izmene:  $J = 4(t^2/U) - 24(t^4/U^3)$ ,  $J_2 = J_3 = 4(t^4/U^3)$  i  $J_C = 80(t^4/U^3)$ .

U referenci [6] korektan fit magnonskog spektra dobijen je na dva načina. Spektar je prvo reprodukovano sa parametrima:  $J = 104 \pm 4 \text{ meV}$ ,  $J_2 = -18 \pm 3 \text{ meV}$  (tj. za feromagnetnu NNN interakciju),  $J_3 = J_C = 0$ . Kako je  $J_2 < 0$  u kontradikciji sa teorijskim pretpostavkama [6, 7] koje predviđaju antiferomagnetnu NNN interakciju ( $J_2 > 0$ ), u [6] je dobijen drugi fit, korišćenjem spinskog hamiltonijana dobijenog razvojem Habardovog hamiltonijana za  $t = 0.30 \pm 0.02 \text{ eV}$  i  $U = 2.2 \pm 0.4 \text{ eV}$ , što daje sledeće integrale izmene:  $J = 146 \pm 4 \text{ meV}$ ,  $J_2 = J_3 = 2.0 \pm 0.5 \text{ meV}$  (antiferomagnetna NNN i NNNN interakcija) i  $J_C = 61 \pm 8 \text{ meV}$ . Magnonski spektar dobijen pomoću ovog skupa parametara je takođe korektan i ne razlikuje se od prethodnog, dobijenog za feromagnetno  $J_2$ . To je posledica činjenice da  $J_C$  zapravo smanjuje interakciju između najbližih suseda ( $J - J_C/2 \approx 110 \text{ meV}$ ), a NNN interakciju prevodi u feromagnetnu ( $J_2 - J_C/4 \approx -14 \text{ meV}$ ). Pored toga, jednačina kretanja za operator  $\hat{S}^+$  zapisana preko spinskih operatora ukazuje da je u bilo kojoj značajnijoj aproksimaciji (tjablikovska, Kalenova itd.) član sa  $J_C$  proporcionalan sa  $\langle \hat{S}^z \rangle^3$ , tj. u izrazu za magnonsku energiju  $J_C$  je renormalizovano sa  $\langle \hat{S}^z \rangle^2$ . U blizini temperature faznog prelaza ( $\langle \hat{S}^z \rangle \rightarrow 0$ ) taj član se može zanemariti.

Činjenica da se eksperimentalni magnonski spektar može korektno reprodukovati kako uzimajući antiferomagnetnu ( $J_2 > 0$ ) tako i feromagnetnu ( $J_2 < 0$ ) NNN interakciju ukazuje na neophodnost druge, nezavisne provere gornjih rezultata. U tom cilju, sa parametrima dobijenim u okviru našeg modela izračunaćemo Nelovu temperaturu za različite vrednosti parametara interplanarne interakcije izmene ( $\lambda_{\perp}^{ab/aa}$ ) i spinske anizotropije ( $\eta$ ) i uporediti rezultate sa eksperimentalno dobijenom vrednošću.

### 5.3 Magnonski spektar dvoslojnog kupratnog antiferomagneta $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$

Premda u literaturi nismo našli eksperimentalne podatke za magnonski spektar nedopiranog  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$ , ovde ćemo, zarad kvalitativnog poređenja sa disperzionom relacijom za  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ , prikazati spektre spinskih ekscitacija koje daje model opisan hamiltonijanom (2.3). Uzimajući u obzir nemogućnost kvantitativnog poređenja sa eksperimentom s jedne, i složenost Kalenove aproksimacije s druge strane, za dobijanje magnonskih spektara u ovom slučaju prihvatljivo je koristiti tjablikovsku aproksimaciju dekuplovanja viših Grinovih funkcija (videti relaciju (3.22)). Za parametre modela uzećemo vrednosti iz teorijskog rada Pavkov *et al.* [35], u kojem je magnonski spektar posmatranog jedinjenja izračunat, ali nije grafički prikazan, te u tom smislu naša analiza predstavlja dopunu onoj iz navedene reference.

Polazna tačka u određivanju magnonskog spektra  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$  jeste hamiltonijan (2.3). Metodom spinskih Grinovih funkcija u tjablikovskoj aproksimaciji (RPA) dobija se sledeći sistem od četiri jednačine za određivanje četiri Grinove funkcije:

$$(E - A_2)\langle\langle\hat{S}^{+(a_1)}|\hat{B}\rangle\rangle - B_1\langle\langle\hat{S}^{-(a_2)}|\hat{B}\rangle\rangle - j_{C_1D_1}(k_z)\langle\langle\hat{S}^{-(b_2)}|\hat{B}\rangle\rangle = \frac{i\hbar}{2\pi}\langle[\hat{S}^{+(a_1)}, \hat{B}]\rangle, \quad (5.69)$$

$$B_2\langle\langle\hat{S}^{+(a_1)}|\hat{B}\rangle\rangle + (E + A_1)\langle\langle\hat{S}^{-(a_2)}|\hat{B}\rangle\rangle + j_{C_2D_2}(k_z)\langle\langle\hat{S}^{+(b_1)}|\hat{B}\rangle\rangle = \frac{i\hbar}{2\pi}\langle[\hat{S}^{-(a_2)}, \hat{B}]\rangle, \quad (5.70)$$

$$-j_{C_1D_1}^*(k_z)\langle\langle\hat{S}^{-(a_2)}|\hat{B}\rangle\rangle + (E - A_2)\langle\langle\hat{S}^{+(b_1)}|\hat{B}\rangle\rangle - B_1\langle\langle\hat{S}^{-(b_2)}|\hat{B}\rangle\rangle = \frac{i\hbar}{2\pi}\langle[\hat{S}^{+(b_1)}, \hat{B}]\rangle, \quad (5.71)$$

$$j_{C_2D_2}^*(k_z)\langle\langle\hat{S}^{+(a_1)}|\hat{B}\rangle\rangle + B_2\langle\langle\hat{S}^{+(b_1)}|\hat{B}\rangle\rangle + (E + A_1)\langle\langle\hat{S}^{-(b_2)}|\hat{B}\rangle\rangle = \frac{i\hbar}{2\pi}\langle[\hat{S}^{-(b_2)}, \hat{B}]\rangle, \quad (5.72)$$

gde su uvedene oznake:

$$A_{1/2} = \langle\hat{S}^{z(a_{1/2})}\rangle J[4(1 + \eta) + \lambda_b + \lambda'] \pm g\mu_B \mathcal{H}, \quad (5.73)$$

$$B_{1/2}(\mathbf{k}_{\parallel}) = 4J\gamma_1(\mathbf{k})\langle\hat{S}^{z(a_{1/2})}\rangle, \quad j_{C_{1/2}D_{1/2}}(k_z) = C_{1/2}e^{ik_z d_1} + D_{1/2}e^{-ik_z d_2}, \quad (5.74)$$

$$C_{1/2} = J_b\langle\hat{S}^{z(a_{1/2})}\rangle, \quad D_{1/2} = J'\langle\hat{S}^{z(a_{1/2})}\rangle. \quad (5.75)$$

U odsustvu spoljašnjeg magnetnog polja ( $\mathcal{H} = 0$ ) magnetizacije sve četiri podrešetke su međusobno jednake, te se polovi Grinovih funkcija jednostavno određuju s obzirom da se determinanta ovog sistema svodi na bikvadratnu jednačinu čije je korene lako naći. Oni su dati sa  $\pm E_{1/2}(\mathbf{k})$ , gde su  $E_{1/2}(\mathbf{k})$  definisani relacijom:

$$E_{1/2}(\mathbf{k}) = J\langle\hat{S}^z\rangle\tilde{E}_{1/2}(\mathbf{k}), \quad \tilde{E}_{1/2}(\mathbf{k}) = \sqrt{A^2 - (B_{k_{\parallel}} \pm |j_{k_z}|)^2}, \quad (5.76)$$

u kojoj se koriste sledeće oznake:

$$A = 4(1 + \eta) + \lambda_b + \lambda', \quad B_{k_{\parallel}} = 2(\cos k_x a + \cos k_y a), \quad (5.77)$$

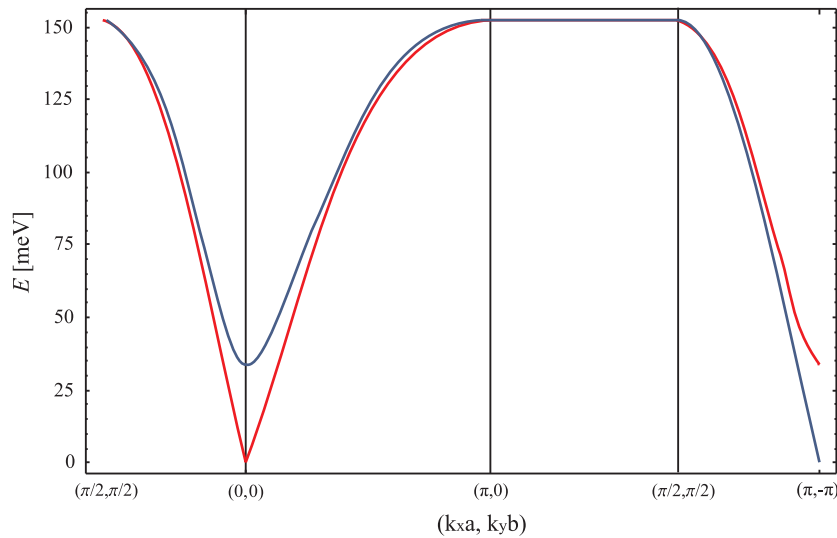
$$|j_{k_z}| = \sqrt{\lambda_b^2 + \lambda'^2 + 2\lambda_b\lambda' \cos k_z(d_1 + d_2)}. \quad (5.78)$$

Ovde su  $\lambda_b$  i  $\lambda'$  redukovani integrali izmene ( $\lambda_b = J_b/J$ ;  $\lambda' = J'/J$ ),  $k_{\parallel}$  označava  $(k_x, k_y)$ , dok su  $a$ ,  $d_1$  i  $d_2$  konstante rešetke (videti Sl. 6.).

Od četiri pola Grinovich funkcija, dva pozitivna ( $E_{1/2}(\mathbf{k})$ ) predstavljaju magnonske energije. Zarad analogije sa računom sprovedenim za  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ , posmatraćemo spinski izotropan ( $\eta = 0$ ) 2D ( $\lambda' = 0$ ) model<sup>2</sup> na temperaturi  $T = 10$  K, gde magnetizacija izračunata na osnovu izraza (5.111) (odeljak 5.4.6) iznosi  $\langle \hat{S}^z \rangle|_{T=10\text{K}} = 0.37638$ . Za parametre modela uzećemo vrednosti iz [35] za koje je u navedenoj referenci pokazano da daju najbolje slaganje sa eksperimentalno određenom Nelovom temperaturom datog jedinjenja:  $J = 100$  meV,  $\lambda_b = 5 \cdot 10^{-2}$ . Pod uvedenim pretpostavkama dve grane magnonskih energija date su izrazom:

$$E_{1/2}(\mathbf{k}) = J \langle \hat{S}^z \rangle|_{T=10\text{K}} \sqrt{(4 + \lambda_b)^2 - [2(\cos k_x a + \cos k_y a) \pm \lambda_b]^2}. \quad (5.79)$$

Odavde se lako vidi da grana  $E_1(\mathbf{k})$  poseduje Goldstonov mod, tj.  $\lim_{\mathbf{k} \rightarrow 0} E_1(\mathbf{k}) = 0$ , dok grana  $E_2(\mathbf{k})$  u centru Brillouene zone ima gep veličine  $4J\sqrt{\lambda_b} \langle \hat{S}^z \rangle|_{T=10\text{K}}$ . S obzirom da  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$  kristališe u tetragonalnom kristalografskom sistemu, za grafičko prikazivanje disperzionih relacija koristićemo tetragonalnu BZ prikazanu na Sl. 14. Oba spektra magnonskih energija duž pravaca visoke simetrije u 2D AFM BZ dati su na Slici 15.



Sl. 15: Spektar magnonskih energija  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$  duž pravaca visoke simetrije u 2D AFM BZ, na temperaturi  $T = 10$  K. Crvena kriva predstavlja disperzionu relaciju  $E_1(\mathbf{k})$ , a plava  $E_2(\mathbf{k})$ .

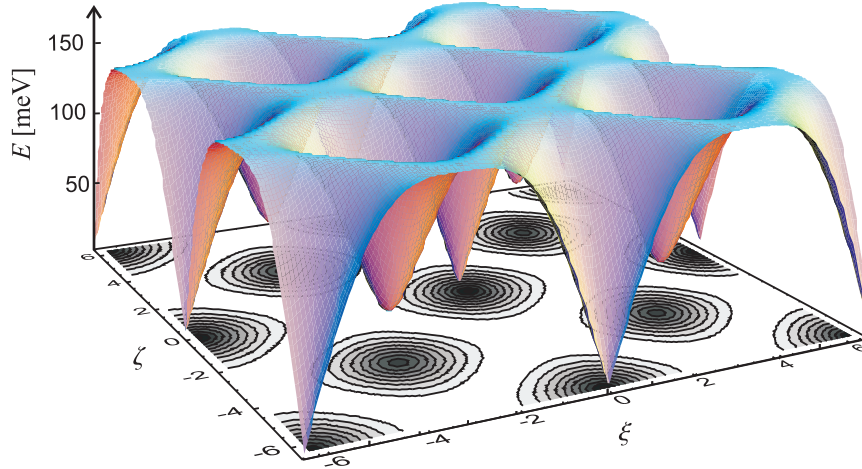
Oblik disperzione krive sličan je magnonskom spektru  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ . Osnovna razlika je nezavisnost magnonske energije od talasnog vektora na granici Brillouene zone. To je posledica činjenice da u modelnom hamiltonijanu nisu uzete u obzir NNN i NNNN interakcija. Analogan zaključak važio je i za model  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  bez interakcije drugih (trećih) suseda (tačkasta kriva na Sl. 8.).

Na Slici 16. prikazana je površ  $E_1(k_x, k_y)$  zarad manifestacije periodičnosti magnonskih energija u recipročnom (impulsnom) prostoru<sup>3</sup>. U cilju pojednostavljenja uvedeni su redukovani

<sup>2</sup>Ovde termin „2D” treba shvatiti u proširenom smislu, s obzirom da označava strukturu od jednog *dvosloja*. Uzeti strogo dvodimenzionalnu strukturu, tj. staviti da je  $\lambda_b = 0$ , nema smisla, jer bi time bila razbijena osnovna strukturalna jedinica jedinjenja, koje je karakterističan dvoslojni antiferomagnet.

<sup>3</sup>Površ  $E_2(k_x, k_y)$  zbog sličnosti nije zasebno prikazana.

talasni vektori  $\xi = a k_x$  i  $\zeta = a k_y$ . Stepen osenčenosti koncentričnih krugova u  $(\xi, \zeta)$  ravni obrnuto je proporcionalan veličini magnetske energije.



Sl. 16: Spektar magnonskih energija  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$  u tri dimenzije, za energetska granu koja poseduje Goldstonov mod ( $E_1(\mathbf{k})$ ). Na  $x$  i  $y$  osi prikazani su redukovani talasni vektori  $\xi = a k_x$  i  $\zeta = a k_y$ , respektivno.

## 5.4 Temperaturna zavisnost magnetizacije podrešetke nedopiranih kupratnih antiferomagneta; Nelova temperatura

### 5.4.1 Izraz za magnetizaciju podrešetke $\text{La}_2\text{CuO}_4$ u tjablikovskoj aproksimaciji; magnetizacija na apsolutnoj nuli

Magnetizacija podrešetke data je izrazom:

$$\langle \hat{S}^z \rangle = \frac{1}{2} - \frac{1}{N_a} \sum_{\mathbf{k}} \langle \hat{S}^{-(a)} \hat{S}^{+(a)} \rangle_{\mathbf{k}}. \quad (5.80)$$

Za određivanje magnetizacije koristićemo relaciju (5.45) za korelacionu funkciju  $\langle \hat{S}^{-(a)} \hat{S}^{+(a)} \rangle_{\mathbf{k}}$ , pri čemu ćemo umesto Kalenove primeniti tjablikovsku aproksimaciju (definisana izrazom (3.22)) koja se češće primenjuje na visokim temperaturama. Iz izraza izvedenih u okviru Kalenove aproksimacije, izrazi u tjablikovskoj aproksimaciji jednostavno se dobijaju uzimajući da su veličine  $\Phi_i$  ( $i = 1, 2, 3$ ) =  $\Phi_{\perp}^{ab/aa} = 0$  i stavljajući da je  $S - \Phi = \langle \hat{S}^z \rangle$ . Tada relacija (5.80) postaje:

$$\langle \hat{S}^z \rangle = \frac{1}{2} \left[ \frac{1}{N_a} \sum_{\mathbf{k}} \frac{\epsilon^T(\mathbf{k})}{\omega^T(\mathbf{k})} \left( 1 + \frac{2}{\exp(E^T(\mathbf{k})/\theta) - 1} \right) \right]^{-1}, \quad (5.81)$$

gde je

$$E^T(\mathbf{k}) = J \langle \hat{S}^z \rangle \omega^T(\mathbf{k}), \quad \omega^T(\mathbf{k}) = \sqrt{[\epsilon^T(\mathbf{k})]^2 - [I^T(\mathbf{k})]^2}, \quad (5.82)$$

$$\epsilon^T(\mathbf{k}) = z[1 + \eta - \lambda_2(2 - \gamma_2(\mathbf{k}) - \gamma_3(\mathbf{k})) + \lambda_{\perp}^{aa} \gamma_{\perp}^{aa}(\mathbf{k}) + \lambda_{\perp}^{ab} - \lambda_{\perp}^{aa}], \quad (5.83)$$

$$I^T(\mathbf{k}) = z[\gamma_1(\mathbf{k}) + \lambda_{\perp}^{ab}\gamma_{\perp}^{ab}(\mathbf{k})]. \quad (5.84)$$

Za parametre modela biće uzete vrednosti određene u okviru Kalenove aproksimacije, s obzirom da se ispostavlja da one dobro reprodukuju eksperimentalne vrednosti za temperaturu faznog prelaza.

Napomenimo da je za analizu izraz (5.81) često pogodnije zapisati u obliku

$$\langle \hat{S}^z \rangle = \frac{1}{2} \frac{1}{1 + 2P_{1/2}(\theta)}, \quad (5.85)$$

gde je

$$P_{1/2}(\theta) = \frac{1}{N_a} \sum_{\mathbf{k}} \frac{1}{2} \frac{\epsilon^T(\mathbf{k})}{\omega^T(\mathbf{k})} \coth \frac{E^T(\mathbf{k})}{2\theta} - \frac{1}{2}. \quad (5.86)$$

Izrazi (5.81)–(5.84) ukazuju da se radi o zatvorenom sistemu jednačina koji se mora rešavati samousaglašeno, što predstavlja specifičnost spinskog prilaza u odnosu na bozonski, izložen u odeljku 4.3. Pored toga, značajno je uočiti sledeće: posmatrajući član  $\exp(E^T(\mathbf{k})/\theta) - 1$  u izrazu (5.81) vidimo da je njegov najveći doprinos sumi za  $|\mathbf{k}| \rightarrow 0$ . U slučaju spinski anizotropnog magneta, kada nisu zadovoljeni uslovi pod kojima važi Goldstonova teorema, taj član je uvek konačan i magnetizacija ima vrednost različitu od nule. Zanimljivo je analizirati kako se ponaša izraz za magnetizaciju kada je u pitanju spinski izotropan magnet ( $\eta = 0$ ). Jednostavnim računom, puštajući da  $|\mathbf{k}| \rightarrow 0$  i prelaskom sa sume na integral, može se pokazati da na temperaturama različitim od nule za trodimenzionalne magnete temperaturno zavisni integral konvergira, te magnetizacija ima konačnu vrednost, dok za dvo- i jednodimenzionalne magnete divergira, usled čega je magnetizacija jednaka nuli. Ovi zaključci su u skladu sa Mermin-Vagnerovom teoremom [14, 36], prema kojoj za jedno- i dvodimenzionalne izotropne Hajzenbergove fero-, antifero- ili ferimagnete sa interakcijama konačnog dometa na temperaturama različitim od nule ne postoji dugodometno magnetno uređenje, tj. magnetizacija je jednaka nuli.

Pogledajmo još kako se ponaša magnetizacija na apsolutnoj nuli:

$$\langle \hat{S}^z \rangle_0 \equiv \lim_{\theta \rightarrow 0} = \frac{1}{2} \left( \frac{1}{N_a} \sum_{\mathbf{k}} \frac{\epsilon^T(\mathbf{k})}{\omega^T(\mathbf{k})} \right)^{-1}. \quad (5.87)$$

Iz gornjeg izraza vidimo da se magnetizacija podrešetke na apsolutnoj nuli razlikuje od vrednosti  $\frac{1}{2}$ , što ukazuje na postojanje kvantnih spinskih fluktuacija. Naime, osnovno stanje antiferomagneta nije svojstveno stanje modelnog spinskog Hajzenbergovog hamiltonijana, te je prema kvantnoj teoriji merenja disperzija u tom stanju različita od nule, tj. postoje fluktuacije oko srednje vrednosti<sup>4</sup>. Kvantne spinske fluktuacije postoje na svim temperaturama, ali su na višim temperaturama „maskirane” intenzivnijim termalnim fluktuacijama.

<sup>4</sup>Za feromagnete osnovno stanje je svojstveno stanje hamiltonijana te je magnetizacija na apsolutnoj nuli jednaka tačno  $\frac{1}{2}$ .

### 5.4.2 Magnetizacija na visokim temperaturama; Nelova temperatura; kritični parametar $\beta$

U blizini Nelove temperature, argument funkcije  $\coth \frac{E^T(\mathbf{k})}{2\theta}$  postaje veoma mali, jer kad  $\theta \rightarrow \theta_N$ , magnetizacija teži nuli, a magnonska energija teži nuli sa magnetizacijom (videti izraz (5.82)), te se ta funkcija može razviti u red, pri čemu je dovoljno zadržati samo prvi član u razvoju:

$$\coth \frac{E^T(\mathbf{k})}{2\theta} \approx \frac{2\theta}{E^T(\mathbf{k})}. \quad (5.88)$$

Tada funkcija  $P_{1/2}(\theta)$  definisana izrazom (5.86) uzima sledeći oblik:

$$P_{1/2}(\theta_N) = \frac{\theta_N}{J\langle\hat{S}^z(T_N)\rangle} \frac{1}{N_a} \sum_{\mathbf{k}} \frac{\epsilon^T(\mathbf{k})}{(\omega^T(\mathbf{k}))^2}. \quad (5.89)$$

Ako izraz (5.89) ubacimo u (5.85), dolazimo do sledećeg izraza za Nelovu temperaturu:

$$\theta_N = \frac{J}{4} \left[ \frac{1}{N_a} \sum_{\mathbf{k}} \frac{\epsilon^T(\mathbf{k})}{(\omega^T(\mathbf{k}))^2} \right]^{-1}. \quad (5.90)$$

Koristeći relacije (5.83) i (5.84) možemo prethodni izraz zapisati eksplicitno kao

$$\theta_N = \frac{J}{C}, \quad (5.91)$$

gde je  $C$  za ortorombnu strukturu dato izrazom

$$C_{orto} = \frac{1}{N_a} \sum_{\mathbf{k}} \frac{1 + \eta - \lambda_2(2 - \gamma_2(\mathbf{k}) - \gamma_3(\mathbf{k})) + \lambda_{\perp}^{aa}\gamma_{\perp}^{aa}(\mathbf{k}) + p}{(1 + \eta - \lambda_2(2 - \gamma_2(\mathbf{k}) - \gamma_3(\mathbf{k})) + \lambda_{\perp}^{aa}\gamma_{\perp}^{aa}(\mathbf{k}) + p)^2 - (\gamma_1(\mathbf{k}) + \lambda_{\perp}^{ab}\gamma_{\perp}^{ab}(\mathbf{k}))^2}, \quad (5.92)$$

pri čemu je  $p = \lambda_{\perp}^{ab} - \lambda_{\perp}^{aa}$ . Da bi se dobio izraz za  $C_{tetra}$ , potrebno je u relaciji (5.92) staviti da je  $\lambda_{\perp}^{ab} = \lambda_{\perp}^{aa}$  i iskoristiti izraze za geometrijske faktore  $\gamma(\mathbf{k})$  definisane u odeljku 5.1.2.

U cilju određivanja ponašanja magnetizacije na visokim temperaturama, potrebno je u razvoju funkcije  $\coth \frac{E^T(\mathbf{k})}{2\theta}$  zadržati prva dva člana:

$$\coth \frac{E^T(\mathbf{k})}{2\theta} \approx \frac{2\theta}{E^T(\mathbf{k})} + \frac{1}{3} \frac{E^T(\mathbf{k})}{2\theta}. \quad (5.93)$$

U tom slučaju funkcija  $P_{1/2}(\theta)$  postaje:

$$P_{1/2}(\theta) \approx \frac{\theta}{J\langle\hat{S}^z\rangle} \frac{1}{N_a} \sum_{\mathbf{k}} \frac{\epsilon^T(\mathbf{k})}{(\omega^T(\mathbf{k}))^2} + \frac{1}{12} \frac{J\langle\hat{S}^z\rangle}{\theta} \frac{1}{N_a} \sum_{\mathbf{k}} \epsilon^T(\mathbf{k}) - \frac{1}{2}. \quad (5.94)$$

Kada se prethodni izraz zameni u (5.85), dobija se

$$\langle\hat{S}^z\rangle \approx \left[ \frac{4\theta}{J\langle\hat{S}^z\rangle} \frac{1}{N_a} \sum_{\mathbf{k}} \frac{\epsilon^T(\mathbf{k})}{(\omega^T(\mathbf{k}))^2} + \frac{1}{3} \frac{J\langle\hat{S}^z\rangle}{\theta} \frac{1}{N_a} \sum_{\mathbf{k}} \epsilon^T(\mathbf{k}) \right]^{-1}. \quad (5.95)$$



Ako iskoristimo relaciju (5.90), izraz (5.95) postaje

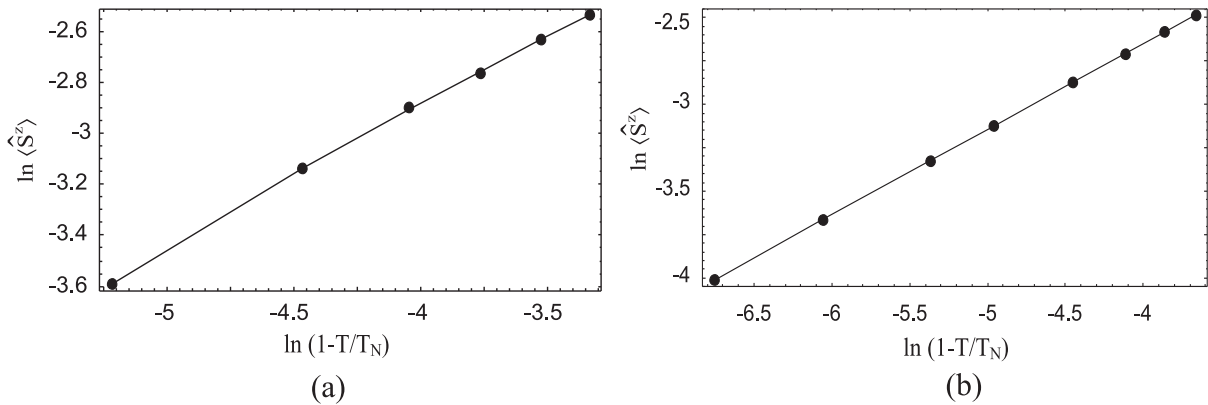
$$\langle \hat{S}^z \rangle \approx \left[ \frac{1}{\langle \hat{S}^z \rangle} \frac{\theta}{\theta_N} + \frac{1}{3} \frac{J \langle \hat{S}^z \rangle}{\theta} \frac{1}{N_a} \sum_{\mathbf{k}} \epsilon^T(\mathbf{k}) \right]^{-1}. \quad (5.96)$$

Rešavanjem (5.96) po  $\langle \hat{S}^z \rangle$  možemo proceniti ponašanje magnetizacije u blizini temperature faznog prelaza:

$$\langle \hat{S}^z \rangle \approx \sqrt{\frac{3\theta}{J \frac{1}{N_a} \sum_{\mathbf{k}} \epsilon^T(\mathbf{k})} \left(1 - \frac{\theta}{\theta_N}\right)} \approx \sqrt{\frac{3\theta_N}{J \frac{1}{N_a} \sum_{\mathbf{k}} \epsilon^T(\mathbf{k})} \left(1 - \frac{\theta}{\theta_N}\right)} \sim \left(1 - \frac{\theta}{\theta_N}\right)^{1/2}. \quad (5.97)$$

Prema tome, metod GF u RPA daje za kritični eksponent magnetizacije  $\beta = \frac{1}{2}$ , što je poznati klasični rezultat [9].

Kritični eksponent  $\beta$  moguće je odrediti i numerički, kao koeficijent pravca zavisnosti  $\ln \langle \hat{S}^z \rangle$  od  $\ln(1 - T/T_N)$ . Odgovarajući grafici za  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  i  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$  prikazani su na Slici 17.



Sl. 17: Grafik za određivanje kritičnog eksponenta  $\beta$  za  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  (a) i  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$  (b).

Fitovanjem se za  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  dobija vrednost  $\beta = 0.561 \pm 0.10$ , što pokazuje grubo slaganje sa rezultatom (5.97). Bolje slaganje sa očekivanom vrednošću kritičnog eksponenta dobijeno je za  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$ , gde numerički podaci daju  $\beta = 0.4934 \pm 0.0005$ . Preciznije određivanje kritičnog eksponenta  $\beta$  zahteva primenu teorije renorm-grupe, koja daje  $\beta \approx 0.36$  [37].

### 5.4.3 Nelova temperatura za ortorombnu i tetragonalnu strukturu $\text{La}_2\text{CuO}_4$

Za razliku od radova [6, 12, 13] u kojima su integrali izmene određeni samo fitovanjem magnonskog spektra na niskim temperaturama, mi ćemo ispravnost našeg pristupa proveriti i poređenjem teorijski dobijenih rezultata za Nelovu temperaturu sa eksperimentalno određenom vrednošću iste.

U tom cilju, prvo ćemo izračunati Nelovu temperaturu za ortorombnu strukturu  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  (koristeći relacije (5.91) i (5.92)) za skup parametara  $J = 141$  meV i  $\lambda_2 = 0.0942$ , a za različite vrednosti parametara  $\lambda_{\perp}^{ab/aa}$ , pri čemu ćemo za parametar spinske anizotropije uzeti vrednost  $\eta = 10^{-3}$ , što daje najbolje slaganje sa eksperimentalnom vrednošću za  $T_N$ . Zavisnost Nelove temperature od veličine interplanarne interakcije data je u Tabeli 5.

TABELA 5:

Nelova temperatura za ortorombnu strukturu  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  u zavisnosti od parametara interplanarne interakcije  $\lambda_{\perp}^{ab/aa}$  i njihove razlike  $\lambda_{\perp}^{ab} - \lambda_{\perp}^{aa}$ , za spinsku anizotropiju  $\eta = 10^{-3}$ .

$\lambda_{\perp}^{ab} - \lambda_{\perp}^{aa} = 10^{-5}$	$\lambda_{\perp}^{ab} = 6 \cdot 10^{-5}$	$\lambda_{\perp}^{ab} = 1.1 \cdot 10^{-4}$	$\lambda_{\perp}^{ab} = 1.01 \cdot 10^{-3}$
$T_N(\text{K})$	331.816	330.244	330.261
$\lambda_{\perp}^{ab} - \lambda_{\perp}^{aa} = 5 \cdot 10^{-5}$	$\lambda_{\perp}^{ab} = 6 \cdot 10^{-5}$	$\lambda_{\perp}^{ab} = 1.5 \cdot 10^{-4}$	$\lambda_{\perp}^{ab} = 1.05 \cdot 10^{-3}$
$T_N(\text{K})$	330.942	330.944	330.961
$\lambda_{\perp}^{ab} - \lambda_{\perp}^{aa} = 10^{-4}$	$\lambda_{\perp}^{ab} = 2 \cdot 10^{-4}$	$\lambda_{\perp}^{ab} = 1.1 \cdot 10^{-3}$	$\lambda_{\perp}^{ab} = 1.01 \cdot 10^{-2}$
$T_N(\text{K})$	331.799	331.816	406.884
$\lambda_{\perp}^{ab} - \lambda_{\perp}^{aa} = 10^{-3}$	$\lambda_{\perp}^{ab} = 2 \cdot 10^{-3}$	$\lambda_{\perp}^{ab} = 2.1 \cdot 10^{-2}$	$\lambda_{\perp}^{ab} = 2.01 \cdot 10^{-1}$
$T_N(\text{K})$	344.655	344.942	337.358

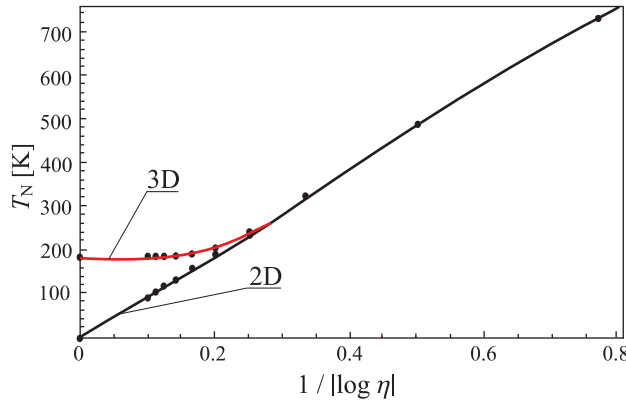
Podaci navedeni u Tabeli 5. ukazuju da je najbolje slaganje sa eksperimentalnim rezultatom za  $\lambda_{\perp}^{ab} - \lambda_{\perp}^{aa} \leq 10^{-4}$ , pri čemu pojedinačne vrednosti parametara međuravanske interakcije nisu veće od  $10^{-3}$ , što je u skladu sa vrednostima navedenim u [38]. Važno je naglasiti da se u okviru tih vrednosti Nelova temperatura veoma slabo menja sa veličinom međuravanske interakcije.

Da bismo ispitali uticaj spinske anizotropije na Nelovu temperaturu, računali smo  $T_N$  menjajući  $\eta$ , pri čemu smo za parametre interplanarne interakcije uzeli vrednosti koje reprodukuju eksperimentalno izmerenu temperaturu faznog prelaza  $\lambda_{\perp}^{ab} = 6 \cdot 10^{-5}$  i  $\lambda_{\perp}^{aa} = 10^{-5}$ . Rezultati dobijeni za 2D i 3D model navedeni su u Tabeli 6. i prikazani su grafički na Slici 18.

TABELA 6:

Nelova temperatura za ortorombnu strukturu  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  u zavisnosti od parametra spinske anizotropije  $\eta$ , za  $\lambda_{\perp}^{ab} = 6 \cdot 10^{-5}$  i  $\lambda_{\perp}^{aa} = 10^{-5}$ .

$\eta$	$5 \cdot 10^{-2}$	$10^{-2}$	$10^{-3}$	$10^{-4}$	$10^{-5}$	$10^{-6}$	$10^{-8}$	$10^{-10}$	$10^{-14}$	0
$T_N^{2D}(\text{K})$	734.8	494.1	330.1	246.5	196.6	163.4	122.2	97.6	69.6	0
$T_N^{3D}(\text{K})$	734.9	494.3	330.9	250.9	213.0	199.0	193.0	192.4	192.3	192.3



Sl. 18: Zavisnost  $T_N$  od  $\eta$  u ortorombnoj fazi  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  za  $\lambda_{\perp}^{ab} = 6 \cdot 10^{-5}$  i  $\lambda_{\perp}^{aa} = 10^{-5}$ .

Rezultati pokazuju da u slučaju 2D modela Nelova temperatura opada sa smanjenjem spinske anizotropije, postajući nula za  $\eta = 0$ , što je u skladu sa Mermin-Vagnerovom teoremom. Za 3D magnet Nelova temperatura ostaje konačna i kada  $\eta \rightarrow 0$ , konvergirajući ka  $T_N^{3D}|_{\eta=0} = 192.3 \text{ K}$ . Značaj ovog zaključka leži u poređenju sa analognim zapažanjem za tetragonalnu strukturu (datim na Sl. 19.) koje će ukazati na različitosti ponašanja ove dve strukture.

Zanimljivo je da se ovaj rezultat može dobiti i analitički, primenom tjablikovske aproksimacije. Naime, konstanta  $C$  u izrazu za Nelovu temperaturu u ortorombnoj fazi (izraz (5.92)) kada  $|\mathbf{k}| \rightarrow 0$  definisana je integralom:

$$C_{orto}(|\mathbf{k}| \rightarrow 0) \simeq \frac{4}{(2\pi^3)} \int_0^{k_0} k^2 dk \int_0^\pi \sin \theta d\theta \times \\ \times \int_0^{2\pi} \frac{1}{k^2 [\cos^2 \theta (\lambda_\perp^{ab} - \lambda_\perp^{aa}) + \sin^2 \theta (1 - 6\lambda_2 + \lambda_\perp^{ab} \cos^2 \varphi - \lambda_\perp^{aa} \sin^2 \varphi)]} d\varphi, \quad (5.98)$$

odakle je očigledno da za  $\lambda_\perp^{ab} \neq \lambda_\perp^{aa}$  veličina  $C$  ostaje konačna.

Ispitajmo sada ponašanje Nelove temperature za tetragonalnu strukturu  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ , najpre menjajući parametar  $\lambda_\perp = \lambda_\perp^{ab} = \lambda_\perp^{aa}$ , za spinsku anizotropiju  $\eta = 10^{-3}$  (Tabela 7.)

TABELA 7:

Nelova temperatura za tetragonalnu strukturu  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  u zavisnosti od parametra međuravanske interakcije  $\lambda_\perp$ , za  $\eta = 10^{-3}$ .

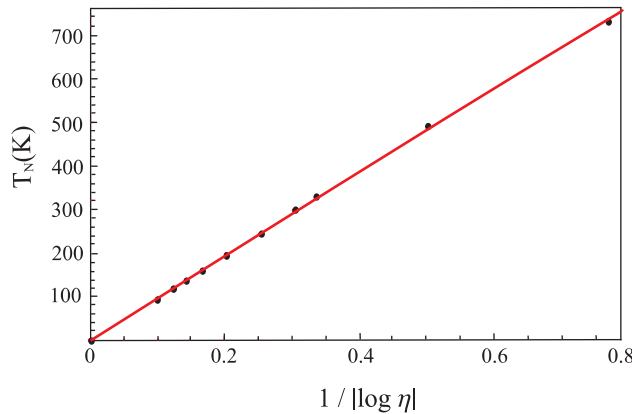
$\lambda_\perp$	0	$5 \cdot 10^{-5}$	$10^{-4}$	$10^{-3}$	$10^{-2}$	$10^{-1}$
$T_N(\text{K})$	330.065	330.077	330.088	330.293	332.33	351.924

Rezultati pokazuju da se za fiksiran parametar  $\eta$  Nelova temperatura veoma slabo menja u širokom intervalu intenziteta međuravanske interakcije ( $0 \leq \lambda_\perp \leq 10^{-2}$ ). Uticaj interplanarne interakcije postaje značajan tek za  $\lambda_\perp > 10^{-1}$ , što je vrednost koja ne karakteriše ove sisteme. Prema tome, uticaj interakcije među susednim ravnima na temperaturu faznog prelaza veoma je mali, kako za ortorombnu, tako i za tetragonalnu strukturu. Razlike između ove dve strukture javljaju se vezano za uticaj spinske anizotropije na Nelovu temperaturu. U cilju određivanja te razlike, ispitajmo zavisnost temperature faznog prelaza od parametra  $\eta$ , uzimajući za veličinu interplanarne interakcije  $\lambda_\perp = 5 \cdot 10^{-5}$  (Tabela 8., Slika 19.).

TABELA 8:

Nelova temperatura za tetragonalnu strukturu  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  u zavisnosti od parametra spinske anizotropije  $\eta$ , za  $\lambda_\perp = 5 \cdot 10^{-5}$ .

$\eta$	$5 \cdot 10^{-2}$	$10^{-2}$	$10^{-3}$	$10^{-4}$	$10^{-5}$	$10^{-6}$	$10^{-8}$	$10^{-10}$	$10^{-14}$	0
$T_N^{2D}(\text{K})$	734.8	494.1	330.1	246.5	196.6	163.4	122.2	97.6	69.6	0
$T_N^{3D}(\text{K})$	734.8	494.1	330.1	246.5	196.6	163.4	122.2	97.6	69.6	0

Sl. 19: Zavisnost  $T_N$  od  $\eta$  u tetragonalnoj fazi  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  za  $\lambda_\perp = 5 \cdot 10^{-5}$ .

Rezultati navedeni u Tabeli 8. pokazuju da za 2D model Nelova temperatura opada sa smanjenjem spinske anizotropije, postajući nula za  $\eta = 0$ , slično ponašanju ortorombnog 2D modela. Interesantno je da se rezultati dobijeni za 3D model ne razlikuju od onih za 2D model, pokazujući da je Nelova temperatura spinski izotropnog 3D antiferomagnetnog modela tetragonalne strukture posmatranog jedinjenja jednaka nuli. Ovaj rezultat se ne kosi sa zaključcima Mernin-Vagnerove teoreme, s obzirom da ova teorema ne daje ograničenja na veličinu spontane magnetizacije u trodimenzionalnim sistemima. Moguće je pokazati da je odsustvo dugodometnog uređenja za tetragonalnu strukturu posledica upravo takve strukture i antiferomagnetnog uređenja spinova. Ovaj dokaz, koji se zasniva na primeni Bogoljubovljeve nejednakosti, dat je u poglavlju 6.1.

Gornji rezultat može se dobiti analogno izrazu (5.98), koristeći tjablikovsku aproksimaciju. Naime, za 3D tetragonalni izotropni antiferomagnet konstanta  $C_{tetra}$  u izrazu za Nelovu temperaturu u slučaju kada  $|\mathbf{k}| \rightarrow 0$  definisana je sledećim integralom:

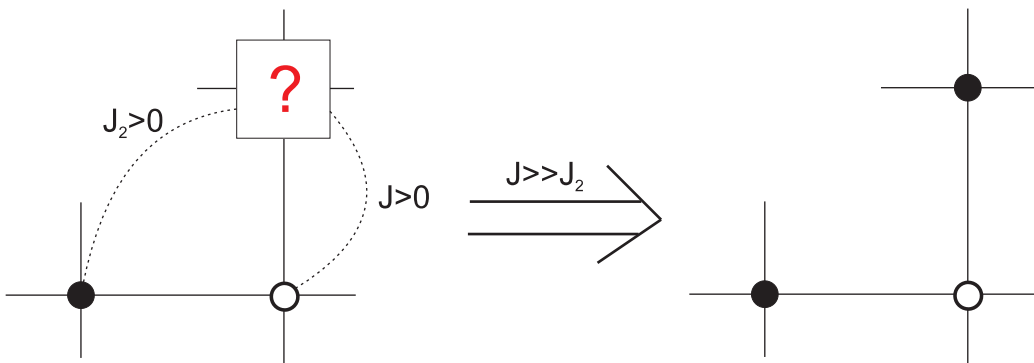
$$C_{tetra}(|\mathbf{k}| \rightarrow 0) \simeq \frac{1}{(2\pi)^3} \int_0^{k_0} k^2 dk \int_0^\pi \sin \theta d\theta \int_0^{2\pi} \frac{1}{k^2 \sin^2 \theta (1 - 3\lambda_2 + \frac{\lambda_\perp}{2} \sin 2\varphi)} d\varphi. \quad (5.99)$$

Iz ovog izraza, očigledno je da je integracija po  $\theta$  odgovorna za divergenciju veličine  $C$ :

$$C_{tetra}(|\mathbf{k}| \rightarrow 0) \sim \int_0^\pi \frac{\sin \theta}{1 - \cos \theta^2} d\theta \rightarrow \infty. \quad (5.100)$$

Ovo je još jedan dokaz da je i u ovom konkretnom 3D slučaju tjablikovska aproksimacija u saglasnosti sa strogim analitičkim rezultatom koji se dobija primenom Bogoljubovljeve nejednakosti.

Radi poređenja, Nelova temperatura izračunata je i za feromagnetnu NNN interakciju, koristeći za parametre  $J$  i  $J_2$  vrednosti date u [6]:  $J = 104 \pm 4$  meV;  $J_2 = -18 \pm 3$  meV. Rezultati takođe ispoljavaju veoma slabu zavisnost od interplanarne interakcije, ali pokazuju da se vrednosti za Nelovu temperaturu bliske eksperimentalno utvrđenoj mogu dobiti samo za  $\eta \approx 10^{-6}$ . Za  $\eta \approx 10^{-3}$ , Nelova temperatura prelazi 5000 K. Tako ovi rezultati pokazuju da feromagnetna NNN (NNNN) interakcija ne može dati tačnu vrednost Nelove temperature ako uzmemo karakteristične vrednosti parametara relevantnih za posmatrani sistem. Ipak, činjenica da su drugi (i treći) susedi feromagnetno uređeni može delovati zbunjujuće. Radi se, naime, o **frustraciji** proizvedenoj kompetitivnim interakcijama - antiferomagnetnom interakcijom između prvih, ali i drugih suseda. S obzirom da je interakcija prvih suseda desetak puta jača od interakcije drugih, ona diktira usmerenost spinova, rezultirajući feromagnetnim uređenjem drugih suseda (Slika 20.).



Sl. 20: Frustracija izazvana kompetitivnim NN- i NNN-interakcijama.

U literaturi se pretežno pretpostavlja antiferomagnetna interakcija između drugih, odnosno trećih suseda (koja se uglavnom dobija na osnovu Habardovog modela), ali se ne analizira visokotemperaturska oblast, tako da je u tom smislu naš pristup sveobuhvatniji. Možemo istaći da je, na primer, u referenci Coldea *et al.* pitanje o prirodi magnetne interakcije između drugih (trećih) suseda ostalo otvoreno. U ovom radu je, nezavisno od Habardovog modela, pokazano da antiferomagnetna interakcija između drugih (trećih) suseda daje dobro slaganje sa eksperimentom u širokom intervalu temperatura  $0 \leq T \leq T_N$ .

#### 5.4.4 Ponašanje magnetizacije $\text{La}_2\text{CuO}_4$ u blizini apsolutne nule

U cilju određivanja ponašanja magnetizacije  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  na temperaturama u blizini apsolutne nule, polazimo od izraza (5.81) u tjablikovskoj aproksimaciji. Kada  $T \rightarrow 0$  drugi član u imeniocu je mnogo manji od prvog, te se, koristeći izraz (5.87) za magnetizaciju na temperaturi  $T = 0$  K, izraz (5.81) može zapisati u sledećem obliku:

$$\langle \hat{S}^z \rangle = \langle \hat{S}^z \rangle_0 \left[ 1 + \frac{4\langle \hat{S}^z \rangle_0}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{\epsilon^T(\mathbf{k})}{\omega^T(\mathbf{k})} \frac{1}{\exp(E^T(\mathbf{k})/\theta) - 1} \right]^{-1}. \quad (5.101)$$

Pošto je drugi sabirak u zagradi mnogo manji od jedinice, prethodni izraz možemo razviti u red, nakon čega, ako se zadržimo na drugom članu, dobijamo

$$\langle \hat{S}^z \rangle = \langle \hat{S}^z \rangle_0 - \Delta \langle \hat{S}^z \rangle, \quad (5.102)$$

gde je

$$\Delta \langle \hat{S}^z \rangle = \frac{4\langle \hat{S}^z \rangle_0^2}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{\epsilon^T(\mathbf{k})}{\omega^T(\mathbf{k})} \frac{1}{\exp(E^T(\mathbf{k})/\theta) - 1}. \quad (5.103)$$

Veličine koje figurišu u (5.103) date su izrazima (5.82)–(5.84) u kojima ćemo, imajući na umu činjenicu da eksperimentalni podaci ukazuju da je gep koji se javlja u spektru elementarnih ekscitacija veoma mali [6, 16], staviti da je  $\eta = 0$ , tj. razmatraćemo spinski izotropan model.

Posmatrajući izraz (5.103) zapažamo da najveći doprinos sumi daju članovi sa malim talasnim vektorom, s obzirom da za spinski izotropan magnet važi Goldstonova teorema. Stoga funkcije koje se javljaju pod sumom možemo razviti u red po talasnom vektoru, pri čemu ćemo zadržati samo članove nultog i prvog reda, kako bismo za magnetizaciju dobili popravku najnižeg reda po temperaturi. S obzirom da se u razvoju za  $\epsilon^T(\mathbf{k})$  i  $I^T(\mathbf{k})$  kao prva popravka pojavljuje član proporcionalan sa  $k^2$ , to ćemo zadržati samo članove nultog reda. Tako dobijamo izraze:

$$\epsilon^T(\mathbf{k} = 0) = I^T(\mathbf{k} = 0) = z(1 + \lambda_{\perp}^{ab}), \quad (5.104)$$

$$\omega^T(\mathbf{k} \approx 0) = \sqrt{\epsilon^T(\mathbf{k} = 0)} \sqrt{A k_x^2 a^2 + B k_y^2 b^2 + C k_z^2 c^2}, \quad (5.105)$$

gde smo koristili sledeću notaciju:  $A = 1 + \lambda_{\perp}^{ab} - 6\lambda_2$ ,  $B = 1 - \lambda_{\perp}^{aa} - 6\lambda_2$  i  $C = \lambda_{\perp}^{ab} - \lambda_{\perp}^{aa}$ .

Ako izraze (5.104)–(5.105) ubacimo u (5.103), dobićemo sledeći izraz za popravku magnetizacije:

$$\Delta \langle \hat{S}^z \rangle \approx \frac{4\langle \hat{S}^z \rangle_0^2}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{\epsilon^T(\mathbf{k} = 0)}{\omega^T(\mathbf{k} \approx 0)} \frac{1}{\exp(J\langle \hat{S}^z \rangle_0 \omega^T(\mathbf{k} \approx 0)/\theta) - 1}. \quad (5.106)$$

Prelaskom sa sume na integral, nakon kraćeg računa, dolazimo do sledećeg izraza:

$$\Delta\langle\hat{S}^z\rangle = \frac{2\int_0^{r^*} \frac{r}{e^r-1} dr}{\pi^2\sqrt{\epsilon^T(\mathbf{k}=0)ABC}} \left(\frac{k_B T}{J}\right)^2, \quad (5.107)$$

gde je  $r = J\langle\hat{S}^z\rangle_0\epsilon^T(\mathbf{k}=0)\sqrt{Ak_x^2a^2 + Bk_y^2b^2 + Ck_z^2c^2}/k_bT$ , a  $r^*$  poluprečnik sfere zapremine jednake zapremini prve Brillouene zone. Kad  $T \rightarrow 0$  gornja granica integrala u brojiocu izraza (5.107) teži beskonačnosti te je rešenje tog integrala Rimanova zeta-funkcija  $\sum_{n=1}^{\infty} 1/n^2 = \pi^2/6$ . Prema tome, konačni izraz za magnetizaciju u  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  na niskim temperaturama glasi:

$$\langle\hat{S}^z\rangle = \langle\hat{S}^z\rangle_0 - D T^2, \quad (5.108)$$

gde je

$$D = \frac{1}{3\sqrt{\epsilon^T(\mathbf{k}=0)ABC}} \left(\frac{k_B}{J}\right)^2. \quad (5.109)$$

Dakle, prva popravka na magnetizaciju proporcionalna je sa  $T^2$ . Koeficijent proporcionalnosti  $D$  izračunat je za parametre  $J = 141 \text{ meV}(\pm 5\%)$  i  $\lambda_2 = 0.0942(\pm 10\%)$  i za nekoliko različitih vrednosti interplanarne interakcije izmene, a rezultati su prikazani u Tabeli 9:

TABELA 9:  
Zavisnost veličine  $D$  od razlike integrala međuravanske interakcije izmene.

$\lambda_{\perp}^{ab}$	$6 \cdot 10^{-5}$	$2 \cdot 10^{-4}$	$6 \cdot 10^{-4}$
$\lambda_{\perp}^{aa}$	$10^{-5}$	$10^{-4}$	$10^{-4}$
$\lambda_{\perp}^{ab} - \lambda_{\perp}^{aa}$	$5 \cdot 10^{-5}$	$10^{-4}$	$5 \cdot 10^{-4}$
$D(\text{K}^{-2})$	$20 \cdot 10^{-6}$	$14 \cdot 10^{-6}$	$6 \cdot 10^{-6}$

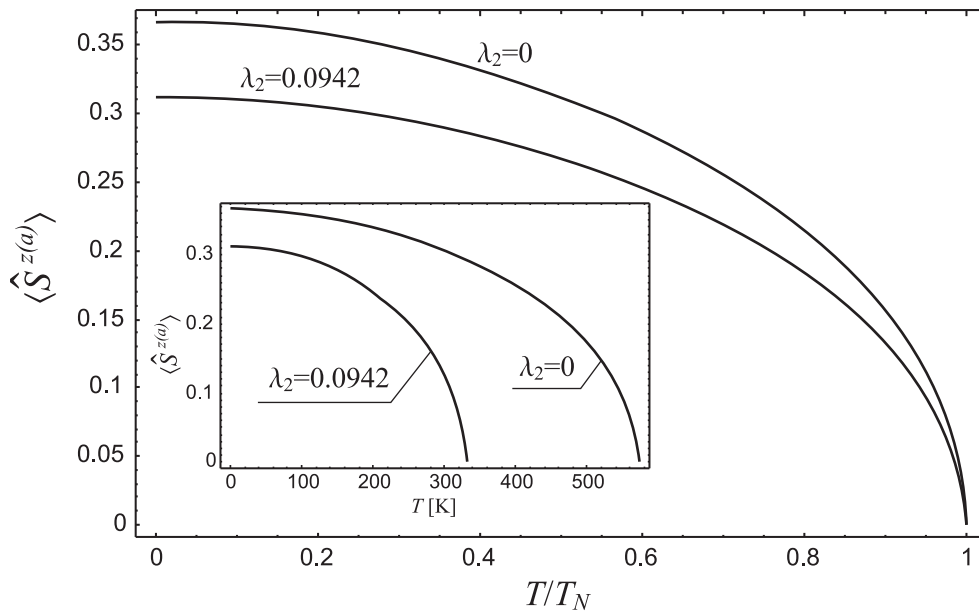
U radu Matsumara *et al.* [16] dati su eksperimentalno dobijeni rezultati za temperaturnu zavisnost magnetizacije  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  u blizini apsolutne nule. Korišćenjem nuklearne magnetne rezonance izmereno je da se u intervalu temperatura  $10 \text{ K} < T < 100 \text{ K}$  smanjenje magnetizacije ponaša kao  $AT^{\alpha}$ , gde je  $A = (6.9 \pm 0.5) \cdot 10^{-6}$  i  $\alpha = 2.00 \pm 0.01$ . Ako ove vrednosti uporedimo sa našim rezultatima, zapažamo da se najbolje slaganje dobija za  $\lambda_{\perp}^{ab} = 6 \cdot 10^{-4}$ ;  $\lambda_{\perp}^{aa} = 10^{-4}$ . Ove vrednosti su u skladu sa zaključcima Tabele 5. (odjeljak 5.4.3) koji se odnose na veličinu interplanarnih integrala izmene koji daju dobre vrednosti za Nelovu temperaturu.

Naposletku, interesantno je naglasiti da ovaj rezultat posredno ukazuje na opravdanost zanemarivanja interakcije Đalošinski-Morija u efektivnom hamiltonijanu (2.2). S obzirom da kvadratni zakon opadanja magnetizacije ukazuje na dominantno prisustvo ekscitacija bez gepa, to je jasno da gep DM interakcije mora biti manji od 10 K, što znači da se može zanemariti [16].

### 5.4.5 Temperaturska zavisnost magnetizacije podrešetke za $\text{La}_2\text{CuO}_4$ u intervalu temperatura od apsolutne nule do Nelove temperature

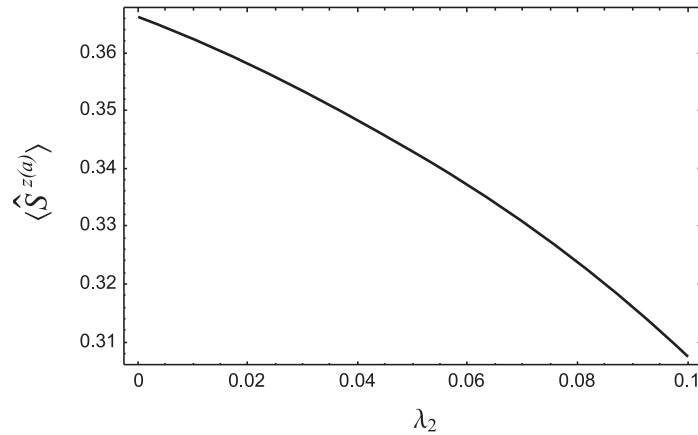
U cilju provere našeg rezultata za magnetizaciju podrešetke u  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ , prikazaćemo grafik zavisnosti magnetizacije od temperature u intervalu  $0 \leq T/T_N \leq 1$ , a potom ćemo ga uporediti sa eksperimentalno dobijenom zavisnošću objavljenom u radu Keimer *et al.* [10].

Najpre ćemo odrediti magnetizaciju na apsolutnoj nuli, koristeći izraz (5.87) u tjablikovskoj aproksimaciji. Uzimajući sledeći skup parametara:  $J = 141 \text{ meV}$ ,  $\lambda_2 = 0.0942$ ,  $\eta = 10^{-3}$ ,  $\lambda_{\perp}^{ab} = 2 \cdot 10^{-4}$  i  $\lambda_{\perp}^{aa} = 10^{-4}$ , dobijamo  $\langle \hat{S}^z \rangle_0 = 0.31266$ . S obzirom na činjenicu da zanemarivanjem interakcije drugih suseda ( $\lambda_2 = 0$ ) dobijamo  $\langle \hat{S}^z \rangle_0(\lambda_2 = 0) = 0.36627$ , zaključujemo da je magnetizacija na apsolutnoj nuli znatno niža od  $\frac{1}{2}$  ne samo usled kvantnih spinskih fluktuacija, već i usled frustracije unutar ravni. Uticaj interakcije izmene drugih suseda na zavisnost magnetizacije od temperature u širokom temperaturskom intervalu  $0 \leq T/T_N \leq 1$  prikazan je na Slici 21. Za izračunavanje magnetizacije korišćen je izraz (5.81). S obzirom na samousaglašenost tog izraza, neophodno je bilo primeniti iterativni postupak. Umetnuti grafik prikazuje zavisnost magnetizacije od apsolutne temperature, čime je istaknuta razlika u Nelovoj temperaturi za dva posmatrana modela. Model bez interakcije drugih suseda u ravni daje za Nelovu temperaturu daleko višu vrednost ( $T_N(\lambda_2 = 0) = 573.729 \text{ K}$ ) od modela sa  $\lambda_2 = 0.0942$  ( $T_N(\lambda_2 = 0) = 331.799 \text{ K}$ ), s obzirom da prisustvo frustracije razuređuje sistem.



Sl. 21: Temperaturska zavisnost spontane magnetizacije  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  u okviru GF metoda za model sa i bez interakcije drugih suseda. Umetnuti grafik daje zavisnost magnetizacije od apsolutne temperature.

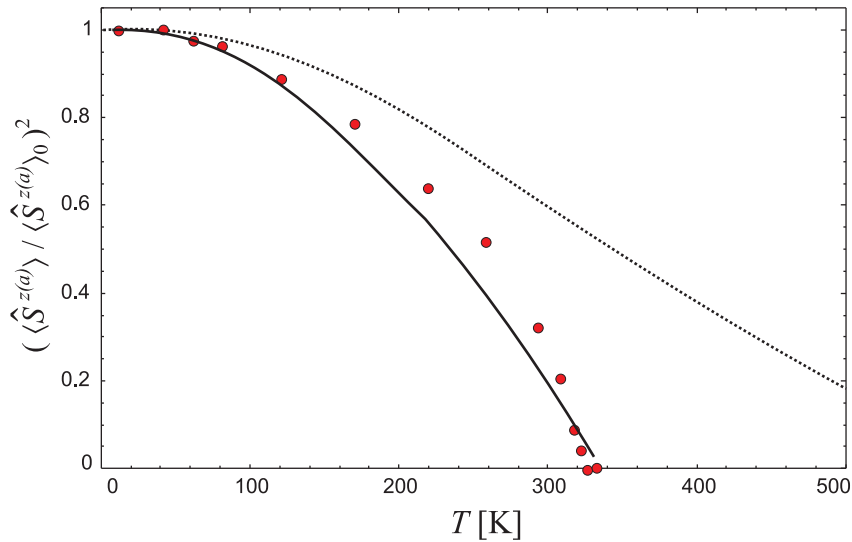
Uticaj interakcije drugih suseda na temperatursku zavisnost magnetizacije na unapred zadatoj temperaturi prikazan je na Slici 22. Sa grafika se vidi da na temperaturi  $T = 20 \text{ K}$  magnetizacija podrešetke opada sa povećanjem parametra interakcije izmene drugih suseda, počevši od vrednosti  $\langle \hat{S}^{z(a)} \rangle = 0.36625$  za  $\lambda_2 = 0$ , preko  $\langle \hat{S}^{z(a)} \rangle = 0.31266$  za  $\lambda_2 = 0.0942$ , koliko iznosi vrednost tog parametra za naš model.



Sl. 22: Zavisnost magnetizacije podrešetke od parametra interakcije drugih suseda u ravni  $\lambda_2$  na temperaturi  $T = 20$  K.

Interesantno je proveriti da li se prikazana zavisnost menja za dvodimenzionalni model. Ponovljeni račun za parametre  $\lambda_{\perp}^{ab} = \lambda_{\perp}^{aa} = 0$  ukazuje da se krive za 2D i 3D model gotovo poklapaju. Razlike između vrednosti magnetizacije za 2- i 3D model manje su od 0.5%. Pri tome su, podrazumeva se, vrednosti za 3D model neznatno više, s obzirom da je sistem u prisustvu interplanarne interakcije izmene uređeniji. Prema tome, **uticaj intraplanarne frustracije na magnetna svojstva ovog jedinjenja daleko je veći od uticaja trodimenzionalnosti.**

Od posebnog je značaja uporediti rezultat koji daje naš model sa zavisnošću određenom neutronske rasejanjem u referenci [10]. To poređenje dato je na Slici 23.



Sl. 23: Temperaturna zavisnost kvadrata relativne magnetizacije za  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ . Kružići predstavljaju eksperimentalne rezultate preuzete iz [10]. Punom linijom je predstavljen GF rezultat, dok tačkasta linija daje LSW rezultat.

Sa slike se vidi da GF metod u širokom temperaturnom intervalu daje mnogo bolje slaganje sa eksperimentom od teorije linearnih spinskih talasa. Za razliku od LSW teorije koja reprodukuje rezultate eksperimenta samo na niskim temperaturama, GF metod daje temperaturnu zavisnost magnetizacije blisku eksperimentalno određenoj sve do Nelove temperature.



### 5.4.6 Temperaturska zavisnost magnetizacije podrešetke za $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$ u intervalu temperatura od apsolutne nule do Nelove temperature

U cilju određivanja magnetizacije podrešetke u odsustvu spoljašnjeg magnetnog polja neophodno je izračunati korelacionu funkciju  $\langle \hat{S}^{-(a_1)} \hat{S}^{+(a_1)} \rangle_{\mathbf{k}}$ . Polazeći od hamiltonijana (2.3), metodom spinskih Grinovih funkcija u tjablikovskoj aproksimaciji, dobija se da je

$$\langle \hat{S}^{-(a_1)} \hat{S}^{+(a_1)} \rangle_{\mathbf{k}} = \langle \hat{S}^z \rangle \left[ \frac{A}{2} \left( \frac{1}{\tilde{E}_1(\mathbf{k})} \coth \frac{E_1(\mathbf{k})}{2\theta} + \frac{1}{\tilde{E}_2(\mathbf{k})} \coth \frac{E_2(\mathbf{k})}{2\theta} \right) - 1 \right], \quad (5.110)$$

gde su korišćene oznake date relacijama (5.76)–(5.78).

Kada se korelaciona funkcija (5.110) zameni u izraz za magnetizaciju (5.80), dobijamo da je temperaturska zavisnost magnetizacije podrešetke za  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$  data sa

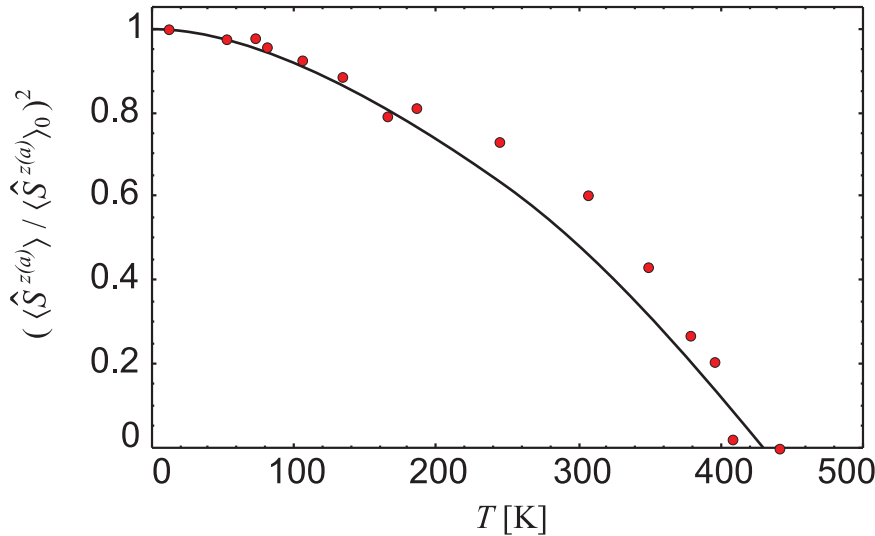
$$\langle \hat{S}^z \rangle = \left[ \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} A \left( \frac{1}{\tilde{E}_1(\mathbf{k})} \coth \frac{E_1(\mathbf{k})}{2\theta} + \frac{1}{\tilde{E}_2(\mathbf{k})} \coth \frac{E_2(\mathbf{k})}{2\theta} \right) \right]^{-1}, \quad (5.111)$$

sa graničnom vrednošću:

$$\langle \hat{S}^z \rangle_0 = \lim_{\theta \rightarrow 0} = \left[ \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} A \left( \frac{1}{\tilde{E}_1(\mathbf{k})} + \frac{1}{\tilde{E}_2(\mathbf{k})} \right) \right]^{-1}. \quad (5.112)$$

Za skup parametara iz [35]:  $J = 100 \text{ meV}$ ,  $\eta = 0.0001$ ,  $\lambda_b = 5 \cdot 10^{-2}$  i  $\lambda' = 10^{-5}$ , magnetizacija podrešetke na apsolutnoj nuli iznosi  $\langle \hat{S}^z \rangle_0 = 0.37638$ , što je vrednost znatno veća od odgovarajuće vrednosti za  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ , oslikavajući odsustvo intraplanarne frustracije u modelnom hamiltonijanu  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$ .

Za izračunavanje temperaturske zavisnosti magnetizacije u intervalu  $0 \leq T/T_N \leq 1$  potrebno je rešiti jednačinu (5.111) iterativnim postupkom, s obzirom na njenu samousaglašenost. Zavisnost kvadrata relativne magnetizacije je, zajedno sa eksperimentalnim rezultatima preuzetim iz [10], data na Slici 24.



Sl. 24: Temperaturska zavisnost kvadrata relativne magnetizacije za  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$ . Kružići predstavljaju eksperimentalne rezultate preuzete iz [10].

Premda je temperaturna zavisnost dobijena za 3D model, ona se, slično  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ , gotovo podudara sa krivom koja bi opisivala 2D model (model za koji je  $\lambda' = 0$ , a  $\lambda_b \neq 0$ ), što potvrđuje da se i ovo jedinjenje može smatrati kvazi-dvodimenzionalnim, u skladu sa zaključcima iznetim u [35]. Sa slike se vidi da metod GF daje dobro slaganje sa eksperimentom kako u oblasti niskih, tako i visokih temperatura (bliskih  $T_N$ ). Odstupanja u odnosu na eksperiment ovde se mogu pripisati i činjenici da je eksperiment izvršen sa blago dopiranim jedinjenjem  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.15}$ .

## 5.5 Magnonski doprinos specifičnoj toploti kupratnih antiferomagnetna $\text{La}_2\text{CuO}_4$ i $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$

Jedno od svojstava čijem je izučavanju u literaturi posvećena velika pažnja jeste specifična toplota [17, 19, 20, 39–41] kupratnih antiferomagnetna. Naime, u cilju istraživanja superprovodne faze ovih jedinjenja, potrebno je pri merenju ukupne specifične toplote superprovodnog uzorka oduzeti fononski doprinos, prisutan i u nedopiranom uzorku. To se može uspešno uraditi merenjem specifične toplote izolatorskog uzorka kod koga se specifična toplota sastoji od fononskog i magnonskog udela. Jedno od najdetaljnije ispitanih roditeljskih jedinjenja visokotemperaturnskih kupratnih superprovodnika, za koje postoje brojne eksperimentalne i teorijske studije, jeste  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ . Spomenimo ovde da su postojale neke nesuglasice vezane za definisanje različitih vrsta doprinosa ukupnoj specifičnoj toploti ovog jedinjenja, posebno elektronske specifične toplote okarakterisane koeficijentom  $\gamma$ . S obzirom da skorašnje studije [41] pokazuju da je koeficijent  $\gamma$  jednak nuli u nedopiranom režimu  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ , možemo zaključiti da se ukupna specifična toplota nedopiranog uzorka sastoji isključivo od fononskog i magnonskog doprinosa. Fononski udeo, koristan za dalja poređenja sa specifičnom toplotom superprovodnog uzorka, može se dobiti oduzimanjem magnonskog udela od ukupne specifične toplote nedopiranog uzorka.

Izračunavanje magnonskog doprinosa do sada je uglavnom sprovedeno za model sa kvadratnom rešetkom u aproksimaciji najbližih suseda u okviru teorije linearnih spinskih talasa [19, 20, 40]. U ovom poglavlju biće izračunat magnonski doprinos ukupnoj specifičnoj toploti za izolatorska jedinjenja  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  i  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$  u okviru metoda spinskih Grinovih funkcija, koristeći tjablikovsku aproksimaciju za dekoplovanje Grinovih funkcija višeg reda. Za oba jedinjenja biće korišćen kvantni Hajzenbergov  $S = \frac{1}{2}$  trodimenzionalni antiferomagnetni model, koji, kao što je pokazano u odeljcima 5.2 i 5.4.3, daje zadovoljavajuće rezultate kako u oblasti niskih, tako i visokih temperatura. Koristeći GF metod dobićemo temperaturnu zavisnost magnonske specifične toplote u oblasti temperatura od apsolutne nule do Nelove temperature. Naša dalja analiza biće usmerena prvenstveno ka  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ , s obzirom da oskudni eksperimentalni podaci za  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$  u velikoj meri otežavaju davanje pouzdanih procena magnetnog doprinosa specifičnoj toploti tog jedinjenja. Za  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  diskutovaćemo uticaj unutarravanske frustracije i trodimenzionalnosti i uporediti naše rezultate sa onima koji se navode u literaturi, a dobijeni su u okviru LSW teorije. Takođe ćemo pokušati da damo popravku na rezultate LSW teorije primenjujući tu teoriju na naš model, kod kojeg se uzima trodimenzionalna ortorombna struktura sa interakcijom drugih i trećih suseda u ravni. Dalje, ispitaćemo niskotemperaturno ponašanje, kao i ponašanje u blizini  $T_N$  što vodi ka RPA vrednosti kritičnog eksponenta za specifičnu toplotu  $\alpha$ . Rezultati izneseni u ovom poglavlju sažeti su u referenci Rutonjski *et al.* [42].

### 5.5.1 Izračunavanje temperaturske zavisnosti magnonske specifične toplote kupratnog antiferomagneta $\text{La}_2\text{CuO}_4$

Polazna tačka u računu biće efektivni spinski hamiltonijan (2.2) (u odsustvu spoljašnjeg polja) u kojem su sadržane dominantne interakcije izmene u ortorombnoj fazi  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ . Usrednjavajući hamiltonijan po Gibsovom ravnotežnom ansamblu (na  $T \neq 0$ ) i uzimajući u obzir činjenicu da postoji  $N/2$  čvorova po podrešetki, dobijamo sledeći izraz za unutrašnju energiju po čvoru kristalne rešetke:

$$\begin{aligned} \frac{E}{N} = \frac{\langle \hat{H} \rangle}{N} &= \langle \hat{H}_2 \rangle - \frac{(1+\eta)J}{2} \sum_{\delta_1} \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{z(a)} \hat{S}_{\mathbf{n}_a+\delta_1}^{z(b)} \rangle + \frac{J_2}{2} \sum_{\substack{\delta_i \\ i=2,3}} \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{z(a)} \hat{S}_{\mathbf{n}_a+\delta_i}^{z(a)} \rangle - \\ &- \frac{J_{\perp}^{ab}}{2} \sum_{\delta_{\perp}^{ab}} \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{z(a)} \hat{S}_{\mathbf{n}_a+\delta_{\perp}^{ab}}^{z(b)} \rangle + \frac{J_{\perp}^{aa}}{2} \sum_{\delta_{\perp}^{aa}} \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{z(a)} \hat{S}_{\mathbf{n}_a+\delta_{\perp}^{aa}}^{z(a)} \rangle, \end{aligned} \quad (5.113)$$

gde prvi član sadrži korelacione funkcije oblika  $\langle \hat{S}^{\pm} \hat{S}^{\pm} \rangle$  i glasi

$$\begin{aligned} \langle \hat{H}_2 \rangle &= \frac{J}{4} \sum_{\delta_1} \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{+(a)} \hat{S}_{\mathbf{n}_a+\delta_1}^{+(b)} + H.c. \rangle + \frac{J_2}{4} \sum_{\substack{\delta_i \\ i=2,3}} \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{+(a)} \hat{S}_{\mathbf{n}_a+\delta_i}^{-(a)} + H.c. \rangle + \\ &+ \frac{J_{\perp}^{ab}}{4} \sum_{\delta_{\perp}^{ab}} \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{+(a)} \hat{S}_{\mathbf{n}_a+\delta_{\perp}^{ab}}^{+(b)} + H.c. \rangle + \frac{J_{\perp}^{aa}}{4} \sum_{\delta_{\perp}^{aa}} \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{+(a)} \hat{S}_{\mathbf{n}_a+\delta_{\perp}^{aa}}^{-(a)} + H.c. \rangle. \end{aligned} \quad (5.114)$$

S obzirom da se Grinove funkcije oblika  $\langle \langle \hat{S}^z | \hat{S}^z \rangle \rangle$  ne mogu izračunati u okviru tjablikovske aproksimacije, eliminišaćemo korelacione funkcije oblika  $\langle \hat{S}^z \hat{S}^z \rangle$  koristeći jednačine kretanja za operatore  $\hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{\pm a}$  i računajući izraz  $\langle \hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{-(a)} i\hbar \frac{d}{dt} \hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{+(a)} \rangle - \langle i\hbar \frac{d}{dt} \hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{-(a)} \hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{+(a)} \rangle$ . Pri izračunavanju ove srednje vrednosti pojaviće se korelacione funkcije koje sadrže tri operatora, a koje se svode na dvo-operatorske korelacione funkcije pomoću relacija koje važe za spin  $S = \frac{1}{2}$ , kao što je  $\hat{S}_{\mathbf{n}}^z = \frac{1}{2} - \hat{S}_{\mathbf{n}}^- \hat{S}_{\mathbf{n}}^+$ .

Koristeći navedenu srednju vrednost, dolazimo do sledećeg izraza za unutrašnju energiju po čvoru rešetke:

$$\begin{aligned} \frac{E}{N} &= \frac{\langle \hat{H}_2 \rangle}{2} + \frac{1}{4} \left( \left\langle \hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{-(a)} \cdot i\hbar \frac{d}{dt} \hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{+(a)} \right\rangle - \left\langle i\hbar \frac{d}{dt} \hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{-(a)} \cdot \hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{+(a)} \right\rangle \right) - \frac{(1+\eta)J}{4} \sum_{\delta_1} \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_a+\delta_1}^{z(b)} \rangle + \\ &+ \frac{J_2}{4} \sum_{\substack{\delta_i \\ i=2,3}} \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_a+\delta_i}^{z(a)} \rangle - \frac{J_{\perp}^{ab}}{4} \sum_{\delta_{\perp}^{ab}} \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_a+\delta_{\perp}^{ab}}^{z(b)} \rangle + \frac{J_{\perp}^{aa}}{4} \sum_{\delta_{\perp}^{aa}} \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_a+\delta_{\perp}^{aa}}^{z(a)} \rangle. \end{aligned} \quad (5.115)$$

Važno je istaći da je gornji izraz za unutrašnju energiju egzakatan. Da bismo izračunali korelacione funkcije koje se pojavljuju u (5.115), izračunaćemo odgovarajuće Grinove funkcije koristeći metod jednačina kretanja. Dekuplovanje Grinovih funkcija višeg reda izvršićemo u okviru tjablikovske aproksimacije [9, 43]. Kada dobijemo Grinove funkcije, korelacione funkcije biće izračunate koristeći spektralnu teoremu. Ova procedura je značajno pojednostavljena simetrijom sistema koja nameće sledeće odnose među traženim korelacionim funkcijama:

$$\langle \hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{+(a)} \hat{S}_{\mathbf{m}_b}^{+(b)} \rangle = \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{-(a)} \hat{S}_{\mathbf{m}_b}^{-(b)} \rangle, \quad (5.116)$$

$$\left\langle \hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{-(a)} \cdot i\hbar \frac{d}{dt} \hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{+(a)} \right\rangle = - \left\langle i\hbar \frac{d}{dt} \hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{-(a)} \cdot \hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{+(a)} \right\rangle. \quad (5.117)$$

Ova procedura vodi ka sledećem obliku izraza (5.115):

$$\begin{aligned}
\frac{E}{N} = & -\frac{J}{4} z^2 \langle \hat{S}^z \rangle^2 \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} (J\gamma_1(\mathbf{k}) + J_{\perp}^{ab} \gamma_{\perp}^{ab}(\mathbf{k})) \gamma_1(\mathbf{k}) \frac{\coth \frac{\hbar\omega_{\mathbf{k}}}{2\theta}}{\hbar\omega_{\mathbf{k}}} + \\
& + \frac{J_2}{4} z \langle \hat{S}^z \rangle \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \epsilon(\mathbf{k}) (\gamma_2(\mathbf{k}) + \gamma_3(\mathbf{k})) \frac{\coth \frac{\hbar\omega_{\mathbf{k}}}{2\theta}}{\hbar\omega_{\mathbf{k}}} + \frac{J_{\perp}^{aa}}{4} z \langle \hat{S}^z \rangle \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \epsilon(\mathbf{k}) \gamma_{\perp}^{aa}(\mathbf{k}) \frac{\coth \frac{\hbar\omega_{\mathbf{k}}}{2\theta}}{\hbar\omega_{\mathbf{k}}} - \\
& - \frac{J_{\perp}^{ab}}{4} z^2 \langle \hat{S}^z \rangle^2 \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} (J\gamma_1(\mathbf{k}) + J_{\perp}^{ab} \gamma_{\perp}^{ab}(\mathbf{k})) \gamma_{\perp}^{ab}(\mathbf{k}) \frac{\coth \frac{\hbar\omega_{\mathbf{k}}}{2\theta}}{\hbar\omega_{\mathbf{k}}} - \\
& - \frac{1}{2} \langle \hat{S}^z \rangle \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \left( \epsilon(\mathbf{k}) - \hbar\omega_{\mathbf{k}} \coth \frac{\hbar\omega_{\mathbf{k}}}{2\theta} \right) - J \left[ (1 + \eta) - 2\lambda_2 + \lambda_{\perp}^{ab} - \lambda_{\perp}^{aa} \right] \langle \hat{S}^z \rangle, \quad (5.118)
\end{aligned}$$

gde je

$$\epsilon(\mathbf{k}) = z \langle \hat{S}^z \rangle \tilde{\epsilon}(\mathbf{k}); \quad \tilde{\epsilon}(\mathbf{k}) = (1 + \eta)J + [\gamma_2(\mathbf{k}) + \gamma_3(\mathbf{k}) - 2] J_2 + (\gamma_{\perp}^{aa}(\mathbf{k}) - 1)J_{\perp}^{aa} + J_{\perp}^{ab}, \quad (5.119)$$

$$\hbar\omega_{\mathbf{k}} = z \langle \hat{S}^z \rangle \sqrt{\tilde{\epsilon}^2(\mathbf{k}) - (J\gamma_1(\mathbf{k}) + J_{\perp}^{ab} \gamma_{\perp}^{ab}(\mathbf{k}))^2}. \quad (5.120)$$

Diferenciranjem izraza (5.118) po temperaturi dobijamo sledeći izraz za specifičnu toplotu:

$$\begin{aligned}
C_V(T) = & -\frac{1}{N} \frac{J}{4} \left[ z \frac{d \langle \hat{S}^z \rangle}{dT} \sum_{\mathbf{k}} B(\mathbf{k}) \gamma_1(\mathbf{k}) \frac{\coth \frac{z \langle \hat{S}^z \rangle D(\mathbf{k})}{2\theta}}{D(\mathbf{k})} - \right. \\
& \left. - \frac{z^2 \langle \hat{S}^z \rangle^2}{2k_B T^2} \left( \frac{T}{\langle \hat{S}^z \rangle} \frac{d \langle \hat{S}^z \rangle}{dT} - 1 \right) \sum_{\mathbf{k}} B(\mathbf{k}) \gamma_1(\mathbf{k}) \frac{1}{\sinh^2 \frac{z \langle \hat{S}^z \rangle D(\mathbf{k})}{2\theta}} \right] + \\
& + \frac{1}{N} \frac{J_2}{4} \left[ z \frac{d \langle \hat{S}^z \rangle}{dT} \sum_{\mathbf{k}} A(\mathbf{k}) (\gamma_2(\mathbf{k}) + \gamma_3(\mathbf{k})) \frac{\coth \frac{z \langle \hat{S}^z \rangle D(\mathbf{k})}{2\theta}}{D(\mathbf{k})} - \right. \\
& \left. - \frac{z^2 \langle \hat{S}^z \rangle^2}{2k_B T^2} \left( \frac{T}{\langle \hat{S}^z \rangle} \frac{d \langle \hat{S}^z \rangle}{dT} - 1 \right) \sum_{\mathbf{k}} A(\mathbf{k}) (\gamma_2(\mathbf{k}) + \gamma_3(\mathbf{k})) \frac{1}{\sinh^2 \frac{z \langle \hat{S}^z \rangle D(\mathbf{k})}{2\theta}} \right] - \\
& - \frac{1}{N} \frac{J_{\perp}^{ab}}{4} \left[ z \frac{d \langle \hat{S}^z \rangle}{dT} \sum_{\mathbf{k}} B(\mathbf{k}) \gamma_{\perp}^{ab}(\mathbf{k}) \frac{\coth \frac{z \langle \hat{S}^z \rangle D(\mathbf{k})}{2\theta}}{D(\mathbf{k})} + \right. \\
& \left. - \frac{z^2 \langle \hat{S}^z \rangle^2}{2k_B T^2} \left( \frac{T}{\langle \hat{S}^z \rangle} \frac{d \langle \hat{S}^z \rangle}{dT} - 1 \right) \sum_{\mathbf{k}} B(\mathbf{k}) \gamma_{\perp}^{ab}(\mathbf{k}) \frac{1}{\sinh^2 \frac{z \langle \hat{S}^z \rangle D(\mathbf{k})}{2\theta}} \right] + \\
& + \frac{1}{N} \frac{J_{\perp}^{aa}}{4} \left[ z \frac{d \langle \hat{S}^z \rangle}{dT} \sum_{\mathbf{k}} A(\mathbf{k}) \gamma_{\perp}^{aa}(\mathbf{k}) \frac{\coth \frac{z \langle \hat{S}^z \rangle D(\mathbf{k})}{2\theta}}{D(\mathbf{k})} - \right. \\
& \left. - \frac{z^2 \langle \hat{S}^z \rangle^2}{2k_B T^2} \left( \frac{T}{\langle \hat{S}^z \rangle} \frac{d \langle \hat{S}^z \rangle}{dT} - 1 \right) \sum_{\mathbf{k}} A(\mathbf{k}) \gamma_{\perp}^{aa}(\mathbf{k}) \frac{1}{\sinh^2 \frac{z \langle \hat{S}^z \rangle D(\mathbf{k})}{2\theta}} \right] - \\
& - \frac{1}{N} z \langle \hat{S}^z \rangle \frac{d \langle \hat{S}^z \rangle}{dT} \sum_{\mathbf{k}} A(\mathbf{k}) + \frac{1}{N} z \langle \hat{S}^z \rangle \frac{d \langle \hat{S}^z \rangle}{dT} \sum_{\mathbf{k}} D(\mathbf{k}) \coth \frac{z \langle \hat{S}^z \rangle D(\mathbf{k})}{2\theta} + \\
& + \frac{z^2 \langle \hat{S}^z \rangle^3 D^2(\mathbf{k})}{2k_B T^2} \left( \frac{T}{\langle \hat{S}^z \rangle} \frac{d \langle \hat{S}^z \rangle}{dT} - 1 \right) \frac{1}{2N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{1}{\sinh^2 \frac{z \langle \hat{S}^z \rangle D(\mathbf{k})}{2\theta}} -
\end{aligned}$$

$$-[(1 + \eta)J - 2J_2 + J_{\perp}^{ab} - J_{\perp}^{aa}] \frac{d\langle \hat{S}^z \rangle}{dT}, \quad (5.121)$$

gde su korišćene oznake:

$$A(\mathbf{k}) = (1 + \eta)J + (\gamma_2(\mathbf{k}) + \gamma_3(\mathbf{k}) - 2)J_2 + (\gamma_{\perp}^{aa}(\mathbf{k}) - 1)J_{\perp}^{aa} + J_{\perp}^{ab}, \quad (5.122)$$

$$B(\mathbf{k}) = J\gamma_1(\mathbf{k}) + J_{\perp}^{ab}\gamma_{\perp}^{ab}(\mathbf{k}), \quad (5.123)$$

$$D(\mathbf{k}) = \sqrt{A^2(\mathbf{k}) - B^2(\mathbf{k})}. \quad (5.124)$$

U izrazu (5.121) figurišu magnetizacija podrešetke i izvod magnetizacije po temperaturi. Magnetizacija je data jednačinom (5.81), koja je, kao što je pokazano, rešena iterativnim postupkom usled svoje samousaglašenosti. Diferenciranjem (5.81) po temperaturi dobija se  $d\langle \hat{S}^z \rangle/dT$ . Izraz (5.121) biće numerički analiziran u odeljku 5.5.3.

### 5.5.2 Magnonska specifična toplota kupratnog antiferomagnetnog $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$

Polazna tačka pri određivanju magnonskog doprinosa specifičnoj toploti dvoslojnog antiferomagneteta  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$  biće hamiltonijan (2.3). Nakon usrednjavanja hamiltonijana, pri čemu treba voditi računa o činjenici da svaka podrešetka sadrži  $N/4$  čvorova, dobijamo izraz za unutrašnju energiju po čvoru kristalne rešetke, analogan izrazu dobijenom za  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ . S obzirom da izbor kombinacija korelacionih funkcija kojima se eliminišu  $\langle \hat{S}^z \hat{S}^z \rangle$  članovi u unutrašnjoj energiji nije jedinstven, treba voditi računa o tome da se uzmu samo one kombinacije za koje hamiltonijan ostaje ermitski operator. Može se pokazati da je ovaj uslov zadovoljen za kombinaciju

$$\begin{aligned} \frac{1}{8} \left( \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_{a_1}}^{-(a_1)} i\hbar \frac{d}{dt} \hat{S}_{\mathbf{n}_{a_1}}^{+(a_1)} \rangle - \langle i\hbar \frac{d}{dt} \hat{S}_{\mathbf{n}_{a_1}}^{-(a_1)} \hat{S}_{\mathbf{n}_{a_1}}^{+(a_1)} \rangle \right) + \\ + \frac{1}{8} \left( \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_{b_1}}^{-(b_1)} i\hbar \frac{d}{dt} \hat{S}_{\mathbf{n}_{b_1}}^{+(b_1)} \rangle - \langle i\hbar \frac{d}{dt} \hat{S}_{\mathbf{n}_{b_1}}^{-(b_1)} \hat{S}_{\mathbf{n}_{b_1}}^{+(b_1)} \rangle \right). \end{aligned} \quad (5.125)$$

Ovaj postupak daje za unutrašnju energiju sledeći izraz:

$$\begin{aligned} \frac{E}{N} = & \frac{J}{16} \sum_{\delta_1} \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_{a_1}}^{+(a_1)} \hat{S}_{\mathbf{n}_{a_1}+\delta_1}^{+(a_2)} + H.c. \rangle + \frac{J}{16} \sum_{\delta_1} \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_{b_1}}^{+(b_1)} \hat{S}_{\mathbf{n}_{b_1}+\delta_1}^{+(b_2)} + H.c. \rangle + \\ & + \frac{J_b}{16} \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_{a_1}}^{+(a_1)} \hat{S}_{\mathbf{n}_{a_1}+\delta_{\perp}}^{+(b_2)} + H.c. \rangle + \frac{J_b}{16} \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_{b_1}}^{-(b_1)} \hat{S}_{\mathbf{n}_{b_1}-\delta_{\perp}}^{-(a_2)} + H.c. \rangle + \\ & + \frac{J'}{16} \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_{b_1}}^{+(b_1)} \hat{S}_{\mathbf{n}_{b_1}+\delta'_{\perp}}^{+(a_2)} + H.c. \rangle + \frac{J'}{16} \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_{a_1}}^{-(a_1)} \hat{S}_{\mathbf{n}_{a_1}-\delta'_{\perp}}^{-(b_2)} + H.c. \rangle + \\ & + \frac{1}{8} \sum_{\alpha=a,b} \left( \left\langle \hat{S}_{\mathbf{n}_{\alpha_1}}^{-(\alpha_1)} i\hbar \frac{d}{dt} \hat{S}_{\mathbf{n}_{\alpha_1}}^{+(\alpha_1)} \right\rangle - \left\langle i\hbar \frac{d}{dt} \hat{S}_{\mathbf{n}_{\alpha_1}}^{-(\alpha_1)} \hat{S}_{\mathbf{n}_{\alpha_1}}^{+(\alpha_1)} \right\rangle \right) - \\ & - \frac{J_b}{8} \left( \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_{a_1}+\delta_{\perp}}^{z(b_2)} \rangle + \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_{b_1}-\delta_{\perp}}^{z(a_2)} \rangle \right) - \frac{J'}{8} \left( \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_{a_1}-\delta'_{\perp}}^{z(b_2)} \rangle + \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_{b_1}+\delta'_{\perp}}^{z(a_2)} \rangle \right) - \\ & - \frac{(1 + \eta)J}{2} \sum_{\alpha=a,b} \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_{\alpha_1}+\delta_1}^{z(\alpha_2)} \rangle. \end{aligned} \quad (5.126)$$

Nakon izračunavanja gornjih korelacionih funkcija pomoću GF metoda, pri čemu smo koristili sledeće identitete:

$$\langle \hat{S}^{+(a_1)} \hat{S}^{+(a_2)} \rangle_{\mathbf{k}} = \langle \hat{S}^{-(a_1)} \hat{S}^{-(a_2)} \rangle_{\mathbf{k}} = \langle \hat{S}^{+(b_1)} \hat{S}^{+(b_2)} \rangle_{\mathbf{k}} = \langle \hat{S}^{-(b_1)} \hat{S}^{-(b_2)} \rangle_{\mathbf{k}}; \quad (5.127)$$

$$\langle \hat{S}^{+(a_1)} \hat{S}^{+(b_2)} \rangle_{\mathbf{k}} = \langle \hat{S}^{-(b_1)} \hat{S}^{-(a_2)} \rangle_{\mathbf{k}}; \quad \langle \hat{S}^{-(a_1)} \hat{S}^{-(b_2)} \rangle_{\mathbf{k}} = \langle \hat{S}^{+(b_1)} \hat{S}^{+(a_2)} \rangle_{\mathbf{k}}; \quad (5.128)$$

$$\left\langle i\hbar \frac{d}{dt} \hat{S}^{-(a_1)} \hat{S}^{+(a_1)} \right\rangle_{\mathbf{k}} = \left\langle \hat{S}^{-(a_1)} i\hbar \frac{d}{dt} \hat{S}^{+(a_1)} \right\rangle_{\mathbf{k}}, \quad \alpha = a, b, \quad (5.129)$$

dolazimo do sledećeg izraza:

$$\begin{aligned} \frac{E}{N} = & \frac{\langle \hat{S}^z \rangle}{8N} \left[ -J \sum_{\mathbf{k}} B_{k_{\parallel}} \left( \frac{B_{k_{\parallel}} + |j_{k_z}|}{\tilde{E}_1(\mathbf{k})} \coth \frac{E_1(\mathbf{k})}{2\theta} + \frac{B_{k_{\parallel}} - |j_{k_z}|}{\tilde{E}_2(\mathbf{k})} \coth \frac{E_2(\mathbf{k})}{2\theta} \right) + \right. \\ & - \sum_{\mathbf{k}} \left( J_b f_{k_z}^{(1)} + J' f_{k_z}^{(2)} \right) \frac{\lambda_b f_{k_z}^{(1)} + \lambda' f_{k_z}^{(2)}}{|j_{k_z}|} \left( \frac{B_{k_{\parallel}} + |j_{k_z}|}{\tilde{E}_1(\mathbf{k})} \coth \frac{E_1(\mathbf{k})}{2\theta} - \frac{B_{k_{\parallel}} - |j_{k_z}|}{\tilde{E}_2(\mathbf{k})} \coth \frac{E_2(\mathbf{k})}{2\theta} \right) + \\ & \left. + 2 \sum_{\mathbf{k}} \left( E_1(\mathbf{k}) \coth \frac{E_1(\mathbf{k})}{2\theta} + E_2(\mathbf{k}) \coth \frac{E_2(\mathbf{k})}{2\theta} - 2J \langle \hat{S}^z \rangle A \right) \right] - \frac{J}{4} \langle \hat{S}^z \rangle A, \quad (5.130) \end{aligned}$$

gde je pored oznaka definisanih sa (5.76)–(5.78) korišćena oznaka  $f_{k_z}^{(i)} = \cos k_z d_i$ ,  $i = 1, 2$ .

Diferenciranjem izraza (5.130) po temperaturi dobijamo magnonsku specifičnu toplotu posmatranog jedinjenja:

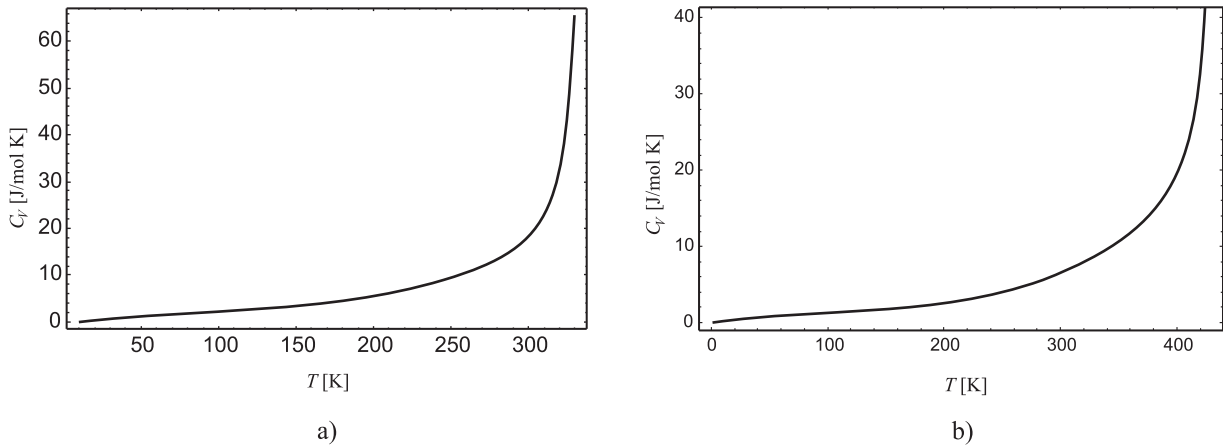
$$\begin{aligned} C_V(T) = & \frac{d\langle \hat{S}^z \rangle}{dT} \frac{1}{8N} \left[ -J \sum_{\mathbf{k}} B_{k_{\parallel}} \left( \frac{B_{k_{\parallel}} + |j_{k_z}|}{\tilde{E}_1(\mathbf{k})} \coth \frac{E_1(\mathbf{k})}{2\theta} + \frac{B_{k_{\parallel}} - |j_{k_z}|}{\tilde{E}_2(\mathbf{k})} \coth \frac{E_2(\mathbf{k})}{2\theta} \right) + \right. \\ & - \sum_{\mathbf{k}} \left( J_b f_{k_z}^{(1)} + J' f_{k_z}^{(2)} \right) \frac{\lambda_b f_{k_z}^{(1)} + \lambda' f_{k_z}^{(2)}}{|j_{k_z}|} \left( \frac{B_{k_{\parallel}} + |j_{k_z}|}{\tilde{E}_1(\mathbf{k})} \coth \frac{E_1(\mathbf{k})}{2\theta} - \frac{B_{k_{\parallel}} - |j_{k_z}|}{\tilde{E}_2(\mathbf{k})} \coth \frac{E_2(\mathbf{k})}{2\theta} \right) - \\ & \left. + 2 \sum_{\mathbf{k}} \left( E_1(\mathbf{k}) \coth \frac{E_1(\mathbf{k})}{2\theta} + E_2(\mathbf{k}) \coth \frac{E_2(\mathbf{k})}{2\theta} - 2J \langle \hat{S}^z \rangle A \right) \right] + \\ & + \frac{J^2 \langle \hat{S}^z \rangle^2}{2k_B T^2} \left( \frac{T}{\langle \hat{S}^z \rangle} \frac{d\langle \hat{S}^z \rangle}{dT} - 1 \right) \frac{1}{8N} \sum_{\mathbf{k}} B_{k_{\parallel}} \times \\ & \quad \times \left( (B_{k_{\parallel}} + |j_{k_z}|) \frac{1}{\sinh^2 \frac{E_1(\mathbf{k})}{2\theta}} + (B_{k_{\parallel}} - |j_{k_z}|) \frac{1}{\sinh^2 \frac{E_2(\mathbf{k})}{2\theta}} \right) + \\ & + \frac{J \langle \hat{S}^z \rangle^2}{2k_B T^2} \left( \frac{T}{\langle \hat{S}^z \rangle} \frac{d\langle \hat{S}^z \rangle}{dT} - 1 \right) \frac{1}{8N} \sum_{\mathbf{k}} \left( J_b f_{k_z}^{(1)} + J' f_{k_z}^{(2)} \right) \frac{\lambda_b f_{k_z}^{(1)} + \lambda' f_{k_z}^{(2)}}{|j_{k_z}|} \times \\ & \quad \times \left( (B_{k_{\parallel}} + |j_{k_z}|) \frac{1}{\sinh^2 \frac{E_1(\mathbf{k})}{2\theta}} - (B_{k_{\parallel}} - |j_{k_z}|) \frac{1}{\sinh^2 \frac{E_2(\mathbf{k})}{2\theta}} \right) + \\ & + J \langle \hat{S}^z \rangle \frac{d\langle \hat{S}^z \rangle}{dT} \frac{1}{4N} \sum_{\mathbf{k}} \left( \tilde{E}_1(\mathbf{k}) \coth \frac{E_1(\mathbf{k})}{2\theta} + \tilde{E}_2(\mathbf{k}) \coth \frac{E_2(\mathbf{k})}{2\theta} \right) - \\ & - \frac{J^2 \langle \hat{S}^z \rangle^3}{2k_B T^2} \left( \frac{T}{\langle \hat{S}^z \rangle} \frac{d\langle \hat{S}^z \rangle}{dT} - 1 \right) \frac{1}{8N} \sum_{\mathbf{k}} \left( \tilde{E}_1(\mathbf{k}) \frac{1}{\sinh^2 \frac{E_1(\mathbf{k})}{2\theta}} + \tilde{E}_2(\mathbf{k}) \frac{1}{\sinh^2 \frac{E_2(\mathbf{k})}{2\theta}} \right) - \\ & - \frac{J \langle \hat{S}^z \rangle}{2} \left( \langle \hat{S}^z \rangle + \frac{1}{2} \right) \frac{d\langle \hat{S}^z \rangle}{dT} A, \quad (5.131) \end{aligned}$$

gde je magnetizacija podrešetke  $\langle \hat{S}^z \rangle$  za  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$  data relacijom (5.111). Izraz (5.131) biće numerički analiziran u narednom odeljku.

### 5.5.3 Analiza rezultata

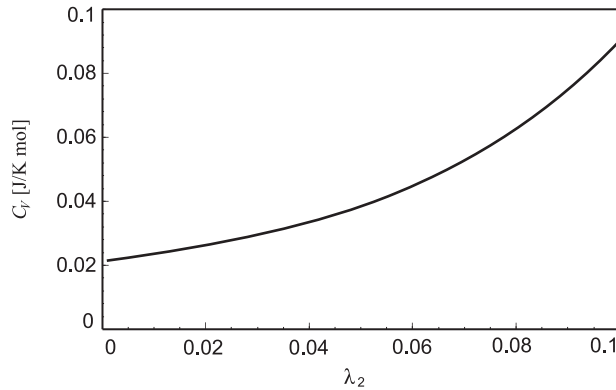
Izrazi za specifičnu toplotu dobijeni spinskim GF metodom u okviru RPA omogućavaju nam da prikažemo grafički magnonsku specifičnu toplotu  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  i  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$  u temperaturskom intervalu od apsolutne nule do Nelove temperature. Skup parametara za  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  koji daje odlično slaganje sa eksperimentalno određenom temperaturskom zavisnošću magnetizacije glasi:  $J = 141 \text{ meV}$ ;  $\lambda_2 = 0.0942$ ;  $\eta = 10^{-3}$ ;  $\lambda_{\perp}^{ab} = 2 \cdot 10^{-4}$ ;  $\lambda_{\perp}^{aa} = 10^{-4}$ . Za  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$  uzimamo skup parametara iz [35]:  $J = 100 \text{ meV}$ ;  $\eta = 0.0001$ ;  $\lambda_b = 5 \cdot 10^{-2}$ ;  $\lambda' = 10^{-5}$ .

Temperatursku zavisnost magnonske specifične toplote za oba jedinjenja predstavljamo na Slici 25. Važno je uočiti da naš pristup daje divergenciju kada  $T \rightarrow T_N$ , ukazujući na fazni prelaz druge vrste umesto diskontinuiteta koji predviđa teorija srednjeg polja (MFT).



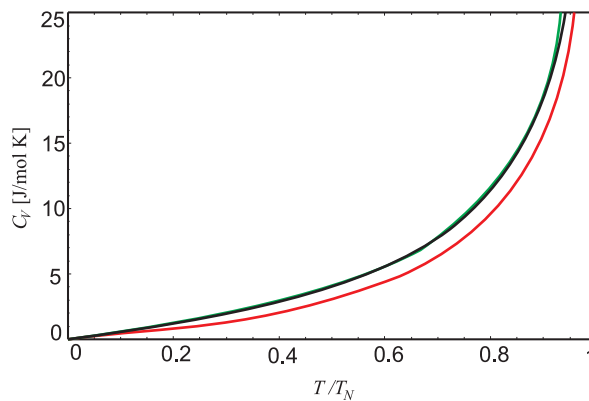
Sl. 25: Magnonska specifična toplota ( $C_V$ ) u zavisnosti od temperature ( $T$ ) za  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  (a) i  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$  (b).

Naša dalja analiza biće u najvećoj meri posvećena jedinjenju  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ , s obzirom da oskudni eksperimentalni podaci za  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$  otežavaju davanje pouzdanih procena za magnonski doprinos ukupnoj specifičnoj toploti. Da bismo dali takvu procenu za  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  koristimo eksperimentalne podatke iz [17,18]. Na primer, na  $T = 20 \text{ K}$  ukupna izmerena specifična toplota iznosi  $4 \text{ J/K mol}$ , dok je naš teorijski rezultat  $90 \text{ mJ/K mol}$  što čini 2.2% od eksperimentalno određene vrednosti. Interesantno je ispitati kako na ovaj rezultat utiče unutaravanska frustracija, koja potiče od antiferomagnetne interakcije drugih suseda. Zavisnost magnonske specifične toplote od integrala izmene drugih suseda u ravni prikazana je na Slici 26.



Sl. 26: Zavisnost magnonske specifične toplote ( $C_V$ ) od parametra interakcije izmene drugih suseda u ravni ( $\lambda_2$ ) na  $T = 20$  K.

Sa slike vidimo da magnonski doprinos ukupnoj specifičnoj toploti na 20 K raste od 0.5% za  $\lambda_2 = 0$ , preko 2.2% za  $\lambda_2 = 0.0942$ . Zavisnost magnonske specifične toplote od prisustva ravanske frustracije u širokom temperaturnom intervalu  $0 \leq T_N < 1$  je prikazana na Slici 27.



Sl. 27: Zavisnost magnonske specifične toplote ( $C_V$ ) od temperature ( $T$ ) za 3D model bez planarne frustracije (crvena kriva), 2D model sa planarnom frustracijom ( $\lambda_2 = 0.0942$ ) (zelena kriva) i 3D model sa planarnom frustracijom (crna kriva).

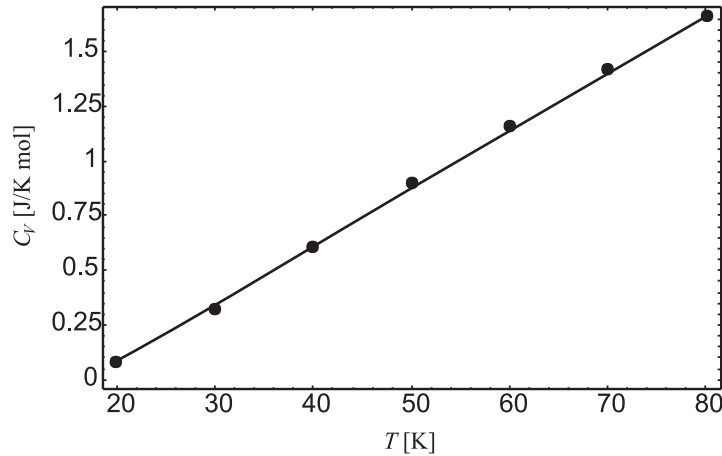
Slika ukazuje na činjenicu da je magnonska specifična toplota za 3D model kod kojeg je zanearena frustracija u ravni niža u odnosu na isti model sa  $\lambda_2 \neq 0$ . Isključivanje međuravanske interakcije ( $\lambda_{\perp}^{aa(ab)} = 0$ ), s druge strane, vodi do veoma blagog porasta specifične toplote, tako da se dve krive (za 2D i 3D model) gotovo poklapaju. Prema tome, uticaj planarne frustracije na magnonsku specifičnu toplotu je mnogo jači od uticaja trodimenzionalnosti, potvrđujući naše ranije zaključke koji ukazuju na kvazi-dvodimenzionalnost ovog sistema.

Poređenje naših rezultata sa onima koji se navode u literaturi pokazuje da metod GF predviđa za magnonski doprinos specifičnoj toploti mnogo veće vrednosti od LSW teorije [19, 20] koja za magnonsku specifičnu toplotu daje zanemarljivo male vrednosti. Tako, na primer, na  $T = 40$  K metod GF daje 605 mJ/K mol, što je 3.0% od eksperimentalne vrednosti (20 J/K mol), dok LSW teorija daje 1.8 mJ/K mol [17], što predstavlja svega 0.01% od eksperimentalnog rezultata. Važno je naglasiti da ne treba očekivati da se izrazi za specifičnu toplotu izračunati u okviru ove dve teorije slože, čak ni na niskim temperaturama, za razliku od izraza za magnetizaciju podrešetke [44]. Razilaženje između ove dve teorije uzrokovano je renormalizacijom magnonskih energija usled RPA, koje vodi ka temperaturni zavisnim energijama GF magnona,



za razliku od energija magnona u okviru LSW teorije. Stoga, premda je razlika između unutrašnjih energija mala ( $\langle \hat{S}^z \rangle$  je blisko  $S$ ), njihovi temperaturski izvodi se značajno razlikuju, s obzirom da u okviru metoda GF članovi koji sadrže izvod magnetizacije po temperaturi preživljavaju. Naime, uprkos činjenici da izvod  $d\langle \hat{S}^z \rangle/dT$  uzima male vrednosti, u nekim članovima množen je konstantama dovoljno velikim da proizvede značajne razlike u odnosu na rezultate koje daje LSW teorija.

Posvetimo sada pažnju niskotemperaturskom ponašanju magnonske specifične toplote u  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ . Da bismo analizirali način na koji specifični toplotni kapacitet teži nuli, koristimo ranije dobijeni rezultat za niskotemperatursko ponašanje magnetizacije podrešetke u  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  (videti odeljak 5.4), dobijen u okviru dugotalasne aproksimacije, prema kojem se magnetizacija ponaša kao  $\langle \hat{S}^z \rangle \approx \langle \hat{S}^z \rangle_{T=0\text{K}} - DT^2$ , što daje dobro slaganje sa eksperimentom [16]. Ako se ova zavisnost ubaci u izvod magnetizacije po temperaturi, dobijamo sledeće ponašanje za specifičnu toplotu:  $C_V(T) \sim AT + BT^3$ . Temperatursku zavisnost specifične toplote fitovaćemo u oblasti niskih temperatura pomoću ove relacije, što vodi ka sledećim vrednostima parametara  $A$  i  $B$  u temperaturskoj oblasti  $20\text{K} < T < 80\text{K}$ :  $A = 0.02978(21)\text{ J/K}^2\text{ mol}$ ;  $B = -3.00(22) \cdot 10^{-7}\text{ J/K}^4\text{ mol}$ . Ovaj fit predstavljen je na Slici 28. (Izbegavamo, pak, poređenje sa numeričkim vrednostima ispod  $T \approx 20\text{K}$ , s obzirom da se u ovoj oblasti mora primeniti sofisticiraniji metod za numeričku integraciju.)



Sl. 28: Niskotemperatursko ponašanje specifične toplote u okviru GF pristupa  $C_V \sim AT + BT^3$  for  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  (puna linija) zajedno sa numeričkim vrednostima (tačke).

Važno je naglasiti da ovaj oblik zavisnosti nije u kontradikciji sa zaključkom koji iznose Kumagai *et al.* [39] prema kojem ne postoji linearan član u niskotemperaturskoj specifičnoj toploti, s obzirom da se ova tvrdnja odnosi na odsustvo elektronskog doprinosa ukupnoj specifičnoj toploti, dok se linearni član može nesmetano pojaviti u malom magnonskom doprinosu, koji je nemoguće zasebno detektovati.

Da bismo analizirali ponašanje magnonske specifične toplote u blizini Nelove temperature, koristimo činjenicu da je u okviru RPA kritični koeficijent  $\beta$  jednak  $\beta = \frac{1}{2}$ , rezultat poznat iz literature [9], a potvrđen i u referencama [32, 45]. Ako napišemo formulu za specifičnu toplotu u blizini  $T_N$  koristeći činjenicu da se magnetizacija menja kao  $(1 - T/T_N)^{\frac{1}{2}}$  i razvijajući  $\coth x$  u red u okolini nule, dobijamo izraz u kojem član  $(1 - T/T_N)^{-\frac{1}{2}}$  dominira, dajući za specifičnu toplotu kritični eksponent  $\alpha = -\frac{1}{2}$ . Tako, za razliku od eksponenta  $\beta$  koji u okviru ovog pristupa ponavlja MFA rezultat, eksponent  $\alpha$  je poboljššan u odnosu na svoju MFA vrednost ( $\alpha^{MFA} = 0$ ), približavajući se rezultatu koji daje teorija renormalizacionih grupa [37]  $\alpha \approx -0.1$ .

## 5.6 Magnetna susceptibilnost kvazi-dvodimenzionalnih kupratnih antiferomagneta

### 5.6.1 Magnetna susceptibilnost $\text{La}_2\text{CuO}_4$

U izučavanju magnetizma  $\text{CuO}_2$  ravni kvazi-dvodimenzionalnih kupratnih antiferomagneta, značajno mesto zauzima izučavanje magnetne susceptibilnosti, s obzirom na činjenicu da je reč o merljivoj veličini. Za magnetnu susceptibilnost u  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  postoje kako eksperimentalni podaci [21], tako i teorijski pokušaji davanja modela koji bi reprodukovao rezultate eksperimenta. Pažnja posvećena određivanju magnetne susceptibilnosti postaje razumljiva kada se ima u vidu činjenica da poznavanje ove veličine pruža mogućnost rasvetljavanja slike magnetizma dopiranih  $\text{CuO}_2$  ravni, za koju se ispostavlja da poseduje domensku strukturu, kako na višim temperaturama, tako i u fazi spinskog stakla. Teorijski modeli dati u literaturi [22, 23] zasnivaju se na interakciji Đalošinski-Morija, te će naš cilj biti da pokušamo da reprodukujemo eksperimentalne rezultate koristeći model samo sa spinskom anizotropijom u ravni, opisan hamiltonijanom (2.2).

Od velikog je značaja određivanje paralelne (longitudinalne) susceptibilnosti, koja predstavlja odgovor sistema na spoljašnje magnetno polje koje deluje duž pravca spontane magnetizacije podrešetke. U cilju određivanja paralelne susceptibilnosti nedopiranog  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  polazimo od jednačina kretanja za Grinove funkcije  $\langle\langle\hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{+(a)}|\hat{B}\rangle\rangle$  i  $\langle\langle\hat{S}_{\mathbf{n}_b}^{-(b)}|\hat{B}\rangle\rangle$  (izrazi (5.1) i (5.2) u poglavlju 5.1). Ako u ovim jednačinama tjablikovski dekuplujemo više Grinove funkcije, razlikujući pri tome magnetizaciju na čvorovima dve različite podrešetke, izvršimo prostornu Furije-transformaciju i operator  $\hat{B}$  konkretizujemo kroz operator  $\hat{S}^{+(b)}$  ( $\hat{B} \equiv \hat{S}^{+(b)}$ ), dobićemo sistem jednačina:

$$(E - \epsilon_1)\langle\langle\hat{S}^{+(a)}|\hat{S}^{+(b)}\rangle\rangle_{\mathbf{k}} - \tilde{J}_1(\mathbf{k})\langle\langle\hat{S}^{-(b)}|\hat{S}^{+(b)}\rangle\rangle_{\mathbf{k}} = 0, \quad (5.132)$$

$$\tilde{J}_2(\mathbf{k})\langle\langle\hat{S}^{+(a)}|\hat{S}^{+(b)}\rangle\rangle_{\mathbf{k}} + (E + \epsilon_2)\langle\langle\hat{S}^{-(b)}|\hat{S}^{+(b)}\rangle\rangle_{\mathbf{k}} = -\frac{i\hbar}{\pi}\langle\hat{S}^{z(b)}\rangle, \quad (5.133)$$

gde su korišćene sledeće oznake:

$$\epsilon_1 = \langle\hat{S}^{z(b)}\rangle\tilde{J} + \langle\hat{S}^{z(a)}\rangle\tilde{J}(\mathbf{k}) + g\mu_B\mathcal{H}, \quad (5.134)$$

$$\epsilon_2 = \langle\hat{S}^{z(a)}\rangle\tilde{J} + \langle\hat{S}^{z(b)}\rangle\tilde{J}(\mathbf{k}) - g\mu_B\mathcal{H}, \quad (5.135)$$

$$\tilde{J}_{1/2}(\mathbf{k}) = \langle\hat{S}^{z(a/b)}\rangle\tilde{J}'(\mathbf{k}), \quad (5.136)$$

pri čemu je

$$\begin{aligned} \tilde{J} &= Jz(g + \lambda_{\perp}^{ab}), \\ \tilde{J}(\mathbf{k}) &= Jz[\lambda_2(\gamma_2(\mathbf{k}) + \gamma_3(\mathbf{k})) - 2\lambda_2 + \lambda_{\perp}^{aa}(\gamma_{\perp}^{aa}(\mathbf{k}) - 1)], \\ \tilde{J}'(\mathbf{k}) &= Jz[\gamma_1(\mathbf{k}) + \lambda_{\perp}^{ab}\gamma_{\perp}^{ab}(\mathbf{k})]. \end{aligned} \quad (5.137)$$

Nule determinante sistema (5.132)–(5.133) glase

$$E_{1\mathbf{k}} = \frac{1}{2}(\sigma_b - \sigma_a)(\tilde{J} - \tilde{J}(\mathbf{k})) + \frac{1}{2}\sqrt{(\sigma_a + \sigma_b)^2(\tilde{J} + \tilde{J}(\mathbf{k}))^2 - 4\sigma_a\sigma_b[\tilde{J}'(\mathbf{k})]^2} + h, \quad (5.138)$$

$$E_{2\mathbf{k}} = \frac{1}{2}(\sigma_b - \sigma_a)(\tilde{J} - \tilde{J}(\mathbf{k})) - \frac{1}{2}\sqrt{(\sigma_a + \sigma_b)^2(\tilde{J} + \tilde{J}(\mathbf{k}))^2 - 4\sigma_a\sigma_b[\tilde{J}'(\mathbf{k})]^2} + h, \quad (5.139)$$

pri čemu su radi sažetijeg zapisa uvedene oznake  $\langle \hat{S}^{z(a/b)} \rangle = \sigma_{a/b}$  i  $g\mu_B\mathcal{H} = h$ . Sada možemo odrediti magnetizacije podrešetki  $a$  i  $b$  koje su definisane kao:

$$\sigma_a = \langle \hat{S}^{z(a)} \rangle = \frac{1}{2} - \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \langle \hat{S}^{-(a)} \hat{S}^{+(a)} \rangle_{\mathbf{k}}, \quad (5.140)$$

$$\sigma_b = \langle \hat{S}^{z(b)} \rangle = \frac{1}{2} - \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \langle \hat{S}^{-(b)} \hat{S}^{+(b)} \rangle_{\mathbf{k}} = -\frac{1}{2} + \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \langle \hat{S}^{+(b)} \hat{S}^{-(b)} \rangle_{\mathbf{k}}. \quad (5.141)$$

Da bismo odredili korelacionu funkciju  $\langle \hat{S}^{+(b)} \hat{S}^{-(b)} \rangle_{\mathbf{k}}$  koja figuriše u izrazu (5.141), potrebno je iz sistema jednačina (5.132)–(5.133) izračunati Grinovu funkciju  $\langle \langle \hat{S}^{-(b)} | \hat{S}^{+(b)} \rangle \rangle_{\mathbf{k}}$ . Jednostavan račun daje

$$\langle \langle \hat{S}^{-(b)} | \hat{S}^{+(b)} \rangle \rangle_{\mathbf{k}} = \frac{i\hbar}{2\pi} 2\sigma_b \frac{1}{E_{1\mathbf{k}} - E_{2\mathbf{k}}} \left( \frac{\epsilon_1 - E_{1\mathbf{k}}}{E - E_{1\mathbf{k}}} - \frac{\epsilon_1 - E_{2\mathbf{k}}}{E - E_{2\mathbf{k}}} \right), \quad (5.142)$$

odakle se primenom spektralne teoreme dobija da je

$$\langle \hat{S}^{+(b)} \hat{S}^{-(b)} \rangle_{\mathbf{k}} = \frac{2\sigma_b}{E_{1\mathbf{k}} - E_{2\mathbf{k}}} \left( \frac{\epsilon_1 - E_{1\mathbf{k}}}{e^{E_{1\mathbf{k}}/\theta} - 1} - \frac{\epsilon_1 - E_{2\mathbf{k}}}{e^{E_{2\mathbf{k}}/\theta} - 1} \right), \quad (5.143)$$

što za magnetizaciju podrešetke  $b$  daje sledeći samousaglašen izraz

$$\sigma_b = -\frac{1}{2} + \frac{2\sigma_b}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{1}{E_{1\mathbf{k}} - E_{2\mathbf{k}}} \left( \frac{\epsilon_1 - E_{1\mathbf{k}}}{e^{E_{1\mathbf{k}}/\theta} - 1} - \frac{\epsilon_1 - E_{2\mathbf{k}}}{e^{E_{2\mathbf{k}}/\theta} - 1} \right). \quad (5.144)$$

Za određivanje korelacione funkcije  $\langle \hat{S}^{-(a)} \hat{S}^{+(a)} \rangle_{\mathbf{k}}$  potrebna je Grinova funkcija  $\langle \langle \hat{S}^{+(a)} | \hat{S}^{-(a)} \rangle \rangle_{\mathbf{k}}$  koja se izračunava iz sistema koji se formira analogno sistemu (5.132)–(5.133), s tom razlikom što se operator  $\hat{B}$  konkretizuje operatorom  $\hat{S}^{-(a)}$ :

$$(E - \epsilon_1) \langle \langle \hat{S}^{+(a)} | \hat{S}^{-(a)} \rangle \rangle_{\mathbf{k}} - \tilde{J}_1(\mathbf{k}) \langle \langle \hat{S}^{-(b)} | \hat{S}^{-(a)} \rangle \rangle_{\mathbf{k}} = \frac{i\hbar}{\pi} \langle \hat{S}^{z(a)} \rangle, \quad (5.145)$$

$$\tilde{J}_2(\mathbf{k}) \langle \langle \hat{S}^{+(a)} | \hat{S}^{-(a)} \rangle \rangle_{\mathbf{k}} + (E + \epsilon_2) \langle \langle \hat{S}^{-(b)} | \hat{S}^{-(a)} \rangle \rangle_{\mathbf{k}} = 0. \quad (5.146)$$

Analogno postupku dobijanja magnetizacije podrešetke  $b$  moguće je na osnovu gornjeg sistema jednačina izračunati i magnetizaciju podrešetke  $a$ , koja je data sledećim samousaglašenim izrazom:

$$\sigma_a = \frac{1}{2} - \frac{2\sigma_a}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{1}{E_{1\mathbf{k}} - E_{2\mathbf{k}}} \left( \frac{\epsilon_2 + E_{1\mathbf{k}}}{e^{E_{1\mathbf{k}}/\theta} - 1} - \frac{\epsilon_2 + E_{2\mathbf{k}}}{e^{E_{2\mathbf{k}}/\theta} - 1} \right). \quad (5.147)$$

Zarad kasnije analize, uobičajeno je izraze za magnetizaciju podrešetke zapisati pomoću funkcije  $\coth x$ . Koristeći identitet  $1 + \frac{2}{e^x - 1} = \coth x/2$ , (5.147) može se zapisati u obliku

$$\sigma_a = \frac{1}{2} \left[ \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \left( \frac{\epsilon_2 + E_{1\mathbf{k}}}{E_{1\mathbf{k}} - E_{2\mathbf{k}}} \coth \frac{E_{1\mathbf{k}}}{2\theta} - \frac{\epsilon_2 + E_{2\mathbf{k}}}{E_{1\mathbf{k}} - E_{2\mathbf{k}}} \coth \frac{E_{2\mathbf{k}}}{2\theta} \right) \right]^{-1}. \quad (5.148)$$

Ako iskoristimo izraze (5.135), (5.138) i (5.139), prethodna jednačina glasiće:

$$\sigma_a = \left[ \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \left( A \coth \frac{E_{1\mathbf{k}}}{2\theta} + B \coth \frac{E_{2\mathbf{k}}}{2\theta} \right) \right]^{-1}, \quad (5.149)$$

gde su uvedene sledeće oznake:

$$A = 1 + \frac{(\sigma_a + \sigma_b)(\tilde{J} + \tilde{J}(\mathbf{k}))}{\sqrt{(\sigma_a + \sigma_b)^2(\tilde{J} + \tilde{J}(\mathbf{k}))^2 - 4\sigma_a\sigma_b[\tilde{J}'(\mathbf{k})]^2}}, \quad (5.150)$$

$$B = 1 - \frac{(\sigma_a + \sigma_b)(\tilde{J} + \tilde{J}(\mathbf{k}))}{\sqrt{(\sigma_a + \sigma_b)^2(\tilde{J} + \tilde{J}(\mathbf{k}))^2 - 4\sigma_a\sigma_b[\tilde{J}'(\mathbf{k})]^2}}. \quad (5.151)$$

Analogno možemo izraz za magnetizaciju podrešetke  $b$  zapisati u sledećem obliku:

$$\sigma_b = - \left[ \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \left( B \coth \frac{E_{1\mathbf{k}}}{2\theta} + A \coth \frac{E_{2\mathbf{k}}}{2\theta} \right) \right]^{-1}. \quad (5.152)$$

Izrazi (5.149) i (5.152) biće osnova za izračunavanje magnetne susceptibilnosti posmatranog jedinjenja u okviru metoda Grinovih funkcija.

### 5.6.2 Magnetna susceptibilnost u paramagnetnoj fazi ( $\theta \geq \theta_N$ )

Na temperaturama iznad Nelove termičke fluktuacije uništavaju dugodometno AFM uređenje, tj. sistem se nalazi u paramagnetnoj fazi. U prisustvu slabog spoljašnjeg magnetnog polja  $h$ , spinovi obe podrešetke se okreću u smeru polja, te važi

$$|\sigma_a| = |\sigma_b| = \sigma, \quad (\sigma_b = -\sigma_a). \quad (5.153)$$

U tom slučaju se izrazi (5.138)–(5.139) i (5.150)–(5.151) svode na

$$E_{1\mathbf{k}} = -\sigma(\tilde{J} - \tilde{J}(\mathbf{k}) - \tilde{J}'(\mathbf{k})) + h, \quad (5.154)$$

$$E_{2\mathbf{k}} = -\sigma(\tilde{J} - \tilde{J}(\mathbf{k}) + \tilde{J}'(\mathbf{k})) + h, \quad (5.155)$$

$$A = B = 1, \quad (5.156)$$

te izraz za magnetizaciju podrešetke glasi:

$$\sigma = \left[ \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \left( \coth \frac{-\sigma(\tilde{J} - \tilde{J}(\mathbf{k}) - \tilde{J}'(\mathbf{k})) + h}{2\theta} + \coth \frac{-\sigma(\tilde{J} - \tilde{J}(\mathbf{k}) + \tilde{J}'(\mathbf{k})) + h}{2\theta} \right) \right]^{-1} \quad (5.157)$$

Na visokim temperaturama argument funkcije  $\coth x$  postaje mali, te možemo istu razviti u red i zadržati samo prvi član u razvoju ( $\coth x \approx 1/x$ ), nakon čega (5.157) dobija sledeći oblik:

$$\sigma \approx \left[ \frac{2\theta}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{2h - 2\sigma\tilde{J} + 2\sigma\tilde{J}(\mathbf{k})}{[h - \sigma(\tilde{J} - \tilde{J}(\mathbf{k}))]^2 - \sigma^2[\tilde{J}'(\mathbf{k})]^2} \right]^{-1}. \quad (5.158)$$

Zamenom  $\sigma = \chi_{RPA}(\theta) \cdot h$ , prethodni izraz daje sledeći oblik temperaturske zavisnosti magnetne susceptibilnosti posmatranog jedinjenja na temperaturama većim od Nelove temperature, a bliskim istoj:

$$\chi_{RPA}(\theta) \approx \left[ \frac{4\theta}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{1 - \chi_{RPA}(\theta)(\tilde{J} - \tilde{J}(\mathbf{k}))}{[1 - \chi_{RPA}(\theta)(\tilde{J} - \tilde{J}(\mathbf{k}))]^2 - \chi_{RPA}^2(\theta)[\tilde{J}'(\mathbf{k})]^2} \right]^{-1}, \quad \theta \geq \theta_N. \quad (5.159)$$

S obzirom na samousaglašenost gornjeg izraza, za numeričku analizu pogodnije je posmatrati zavisnost  $\theta = \theta(\chi_{RPA})$ , koja se lako dobija iz (5.159).

### 5.6.3 Magnetna susceptibilnost u oblasti antiferomagnetnog uređenja ( $\theta \leq \theta_N$ )

U oblasti temperatura nižih od Nelove temperature, magnetizacije podrešetki  $a$  i  $b$  mogu se u prisustvu slabog spoljašnjeg magnetnog polja  $h$  predstaviti u obliku

$$\sigma_a = \sigma + \chi_{RPA} \cdot h, \quad \sigma_b = \sigma - \chi_{RPA} \cdot h, \quad (5.160)$$

gde je  $\sigma$  magnetizacija obe podrešetke u odsustvu polja. Tada veličine definisane izrazima (5.138)–(5.139) i (5.150)–(5.151) postaju

$$E_{1/2\mathbf{k}} = E'(\mathbf{k}) h \pm \frac{1}{2} K(\mathbf{k}), \quad (5.161)$$

$$A/B = 1 \pm \frac{2\sigma[\tilde{J} + \tilde{J}(\mathbf{k})]}{K(\mathbf{k})}, \quad (5.162)$$

gde je

$$E'(\mathbf{k}) = 1 - \chi_{RPA}[\tilde{J} - \tilde{J}(\mathbf{k})], \quad (5.163)$$

$$K(\mathbf{k}) = 2\sigma \sqrt{[\tilde{J} + \tilde{J}(\mathbf{k})]^2 - [\tilde{J}'(\mathbf{k})]^2}. \quad (5.164)$$

U izrazima za magnetizaciju figuriše  $\coth E_{1/2\mathbf{k}}/2\theta$ , gde je magnonska energija definisana izrazom (5.161). Koristeći identitet  $\coth(x \pm y) = \frac{1 \pm \coth x \coth y}{\coth x \pm \coth y}$  i zadržavajući prvi član u razvoju  $\coth \frac{E'(\mathbf{k})}{2\theta} h$ , dobijamo

$$\coth \frac{E_{1/2}(\mathbf{k})}{2\theta} \approx \pm \coth \frac{K(\mathbf{k})}{4\theta} - h \frac{E'(\mathbf{k})}{2\theta} \sinh^{-2} \frac{K(\mathbf{k})}{4\theta}. \quad (5.165)$$

Ako sada u izraze (5.160) ubacimo relacije (5.149) i (5.152) kojima su određene magnetizacije podrešetki  $a$  i  $b$  zajedno sa oznakama i aproksimacijama uvedenim izrazima (5.161)–(5.165), dobićemo sledeće:

$$\sigma + \chi_{RPA} \cdot h = \frac{1}{C \left(1 - h \frac{C}{D}\right)} \approx \frac{1}{C} \left(1 + h \frac{C}{D}\right), \quad (5.166)$$

$$\sigma - \chi_{RPA} \cdot h = \frac{1}{C \left(1 + h \frac{C}{D}\right)} \approx \frac{1}{C} \left(1 - h \frac{C}{D}\right), \quad (5.167)$$

gde koristimo notaciju

$$C = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{4\sigma[\tilde{J} + \tilde{J}(\mathbf{k})]}{K(\mathbf{k})} \coth \frac{K(\mathbf{k})}{4\theta}, \quad (5.168)$$

$$D = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \mathbf{k} \frac{E'(\mathbf{k})}{\theta} \sinh^{-2} \frac{K(\mathbf{k})}{4\theta}. \quad (5.169)$$

Oduzimanjem jednačine (5.167) od (5.166) dobijamo da je  $\chi_{RPA} = D/C^2$ , a sabiranjem istih jednačina nalazimo vezu  $\sigma = C^{-1}$ . Kombinujući ova dva izraza jednostavno je izvesti relaciju za temperatursku zavisnost magnetne susceptibilnosti na temperaturama ispod Nelove temperature:

$$\chi_{RPA}(\theta) = \frac{\sigma^2 \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \sinh^{-2} \frac{\sigma \sqrt{[\tilde{J} + \tilde{J}(\mathbf{k})]^2 - [\tilde{J}'(\mathbf{k})]^2}}{2\theta}}{\theta + \sigma^2 \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} [\tilde{J} - \tilde{J}(\mathbf{k})] \sinh^{-2} \frac{\sigma \sqrt{[\tilde{J} + \tilde{J}(\mathbf{k})]^2 - [\tilde{J}'(\mathbf{k})]^2}}{2\theta}}, \quad \theta \leq \theta_N. \quad (5.170)$$

Ako u gornjem izrazu iskoristimo činjenicu da za  $\theta \rightarrow \theta_N^-$  magnetizacija teži nuli ( $\sigma \rightarrow 0$ ) i razvijemo funkciju  $\sinh x$  zadržavajući se na prvom članu ( $\sinh x \approx x$ ), dobijamo:

$$\chi_{RPA}(\theta_N) = \frac{4\theta_N \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \{[\tilde{J} + \tilde{J}(\mathbf{k})]^2 - [\tilde{J}'(\mathbf{k})]^2\}^{-1}}{1 + 4\theta_N \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} [\tilde{J} - \tilde{J}(\mathbf{k})] \{[\tilde{J} + \tilde{J}(\mathbf{k})]^2 - [\tilde{J}'(\mathbf{k})]^2\}^{-1}}, \quad (5.171)$$

što predstavlja izraz za paralelnu susceptibilnost na Nelovoj temperaturi.

#### 5.6.4 Magnetna susceptibilnost $\text{La}_2\text{CuO}_4$ u aproksimaciji srednjeg polja (MFA)

Zarad poređenja sa drugim teorijskim rezultatima navedenim u literaturi [22,23], izračunaćemo paralelnu susceptibilnost  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  i u aproksimaciji srednjeg (molekuskog) polja, očekujući da pokažemo do kakve razlike u odnosu na RPA rezultat dovode zanemarivanje kvantnih spinskih fluktuacija i korelacija među spinovima. U aproksimaciji srednjeg polja magnonska energija ne zavisi od talasnog vektora, tj. nema disperzije (videti poglavlje 3.4), usled čega se izrazi (5.134)–(5.135) i (5.138)–(5.139) pojednostavljaju na sledeći način:

$$\epsilon_1^{MFA} = Jz[\sigma_b^{MFA}(g + \lambda_{\perp}^{ab}) + \sigma_a^{MFA}(-2\lambda_2 - \lambda_{\perp}^{aa})] + h, \quad (5.172)$$

$$\epsilon_2^{MFA} = Jz[\sigma_a^{MFA}(g + \lambda_{\perp}^{ab}) + \sigma_b^{MFA}(-2\lambda_2 - \lambda_{\perp}^{aa})] - h, \quad (5.173)$$

$$\begin{aligned} E_1^{MFA} &= \frac{1}{2}(\sigma_b^{MFA} - \sigma_a^{MFA})Jz[g + \lambda_{\perp}^{ab} + 2\lambda_2 + \lambda_{\perp}^{aa}] + \\ &+ \frac{1}{2}(\sigma_a^{MFA} + \sigma_b^{MFA})Jz[g + \lambda_{\perp}^{ab} - 2\lambda_2 - \lambda_{\perp}^{aa}] + h, \end{aligned} \quad (5.174)$$

$$\begin{aligned} E_2^{MFA} &= \frac{1}{2}(\sigma_b^{MFA} - \sigma_a^{MFA})Jz[g + \lambda_{\perp}^{ab} + 2\lambda_2 + \lambda_{\perp}^{aa}] - \\ &- \frac{1}{2}(\sigma_a^{MFA} + \sigma_b^{MFA})Jz[g + \lambda_{\perp}^{ab} - 2\lambda_2 - \lambda_{\perp}^{aa}] + h. \end{aligned} \quad (5.175)$$

U tom slučaju izrazi (5.144) i (5.147) za magnetizaciju postaju:

$$\sigma_a^{MFA} = \frac{1}{2} \tanh \frac{\sigma_b^{MFA} Jz(g + \lambda_{\perp}^{ab}) - \sigma_a^{MFA} Jz(2\lambda_2 + \lambda_{\perp}^{aa}) + h}{2\theta}, \quad (5.176)$$

$$\sigma_b^{MFA} = -\frac{1}{2} \tanh \frac{-\sigma_a^{MFA} Jz(g + \lambda_{\perp}^{ab}) + \sigma_b^{MFA} Jz(2\lambda_2 + \lambda_{\perp}^{aa}) + h}{2\theta}. \quad (5.177)$$

U odsustvu spoljašnjeg magnetnog polja ( $h = 0$ ), magnetizacije obe podrešetke su jednake ( $\sigma_a^{MFA} = \sigma_b^{MFA} = \sigma^{MFA}$ ) i iznose:

$$\sigma^{MFA} = \frac{1}{2} \tanh \frac{\sigma^{MFA} Jz(g + \lambda_{\perp}^{ab} - 2\lambda_2 - \lambda_{\perp}^{aa})}{2\theta}. \quad (5.178)$$

Iz ovog izraza jednostavno se može izračunati Nelova temperatura u aproksimaciji srednjeg polja, razvijajući funkciju  $\tanh x$  u red i zadržavajući prvi član u razvoju ( $\tanh x \approx x$ ), što daje:

$$\theta_N^{MFA} = \frac{1}{4} Jz(g + \lambda_{\perp}^{ab} - 2\lambda_2 - \lambda_{\perp}^{aa}). \quad (5.179)$$

Analiza ponašanja magnetne susceptibilnosti u oblasti temperatura u okolini Nelove temperature, može se izvršiti analogno postupku sprovedenom u okviru aproksimacije haotičnih faza (RPA). Razmotrimo najpre paramagnetnu fazu ( $\theta \geq \theta_N^{MFA}$ ), za koju važi

$$\sigma_a^{MFA} = \sigma^{MFA}; \quad \sigma_b^{MFA} = -\sigma^{MFA}. \quad (5.180)$$

Ako u izrazu (5.176) za magnetizaciju podrešetke  $a$ , na primer, iskoristimo (5.180), razvijemo funkciju  $\tanh x$  u red i stavimo da je  $\sigma^{MFA} = \chi_{MFA}(\theta) \cdot h$ , za magnetnu susceptibilnost dobijamo sledeći izraz:

$$\chi_{MFA}(\theta) = \frac{1}{4} \left[ \theta + \frac{1}{4} Jz(g + \lambda_{\perp}^{ab} + 2\lambda_2 + \lambda_{\perp}^{aa}) \right]^{-1}, \quad \theta \geq \theta_N^{MFA}. \quad (5.181)$$

(Napomenimo da se izraz (5.159) za magnetnu susceptibilnost u okviru RPA u oblasti temperatura većih od  $\theta_N$  u odsustvu disperzije svodi upravo na (5.181)).

U antiferomagnetno uređenoj oblasti ( $\theta \leq \theta_N^{MFA}$ ), u prisustvu slabog spoljašnjeg magnetnog polja  $h$ , magnetizacije podrešetki  $a$  i  $b$  date su, analogno RPA pristupu, izrazima:

$$\sigma_a^{MFA} = \sigma^{MFA} + \chi_{MFA} \cdot h, \quad \sigma_b^{MFA} = \sigma^{MFA} - \chi_{MFA} \cdot h. \quad (5.182)$$

Koristeći relacije (5.176)–(5.177), gornji izrazi postaju:

$$\sigma^{MFA} + \chi_{MFA} h = \frac{1}{2} \tanh (F + Gh), \quad (5.183)$$

$$\sigma^{MFA} - \chi_{MFA} h = -\frac{1}{2} \tanh (-F + Gh), \quad (5.184)$$

gde su  $F$  i  $G$  definisani sledećim relacijama:

$$F = \frac{\sigma^{MFA} Jz(g + \lambda_{\perp}^{ab} - 2\lambda_2 - \lambda_{\perp}^{aa})}{2\theta}, \quad (5.185)$$

$$G = \frac{1 - \chi_{MFA} Jz(g + \lambda_{\perp}^{ab} + 2\lambda_2 + \lambda_{\perp}^{aa})}{2\theta}. \quad (5.186)$$

Ako u relacijama (5.183) i (5.184) iskoristimo razvoj u red  $\tanh(x + yh) \approx \tanh x + (y/\cosh^2 x)h$  i potom oduzmemo drugu od prve, možemo lako izraziti magnetnu susceptibilnost:

$$\chi_{MFA}(\theta) = \frac{\left[ \cosh \frac{\sigma^{MFA} Jz(g + \lambda_{\perp}^{ab} - 2\lambda_2 - \lambda_{\perp}^{aa})}{2\theta} \right]^{-2}}{4\theta + Jz(g + \lambda_{\perp}^{ab} + 2\lambda_2 + \lambda_{\perp}^{aa}) \left[ \cosh \frac{\sigma^{MFA} Jz(g + \lambda_{\perp}^{ab} - 2\lambda_2 - \lambda_{\perp}^{aa})}{2\theta} \right]^{-2}}, \quad \theta \leq \theta_N^{MFA}. \quad (5.187)$$

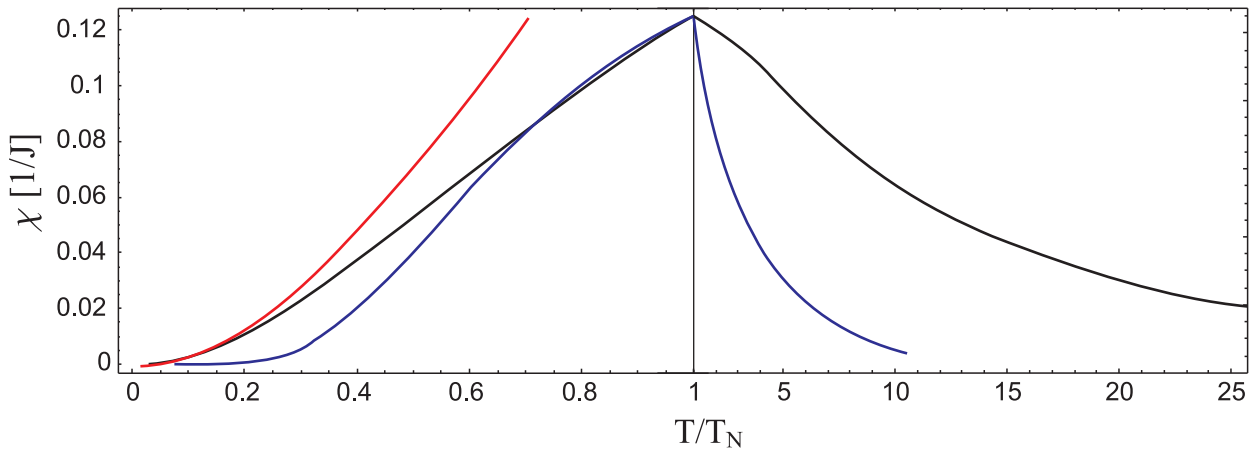
(Napomenimo da se izraz (5.170) za magnetnu susceptibilnost u okviru RPA u oblasti temperatura nižih od  $\theta_N$  u odsustvu disperzije svodi upravo na (5.187)). Magnetizacija u odsustvu polja ( $\sigma^{MFA}$ ) koja figuriše u gornjoj relaciji data je samousaglašenim izrazom (5.178) iz kojeg se određuje iterativnim postupkom (videti Prilog A). Iz izraza (5.187) lako je odrediti susceptibilnost na Nelovoj temperaturi. Naime, kada  $\theta \rightarrow \theta_N^{MFA-}$  magnetizacija teži nuli ( $\sigma^{MFA} \rightarrow 0$ ), te ako iskoristimo aproksimaciju  $\cosh x \approx 1$ , sledi:

$$\chi_{MFA}(\theta_N^{MFA}) = \frac{1}{4} \left[ \theta_N^{MFA} + \frac{1}{4} Jz(g + \lambda_{\perp}^{ab} + 2\lambda_2 + \lambda_{\perp}^{aa}) \right]^{-1}. \quad (5.188)$$

Kako se ova vrednost za  $\chi_{MFA}(\theta)$  dobija i iz izraza (5.181) kada  $\theta \rightarrow \theta_N^{MFA+}$ , očito je da je magnetna susceptibilnost neprekidna funkcija na Nelovoj temperaturi.

### 5.6.5 Analiza rezultata

Numerička analiza temperaturnog ponašanja paralelne susceptibilnosti  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  sprovedena je u okviru RPA na osnovu izraza (5.159) i (5.170), a u okviru MFA na osnovu relacija (5.181) i (5.187). Pri tome je korišćen sledeći skup parametara:  $J = 141 \text{ meV}$ ;  $\lambda_2 = 0.0942$ ;  $g = 1 + 10^{-3}$ ;  $\lambda_{\perp}^{ab} = 2 \cdot 10^{-4}$ ;  $\lambda_{\perp}^{aa} = 10^{-4}$ . LSW analiza izvršena je pomoću relacije (4.50) iz odeljka 4.5, za parametre:  $J = 179 \text{ meV}$ ;  $\lambda_2 = 0.0615$ ;  $g = 1 + 10^{-3}$ ;  $\lambda_{\perp}^{ab} = 2 \cdot 10^{-4}$ ;  $\lambda_{\perp}^{aa} = 10^{-4}$ . Rezultati sva tri pristupa prikazani su na Slici 29. Zarad lakšeg poređenja temperatura je normirana na odgovarajuću Nelovu temperaturu za datu aproksimaciju. Nelova temperatura u okviru LSW teorije je  $T_N^{LSW} \approx 700 \text{ K}$ , dok MFA daje (izraz (5.179))  $T_N^{MFA} \approx 1330 \text{ K}$ .



Sl. 29: Paralelna susceptibilnost  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  računata u RPA pristupu (crna kriva), MF aproksimaciji (plava kriva) i LSW teoriji (crvena kriva).



Sa slike se vidi da u antiferomagnetno uređenoj fazi RPA daje dobro slaganje sa MFA pristupom u blizini Nelove temperature ( $0.7 \leq T/T_N \leq 1$ ). S obzirom da MFA ne uključuje redukciju magnetizacije podrešetke izazvanu prisustvom kvantnih fluktuacija na niskim temperaturama, očekivano je da u niskotemperaturnoj oblasti dođe do razilaženja RPA i MFA rezultata. U toj oblasti ( $T/T_N \leq 0.25$ ) LSW teorija daje dobro slaganje sa RPA rezultatima. Sa porastom temperature, predviđanja LSW teorije sve više odstupaju od RPA krive, ukazujući na značaj magnonskih interakcija koje su u LSW teoriji zanemarene, dok su u RPA uključene na aproksimativan način. Iznad Nelove temperature MFA i RPA daju bitno različite rezultate: u okviru MFA susceptibilnost naglo opada, dok RPA pretpostavlja postepeno opadanje. Ovo je uslovljeno time što su u MFA zanemarene kratkodometne korelacije koje opstaju u spinskom sistemu iznad temperature faznog prelaza. S obzirom da je naš zadatak da utvrdimo domete i ograničenja modela posmatranog jedinjenja opisanog Hajzenbergovim hamiltonijanom (2.2), upoređićemo ove zaključke sa rezultatima iznesenim u referencama Tabunshchik *et al.* [22, 23]. U radu [22] je, naime, analiziran sistem od *jedne*  $\text{CuO}_2$  ravni koji je opisan modelom koji pored Hajzenbergovog modela najbližih suseda sadrži i spin-orbitalnu interakciju opisanu antisimetričnom DM interakcijom i pseudodipolarnom simetričnom interakcijom. Uvođenje ove dve interakcije je motivisano činjenicom da spin-orbitalna interakcija u  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  dovodi do zakretanja spinova u  $\text{CuO}_2$  ravnima za izvestan mali ugao u odnosu na ravan spontane magnetizacije, tako da  $\text{CuO}_2$  ravni pored dugodometnog AFM uređenja ispoljavaju i slabi feromagnetni moment. Prisustvo ovih interakcija omogućava postojanje konačne Nelove temperature i za 2D sistem (koje je kod našeg modela omogućeno spinskom anizotropijom u ravni). Poređenje naših rezultata sa rezultatima iz [22] ukazuje na slaganje u ponašanju paralelne susceptibilnosti, koje ispoljava jaku zavisnost od kvantnih fluktuacija i kratko-dometnih korelacija u širokoj temperaturnoj oblasti oko Nelove temperature. Ograničenje našeg modela leži u zanemarivanju slabog feromagnetizma  $\text{CuO}_2$  ravni usled čega ne može da reprodukuje anizotropiju transverzalne susceptibilnosti. Dalja analiza naših rezultata pokazuje da uticaj trodimenzionalnosti ni u ovom slučaju nije od presudnog značaja - ponovljeni račun za 2D model daje rezultate koji se praktično ne razlikuju od onih dobijenih za 3D model. To je u skladu sa zaključcima rada [23] u kojem je sistem proširen sa jedne  $\text{CuO}_2$  ravni na 3D ortorombni model, tj. u modelni hamiltonijan je pored DM interakcija uključena i slaba interplanarna interakcija. Rezultati koji se odnose na paralelnu susceptibilnost pokazuju da je uticaj međuravanske interakcije zanemarljiv, te da kao i u 2D slučaju dominira uticaj kvantnih fluktuacija i kratkodometnih korelacija. U istoj referenci navedeno je takođe da RPA i MFA daju istu vrednost za paralelnu susceptibilnost na Nelovoj temperaturi, što je i naš rezultat (videti Sl. 29.). Najzad, zanimljivo je napomenuti da se u [23] razmatra i aproksimativni 3D tetragonalni model, u okviru kojeg smo i mi ispitivali izvesna svojstva (magnonski spektar, Nelova temperatura) našeg modela. Zaključak iznesen u referenci [23] da se  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  koji kristališe u ortorombnom kristalografskom sistemu može na zadovoljavajući način aproksimirati tetragonalnim modelom slaže se i sa našim zapažanjima, koja su ukazivala na veliku sličnost u ponašanju ove dve strukture (podsećamo da su se razlike ispoljile samo u zavisnosti Nelove temperature od spinske anizotropije).

Poređenje sa eksperimentalno određenom paralelnom magnetnom susceptibilnošću nedopiranog  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  omogućavaju rezultati merenja objavljeni u referenci Lavrov *et al.* [21]. Značaj ovog rada je prvenstveno u pokušaju davanja nove slike stanja spinskog sistema dopiranih  $\text{CuO}_2$  ravni. Za razliku od klasične slike koja pretpostavlja da bi, nakon što dopirane šupljine unište dugodometno AFM uređenje, spinski sistem u  $\text{CuO}_2$  ravnima trebao postati suštinski izotropan, merenjem magnetne susceptibilnosti nedopiranog i blago dopiranog  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  utvrđena je ani-

zotropija ove veličine koja opstaje uprkos dopiranju, ukazujući na činjenicu da dopirane šupljine razbijaju AFM uređenje na domene u okviru kojih je spinsko uređenje praktično netaknuto. Za ocenu našeg modela od važnosti je kvalitativno slaganje rezultata dobijenih u okviru RPA pristupa sa izmerenom paralelnom susceptibilnošću nedopiranog  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ .

### 5.6.6 Magnetna susceptibilnost $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$

Iako za magnetnu susceptibilnost nedopiranog  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$  u literaturi postoje veoma oskudni podaci, zanimljivo je, s obzirom na sličnost sa  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ , uporediti ponašanje te veličine za ova dva jedinjenja, i zaključiti u kojoj meri složenija struktura  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$  (dvoslojni antiferomagnet) utiče na primenljivost pristupa korišćenih u prethodnim odeljcima.

Polazna tačka u određivanju paralelne magnetne susceptibilnosti u  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$  jeste sistem jednačina kretanja Grinovih funkcija (5.69)–(5.72). U prisustvu spoljašnjeg magnetnog polja, pri čemu se uvodi pretpostavka da je  $\langle \hat{S}^{z(b_{1/2})} \rangle = \langle \hat{S}^{z(a_{1/2})} \rangle$ , determinanta tog sistema je jednačina četvrtog reda koja se, za razliku od slučaja kada je  $\mathcal{H} = 0$ , ne može svesti na bikvadratnu. Navešćemo tu jednačinu zarad ilustrovanja njene složenosti:

$$E^4 + 2E^3(A_1 - A_2) + E^2(2j_1^*j_2 + A_1^2 + A_2^2 - 4A_1A_2 + 2B_1B_2) + \\ + E(2A_1A_2^2 - 2A_1^2A_2 + 2A_1B_1B_2 - 2A_2B_1B_2 + A_1j_1^*j_2 - A_2j_1^*j_2 + A_1j_1j_2^* - A_2j_1j_2^*) + A_1^2A_2^2 + \\ + B_1^2B_2^2 - 2A_1A_2B_1B_2 - B_2^2|j_1|^2 - B_1|j_2|^2 - A_1A_2j_1^*j_2 - A_1A_2j_1j_2^* + |j_1|^2|j_2|^2 = 0. \quad (5.189)$$

Pokazuje se da su rešenja ove jednačine u toj meri komplikovana da se u okviru RPA ne može sa njima dalje analitički operisati. Stoga ćemo analitičke izraze za paralelnu susceptibilnost  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$  dobiti u aproksimaciji srednjeg polja (MFA). U toj aproksimaciji  $B_{1/2}(\mathbf{k}_{\parallel}) = j_{C_{1/2}D_{1/2}}(k_z) = 0$ , te se jednačina (5.189) radikalno pojednostavljuje, a njeni koreni su dvostruko degenerisani i glase:

$$E_{1/2}^{MFA} = -A_1; \quad E_{3/4}^{MFA} = A_2. \quad (5.190)$$

Sada je iz sistema (5.69)–(5.72) lako dobiti Grinove funkcije neophodne za određivanje korelacionih funkcija koje figurišu u izrazima za magnetizaciju podrešetaka  $a_1$  i  $a_2$ . Te Grinove funkcije glase:

$$\langle \langle \hat{S}^{+(a_1)} | \hat{S}^{-(a_1)} \rangle \rangle = \frac{i\hbar}{2\pi} \frac{2\sigma_{a_1}^{MFA}}{E - A_2}, \quad \langle \langle \hat{S}^{-(a_2)} | \hat{S}^{+(a_2)} \rangle \rangle = -\frac{i\hbar}{2\pi} \frac{2\sigma_{a_2}^{MFA}}{E + A_1}. \quad (5.191)$$

Iz (5.191) se primenom spektralne teoreme dobijaju sledeće korelacione funkcije:

$$\langle \hat{S}^{-(a_1)} | \hat{S}^{+(a_1)} \rangle_{\mathbf{k}} = 2\sigma_{a_1}^{MFA} \frac{1}{e^{\frac{A_2}{\theta}} - 1}, \quad \langle \hat{S}^{+(a_2)} | \hat{S}^{-(a_2)} \rangle_{\mathbf{k}} = -2\sigma_{a_2}^{MFA} \frac{1}{e^{-\frac{A_1}{\theta}} - 1}. \quad (5.192)$$

Ako (5.192) iskoristimo u sledećim izrazima:

$$\sigma_{a_1} = \langle \hat{S}^{z(a_1)} \rangle = \frac{1}{2} - \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \langle \hat{S}^{-(a_1)} \hat{S}^{+(a_1)} \rangle_{\mathbf{k}}, \quad (5.193)$$

$$\sigma_{a_2} = \langle \hat{S}^{z(a_2)} \rangle = \frac{1}{2} - \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \langle \hat{S}^{-(a_2)} \hat{S}^{+(a_2)} \rangle_{\mathbf{k}} = -\frac{1}{2} + \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \langle \hat{S}^{+(a_2)} \hat{S}^{-(a_2)} \rangle_{\mathbf{k}}, \quad (5.194)$$

za magnetizaciju podrešetki  $a_1$  i  $a_2$  dobijamo:

$$\sigma_{a_1}^{MFA} = \frac{1}{2} \tanh \frac{A_2}{2\theta}, \quad \sigma_{a_2}^{MFA} = \frac{1}{2} \tanh \frac{A_1}{2\theta}. \quad (5.195)$$

U odsustvu magnetnog polja magnetizacije obe podrešetke su jednake i iznose

$$\sigma^{MFA} = \frac{1}{2} \tanh \frac{J\sigma^{MFA}[4(1+\eta) + \lambda_b + \lambda']}{2\theta}. \quad (5.196)$$

Odavde se, koristeći razvoj funkcije  $\tanh x$  u red, lako dobija izraz za Nelovu temperaturu posmatranog jedinjenja u MFA:

$$\theta_N^{MFA} = \frac{1}{4} J[4(1+\eta) + \lambda_b + \lambda']. \quad (5.197)$$

Dalja analiza biće analogna analizi  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ . U paramagnetnoj fazi ( $\theta \geq \theta_N$ ) magnetizacije podrešetki date su sa:

$$\sigma_{a_1}^{MFA} = -\sigma^{MFA}; \quad \sigma_{a_2}^{MFA} = \sigma^{MFA}. \quad (5.198)$$

Koristeći pretpostavku (5.198), kao i činjenicu da se magnetizacija može predstaviti kao  $\sigma^{MFA} = \chi_{MFA}(\theta) \cdot h$ , izraz (5.195) u slučaju slabog spoljašnjeg polja daje:

$$\chi_{MFA}(\theta) = \frac{1}{4} \left\{ \theta + \frac{1}{4} J[4(1+\eta) + \lambda_B + \lambda'] \right\}^{-1}, \quad \theta \geq \theta_N^{MFA}. \quad (5.199)$$

U antiferomagnetno uređenoj fazi ( $\theta \leq \theta_N$ ), magnetizacije podrešetki mogu se predstaviti kao

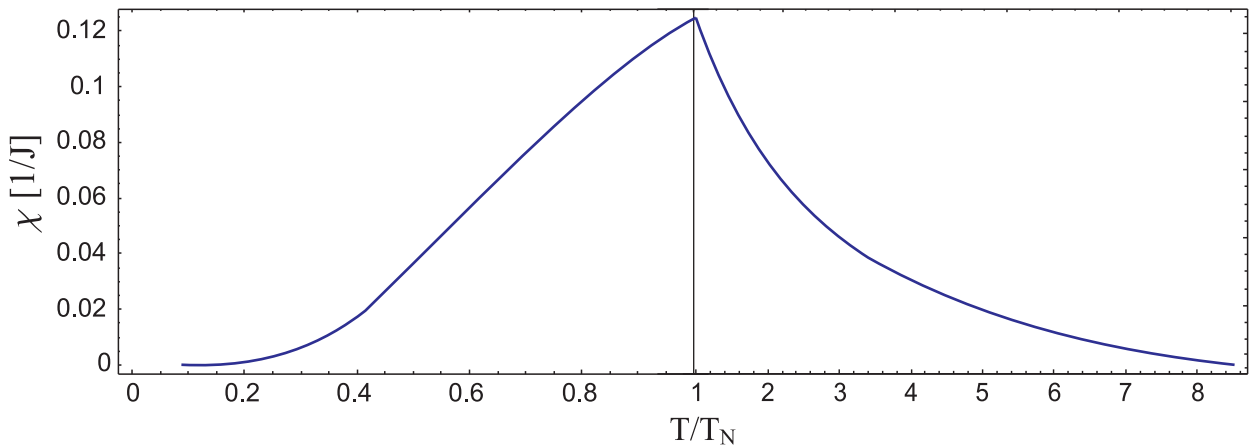
$$\sigma_{a_1}^{MFA} = \sigma^{MFA} - \chi_{MFA} h; \quad \sigma_{a_2}^{MFA} = \sigma^{MFA} + \chi_{MFA} h. \quad (5.200)$$

Na osnovu ove pretpostavke se, prateći analogiju sa izvođenjem relacije (5.187) za magnetnu susceptibilnost ispod Nelove temperature kod  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ , relativno lako dobija:

$$\chi_{MFA}(\theta) = \frac{\left[ \cosh \frac{\sigma^{MFA} J[4(1+\eta) + \lambda_b + \lambda']}{2\theta} \right]^{-2}}{4\theta + J[4(1+\eta) + \lambda_b + \lambda'] \left[ \cosh \frac{\sigma^{MFA} J[4(1+\eta) + \lambda_b + \lambda']}{2\theta} \right]^{-2}}, \quad \theta \leq \theta_N^{MFA}. \quad (5.201)$$

gde je magnetizacija u odsustvu polja određena samousaglašenim izrazom (5.196) (detaljnije videti u Prilogu A).

Koristeći relacije (5.196), (5.199) i (5.201) moguće je izračunati i grafički prikazati paralelnu susceptibilnost za  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$  u MF aproksimaciji (Slika 30.).



Sl. 30: Paralelna susceptibilnost  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$  računata u MF aproksimaciji.

Zarad lakšeg poređenja sa oblikom zavisnosti dobijenim za  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  temperatura je normirana na Nelovu temperaturu koja ovde iznosi  $T_N^{MFA} \approx 1175 \text{ K}$ . Vidi se da za oba jedinjenja MFA daje sličnu zavisnost, predviđajući naglo opadanje paralelne susceptibilnosti sa udaljavanjem od kritične temperature u paramagnetnoj fazi.

---

## Poglavlje 6

# Bogoljubovljeva nejednakost i spontana magnetizacija kvazi-dvodimenzionalnih kupratnih antiferomagneta

Egzaktne relacije, jednačine ili nejednačine, su redak ali neprocenjiv alat u teorijskoj fizici, s obzirom da predstavljaju važnu proveru ispravnosti bilo kog aproksimativnog pristupa. Mermin-Vagnerova teorema (MWT) [14] sa svojom širokom oblašću primenljivosti koristi se u statističkoj fizici već četrdesetak godina za proveru rezultata koji se tiču faznih prelaza u različitim magnetnim sistemima. Ova teorema, čiji se dokaz zasniva na primeni Bogoljubovljeve nejednakosti [15], tvrdi da je spontana magnetizacija spinski izotropnih jedno- i dvodimenzionalnih Hajzenbergovih fero-, feri- i antiferomagneta na konačnim temperaturama jednaka nuli.

Ispitujući magnetizam u spinskom modelu  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ , došli smo do interesantnih rezultata koji se tiču egzistencije spontane magnetizacije u tom sistemu. Naime, iako u opštem slučaju trodimenzionalni sistemi imaju konačnu Nelovu temperaturu (usled konvergencije integrala u jednačini (12) u referenci [14]), dobili smo da je za izotropni tetragonalni Hajzenbergov model sa strukturom tipa  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  Nelova temperatura jednaka nuli (Sl. 19.), za razliku od izotropnog ortorombnog sistema u kome dugodometno uređenje postoji i na konačnim temperaturama (Sl. 18.). Predmet ovog poglavlja biće strog analitički dokaz tog zaključka (Manojlović *et al.* [46]), koji se zasniva na upotrebi Bogoljubovljeve nejednakosti, što ukazuje na širok domen primenljivosti te relacije u izučavanju prisustva dugodometnog uređenja za različite grupe magnetnih sistema.

### 6.1 Ispitivanje dugodometnog uređenja za spinski izotropne modele jedinjenja tipa $\text{La}_2\text{CuO}_4$ po ugledu na dokaz Mermin-Vagnerove teoreme

U cilju ispitivanja egzistencije sponatne magnetizacije za izotropni Hajzenbergov antiferomagnet koji opisuje strukturu tipa  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  korišćićemo hamiltonijan (2.2), u kojem ćemo uzeti da je spinska anizotropija jednaka nuli ( $\eta = 0$ ) i koji ćemo uopštiti uvođenjem interakcije izmene između *svih* spinova u ravni. Pod tim pretpostavkama, hamiltonijan (2.2) se može

zapisati u sledećem obliku:

$$\begin{aligned} \hat{H} = & \frac{1}{2} \sum_{\substack{\mathbf{n}_\alpha, \mathbf{m}_\beta \\ \alpha, \beta = a, b}} J(\mathbf{n}_\alpha - \mathbf{m}_\beta) \hat{\mathbf{S}}_{\mathbf{n}_\alpha}^{(\alpha)} \cdot \hat{\mathbf{S}}_{\mathbf{m}_\beta}^{(\beta)} + J_\perp^{(1)} \sum_{\substack{\mathbf{n}_\alpha, \delta_\perp^{\alpha\beta} \\ \alpha, \beta = a, b; \alpha \neq \beta}} \hat{\mathbf{S}}_{\mathbf{n}_\alpha}^{(\alpha)} \cdot \hat{\mathbf{S}}_{\mathbf{n}_\alpha + \delta_\perp^{\alpha\beta}}^{(\beta)} + \\ & + J_\perp^{(2)} \sum_{\substack{\mathbf{n}_\alpha, \delta_\perp^{\alpha\alpha} \\ \alpha = a, b}} \hat{\mathbf{S}}_{\mathbf{n}_\alpha}^{(\alpha)} \cdot \hat{\mathbf{S}}_{\mathbf{n}_\alpha + \delta_\perp^{\alpha\alpha}}^{(\alpha)} - h \sum_{\substack{\mathbf{n}_\alpha \\ \alpha = a, b}} \hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha}^z e^{-i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{n}_\alpha}. \end{aligned} \quad (6.1)$$

Ovde  $\mathbf{n}_\alpha$  određuje položaj spina u podrešetki  $\alpha$ ,  $\delta_\perp^{\alpha\alpha/\alpha\beta}$  povezuje dva fero- odnosno antiferomagnetno sparena spina u dve susedne ravni,  $h = g\mu_B\mathcal{H}$  gde je  $\mathcal{H}$  spoljašnje magnetno polje, a vektor  $\mathbf{Q}$  se bira tako da je  $\exp(-i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{n}) = \pm 1$  u zavisnosti od toga da li  $\mathbf{n}$  povezuje čvorove u istoj ili različitim podrešetkama. Podsetimo se da je u ortorombnoj fazi  $J_\perp^{(1)} \equiv J_\perp^{ab} \neq J_\perp^{(2)} \equiv J_\perp^{aa}$ , dok je usled simetrije u tetragonalnoj fazi  $J_\perp^{ab} = J_\perp^{aa} = J_\perp$ . Takođe, treba istaći da naš model uzima u obzir eksperimentalnu činjenicu da je interakcija između najbližih suseda u dve susedne ravni antiferomagnetna ( $J_\perp^{(i)} > 0$ ,  $i = 1, 2$ ). Najzad, naglasimo da su rezultati koje ćemo dobiti korektni za spinski model kod koga je u obzir uzeta samo interakcija između najbližih suseda u susednim ravnima, što je opravdano eksperimentalnim rezultatima prema kojima je interplanarna interakcija za nekoliko redova veličine manja od intraplanarne. Formalno, uvođenje sledećih suseda u  $z$ -pravcu, izmenilo bi rezultate.

Početna tačka u računu biće Bogoljubovljeva nejednakost

$$1/2 \langle \{\hat{A}, \hat{A}^\dagger\} \rangle \langle [ [\hat{C}, \hat{H}], \hat{C}^\dagger] \rangle \geq k_B T | \langle [\hat{C}, \hat{A}] \rangle |^2, \quad (6.2)$$

gde [...] označava komutator, {...} antikomutator,  $\hat{H}$  je hamiltonijan sistema,  $\langle \dots \rangle$  označava srednju vrednost po kanonskom ansamblu, dok su  $\hat{A}$  i  $\hat{C}$  proizvoljni operatori koji se biraju tako da data srednja vrednost postoji. Pažljiv izbor ovih operatora vodi ka MWT.

Za potrebe našeg dokaza, za operatore  $\hat{C}$  i  $\hat{A}$  pogodno je uzeti

$$\hat{C}(\mathbf{k}) = \hat{S}_{\mathbf{k}}^{+(a)} + \hat{S}_{\mathbf{k}}^{+(b)}; \quad \hat{A}(\mathbf{k}) = \hat{S}_{-\mathbf{k}}^{-(a)} - \hat{S}_{-\mathbf{k}}^{-(b)}. \quad (6.3)$$

Sada se može pristupiti izračunavanju komutatora i antikomutatora u nejednakosti (6.2). Pri tome je najzametniji deo računa odrediti dvostruki komutator  $\langle [ [\hat{C}, \hat{H}], \hat{C}^\dagger] \rangle$  i izvršiti njegovu majorizaciju, što se mora uraditi veoma pažljivo, s obzirom na činjenicu da se parcijalne sume korelacionih funkcija koje se pojavljuju u tom komutatoru majorizuju na različite načine, u zavisnosti od toga da li spinovi pripadaju istoj ili različitim podrešetkama, što predstavlja suštinsku razliku u odnosu na prilaz Mermina i Vagnera.

Polazeći od izraza (6.3) za operatore  $\hat{C}$  i  $\hat{A}$  i uvodeći  $\sigma = \langle \hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{z(a)} \rangle = \langle -\hat{S}_{\mathbf{n}_b}^{z(b)} \rangle$ , dobijamo

$$\langle [\hat{C}, \hat{A}] \rangle = 2 N \sigma, \quad (6.4)$$

gde  $N$  označava ukupan broj magnetnih jona<sup>1</sup>.

Gornji izrazi vode ka sledećem obliku Bogoljubovljeve nejednakosti:

$$\langle \{\hat{A}, \hat{A}^\dagger\} \rangle \geq \frac{8 k_B T N^2 \sigma^2}{\langle [ [\hat{C}, \hat{H}], \hat{C}^\dagger] \rangle}, \quad (6.5)$$

<sup>1</sup>Kako je prethodna relacija zadovoljena za bilo koje  $\mathbf{k}$ , zavisnost od talasnog vektora se u daljoj notaciji eksplicitno ne navodi.

gde je antikomutator  $\{\hat{A}, \hat{A}^\dagger\}$  dat sledećim izrazom:

$$\{\hat{A}, \hat{A}^\dagger\} = \sum_{\substack{\mathbf{n}_\alpha, \mathbf{m}_\alpha \\ \alpha=a,b}} e^{-i\mathbf{k}(\mathbf{n}_\alpha - \mathbf{m}_\alpha)} \{\hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha}^{-(\alpha)}, \hat{S}_{\mathbf{m}_\alpha}^{+(\alpha)}\} - \sum_{\substack{\mathbf{n}_\alpha, \mathbf{n}_\beta \\ \alpha, \beta=a,b, \alpha \neq \beta}} e^{-i\mathbf{k}(\mathbf{n}_\alpha - \mathbf{n}_\beta)} \{\hat{S}_{\mathbf{n}_\beta}^{-(\beta)}, \hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha}^{+(\alpha)}\}. \quad (6.6)$$

Usrednjavajući, sumirajući po  $\mathbf{k}$  i uzimajući u obzir da je  $\mathbf{n}_a \neq \mathbf{n}_b$ , dolazimo do izraza

$$\begin{aligned} \sum_{\mathbf{k}} \langle \{\hat{A}, \hat{A}^\dagger\} \rangle &= \frac{N}{2} \sum_{\substack{\mathbf{n}_\alpha, \\ \alpha=a,b}} \langle \{\hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha}^{-(\alpha)}, \hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha}^{+(\alpha)}\} \rangle = \\ &= 2N \sum_{\mathbf{n}_\alpha} \langle S(S+1) - (\hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha}^z)^2 \rangle \leq 2N^2 S(S+1). \end{aligned} \quad (6.7)$$

Za dvostruki komutator dobija se izraz:

$$\begin{aligned} &\langle [ [\hat{C}, \hat{H}], \hat{C}^\dagger] \rangle = \\ &= \sum_{\substack{\rho_{\alpha\beta} \\ \alpha, \beta=a,b}} J(\rho_{\alpha\beta}) (e^{-i\mathbf{k} \cdot \rho_{\alpha\beta}} - 1) \sum_{\mathbf{n}_\alpha} \langle (2 \hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha}^{z(\alpha)} \hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha + \rho_{\alpha\beta}}^{z(\beta)} + \hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha}^{-(\alpha)} \hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha + \rho_{\alpha\beta}}^{+(\beta)}) \rangle + \\ &+ J_\perp^{(1)} \sum_{\substack{\delta_\perp^{\alpha\beta} \\ \alpha, \beta=a,b, \alpha \neq \beta}} (e^{i\mathbf{k} \delta_\perp^{\alpha\beta}} - 1) \sum_{\mathbf{n}_\alpha} \langle (2 \hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha}^{z(\alpha)} \hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha + \delta_\perp^{\alpha\beta}}^{z(\beta)} + \hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha}^{-(\alpha)} \hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha + \delta_\perp^{\alpha\beta}}^{+(\beta)}) \rangle + \\ &+ J_\perp^{(2)} \sum_{\substack{\delta_\perp^{\alpha\alpha} \\ \alpha=a,b}} (e^{i\mathbf{k} \delta_\perp^{\alpha\alpha}} - 1) \sum_{\mathbf{n}_\alpha} \langle (2 \hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha}^{z(\alpha)} \hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha + \delta_\perp^{\alpha\alpha}}^{z(\alpha)} + \hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha}^{+(\alpha)} \hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha + \delta_\perp^{\alpha\alpha}}^{-(\alpha)}) \rangle + \\ &+ 2h \left( \sum_{\mathbf{n}_a} \hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{z(a)} - \sum_{\mathbf{n}_b} \hat{S}_{\mathbf{n}_b}^{z(b)} \right), \end{aligned} \quad (6.8)$$

gde je  $\rho_{\alpha\beta} = \mathbf{n}_\alpha - \mathbf{n}_\beta$ .

Sledeći korak je majorizacija ovog izraza. U tom cilju, pogledajmo opšti izraz za parcijalnu sumu:

$$\begin{aligned} &\sum_{\mathbf{n}_\alpha} \langle (2 \hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha}^{z(\alpha)} \hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha + \delta_\perp^{\alpha\beta}}^{z(\beta)} + \hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha}^{-(\alpha)} \hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha + \delta_\perp^{\alpha\beta}}^{+(\beta)}) \rangle = \\ &= \frac{8}{N^2} \sum_{\mathbf{n}_\alpha} \sum_{\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2} \langle (\hat{S}_{\mathbf{k}_1}^{z(\alpha)} \hat{S}_{\mathbf{k}_2}^{z(\beta)} + \frac{1}{4} \{\hat{S}_{\mathbf{k}_1}^{+(\alpha)}, \hat{S}_{\mathbf{k}_2}^{-(\beta)}\}) \rangle e^{i(\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2) \cdot \mathbf{n}_\alpha + i\mathbf{k}_2 \cdot \delta_\perp^{\alpha\beta}} = \\ &= \frac{4}{N} \sum_{\mathbf{k}} \langle (\hat{S}_{\mathbf{k}}^{z(\alpha)} \hat{S}_{-\mathbf{k}}^{z(\beta)} + \frac{1}{4} \{\hat{S}_{\mathbf{k}}^{+(\alpha)}, \hat{S}_{-\mathbf{k}}^{-(\beta)}\}) \rangle e^{-i\mathbf{k} \cdot \delta_\perp^{\alpha\beta}}. \end{aligned} \quad (6.9)$$

Ako je  $\alpha = \beta$ , prateći Mermin-Vagnerov način zaključivanja, dobijamo

$$\begin{aligned} &\frac{4}{N} \sum_{\mathbf{k}} \langle (\hat{S}_{\mathbf{k}}^{z(\alpha)} \hat{S}_{-\mathbf{k}}^{z(\beta)} + \frac{1}{4} \{\hat{S}_{\mathbf{k}}^{+(\alpha)}, \hat{S}_{-\mathbf{k}}^{-(\beta)}\}) \rangle e^{-i\mathbf{k} \cdot \delta_\perp^{\alpha\beta}} \leq \\ &\leq \frac{4}{N} \sum_{\mathbf{k}} \langle (\hat{S}_{\mathbf{k}}^{z(\alpha)} \hat{S}_{-\mathbf{k}}^{z(\beta)} + \frac{1}{4} \{\hat{S}_{\mathbf{k}}^{+(\alpha)}, \hat{S}_{-\mathbf{k}}^{-(\beta)}\}) \rangle = \\ &= \frac{4}{N} \sum_{\mathbf{n}_\alpha, \mathbf{n}_\beta} \langle (\hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha}^{z(\alpha)} \hat{S}_{\mathbf{n}_\beta}^{z(\beta)} + \frac{1}{4} \{\hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha}^{+(\alpha)}, \hat{S}_{\mathbf{n}_\beta}^{-(\beta)}\}) \rangle \sum_{\mathbf{k}} e^{-i\mathbf{k} \cdot (\mathbf{n}_\alpha - \mathbf{n}_\beta)} = \\ &= 2 \sum_{\mathbf{n}_\alpha, \mathbf{n}_\beta} \langle (\hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha}^{z(\alpha)} \hat{S}_{\mathbf{n}_\beta}^{z(\beta)} + \frac{1}{4} \{\hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha}^{+(\alpha)}, \hat{S}_{\mathbf{n}_\beta}^{-(\beta)}\}) \rangle, \quad \mathbf{n}_\alpha = \mathbf{n}_\beta. \end{aligned} \quad (6.10)$$

Međutim, za  $\alpha \neq \beta$ , pretpostavljajući da je poslednji član u (6.9) pozitivan, dobijamo da suma po  $\mathbf{k}$  iščezava, vodeći ka esencijalnom zaključku

$$\sum_{\mathbf{n}_a} \left\langle \left( 2 \hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{z(a)} \hat{S}_{(\mathbf{n}_a)+\delta_{\perp}^{ab}}^{z(b)} + \hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{-(a)} \hat{S}_{\mathbf{n}_a+\delta_{\perp}^{ab}}^{+(b)} \right) \right\rangle \leq 0. \quad (6.11)$$

U cilju demonstriranja verodostojnosti ovih rezultata, razmotrićemo prosti 3D antiferomagnet sa dve podrešetke, u aproksimaciji najbližih suseda. U tom slučaju,

$$\langle [[\hat{C}, \hat{H}], \hat{C}^{\dagger}] \rangle = \sum_{\lambda_{ab}} J \left( e^{-i\mathbf{k} \cdot \lambda_{ab}} - 1 \right) \sum_{\mathbf{n}_a} \left\langle 2 \hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{z(a)} \hat{S}_{\mathbf{n}_a+\lambda_{ab}}^{z(b)} + \hat{S}_{\mathbf{n}_a}^{-(a)} \hat{S}_{\mathbf{n}_a+\lambda_{ab}}^{+(b)} \right\rangle. \quad (6.12)$$

Poznato je da ovaj izraz mora biti pozitivan zbog svojstava unutrašnjeg Bogoljubovljevoeg proizvoda, a za  $J > 0$  ovo je ispunjeno samo ako je parcijalna suma korelacionih funkcija negativna.

Vratimo se sada analizi izraza (6.8). Prvi član sadrži interakcije između spinova u istoj ravni. Vodeća interakcija će biti ona između najbližih suseda, sa negativnom parcijalnom sumom korelacionih funkcija (prema (6.11)). Kako cela suma mora biti pozitivna, izmenićeemo redosled članova u zagradi ( $\exp(-i\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\rho}_{\alpha\beta}) - 1$ ) i uzeti apsolutnu vrednost negativne sume, a zatim majorizovati istu sumom apsolutnih vrednosti (slično postupku primenjenom u dokazu MWT).

U drugom članu nećemo izvršiti majorizaciju, već ćemo samo pregrupisati članove:

$$\begin{aligned} & \left\langle J_{\perp}^{(1)} \sum_{\substack{\mathbf{n}_\alpha, \delta_{\perp}^{\alpha\beta} \\ \alpha \neq \beta}} \left( e^{i\mathbf{k} \cdot \delta_{\perp}^{\alpha\beta}} - 1 \right) \left( 2 \hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha}^{z(\alpha)} \hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha+\delta_{\perp}^{\alpha\beta}}^{z(\beta)} + \hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha}^{-(\alpha)} \hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha+\delta_{\perp}^{\alpha\beta}}^{+(\beta)} \right) \right\rangle = \\ & = 2 J_{\perp}^{(1)} \sum_{\substack{\delta_{\perp}^{\alpha\beta} \\ \alpha \neq \beta}} \left( 1 - e^{i\mathbf{k} \cdot \delta_{\perp}^{\alpha\beta}} \right) \left| \sum_{\mathbf{n}_\alpha} \left[ \left\langle \hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha}^{z(\alpha)} \hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha+\delta_{\perp}^{\alpha\beta}}^{z(\beta)} \right\rangle + \frac{1}{4} \left\langle \left\{ \hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha+\delta_{\perp}^{\alpha\beta}}^{+(\beta)}, \hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha}^{-(\alpha)} \right\} \right\rangle \right] \right|, \end{aligned} \quad (6.13)$$

gde smo iskoristili (6.11). U trećem članu ćemo iskoristiti činjenicu da interagujući spinovi pripadaju istoj podrešetki, te da je suma korelacionih funkcija pozitivna (videti (6.10)). Uzimajući u obzir ove zaključke, izraz (6.8) se može majorizovati kao

$$\begin{aligned} \langle [[\hat{C}, \hat{H}], \hat{C}^{\dagger}] \rangle(\mathbf{k}) & \leq 2 \sum_{\substack{\boldsymbol{\rho}_{\alpha\beta} \\ \alpha, \beta = a, b}} J(\boldsymbol{\rho}_{\alpha\beta}) (1 - e^{-i\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\rho}_{\alpha\beta}}) \sum_{\mathbf{n}_\alpha} \left| \left\langle \hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha}^{z(\alpha)} \hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha+\boldsymbol{\rho}_{\alpha\beta}}^{z(\beta)} \right\rangle + \right. \\ & + \frac{1}{4} \left\langle \left\{ \hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha}^{+(\alpha)}, \hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha+\boldsymbol{\rho}_{\alpha\beta}}^{-(\beta)} \right\} \right\rangle \left. \right| + 2J_{\perp}^{(1)} \sum_{\substack{\delta_{\perp}^{\alpha\beta} \\ (\alpha \neq \beta)}} (1 - e^{-i\mathbf{k} \cdot \delta_{\perp}^{\alpha\beta}}) \left| \sum_{\mathbf{n}_\alpha} \left[ \left\langle \hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha}^{z(\alpha)} \hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha+\delta_{\perp}^{\alpha\beta}}^{z(\beta)} \right\rangle + \right. \right. \\ & + \frac{1}{4} \left\langle \left\{ \hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha}^{+(\alpha)}, \hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha+\delta_{\perp}^{\alpha\beta}}^{-(\beta)} \right\} \right\rangle \left. \right| + 2J_{\perp}^{(2)} \sum_{\delta_{\perp}^{\alpha\alpha}} (e^{-i\mathbf{k} \cdot \delta_{\perp}^{\alpha\alpha}} - 1) \sum_{\mathbf{n}_\alpha} \left[ \left\langle \hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha}^{z(\alpha)} \hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha+\delta_{\perp}^{\alpha\alpha}}^{z(\alpha)} \right\rangle + \right. \\ & \left. + \frac{1}{4} \left\langle \left\{ \hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha}^{+(\alpha)}, \hat{S}_{\mathbf{n}_\alpha+\delta_{\perp}^{\alpha\alpha}}^{-(\alpha)} \right\} \right\rangle \right] + 2Nh\sigma. \end{aligned} \quad (6.14)$$

Da bismo majorizovali sume koje se pojavljuju u prethodnom izrazu, koristimo relaciju  $\langle (\hat{S}_{\mathbf{n}_a}^i \pm \hat{S}_{\mathbf{m}_b}^i)^2 \rangle \geq 0$  ( $i = x, y, z$ ) i činjenicu da su podrešetke ekvivalentne  $\langle (\hat{S}_{\mathbf{n}_a}^i)^2 \rangle = \langle (\hat{S}_{\mathbf{m}_b}^i)^2 \rangle$ , odakle sledi

$$\left| \left\langle \hat{S}_{p, \mathbf{n}_\alpha}^i \hat{S}_{p, \mathbf{m}_{\alpha/\beta}}^i \right\rangle \right| \leq \left\langle \left( \hat{S}_{p, \mathbf{n}_\alpha}^i \right)^2 \right\rangle. \quad (6.15)$$



Uzimajući u obzir jednačinu (6.15) i činjenicu da je  $\langle (\hat{S}_{\mathbf{n}_a}^i)^2 \rangle \leq S(S+1)$ , zaključujemo da su parcijalne sume korelacionih funkcija u izrazu (6.14) manje ili jednake sa  $NS(S+1)$ , usled čega izraz (6.14) postaje

$$\begin{aligned} & \langle [ [\hat{C}, \hat{H}], \hat{C}^\dagger ] \rangle(\mathbf{k}) \leq 2Nh\sigma + 2NS(S+1) \times \\ & \times \left[ \sum_{\rho_{\alpha\beta}} |J(\rho_{\alpha\beta})| (1 - e^{-i\mathbf{k} \cdot \rho_{\alpha\beta}}) + J_{\perp}^{(1)} \sum_{\delta_{\perp}^{\alpha\beta}} (1 - e^{-i\mathbf{k} \cdot \delta_{\perp}^{\alpha\beta}}) + J_{\perp}^{(2)} \sum_{\delta_{\perp}^{\alpha\alpha}} (e^{-i\mathbf{k} \cdot \delta_{\perp}^{\alpha\alpha}} - 1) \right] = \\ & = 2NS(S+1) \left[ \sum_{\rho_{\alpha\beta}} |J(\rho_{\alpha\beta})| (1 - \cos \mathbf{k}_{\parallel} \cdot \rho_{\alpha\beta}) + J_{\perp}^{(1)} \sum_{\delta_{\perp}^{\alpha\beta}} (1 - \cos \mathbf{k} \cdot \delta_{\perp}^{\alpha\beta}) + \right. \\ & \left. + J_{\perp}^{(2)} \sum_{\delta_{\perp}^{\alpha\alpha}} (\cos \mathbf{k} \cdot \delta_{\perp}^{\alpha\alpha} - 1) \right] + 2Nh\sigma. \end{aligned} \quad (6.16)$$

Ovaj izraz majorizovaćemo (slično postupku korišćenom pri dokazivanju MWT) upotrebom relacija

$$1 - \cos \mathbf{k}_{\parallel} \cdot \rho_{\alpha\beta} \leq \frac{1}{2} k_{\parallel}^2 \rho_{\alpha\beta}^2, \quad 1 - \cos \mathbf{k} \cdot \delta_{\perp}^{\alpha\beta} \leq \frac{1}{2} k^2 (\delta_{\perp}^{\alpha\beta})^2, \quad (6.17)$$

unutar  $\text{CuO}_2$  ravni i između dve ravni, respektivno. Nakon majorizacije, izraz (6.16) postaje

$$\begin{aligned} & \langle [ [\hat{C}, \hat{H}], \hat{C}^\dagger ] \rangle(\mathbf{k}) \leq 2NS(S+1) \times \\ & \times \left[ \left( \sum_{\rho_{\alpha\beta}} |J(\rho_{\alpha\beta})| \rho_{\alpha\beta}^2 \right) k_{\parallel}^2 / 2 + \left( J_{\perp}^{(1)} \sum_{\delta_{\perp}^{\alpha\beta}} (\delta_{\perp}^{\alpha\beta})^2 - J_{\perp}^{(2)} \sum_{\delta_{\perp}^{\alpha\alpha}} (\delta_{\perp}^{\alpha\alpha})^2 \right) k^2 / 2 \right] + 2Nh\sigma. \end{aligned} \quad (6.18)$$

Za **tetragonalnu** strukturu, gde važi  $J_{\perp}^{(1)} = J_{\perp}^{(2)}$  i  $|\delta_{\perp}^{ab}| = |\delta_{\perp}^{aa}|$ , prethodni izraz se pojednostavljuje:

$$\begin{aligned} & \langle [ [\hat{C}, \hat{H}], \hat{C}^\dagger ] \rangle(\mathbf{k}) \leq 2NS(S+1) \left( \sum_{\rho_{\alpha\beta}} |J(\rho_{\alpha\beta})| \rho_{\alpha\beta}^2 \right) k_{\parallel}^2 / 2 + 2Nh\sigma = \\ & = NS(S+1) \left( \sum_{\rho} |J(\rho)| \rho^2 \right) k_{\parallel}^2 + 2Nh\sigma = NS(S+1) A k_{\parallel}^2 + 2Nh\sigma, \end{aligned} \quad (6.19)$$

gde je veličina  $A$  data sa  $A = \sum_{\rho} |J(\rho)| \rho^2$ .

Sumirajući izraz (6.5) po  $\mathbf{k}$  i koristeći jednačine (6.7) i (6.19), dolazimo do sledećeg izraza:

$$2N^2S(S+1) \geq 8k_B T \sigma^2 N^2 \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{1}{AS(S+1)k_{\parallel}^2 + 2Nh\sigma}. \quad (6.20)$$

S obzirom da funkcija pod sumom ne zavisi od  $k_z$ , nakon prelaska na integral i integracije po  $k_z$  integracija po  $\mathbf{k}$  će se redukovati na dve dimenzije, te dobijamo:

$$\sigma^2 \leq \frac{S(S+1)}{4k_B T} \left\{ \frac{a^2}{(2\pi)^2} \int_{IBZ} d^2\mathbf{k} \frac{1}{Bk_{\parallel}^2 + 2Nh\sigma} \right\}^{-1}, \quad (6.21)$$

gde je  $a$  konstanta rešetke u  $\text{CuO}_2$  ravni, a  $B = AS(S+1)$ .

Ako integraciju izvršimo po sferi radijusa  $k_0$  koja ima zapreminu jednaku zapremini prve Brillouene zone, dobićemo sledeći izraz za magnetizaciju tetragonalne strukture:

$$\sigma^2 \leq \frac{S(S+1)}{k_B T} \frac{\pi B}{a^2} \left\{ \ln \left( 1 + \frac{B k_0^2}{2Nh\sigma} \right) \right\}^{-1}. \quad (6.22)$$

U limitu  $h \rightarrow 0$ ,  $\sigma^2 \leq 0$ , odakle zaključujemo da je  $\sigma = 0$ , tj. dugodometno uređenje ne postoji na bilo kojoj konačnoj temperaturi  $T \neq 0$  za izotropnu tetragonalnu strukturu tipa  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ .

Nasuprot tome, za **ortorombnu** strukturu (a to je kristalografski sistem u kome  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  kristališe na temperaturama ispod Nelove) drugi faktor u zagradi u izrazu (6.18) nije jednak nuli, usled čega nejednakost (6.19) dobija oblik

$$\langle [ [\hat{C}, \hat{H}], \hat{C}^\dagger ] \rangle(\mathbf{k}) \leq N S (S + 1) [ A k_{\parallel}^2 + D k^2 ] + 2 N h \sigma, \quad (6.23)$$

gde je  $D = J_{\perp}^{(1)} \sum_{\delta_{\perp}^{ab}} (\delta_{\perp}^{ab})^2 - |J_{\perp}^{(2)}| \sum_{\delta_{\perp}^{aa}} (\delta_{\perp}^{aa})^2$ . Osnovna razlika u odnosu na proceduru sprovedenu za tetragonalnu strukturu jeste da se ovde integracija ne može svesti na dvodimenzionalnu, odakle sledi konvergencija integrala analognog onom u izrazu (6.21) i konačna spontana magnetizacija veća od nule, sve do neke određene temperature (Nelove temperature).

### 6.1.1 Poređenje sa strukturama tipa $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$ i $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$

Potvrdu zaključka izvedenog u prethodnom poglavlju nalazimo i kod jedinjenja  $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$  ( $T_N = 251 - 310 \text{ K}$ ), razmatranom u radu Keimer *et al.* [10]. Neutronska difrakcija na ovom jedinjenju pokazala je da  $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$  kristališe u tetragonalnoj fazi koja je izostrukturna sa visokotemperaturnim  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ , ali, za razliku od potonjeg, kod  $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$  nije registrovan strukturni prelaz u ortorombnu fazu, tj. ovo jedinjenje zadržava tetragonalnu strukturu bar do temperature 10 K [10]. Usled toga se, analogno izotropnoj tetragonalnoj strukturi tipa  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ , i kod izotropnog modela strukture tipa  $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$  međuravanske interakcije poništavaju. S obzirom da kod  $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$  nema prelaska u ortorombnu strukturu koja kod  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  daje  $T_N > 0$ , to je kod  $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$  neophodno uvesti anizotropiju (u radu [10] uvodi se magnetna dipol-dipol interakcija) da bi se dobilo 3D antiferomagnetno uređenje na konačnim temperaturama.

Interesantno je uporediti  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  sa  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$ , jedinjenjem koje kristališe u tetragonalnom kristalografskom sistemu, ali, za razliku od tetragonalne strukture tipa  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ , poseduje spontanu magnetizaciju i na konačnim temperaturama. Objašnjenje leži u činjenici da su najbliži susedi u YBCO-u uvek antiferomagnetno uređeni. Naime, kod tetragonalne strukture tipa  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  postoji frustracija usled kompeticije antiferomagnetne interakcije između najbližih suseda u susednim ravnima i mnogo jače antiferomagnetne interakcije najbližih suseda unutar ravni, usled čega je polovina parova spinova u susednim ravnima fero- a druga polovina antiferomagnetno uređena, što vodi ka dvodimenzionalnosti integrala (6.21). Za razliku od lantanida, kod YBCO-a postoji dvoslojni motiv, tako da u pravcu normalnom na taj motiv postoje dve interakcije: unutar jednog motiva i između dva susedna motiva. U oba slučaja interakcija između najbližih suseda je antiferomagnetna i, usled nepostojanja frustracije, svi parovi najbližih suseda se sparuju antiferomagnetno. Kao posledica toga, u slučaju modela kojima opisujemo magnete tipa YBCO-a, integracija će posedovati trodimenzionalni karakter, što daje dugodometno uređenje do neke konačne Nelove temperature.

# Poglavlje 7

## Zaključak

Jedan od osnovnih zadataka u izučavanju visokotemperaturske superprovodnosti, kako se danas smatra, predstavlja rasvetljavanje veze između magnetizma bakarnih oksida sa visokom kritičnom temperaturom i superprovodnosti koju ispoljavaju. U tom cilju, ova jedinjenja ispituju se kako u superprovodnoj, tako i u nedopiranoj fazi, kako bi se poređenjem tih faza razdvojili efekti koji potiču od superprovodnosti od onih karakterističnih za nedopirano stanje. Ispitivanje „roditeljskih” jedinjenja visokotemperaturskih superprovodnika pokazalo je da se ona karakterišu prisustvom jedne ili više bliskih  $\text{CuO}_2$  ravni unutar kojih je uspostavljeno dugodometno antiferomagnetno uređenje, pri čemu je intraplanarna interakcija izmene za par redova veličine veća od interplanarne. Stoga je tokom poslednjih decenija u literaturi istraživanju kvazidvodimenzionalnih nedopiranih kupratnih antiferomagneta, kako eksperimentalnom, tako i teorijskom, posvećena velika pažnja.

Ova doktorska disertacija motivisana je brojnim rezultatima koji se odnose pre svega na  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ , a potom na  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$  i druge kupratne antiferomagnete. Ona predstavlja pokušaj iscrpne analize magnetnih i termodinamičkih svojstava date grupe jedinjenja u cilju utvrđivanja vodećih interakcija izmene i upoređivanja njihovog značaja, ispitivanja egzistencije dugodometnog uređenja u zavisnosti od parametara sistema, kao i određivanja domena primenljivosti različitih teorija, jednom rečju - sticanja uvida u ono što je zajedničko i ono što razlikuje posmatrana jedinjenja, a sve zarad izvođenja što opštijih zaključaka koji se odnose na njihovo magnetno ponašanje. U ovom poglavlju iznećemo ukratko saznanja o navedenom tipu jedinjenja do kojih je takva analiza dovela.

Najpre, ispitivanje magnonskog spektra u okviru GF metoda i teorije linearnih spinskih talasa potvrdilo je važenje LSW teorije na niskim temperaturama, gde se njeni rezultati poklapaju sa rezultatima GF metoda. Dalje, analizirajući ponašanje kritične temperature  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ , pokazali smo da je za 3D dugodometno antiferomagnetno uređenje ovog jedinjenja ključna *ne trodimenzionalnost* (tj.  $\lambda_{\perp} \neq 0$ ), već *spinska anizotropija* u ravni, a da interplanarna interakcija postaje značajna tek za vrednosti koje nisu karakteristične za ove sisteme. Usled toga, Nelova temperatura se neznatno menja sa promenom parametra međuravanske interakcije. Ovakvi zaključci su u skladu sa opštim tvrđenjima koja se navode u literaturi, a prema kojima se  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  može izuzetno dobro aproksimirati dvodimenzionalnim Hajzenbergovim antiferomagnetom.

Takođe, dali smo odgovor na pitanje o znaku interakcije između drugih (trećih) suseda u ravni, o kojem u literaturi postoje nesuglasice. S obzirom da mnoštvo, kako modela, tako i parametara, manje ili više tačno opisuje eksperimentalno određen spektar elementarnih eksitacija, pokazali smo da je analiza Nelove temperature ta koja uvodi strogu restrikciju na njihov izbor. Prema tome, znak interakcije odredili smo računajući Nelovu temperaturu, odakle sledi da se korektne vrednosti za istu dobijaju za antiferomagnetnu interakciju drugih, odnosno trećih suseda ( $J_{2/3} > 0$ ). Ipak, drugi (treći) susedi su feromagnetno uređeni jer je uređenje u ravnima diktirano za red veličine većom interakcijom prvih suseda. Dakle,  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  je usled kompeticije interakcija različitog znaka kako u ravni, tako i između susednih ravni, frustriran sistem, kod kojeg je *uticaj frustracije*, kvantitativno uračunat kroz prisustvo interakcije drugih (trećih) suseda u modelnom hamiltonijanu, *od znatno većeg značaja u odnosu na dimenzionalnost*, kako pokazuju analize različitih svojstava, na primer magnetizacije i magnonskog udela u specifičnoj toploti.

Dalje, ako zanemarimo interplanarnu interakciju u  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ , ponašanje tetragonalne i ortorombne strukture je veoma slično, kako na niskim (magnonski spektar), tako i na visokim temperaturama (ponašanje Nelove temperature). Ono što unosi razliku između te dve strukture je temperaturska zavisnost Nelove temperature 3D modela za iščezavajuće malu spinsku anizotropiju u ravni ( $\eta \rightarrow 0$ ). U tom slučaju, Nelova temperatura tetragonalnog modela teži nuli, dok kod ortorombnog modela konvergira ka nekoj konačnoj vrednosti različitoj od nule. Ovo se može analitički dokazati polazeći od Bogoljubovljeve nejednakosti, a posledica je osobenosti tetragonalne strukture, tj. međusobnog poništavanja fero- i antiferomagnetne interakcije između datog spina i njemu najbližih spinova u susednim ravnima koji se, za razliku od ortorombne strukture, nalaze na jednakim rastojanjima od posmatranog spina. Do ovakvog potiranja interakcija dolazi i kod  $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$ , dok se kod  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$  ne javlja, s obzirom da je kod tog jedinjenja interakcija između datog spina i *svih* njegovih suseda antiferomagnetna. Pri tome je bitno naglasiti da ovaj zaključak nije u kontradikciji sa Mermin-Vagnerovom teoremom kojim nisu obuhvaćeni 3D izotropni sistemi. Takođe treba napomenuti da se gornje zapažanje ne može posmatrati kao proširenje Mermin-Vagnerove teoreme na 3D tetragonalne izotropne sisteme, s obzirom da se u toj teoremi egzistencija spontane magnetizacije isključuje na osnovu *dimenzionalnosti* sistema, dok se u našoj analizi polazi od razlike u *strukтури*.

Eksperimentalni rezultati koji se odnose na temperatursku zavisnost magnetizacije podrešetke  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  i  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.15}$  podstakli su nas da u okviru metoda GF ispitamo magnetizaciju ovih jedinjenja. Zaključili smo da GF metod u tjablikovskoj aproksimaciji daje dobro slaganje sa eksperimentom u širokom temperaturskom intervalu od apsolutne nule do Nelove temperature. Za  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  sproveli smo račun i u okviru LSW teorije i potvrdili njeno važenje samo u oblasti niskih temperatura. Od posebnog je značaja analiza uticaja interakcije drugih suseda na magnetizaciju podrešetke: pokazali smo da uračunavanje parametra NNN interakcije kod  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  dovodi do znatnog sniženja magnetizacije podrešetke u osnovnom stanju (za oko 15%), kao i da magnetizacija na datoj temperaturi opada sa porastom parametra  $\lambda_2$ . Nasuprot tome, zavisnost magnetizacije od dimenzionalnosti je kod oba jedinjenja neznatna, potvrđujući zaključak o njihovoj kvazi-dvodimenzionalnosti. Ispitivanjem niskotemperaturskog ponašanja magnetizacije  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  u dugotalasnoj aproksimaciji dobili smo kvadratni zakon opadanja magnetizacije, koji je u skladu sa eksperimentalnim rezultatima i posredno ukazuje na opravdanost zanemarivanja interakcije Đalošinski-Morija u polaznom hamiltonijanu. Najzad, analiza ponašanja magnetizacije na temperaturama bliskim temperaturi faznog prelaza daje za kritični eksponent  $\beta$  poznati MFA rezultat  $1/2$ , što ukazuje na neophodnost sofisticiranih

ranijeg prilaza (na primer, primene teorije renorm-grupe) visokotemperaturskoj oblasti.

Jedno od svojstava kojem je u ovoj doktorskoj disertaciji posvećena značajna pažnja jeste magnonski doprinos specifičnoj toploti posmatranih jedinjenja, čija procena omogućava određivanje fononskog udela, značajnog pri ispitivanju superprovodnih uzoraka. Koristeći metod Grinovih funkcija u tjablikovskoj aproksimaciji dobili smo magnonsku specifičnu toplotu za  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  i  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$  u temperaturskom intervalu  $0 \leq T/T_N < 1$ , sa faznim prelazom drugog reda na Nelovoj temperaturi. Poređenje sa eksperimentalnim vrednostima ukazuje na to da magnetni doprinos ukupnoj specifičnoj toploti  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  nije zanemarljivo mali, suprotno predviđanjima pojednostavljenog modela sa interakcijom prvih suseda korišćenog često u okviru LSW teorije. Tako se, za razliku od unutrašnjih energija, specifična toplota u GF pristupu ne svodi na LSW vrednosti na niskim temperaturama, usled temperaturski zavisnih magnonskih energija u okviru RPA. Analizirajući GF rezultat za specifičnu toplotu, zaključujemo da je i za ovo svojstvo uticaj planarne frustracije u  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  znatno izraženiji od uticaja trodimenzionalnosti. Ispitivanje niskotemperaturskog ponašanja ukazuje da se za naš model  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  magnonska specifična toplota ponaša kao  $C_V^{GF}(T) \sim AT + BT^3$ , što se razlikuje od procene LSW teorije  $C_V^{LSW}(T) \sim T^3$ . U blizini kritične temperature, specifična toplota se ponaša kao  $(1 - T/T_N)^{-\frac{1}{2}}$ , dajući za kritični eksponent  $\alpha^{GF} = -\frac{1}{2}$ , što je vrednost znatno bliža rezultatu renorm-grupe, u odnosu na MFA rezultat  $\alpha^{MFA} = 0$  koji predviđa samo diskontinuitet na Nelovoj temperaturi. Najzad, zasnivajući naše proračune na 3D ortorombnom modelu sa planarnom frustracijom, ispravili smo procenu koju za magnonsku specifičnu toplotu  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  daje teorija linearnih spinskih talasa primenjena na pojednostavljeni 2D model sa NN interakcijom.

Naposletku, recimo par reči o zaključcima do kojih smo došli analizirajući magnetnu susceptibilnost posmatranih jedinjenja. Pri tome treba istaći da smo naše rezultate za  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  poredili sa objavljenim teorijskim rezultatima dobijenim za dvodimenzionalni model kod koga je feromagnetni moment  $\text{CuO}_2$  ravni uračunat kroz antisimetričnu interakciju Đalošinski-Morija i pseudodipolarnu simetričnu interakciju (prisustvo obe ove interakcije je neophodno da bi se omogućila egzistencija dugodometnog uređenja na konačnim temperaturama za 2D model). Temperaturska zavisnost paralelne magnetne susceptibilnosti izračunata u okviru GF metoda, MFA i LSW teorije za naš model bez DM interakcije kvalitativno se slaže sa rezultatima iz literature. Predviđanja MFA slažu se sa GF metodom u temperaturskom intervalu  $0.7 \leq T/T_N \leq 1$ , dok za temperature iznad kritične MFA daje brže opadanje magnetne susceptibilnosti. Ovi rezultati potvrđuju izražen uticaj *kvantnih spinskih fluktuacija* i *kratkodometnih korelacija*, koji je u okviru MFA zanemaren, usled čega MFA rezultati odstupaju od RPA krive u oblasti niskih temperatura, kao i na temperaturama iznad kritične. Teorija linearnih spinskih talasa očekivano važi samo na niskim temperaturama, što ukazuje na značaj *magnonskih interakcija* u ovom sistemu, koje u okviru linearne teorije spinskih talasa nisu uzete u obzir. Poređenje sa eksperimentalnim rezultatima za paralelnu magnetnu susceptibilnost daje kvalitativno slaganje sa GF zavisnosnošću, ukazujući na primenljivost našeg modela kada je u pitanju paralelna susceptibilnost. Ograničenje modela bez DM interakcije leži pak u nemogućnosti reprodukovanja anizotropije transverzalne susceptibilnosti, a posledica je zanemarivanja slabog feromagnetizma  $\text{CuO}_2$  ravni. Za  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$  je usled složenosti analiza izvršena samo u okviru MFA i daje ponašanje slično MFA rezultatu za  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ .

Sagledavajući u celini naše rezultate i poredeći pri tome temperatursku oblast u kojoj primenjene teorije pokazuju slaganje sa eksperimentalnim podacima, zaključujemo da za opis

posmatranih jedinjenja *teorija spinskih Grinovih funkcija daje najbolje rezultate* u širokom temperaturnom intervalu od apsolutne nule do Nelove temperature. Oblast primenljivosti linearne teorije spinskih talasa je usled neuzimanja u obzir magnonskih interakcija svedena na niske temperature, dok je aproksimacija srednjeg polja upravo na niskim temperaturama nezadovoljavajuća, budući da se u toj aproksimaciji zanemaruju kvantne spinske fluktuacije.

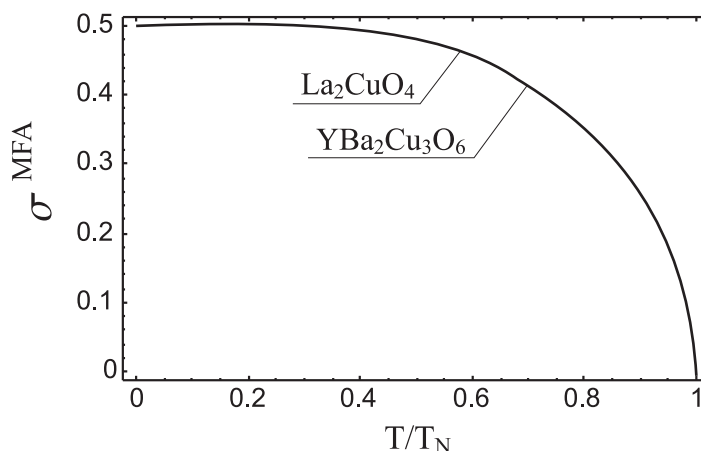
Ovde ćemo staviti tačku, zasada. Verovatno je da će neki od gorenavedenih zaključaka morati da istrpe promene, a izvesno da će slediti i novi, u skladu sa poboljšanim eksperimentalnim rezultatima koji će biti dobijeni u budućnosti i produbiti saznanja o ovoj interesantnoj grupi jedinjenja. Oni će biti predmet novih teorijskih studija, kojima će autor ove disertacije i istraživačka grupa kojoj pripada pokušavati i dalje da daju svoj originalni doprinos.

---

# Prilog A

## Magnetizacija podrešetke u aproksimaciji srednjeg polja

Magnetizacija podrešetke u odsustvu spoljašnjeg magnetnog polja je u MF aproksimaciji data izrazom (5.178) za  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ , odnosno izrazom (5.196) za  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$ . Ovi izrazi su samousaglašeni te se moraju rešavati iterativnim postupkom, pri čemu se za magnetizaciju na apsolutnoj nuli uzima  $\sigma^{MFA}(T = 0 \text{ K}) = \frac{1}{2}$ , s obzirom da se u aproksimaciji srednjeg polja zanemaruju kvantne fluktuacije. Izračunata temperaturna zavisnost magnetizacije prikazana je na Slici 31. Zarad lakšeg poređenja temperatura je normirana na Nelovu temperaturu dobijenu u okviru MF aproksimacije za dato jedinjenje.



Sl. 31: Temperaturna zavisnost magnetizacije podrešetke u odsustvu spoljašnjeg magnetnog polja za  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  i  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$  u aproksimaciji srednjeg polja.

Vidi se da se za upotrebljenu rezoluciju obe krive poklapaju, potvrđujući da sličnost strukture implicira sličnost velikog broja fizičkih svojstava ovih jedinjenja.





# Prilog B

## Napomene vezane za integraciju u inverznom prostoru

S obzirom da su sve analize u doktorskoj disertaciji sprovedene za ortorombnu ( $\text{La}_2\text{CuO}_4$ ) ili tetragonalnu ( $\text{La}_2\text{CuO}_4$  i  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$ ) magnetnu elementarnu ćeliju, daćemo ovde osnovne napomene vezane za konkretno izračunavanje izraza datih u tekstu u vidu suma u impulsnom prostoru za ove dve strukture.

Prema [29, 47] prelaz sa sume na integral u inverznom prostoru dat je izrazom:

$$\frac{1}{N_d} \sum_{\mathbf{k}} F(\mathbf{k}) = \frac{v_0}{(2\pi)^3} \int_{V_{IBZ}} F(\mathbf{k}) d^d \mathbf{k}, \quad (\text{B.1})$$

gde je  $N_d = L^d$  broj ćvorova (pod)rešetke,  $v_0$  zapremina elementarne ćelije,  $d$  označava dimenzionalnost sistema, a integracija se vrši po zapremini impulsnog prostora koja odgovara prvoj Brilluenovoj zoni. Definisane prve Brilluenove zone se svodi na određivanje Vigner-Zajcove (*Wigner-Seitz*) ćelije u inverznom prostoru. Ako osnovne vektore translacije direktne rešetke označimo sa  $\mathbf{a}_i$  ( $i = 1, 2, 3$ ), tada su osnovni vektori translacije recipročne rešetke  $\mathbf{b}_i$  definisani relacijama [47]:

$$\mathbf{b}_1 = 2\pi \frac{\mathbf{a}_2 \times \mathbf{a}_3}{\mathbf{a}_1 \cdot (\mathbf{a}_2 \times \mathbf{a}_3)}, \quad \mathbf{b}_2 = 2\pi \frac{\mathbf{a}_3 \times \mathbf{a}_1}{\mathbf{a}_1 \cdot (\mathbf{a}_2 \times \mathbf{a}_3)}, \quad \mathbf{b}_3 = 2\pi \frac{\mathbf{a}_1 \times \mathbf{a}_2}{\mathbf{a}_1 \cdot (\mathbf{a}_2 \times \mathbf{a}_3)}. \quad (\text{B.2})$$

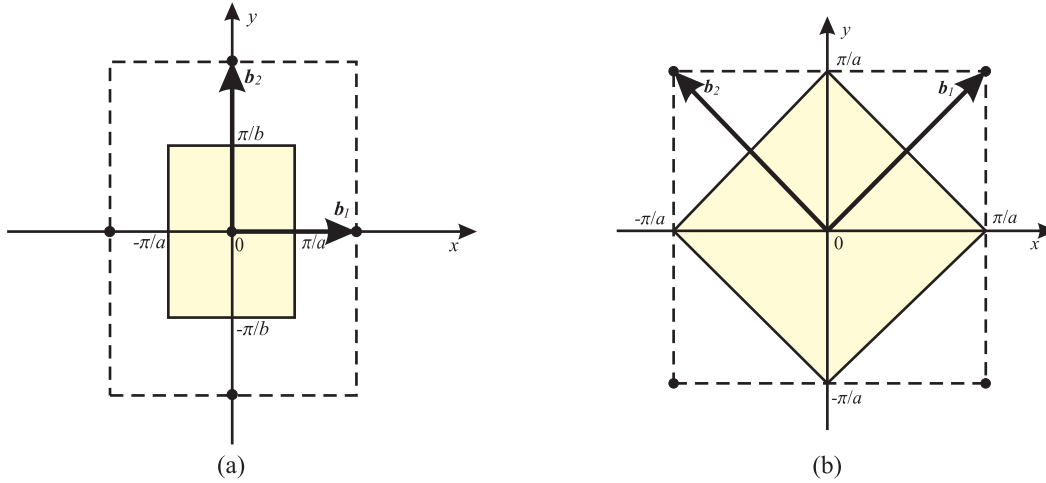
Određićemo prvo vektore  $\mathbf{b}_i$  za *ortorombnu* strukturu. U tom slučaju, osnovni vektori magnetne elementarne ćelije u direktnoj rešetki (videti Sl. 5.) glase:

$$\mathbf{a}_1 = a\mathbf{e}_x, \quad \mathbf{a}_2 = b\mathbf{e}_y, \quad \mathbf{a}_3 = c\mathbf{e}_z. \quad (\text{B.3})$$

Zamenom (B.3) u (B.2) dobijamo osnovne vektore recipročne rešetke:

$$\mathbf{b}_1 = \frac{2\pi}{a}\mathbf{e}_x, \quad \mathbf{b}_2 = \frac{2\pi}{b}\mathbf{e}_y, \quad \mathbf{b}_3 = \frac{2\pi}{c}\mathbf{e}_z, \quad (\text{B.4})$$

čije poznavanje nam omogućava da konstruišemo IBZ. Zarad jednostavnosti, na Slici 32a. prikazaćemo IBZ za pravougaonu rešetku.



Sl. 32: (a) IBZ za pravougaonu rešetku. (b) IBZ za kvadratnu rešetku.

S obzirom da su podintegralne funkcije koje se pojavljuju u analizi ortorombne strukture  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  oblika  $F(\mathbf{k}) = F(ak_x, bk_y, ck_z)$ , gde je  $F$  parna funkcija argumenata, prelaz sa sume na integral biće dat izrazom:

$$\frac{1}{N_3} \sum_{\mathbf{k}} F(\mathbf{k}) = \frac{abc}{(2\pi)^3} \int_{-\pi/a}^{\pi/a} \int_{-\pi/b}^{\pi/b} \int_{-\pi/c}^{\pi/c} F(ak_x, bk_y, ck_z) dk_x dk_y dk_z. \quad (\text{B.5})$$

Uvodeći smenu  $x_i = a_i k_i$  i koristeći simetriju podintegralne funkcije, (B.5) postaje

$$\frac{1}{N_3} \sum_{\mathbf{k}} F(\mathbf{k}) = \frac{1}{\pi^3} \int_0^\pi \int_0^\pi \int_0^\pi F(x, y, z) dx dy dz. \quad (\text{B.6})$$

Analogno, za 2D model dobija se

$$\frac{1}{N_2} \sum_{\mathbf{k}_{\parallel}} F(\mathbf{k}_{\parallel}) = \frac{1}{\pi^2} \int_0^\pi \int_0^\pi F(x, y) dx dy. \quad (\text{B.7})$$

Za *tetragonalnu* strukturu, osnovni vektori magnetne elementarne ćelije (videti Sl. 6.) glase:

$$\mathbf{a}_1 = a(\mathbf{e}_x + \mathbf{e}_y), \quad \mathbf{a}_2 = a(-\mathbf{e}_x + \mathbf{e}_y), \quad \mathbf{a}_3 = c\mathbf{e}_z. \quad (\text{B.8})$$

U tom slučaju, osnovni vektori translacije recipročne rešetke su dati sa

$$\mathbf{b}_1 = \frac{\pi}{a}(\mathbf{e}_x + \mathbf{e}_y), \quad \mathbf{b}_2 = \frac{\pi}{a}(\mathbf{e}_y - \mathbf{e}_x), \quad \mathbf{b}_3 = \frac{2\pi}{c}\mathbf{e}_z. \quad (\text{B.9})$$

Na osnovu (B.9) konstruiše se IBZ, koja je za kvadratnu rešetku prikazana na Slici 32b. Prelaz sa sume na integral tada se vrši prema sledećem izrazu:

$$\frac{1}{N_3} \sum_{\mathbf{k}} F(\mathbf{k}) = 4 \frac{2a^2c}{(2\pi)^3} \int_0^{\pi/a} \int_0^{(\pi-x)/a} \int_{-\pi/c}^{\pi/c} F(ak_x, ak_y, ck_z) dk_x dk_y dk_z, \quad (\text{B.10})$$

koji se, analogno (B.6), može zapisati u obliku<sup>1</sup>:

$$\frac{1}{N_3} \sum_{\mathbf{k}} F(\mathbf{k}) = \frac{2}{\pi^3} \int_0^\pi \int_0^{\pi-x} \int_0^\pi F(x, y, z) dx dy dz. \quad (\text{B.11})$$

Integrali tipa (B.6) i (B.11) u opštem slučaju nisu rešivi analitički, te su rešavani numerički u okviru programskog paketa *Mathematica 5.2 for Students*.

<sup>1</sup>Ako koordinatni sistem na Sl. 32b. zarotiramo za  $\pi/4$  izraz (B.11) se svodi na (B.6).

# Literatura

- [1] J. G. Bednorz and K. A. Müller, *Z. Physik B* **64**, 189 (1986)
- [2] Ž. Kovačević: *Uticaj primjesa na elektronsku strukturu  $CuO_2$  ravni visokotemperaturnih superprovodnika (prema materijalima doktorske teze)*, Prirodno–matematički fakultet, Podgorica (2000)
- [3] N. M. Plakida: *High–Temperature Superconductors*, Springer–Verlag, Berlin (1995)
- [4] E. Dagotto, *Rev. Mod. Phys.* **66**, 763 (1994)
- [5] D. Vaknin, S. K. Sinha, C. Stassis, L. L. Miller and D. C. Johnston, *Phys. Rev. B* **41**, 1926 (1990)
- [6] R. Coldea, S. M. Hayden, G. Aeppli, T. G. Perring, C. D. Frost, T. E. Mason, S. W. Cheong and Z. Fisk, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 5377 (2001)
- [7] J. F. Annett, R. M. Martin, A. K. McMahan, S. Satpathy, *Phys. Rev. B* **40**, 2620 (1989)
- [8] H. B. Callen, *Phys. Rev.* **130**, 890 (1963)
- [9] S. V. Tyablikov: *The Methods in the Quantum Theory of Magnetism*, Plenum Press, New York (1967)
- [10] B. Keimer, A. Aharony, A. Auerbach, R. J. Birgenau, A. Cassanho, Y. Endoh, R. W. Erwin, M. A. Kastner and G. Shirane, *Phys. Rev. B* **45**, 7430 (1992)
- [11] J. Rossat–Mignod, L. P. Regnault, P. Bourges, P. Burlet, C. Vettier, J. Y. Henry, in *Frontiers in Solid State Sciences: Magnetism and Superconductivity*, World Scientific, Singapore (1994)
- [12] A. A. Katanin and A. P. Kampf, *Phys. Rev. B* **66**, 100403(R) (2002)
- [13] N. M. R. Peres and M. A. N. Araújo, *Phys. Rev. B* **65**, 132404 (2002)
- [14] N. Mermin and H. Wagner, *Phys. Rev. Lett.* **17**, 1133 (1966)
- [15] N. N. Bogoliubov, *Physik. Abhandl. Sowjetunion* **6**, 1, 113, 229 (1962)
- [16] M. Matsumura, M. Mali, J. Roos and D. Brinkmann, *Phys. Rev. B* **56**, 8938 (1997)
- [17] G. A. Jorge, M. Jaime, L. Civale, C. D. Batista, B. L. Zink, F. Hellman, B. Khaykovich, M. A. Kastner, Y. S. Lee and R. J. Birgeneau, *Phys. Rev. B* **69**, 174506 (2004)

- [18] Y. P. Feng, A. Jin, D. Finotello, K. A. Gillis, M. H. W. Chan and J. E. Greedan, Phys. Rev. B **38**, 7041 (1988)
- [19] B. G. Liu, Phys. Rev. B **41**, 9563 (1990)
- [20] K. Sun, J. H. Cho, F. C. Chou, W. C. Lee, L. L. Miller, D. C. Johnston, Y. Hidaka and T. Murakami, Phys. Rev. B **43**, 239 (1991)
- [21] A. N. Lavrov, Y. Ando, S. Komiya and I. Tsukada, Phys. Rev. Lett. **87**, 7007 (2001)
- [22] K. V. Tabunshchyyk and R. J. Gooding, Phys. Rev. B **71**, 214418 (2005)
- [23] K. V. Tabunshchyyk and R. J. Gooding, J. Phys.: Condens. Matter **17**, 6701-6728 (2005)
- [24] F. S. Galasso: *Structure, Properties and Preparation of Perovskite-Type Compounds*, Pergamon Press, New York (1969)
- [25] R. J. Birgeneau, M. Greven, M. A. Kastner, Y. S. Lee, B. O. Wells, Y. Endoh, K. Yamada, G. Shirane, arXiv:cond-mat/9903124 v1 (1999)
- [26] C. J. Peters, R. J. Birgeneau, M. A. Kastner, H. Yoshizawa, J. Endoh, J. Tranquada, G. Shirane, Y. Hidaka, M. Oda, M. Suzuki and T. Murakami, Phys. Rev. B **37**, 9761 (1988)
- [27] H. Nishimori: *Statistical Physics of Spin Glasses and Information Processing: An Introduction*, Clarendon Press, Oxford (2001)
- [28] P. Fazekas: *Lecture Notes on Electron Correlation and Magnetism*, Uto-Print, Singapore (1999)
- [29] K. Josida: *Theory of Magnetism*, Iwanami Shoten, Publishers, Tokyo (1991)
- [30] E. Manousakis, Rev. Mod. Phys. **63**(1), 1-63 (1991)
- [31] M. Manojlović, M. Pavkov, M. Škrinjar, M. Pantić, D. Kapor and S. Stojanović, Phys. Rev. B **68**, 014435 (2003)
- [32] M. S. Rutonjski, S. M. Radošević, M. G. Škrinjar, Pavkov-Hrvojević M. V., D. V. Kapor and M. R. Pantić, Phys. Rev. B **76**, 172506 (2007)
- [33] S. M. Hayden, G. Aeppli, R. Osborn, A. D. Taylor, T. G. Perring, S.-W. Cheong and Z. Fisk, Phys. Rev. Lett. **67**, 3622 (1991)
- [34] M. Takahashi, J. Phys. C: Solid State Phys. **10**, 1289 (1977)
- [35] M. Pavkov, M. Škrinjar, D. Kapor, M. Pantić and S. Stojanović, Phys. Rev. B **65**, 104512 (2002)
- [36] A. Gelfert: *On the Role of Dimensionality in Many-Body Theories of Magnetic Long-Range Order*, University of Cambridge and Humboldt University of Berlin (2001)
- [37] J. C. Le Guillou and J. Zinn-Justin, Phys. Rev. B **21**, 3976 (1980)

- [38] B. Keimer, N. Belk, R. J. Birgeneau, A. Cassanho, C. Y. Chen, M. Greven, M. A. Kastber, A. Aharony, Y. Endoh, R. W. Erwin and G. Shirane, *Phys. Rev. B* **46**, 14034 (1992)
- [39] K. Kumagai, Y. Nakamichi, I. Watanabe, Y. Nakamura, H. Nakajima, N. Wada and P. Lederer, *Phys. Rev. Lett.* **60**, 724 (1988)
- [40] A. Pratap, Govind and R. S. Tripathi, *Phys. Rev. B* **60**, 6775 (1999)
- [41] S. Komiya and I. Tsukada, *Journal of Physics: Conference Series* **150**, 052118 (2009)
- [42] M. Rutonjski, S. Radošević, M. Pantić, M. Pavkov-Hrvojević, D. Kapor and M. Škrinjar, *Solid State Commun.* **151**, 518-522 (2011)
- [43] P. Fröbrich and P. J. Kuntz, *Physics Reports* **432**, 223-304 (2006)
- [44] F. B. Anderson and H. B. Callen, *Phys. Rev.* **136**, A1068 (1964)
- [45] S. Radošević, M. Pavkov-Hrvojević, M. Pantić, M. Rutonjski, D. Kapor and M. Škrinjar, *Eur. Phys. J. B* **68**, 511 (2009)
- [46] M. Manojlović, M. Pavkov, M. Škrinjar, M. Pantić, D. Kapor and S. Stojanović, *Phys. Rev. B* **71**, 132510 (2005)
- [47] C. Kittel, *Quantum Theory of Solids*, John Wiley & Sons, inc., New York (1963)

## Biografija



**Mr Milica Rutonjski (rođ. Manojlović)** rođena je 23.11.1977. godine u Novom Sadu, gde je završila Gimnaziju „Isidora Sekulić”. Studije fizike – smer diplomirani fizičar na Departmanu za fiziku Prirodno-Matematičkog fakulteta Univerziteta u Novom Sadu upisala je 1996. godine. Diplomirala je 2002. godine sa prosekom 9.96. Iste godine upisala je postdiplomske studije Teorijske fizike kondenzovanog stanja materije na Fizičkom fakultetu Univerziteta u Beogradu. Nakon što je sve ispite položila sa prosekom 10.00, akademsko zvanje magistra fizičkih nauka stekla je 2007. godine, odbranivši na Fizičkom fakultetu u Beogradu magistarski rad pod nazivom „Elementarne ekscitacije i magnetne osobine kvazi-dvodimenzionalnih kupratnih antiferomagneta”.

Od marta 2003. godine do danas, Milica Rutonjski zaposlena je prvo kao istraživač-pripravnik, a zatim kao istraživač-saradnik na Departmanu za fiziku Prirodno-Matematičkog fakulteta u Novom Sadu. Tokom svog istraživačkog rada bila je angažovana na tri nacionalna projekta (finansirana od strane Ministarstva za nauku i tehnološki razvoj Republike Srbije).

Tokom 2004. i 2005. godine pohađala je nekoliko kurseva za postdiplomce u inostranstvu.

Do sada je u koautorstvu objavila 15 radova, od toga 11 u časopisima sa SCI liste, i imala 6 saopštenja na međunarodnim, odnosno 5 na nacionalnim konferencijama.

Pored naučnog rada, od kada je zaposlena Milica Rutonjski aktivno učestvuje u izvođenju nastave, držeći vežbe na većem broju kurseva katedre za Teorijsku fiziku. U periodu od 2006. do 2008. godine bila je predstavnik Departmana za fiziku vezano za pitanja studentske razmene u okviru Evropske univerzitetske fondacije ”Campus Europae”.

Novi Sad, april 2011. godine

mr Milica Rutonjski

---

**UNIVERZITET U NOVOM SADU  
P RIRODNO-MATEMATIČKI FAKULTET  
KLJUČNA DOKUMENTACIJSKA INFORMACIJA**

**Redni broj:**

**RBR**

**Identifikacioni broj:**

**IBR**

**Tip dokumentacije:** Monografska dokumentacija

**TD**

**Tip zapisa:** Tekstualni štampani materijal

**TZ**

**Vrsta rada:**

**VR**

**Autor:** Milica Rutonjski

**AU**

**Mentor:** Prof. dr Milan Pantić

**MN**

**Naslov rada:** Teorijska istraživanja osobina jako korelisanih kvazi-dvodimenzionalnih nedopiranih kuprata

**NR**

**Jezik publikacije:** Srpski (latinica)

**JP**

**Jezik izvoda:** s/e

**JI**

**Zemlja publikovanja:** Srbija

**ZP**

**Uže geografsko područje:** Vojvodina

**UGP**

**Godina:** 2011.

**GO**

**Izdavač:** Autorski reprint

**IZ**

**Mesto i adresa:** Novi Sad, Đorđa Nikšića – Johana 24

**MA**

**Fizički opis rada:** 7 poglavlja/2 priloga/105 strana/47 literaturnih citata/ 9 tabela/ 32 slike

**FO**

**Naučna oblast:**Fizika

**NO**

**Naučna disciplina:** Teorijska fizika kondenzovane materije

**ND**

**Ključne reči:** Hajzenbergov antiferomagnet, kvazi-dvodimenzionalni sistemi, „roditeljska” jedinjenja visokotemperaturnih superprovodnika, metod Grinovih funkcija, magnonski spektri, magnetizacija, magnonska specifična toplota, magnetna susceptibilnost

**PO**

**UDK:**

**Čuva se:**

**ČU**

**Važna napomena:** Ova doktorska disertacija je realizovana u okviru naučno-istraživačkih projekata „Teorijska istraživanja osobina jako korelisanih sistema sa složenim strukturama” i „Uticaj elementarnih ekscitacija i konformacija na fizička svojstva novih materijala baziranih na jako korelisanim niskodimenzionalnim sistemima” Ministarstva Republike Srbije za nauku i tehnološki razvoj.

**VN**

**Izvod:** Cilj ove doktorske disertacije jeste da doprinese istraživanjima kvazi-dvodimenzionalnih kupratnih antiferomagneta, interesantnih prvenstveno zbog toga što toj grupi jedinjenja pripadaju „roditeljska” jedinjenja visokotemperaturnih superprovodnika. Najveća pažnja je posvećena ispitivanju magnetnih i termodinamičkih osobina  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  i  $\text{Yb}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$ , s obzirom da su oni u literaturi najviše izučavani, te je moguće poređenje sa eksperimentalnim rezultatima, kao i rezultatima drugih modela i drugih teorija. U računu polazimo od Hajzenbergovog hamiltonijana sa spinskom anizotropijom koji analiziramo prvenstveno u okviru metoda Grinovih funkcija (u Kalenovoj i tjablikovskoj aproksimaciji), zatim u okviru teorije linearnih spinskih talasa, a izvesna svojstva ispitivana su u aproksimaciji srednjeg polja. Karakteristike navedenih jedinjenja koje su analizirane u doktorskoj disertaciji su magnonski spektar, magnetizacija, temperatura faznog prelaza, unutrašnja energija, magnonski doprinos specifičnoj toploti i magnetna susceptibilnost. Poređenje sa eksperimentalnim rezultatima ukazuje na primenljivost metoda Grinovih funkcija u širokom temperaturnom intervalu od apsolutne nule do Neelove temperature. Takođe, zaključuje se da je opravdano smatrati ova jedinjenja kvazi-dvodimenzionalnim, jer se ispostavlja da se većina svojstava neznatno menja uključivanjem u račun međuravanske interakcije. Parametar spinske anizotropije ima izražen uticaj na ponašanje ovih sistema, kao i kvantne spinske fluktuacije i kratkodometne korelacije.

**IZ**

**Datum prihvatanja teme od strane NN veća:** 19. 11. 2009.

**DP**

**Datum odbrane:**

**DO**

**Članovi Komisije:**

**KO**



**UNIVERSITY OF NOVI SAD  
FACULTY OF SCIENCE  
KEY WORDS DOCUMENTATION**

**Accession number:**

ANO

**Identification number:**

INO

**Document type:** Monograph document

DT

**Type of record:** Printed text

TR

**Contents Code:**

CC

**Author:** Milica Rutonjski

AU

**Mentor:** Prof. dr Milan Pantić

MN

**Title:** Theoretical study of the properties of strongly correlated quasi-twodimensional undoped cuprates

TI

**Language of text:** Serbian (latin)

LT

**Language of abstract:** s/e

LA

**Country of publication:** Serbia

CP

**Locality of publication:** Vojvodina

LP

**Publication year:** 2011.

PY

**Publisher:** Author's reprint

PU

**Publ. place:** Novi Sad, Đorđa Nikšića – Johana 24

PP

**Physical description:** 7 chapters/2 appendices/105 pages/47 literature quotes/ 9 tables/ 32 figures

PD

**Scientific field:** Physics

SH

**Scientific discipline:** Theoretical Physics of Condensed Matter

SD

**Key words:** Heisenberg antiferromagnet, quasi-twodimensional systems, high- $T_C$  "parent" compounds, Green's function method, magnon spectra, magnetization, magnon specific heat, magnetic susceptibility

KW

UC:

**Holding data:**

HD

**Note:** This work was supported by the Serbian Ministry of Science and Technological Development within the projects "Theoretical studies of the properties of strongly correlated systems with complex structures" and "Influence of elementary excitations and conformations on the physical properties of the new materials based on the strongly correlated low-dimensional systems".

N

**Abstract:** The aim of the thesis is to give an original contribution to the investigation of quasi-twodimensional cuprate antiferromagnets, which are interesting mainly due to the fact that high- $T_C$  parent compounds belong to the upper class of systems. The greatest attention is paid to the analysis of the magnetic and thermodynamic properties of  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  and  $\text{Yb}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$ , since these compounds are mostly studied in literature, enabling the comparison to the experimental results and the results obtained within other models and theories. The starting point in the calculation is the Heisenberg Hamiltonian with the spin anisotropy included, which we analyze in detail within the Green's function approach (using Callen's and Tyablikov's approximation), but also using the linear spin-wave theory, while some properties are discussed using the mean-field approximation. The properties which are analyzed in the thesis are the magnon spectra, magnetization, phase transition temperature, internal energy, magnon contribution to the specific heat and the magnetic susceptibility. The comparison to the experimental results suggests the applicability of the Green's function method in the wide temperature interval from absolute zero to the Néel temperature. We also conclude that it is justified to consider these compounds as quasi-twodimensional, since it turns out that most properties do not change significantly when the interplanar exchange is included. On the other hand, the spin anisotropy parameter, as well as quantum spin fluctuations and short-range correlations, have great impact on the behaviour of these systems.

**AB**

**Accepted by the Scientific Board on:** 19. 11. 2009.

**ASB**

**Defended:**

**DE**

**Thesis defended board:**

**DB:**