



## CONTRIBUCIÓN DE LOS MAGNONES A LAS PROPIEDADES TÉRMICAS DE LOS BOROCARBETOS

J. Vento F.<sup>a</sup>, C. Aguirre C.<sup>a</sup>, A. Guillen G.<sup>a</sup>, A. Díaz S.<sup>a</sup>, B. Miramira T.<sup>a</sup>

<sup>a</sup> Universidad Nacional Mayor de San Marcos, Facultad de Ciencias Físicas, Av. Venezuela s/n, Lima 14, Perú

### Abstract

Using a phenomenological spin hamiltonian we calculate magnetic and thermal properties in the antiferromagnetic phase which is present in a series of borocarbides  $RNi_2B_2C$  ( $R = Gd, Ho$ ): the frequency  $\omega(k)$  and density of states of the spin wave excitations the specific heat  $c_v(T, H)$  and the mean-field Néel temperature  $T_N$ . The model has three parameters:  $J_1$ ,  $J_2$  and  $H_a$ , the ferromagnetic (FM) in-plane exchange interaction between first neighbors, the inter-plane antiferromagnetic (AF) exchange interaction and the anisotropic (magnetic) field. Our numerical and analytical results are in good agreement with, respectively, experiments.

PACS: 75.30.Ds; 05.70.-a

Keywords: Magnons, Thermal Properties

### Resumen

Usando un hamiltoniano de espín fenomenológico calculamos las propiedades térmicas en la fase antiferromagnética presente en los borocarburos  $RNi_2B_2C$  ( $R = Gd, Ho$ ): la frecuencia  $\omega(k)$  de las excitaciones de ondas de espín y sus densidades de estados, el calor específico  $c_v(T, H)$  y la temperatura de campo medio de Néel  $T_N$ . El modelo tiene tres parámetros:  $J_1$ ,  $J_2$  y  $H_a$ , la interacción de intercambio ferromagnético (FM) en el plano entre primeros vecinos, la interacción de intercambio antiferromagnético (AF) entre planos y el campo de anisotropía (magnético), respectivamente. Nuestros resultados teóricos, tanto numéricos como analíticos, están en buena concordancia con los resultados experimentales.

Palabras claves: Magnones; Propiedades Térmicas

### 1. Introducción

Los inter-metálicos borocarburos  $RNi_2B_2C$  ( $R = Gd, Ho$ ), que en el caso de  $R = Ho$  exhibe coexistencia de superconductividad (temperatura crítica  $T_C$ ) y un orden tipo antiferromagnético (temperatura de Néel  $T_N$ ) [1,2], mientras que para  $R = Gd$  la transición superconductora no está presente. La estructura cristalina fundamental de los borocarburos es tetragonal de cuerpo centrado (grupo espacial  $I4/mmm$ ), donde capas magnéticas  $RC$  se alternan con capas de  $Ni_2B_2$ . Denotamos con  $a$  y  $c$  las constantes de red en las direcciones  $x$  y  $z$ , respectivamente. Típicamente, en estos compuestos  $a = 3,5 \text{ \AA}$  mientras que  $c = 10,5 \text{ \AA}$ . La estructura magnética del compuesto para  $R = Ho(T_N=5K, T_C=8K)$  es tal, que dentro de un plano el

acoplamiento es ferromagnético ( $J_1 > 0$ ) pero entre planos adyacentes el acoplamiento ( $-J_2$ ) es antiferromagnético ( $J_2 > 0$ ). En el presente trabajo adoptamos el punto de vista de que el orden magnético dentro de una fase superconductora, en buena aproximación, no es afectada por esta fase y puede así descrita por un hamiltoniano de espín con eventual renormalización de los parámetros anteriores. Este punto de vista está basado en la suposición de que las tierras raras son responsables por el orden magnético y considerando que el metal de transición es responsable por la superconductividad. El hecho de que el orden magnético de la familia de los superconductores ( $Ho$ ) y los no superconductores ( $Gd$ ) son similares, justifica esta aproximación. El hamiltoniano que describe la situación anterior es ( $\hbar = 1$ )

$$H = - \sum_{\langle ij \rangle, A} J_1 \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j - \sum_{\langle ij \rangle, B} J_1 \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j + \sum_{\langle ij \rangle, AB} J_2 \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j - 2\mu_o (\vec{H}_o + \vec{H}_a) \cdot \sum_{j \in A} \vec{S}_j - 2\mu_o (\vec{H}_o + \vec{H}_a) \cdot \sum_{j \in B} \vec{S}_j \quad (1)$$

donde  $\vec{H}_a$  es equivalente a un campo magnético ficticio que representa el efecto de la energía anisotrópica del cristal. Esta energía es tal que los espines en la subred *A* tienden a alinearse paralelos a  $\vec{H}_a$  mientras que los espines en la subred *B* tienden a alinearse en la dirección  $-\vec{H}_a$ . Para el compuesto con *Ho*,  $\vec{H}_a$  está en la dirección  $\langle 110 \rangle$ . La suma sobre *A* (o *B*) incluye las interacciones envolviendo espines dentro de un plano dado, mientras que la suma *AB* indica interacciones entre planos adyacentes. Consideramos también, un campo magnético aplicado  $\vec{H}_o$  paralelo a  $\vec{H}_a$ . En (1)

$\mu_o = \frac{g}{2} \mu_B$  donde *g* es el factor de Landé y  $\mu_B$  es el magnetón de Bohr. En las próximas secciones denotamos por *S* el número cuántico de espín.

## 2. Aspectos Teóricos

### 2.1. Campo Medio

En la aproximación de campo medio cada espín interactúa con un campo magnético efectivo producido por los otros espines. Para un espín en la subred *A*, por ejemplo,

$$H_{ef} = -2\mu_o \vec{H}_{ef}^A \cdot \sum_{i \in A} \vec{S}_i \quad (2)$$

donde

$$\vec{H}_{ef}^A = \frac{J_1 p}{2\mu_o} \langle \vec{S}_A \rangle + \vec{H}_o + \vec{H}_a - \frac{J_2 p'}{4\mu_o} \langle \vec{S}_B \rangle \quad (3)$$

Se tiene una expresión análoga para la subred *B*. El símbolo  $\langle \dots \rangle$  indica el promedio termodinámico. La autoconsistencia es llevada a cabo [3] por

$$\langle \vec{S}_A \rangle = SB_S \left( \frac{2\mu_o S}{k_B T} \vec{H}_{ef}^A \right) \quad (4)$$

donde  $B_S(x)$  indica la función de Brillouin. Se tiene una expresión análoga para  $\langle \vec{S}_B \rangle$ . En la ausencia de un campo magnético externo, las dos ecuaciones pueden ser desacopladas ( $\langle \vec{S}_A \rangle = -\langle \vec{S}_B \rangle$ ) permitiendo la determinación de la temperatura de Néel,

$$T_N = \frac{S(S+1)}{3k_B} \left( J_1 p + \frac{J_2 p'}{2} \right) \quad (5)$$

donde *p* es el número de primeros vecinos en cada subred y *p'* es el número de primeros vecinos en los sitios *B* con respecto a un sitio *A* (o viceversa). En nuestro caso *p* = 4 y *p'* = 16. Para derivar (5) consideramos  $\vec{H}_a(T_N) = 0$  en (o arriba de)  $T_N$ , el concepto de eje fácil, como puede observarse, no es aplicado.

### 2.2. Excitaciones Magnéticas

A fin de encontrar el espectro de los magnones del hamiltoniano (1) introducimos, para la subred *A*, el operador destrucción (creación)  $b_k$  ( $b_k^\dagger$ ) por la transformación Holstein-Primakoff [4]

$$\begin{aligned} S^+_j &= (2S/N)^{1/2} \left[ \sum_k e^{-i\vec{k} \cdot \vec{x}_j} b_k + \dots \right] \\ S^-_j &= (2S/N)^{1/2} \left[ \sum_k e^{i\vec{k} \cdot \vec{x}_j} b_k^\dagger + \dots \right] \\ S^Z_j &= S - (1/N) \sum_{k,k'} e^{i(\vec{k}-\vec{k}') \cdot \vec{x}_j} b_k^\dagger b_{k'} \end{aligned} \quad (6)$$

donde *N* es el número de espines en la subred. Para la subred *B* el operador destrucción y creación ( $d_k$  y  $d_k^\dagger$ ) son dados por

$$\begin{aligned} S^+_j &= (2S/N)^{1/2} \left[ \sum_k e^{-i\vec{k} \cdot \vec{x}_j} d_k^\dagger + \dots \right] \\ S^-_j &= (2S/N)^{1/2} \left[ \sum_k e^{i\vec{k} \cdot \vec{x}_j} d_k + \dots \right] \\ S^Z_j &= -S + (1/N) \sum_{k,k'} e^{i(\vec{k}-\vec{k}') \cdot \vec{x}_j} d_k^\dagger d_{k'} \end{aligned} \quad (7)$$

Sustituyendo (6) y (7) en (1), usando la aproximación estándar de ondas de espín y haciendo una transformación de Bogoliubov [4] para diagonalizar el hamiltoniano resultante, conseguimos (omitiendo constantes irrelevantes)

$$H = \sum_k \omega_k^+ (n_k^+ + 1/2) + \sum_k \omega_k^- (n_k^- + 1/2) \quad (8)$$

donde

$$\omega_k^\pm = \omega_k \pm 2\mu_o H_o \quad (9)$$

y

$$\omega_k^2 = A_k^2 - B_k^2 \quad (10)$$

con

$$A_k = -2J_1 S (\cos ak_x + \cos ak_y) + 4J_1 S + 8J_2 S + 2\mu_o H_a \quad (11)$$

$$B_k = 2J_2 S \left[ \cos\left(\frac{a}{2}k_x + \frac{a}{2}k_y + \frac{c}{2}k_z\right) + \cos\left(\frac{a}{2}k_x + \frac{a}{2}k_y - \frac{c}{2}k_z\right) + \cos\left(-\frac{a}{2}k_x + \frac{a}{2}k_y + \frac{c}{2}k_z\right) + \cos\left(\frac{a}{2}k_x - \frac{a}{2}k_y + \frac{c}{2}k_z\right) \right] \quad (12)$$

En ausencia de un campo magnético aplicado tiene un gap  $\Delta$  dado por

$$\Delta^2 = \omega_{k=0}^2 = A_o^2 - B_o^2 = 4\mu_o^2 H_a^2 + 32J_2 S \mu_o H_a \quad (13)$$

En la ecuación (8),  $n_k^\pm$  son los operadores numéricos de los modos  $\pm$ ; sus promedios termodinámicos son la función distribución de bosones.  $\bar{H}_a$  puede ser visto como una aproximación de ondas de espín lineal de la expresión para el campo eléctrico cristalino en término de los operadores de Stevens [5, 6] usando las ecuaciones (6) y (7).

La densidad de estados  $\rho^\pm$  para cada rama de (9), viene dado por

$$\rho^\pm(\epsilon) = \frac{V}{(2\pi)^3} \int \frac{dS_\epsilon}{|\nabla \omega_k^\pm|} \quad (14)$$

La integral es sobre la superficie de energía constante ( $\epsilon \equiv \omega_k^\pm$ ) y  $V$  es el volumen del cristal. Para la rama + (-)  $\epsilon > \Delta + 2\mu_o H_o$  ( $\epsilon > \Delta - 2\mu_o H_o$ ). Primero discutimos a bajas temperaturas, región en la que estamos interesados, y la contribución más importante en esta región viene de los estados próximos a  $k=0$ . Entonces una buena aproximación es expandir los cosenos en (11) y (12), manteniendo hasta términos cuadráticos en  $\omega_k^2$ . Así (10) puede ser escrito como

$$\omega_k = \sqrt{\Delta^2 + c_1(k_x^2 + k_y^2) + c_2 k_z^2} \quad (15)$$

con

$$c_1 = 2A_o J_1 S a^2 + 2B_o J_2 S a^2 \quad (16)$$

$$c_2 = 2B_o J_2 S c^2$$

donde  $A_o$  y  $B_o$  son dados por (11) y (12) con  $k=0$ . Como

$$dS_\epsilon = \sqrt{1 + \left(\frac{\partial k_z}{\partial k_x}\right)^2 + \left(\frac{\partial k_z}{\partial k_y}\right)^2} dk_x dk_y \quad (17)$$

entonces

$$\int \frac{dS_\epsilon}{|\nabla \omega_k|} = \frac{4\pi \epsilon}{\sqrt{c_2}} \int_0^\Lambda \frac{k dk}{\sqrt{\epsilon^2 - \Delta^2 - c_1 k^2}} \quad (18)$$

donde  $\Lambda = \frac{\sqrt{\epsilon^2 - \Delta^2}}{\sqrt{c_1}}$ . Finalmente, denotando por

$\rho(\epsilon)$  la densidad de estados (para cada banda) en ausencia de campo magnético aplicado, conseguimos

$$\rho(\epsilon) = \frac{V}{2\pi^2} \frac{\epsilon \sqrt{\epsilon^2 - \Delta^2}}{c_1 \sqrt{c_2}} \quad (19)$$

de la ecuación (9) se sigue que

$$\rho^\pm(\omega_k^\pm) = \rho(\omega_k \mp 2\mu_o H_o) \quad (20)$$

A partir de ahora usamos las energías en unidades de temperatura y los vectores de onda adimensionales; esto remueve las  $a$ 's y  $c$ 's en (16); la ecuación (19) entonces se escribe

$$\rho(\epsilon) = \frac{Rv}{(2\pi)^2} \frac{\epsilon \sqrt{\epsilon^2 - \Delta^2}}{c_1 \sqrt{c_2}} \quad (21)$$

donde  $R =$  es la constante universal de los gases y  $\nu$  es el numero de moles. El modelo introduce tres constantes ( $J_1$ ,  $J_2$  y  $H_a$ ),  $\Delta$  será tomado como parámetro experimental.

$$E = E_o + \int_{\Delta-2\mu_o H_o}^{\infty} d\epsilon_+ \frac{\epsilon_+ \rho(\epsilon_+ - 2\mu_o H_o)}{e^{\beta\epsilon_+} - 1} + \int_{\Delta-2\mu_o H_o}^{\infty} d\epsilon_- \frac{\epsilon_- \rho(\epsilon_- + 2\mu_o H_o)}{e^{\beta\epsilon_-} - 1} \quad (22)$$

donde  $E_o$  es una constante independiente de  $T$  y las integrales son sobre las dos ramas de los magnones. Las integrales fueron extendidas al  $\infty$  a causa de que la contribución de  $\epsilon_{\pm}$  grande es despreciable debido al exponencial en el denominador. Veamos el caso  $H_{ext} = 0$ , entonces

$$c_m(T, H_{ext} = 0) = \frac{R}{4\pi^2 c_1 \sqrt{c_2}} \frac{\Delta^4}{T} \sum_{n=1}^{\infty} \left[ K_2 \left( n \frac{\Delta}{T} \right) + K_4 \left( n \frac{\Delta}{T} \right) \right] \quad (24)$$

donde  $K_m(x)$  son las funciones de Bessel de segunda clase, con  $x = n \frac{\Delta}{T}$ .

En el limite de altas temperaturas ( $T \gg \Delta$ )

$$c_m(T, H_{ext} = 0) = \frac{R\pi^2}{15c_1 \sqrt{c_2}} T^3 \quad (25)$$

y en limite de bajas temperaturas ( $T \ll \Delta$ )

$$c_m(T, H_{ext} = 0) = \frac{R}{(2\pi)^{3/2} c_1 \sqrt{c_2}} \frac{\Delta^{7/2}}{T^{1/2}} e^{-\frac{\Delta}{T}} \quad (26)$$

Veamos ahora como estas aproximaciones se aplican a los borocarburos para  $R = Gd$  y  $Ho$ .

**a.-  $GdNi_2B_2C$ :** A temperatura  $T < 3,5 K$  este compuesto presenta una estructura magnética AF 3D [7], sin gap ( $\Delta = 0$ ) en la relación de dispersión de los magnones, el cual implica que  $H_a = 0$  de acuerdo con la ecuación (13). Entonces la contribución de los magnones al calor específico en nuestro modelo es dado por (25). Para  $c_1 \sqrt{c_2} = 173,9 K^3$ , el resultado obtenido se aproxima bien al resultado experimental (Fig.1.).

### 2.3. Calor Especifico

La energía total es dada por

$$E = E_o + \frac{\nu R}{2\pi^2 c_1 \sqrt{c_2}} \int_{\Delta}^{\infty} d\epsilon \frac{\epsilon^2 (\epsilon^2 - \Delta^2)^{1/2}}{e^{\beta\epsilon} - 1} \quad (23)$$

El calor específico molar  $c_m$  en ausencia de un campo magnético es dado por

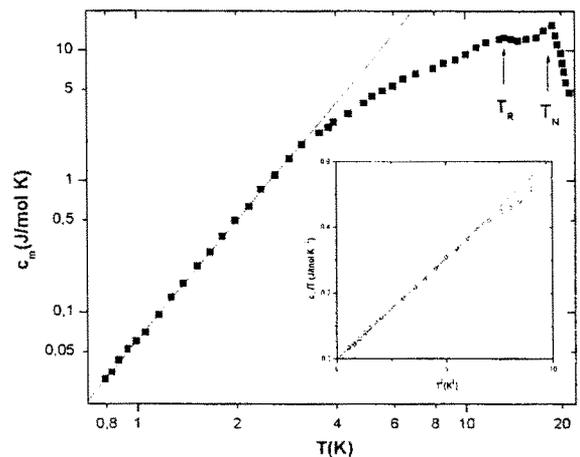


Fig.1: Calor específico del  $GdNi_2B_2C$ . La línea continua representa resultados teóricos y los puntos representan los resultados experimentales.

**b.-  $HoNi_2B_2C$ :** Este compuesto posee una estructura AF 3D [8]. Los momentos magnéticos son forzados a alinearse en la dirección del eje fácil  $\langle 110 \rangle$ . El sistema puede ser dividido en dos subredes FM, que interactúan AF. El espectro de energía de las ondas de spin es anisotrópico (con un gap  $\Delta = 8,5 K$ ). La contribución de los magnones al calor específico viene dado por la expresión (26). Para  $c_1 \sqrt{c_2} = 87,8 K^3$ ,  $J_1 = 0,47 K$ ,  $J_2 = 0,04 K$  y  $H_a = 6,3 K$  con  $\Delta = 8,5 K$  esta expresión describe bien los resultados experimentales en un intervalo de temperatura que va hasta cerca de 4 K (Fig.2).

Usando el modelo con CEF, Canfield et al [9] determinaron valores bastante próximos a los obtenidos en el presente trabajo.

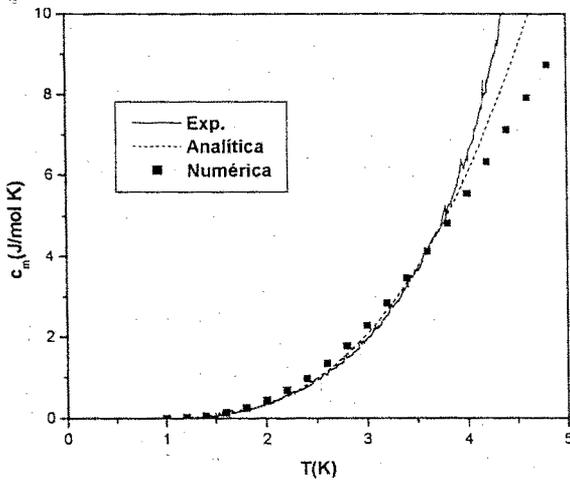


Fig.2: Calor específico del  $HoNi_2B_2C$  sin campo magnético aplicado. La línea continua representa resultados experimentales y, la línea discontinua y los puntos representan resultados teóricos usando la relación analítica e integrando en la ZB respectivamente.

### 3. Conclusiones

Con el objetivo de estudiar las propiedades térmicas de los borocarburos en la fase antiferromagnética, propusimos un hamiltoniano de espín donde el efecto del campo eléctrico cristalino fué aproximado por un campo magnético efectivo o de anisotropía. Usando la teoría de ondas de espín encontramos la relación de dispersión y la densidad

de estados de los magnones. Con este modelo fue calculado el calor específico molar y conseguimos un buen ajuste de los datos experimentales para  $R = Gd$  y  $Ho$ , obteniendo valores físicamente razonables para las interacciones de intercambio  $J_1$  y  $J_2$ , así como también, para el campo de anisotropía ( $H_a$ ).

El modelo es válido a bajas temperaturas, para valores más altos de la temperatura el efecto de la interacción magnon-magnon se hace importante. Los valores calculados de la temperatura de Néel  $T_N$  sin llevar en cuenta esta interacción son muy altos.

### Agradecimiento

Agradecemos a la Facultad de Ciencias Físicas (FCF) y al Consejo Superior de Investigaciones (CSI) de la UNMSM, por el apoyo para la realización del presente trabajo.

### Referencias

- [1]. H. Eisaki, T. Takagi, R. J. Cava, K. Mizuhashi, J.O.Lee, B.Batlogg, J.J.Krajewski, W.F.Peck Jr. and S.Uchida, Phys. Rev.B50, 647 (1994).
- [2]. M. El Massalami and E.M.Baggio-Saitovitch, J. of Magn. and Mag. Materials 153, 97 (1996).
- [3]. B. Coqblin, The Electronic Structure of Rare-Earth Metals and Alloys: The Magnetic Heavy Rare-Earths (Academic Press, London, 1977)
- [4]. C. Kittel, Quantum Theory of Solids (John Wiley and Sons Inc., New York, 1963).