

## Нелинейная магнитная восприимчивость и СВЧ спиновая динамика квази-2D антиферромагнетиков $R_2CuO_4$ ( $R = Eu, Pr, Gd$ )

© Е.И. Головенчиц, В.А. Санина

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,  
194021 Санкт-Петербург, Россия

E-mail: E.Golovenchits@shuvpop.ioffe.rssi.ru

(Поступила в Редакцию 25 декабря 1998 г.)

Проведено экспериментальное исследование *ас*-нелинейной магнитной восприимчивости и СВЧ спиновой динамики квазидвумерных гейзенберговских антиферромагнетиков  $R_2CuO_4$  ( $R = Eu, Pr, Gd$ ). Полученные данные удается понять, если принять, что в тетрагональных кристаллах  $Eu_2CuO_4$  и  $Pr_2CuO_4$  имеется Random Field-состояние во всем изученном диапазоне температур  $77 \leq T \leq 350$  К. При этом 3D антиферромагнитный порядок имеется лишь в областях ограниченного масштаба, а в слоях  $CuO_2$  существуют 2D гейзенберговские антиферромагнитные спиновые флуктуации с большими корреляционными радиусами. В кристалле  $Gd_2CuO_4$  наряду с однородным 3D антиферромагнитным дальним порядком со слабым ферромагнетизмом имеется также подмешивание состояния типа *RF*.

Кристаллы семейства  $R_2CuO_4$ , где ( $R = Pr, Nd, Gd, Sm, \text{ и } Eu$ ) принадлежат к классу квазидвумерных (квази-2D) гейзенберговских антиферромагнетиков. Все кристаллы семейства, за исключением  $Gd_2CuO_4$ , обладают тетрагональной симметрией  $T'$  ( $I4/mmm$ ) [1]. В  $Gd_2CuO_4$  при  $T \sim 660$  К имеется структурный фазовый переход из высокотемпературной тетрагональной  $T'$  в низкотемпературную орторомбическую фазу с пространственной группой *Acam* [2].

Кристаллы  $R_2CuO_4$  много изучаются в последнее время прежде всего как модельные объекты для ВТСП-соединений, которые, также как и соединения  $R_2CuO_4$ , построены на основе квадратных решеток ионов  $Cu^{2+}$  со спином  $S = 1/2$  в слоях  $CuO_2$ . Кроме того, эти кристаллы являются примером низкоразмерных магнетиков с достаточно простой кристаллической решеткой и отношением величин обменных интегралов в плоскостях  $CuO_2$  и между плоскостями  $\sim 10^{-5}$ .

В серии работ [3–8] были изучены магнитные, а также диэлектрические и структурные свойства кристалла  $Eu_2CuO_4$ . Было показано, что при температуре  $T \simeq 150\text{--}160$  К в  $Eu_2CuO_4$  имеется фазовый переход, при котором изменяются как магнитные, так и структурные свойства [3,4,8]. При  $T \simeq 150$  К наблюдался скачок статической магнитной восприимчивости в плоскости (*ab*), перпендикулярной тетрагональной оси (*c*) [3]. При температурах  $T \leq 150\text{--}160$  К наблюдались локальные орторомбические искажения в слоях  $CuO_2$  [8]. С ростом температуры, начиная с  $T \simeq 120$  К, одновременно возникали низкочастотная дисперсия диэлектрической восприимчивости и аномальная СВЧ динамическая магнитная восприимчивость [4,5]. Последние особенности наблюдались вплоть до температур  $T \sim 450$  К, до которых проводились измерения.

Экспериментальные результаты по диэлектрическим свойствам интерпретировались нами на основе модели 2D изинговского орбитального стекла [4]. Аномальная же СВЧ спиновая динамика была обусловлена наличием

2D-однородных ( $c \cdot q = 0$ ), хорошо определенных ( $c$  затуханием, значительно меньшим, чем собственная частота,  $\gamma \ll \omega_0$ ) спин-волновых возбуждений типа спиновых волн [5].

В соответствии с данными нейтронных измерений для квази-2D гейзенберговских антиферромагнетиков  $R_2CuO_4$   $R = Nd, Pr, Gd, Sm, Eu$  температура Нееля составляет обычно  $T_N \simeq 250\text{--}300$  К. При этом полагается, что ниже  $T_N$  в  $Cu$ -подсистеме имеется 3D однородный дальний магнитный порядок.

В  $Eu_2CuO_4$  нейтронные исследования брэгговского рассеяния указывают на наличие 3D антиферромагнитного упорядочения вплоть до  $T \simeq 270$  К [9]. Если допустить, что в кристалле  $Eu_2CuO_4$  при температурах  $T \leq T_N \simeq 270$  К имеется однородный 3D дальний антиферромагнитный порядок, то 2D однородные, хорошо определенные спин-волновые возбуждения могли бы возникать только при  $T \geq T_N \simeq 270$  К. Экспериментально же они наблюдаются, начиная с температуры  $T \simeq 120$  К, значительно более низкой, чем  $T_N$ .

При интерпретации полного набора экспериментальных данных для кристалла  $Eu_2CuO_4$  в работе [6] было высказано предположение, что в этом кристалле имеется квази-2D антиферромагнитное состояние типа Random Field (RF), подобное рассмотренному в [10].

При этом 3D антиферромагнитный порядок существует лишь на ограниченных масштабах, и есть 2D гейзенберговские антиферромагнитные спиновые флуктуации с большими корреляционными радиусами  $\xi \gg a$ .

Задачей настоящей работы является продолжение экспериментального изучения кристаллов  $Eu_2CuO_4$ , а также исследование кристаллов  $Pr_2CuO_4$  и  $Gd_2CuO_4$  методами *ас*-нелинейной магнитной восприимчивости и СВЧ динамических магнитной и диэлектрической восприимчивостей в области температур 77–300 К. Нас интересовало, насколько общей для всего класса соединений  $R_2CuO_4$  является та физическая ситуация, которая наблюдалась в  $Eu_2CuO_4$ .

План статьи следующий: во-первых, рассматриваются экспериментальные данные по *ac*-нелинейной магнитной восприимчивости для всех трех перечисленных выше кристаллов и проводится их анализ; во-вторых приводятся данные для СВЧ магнитных и диэлектрических восприимчивостей и их анализ для тех же кристаллов; и, наконец, на основе всей совокупности полученных данных рассматривается возможная схема фазовых состояний кристаллов.

## 1. Нелинейная магнитная восприимчивость

1.1. Постановка задачи. Как уже отмечалось во введении, в исследуемых нами кристаллах предполагается наличие *RF*-состояния. Такое состояние является нелинейным, и для его изучения проводится исследование *ac*-нелинейной магнитной восприимчивости. В работах [11–14], в которых изучалась нелинейная восприимчивость в критической области вблизи фазовых переходов II рода, была продемонстрирована эффективность этого метода.

Обычно в экспериментах по нелинейной магнитной восприимчивости изучается отклик на кратных частотах  $n\omega$  ( $n \geq 1$ ) при приложении к образцу переменного магнитного поля на частоте  $\omega$  ( $h = h_0 \sin(\omega t)$ ).

Магнитный момент нелинейной системы может быть представлен в виде суммы моментов [12]

$$M = M_0 + M_1 + M_2 + M_3 + \dots \\ = M_0 + \chi_1 h_0 + \chi_2 h_0^2 + \chi_3 h_0^3 + \dots, \quad (1)$$

где величины  $\chi_n$  — восприимчивости  $n$ -го порядка,  $M_0$  — спонтанная намагниченность. Если  $M_0 = 0$ , то ряд (1) содержит только нечетные члены.

В случае, когда вклад высших моментов спадает достаточно быстро, можно ограничиться учетом лишь нескольких первых членов ряда (1) и его легко переписать в гармонический. Коэффициенты этого ряда, представляющие собой экспериментально измеряемые амплитуды гармоник  $A_n$ , позволяют рассчитать соответствующие нелинейные восприимчивости. Например, ограничиваясь в (1) членами до  $n = 7$  включительно, получим

$$A_3 = 1/4 \chi_3 h_0^3 + 5/16 \chi_5 h_0^5 + 21/64 \chi_7 h_0^7. \quad (2)$$

Первая гармоника характеризует главным образом линейную восприимчивость, обусловленную парными корреляциями, которые всегда преобладают. Гармоники  $A_{3,5,\dots}$  обусловлены корреляциями высших порядков. Наличие спонтанной (или индуцированной постоянным полем  $H_0 \neq 0$ ) намагниченности приводит к появлению также и четных гармоник.

При исследовании низкочастотной восприимчивости (на частотах, значительно меньших частот собственных спин-волновых возбуждений) изучается квазистатический отклик однородного ( $s q = 0$ ) магнитного момента

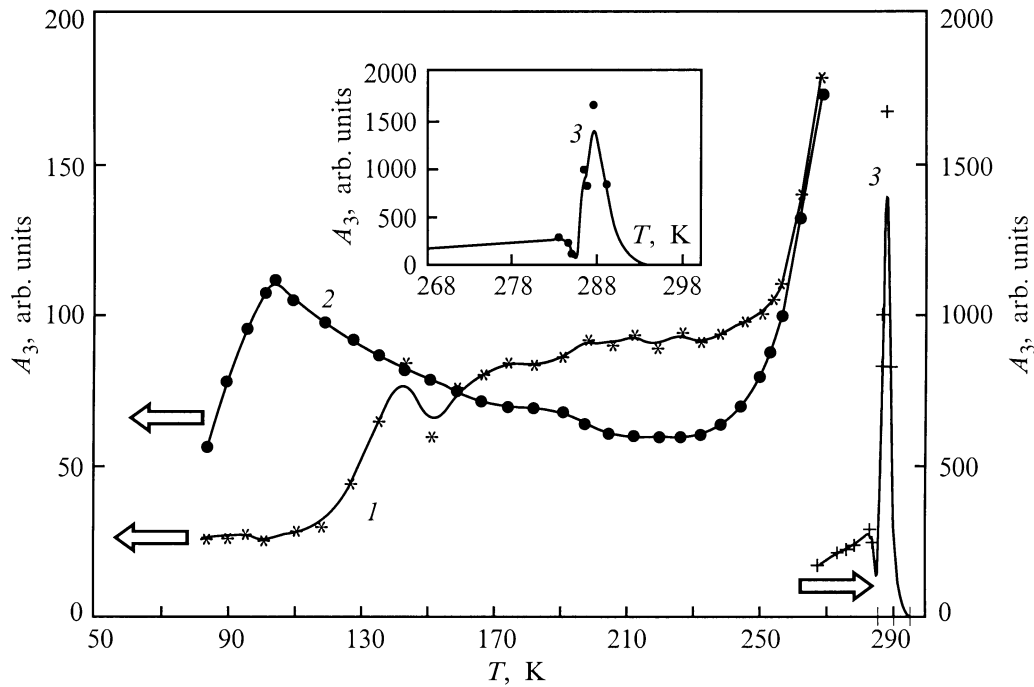
кристалла на приложенное переменное магнитное поле. Известно, что статические восприимчивости ферромагнетиков значительно превосходят такие же восприимчивости антиферромагнетиков. Однако для антиферромагнетиков со слабым ферромагнетизмом статические восприимчивости приближаются по значениям к ферромагнитным. В этой связи для антиферромагнетиков со слабым ферромагнетизмом, находящихся в нелинейном состоянии, можно ожидать, что и интенсивности нелинейных гармоник будут близкими к ферромагнитным.

Как известно, для существования слабого ферромагнетизма антиферромагнетиков необходимо, чтобы симметрия кристаллов допускала наличие взаимодействия Дзялошинского–Мория [15]. В случае квази-2D антиферромагнетиков  $R_2CuO_4$  для появления слабого ферромагнетизма необходимо наличие ромбических искажений тетрагональной  $T'$ -структуры.

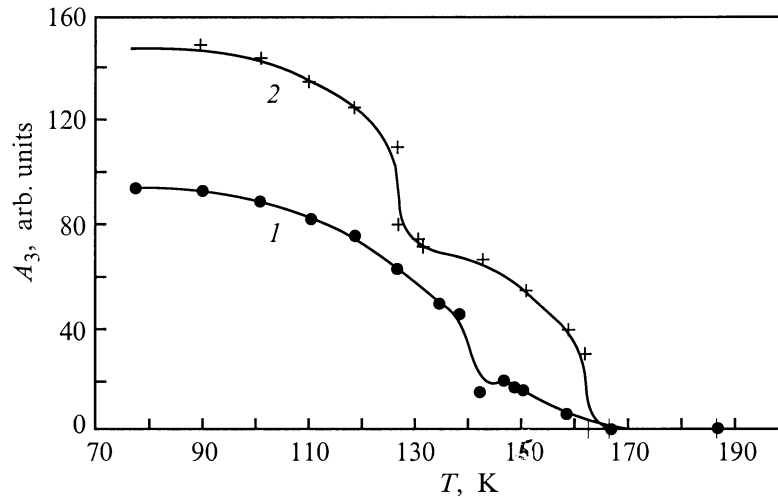
Для антиферромагнетика со слабым ферромагнитным моментом имеются два параметра порядка: ферромагнитный —  $s q = 0$  и антиферромагнитный —  $s q = Q(\pi/a)$  ( $Q(\pi/a)$  — антиферромагнитный вектор). Ферромагнитный параметр порядка имеет особенности вблизи  $T_N$  при  $q = 0$ , а антиферромагнитный параметр порядка является критическим вблизи  $T_N$  для  $q \simeq Q(\pi/a)$ . Таким образом, наличие слабого ферромагнетизма в антиферромагнетиках обеспечивает возможность наблюдения низкочастотных нелинейных гармоник в критической области.

При температурах  $T \ll T_N$  для слабых ферромагнетиков возможна также нелинейность, обусловленная либо доменной структурой, либо наличием кооперативного, но разупорядоченного состояния (Random Field или спиновое стекло).

1.2. Экспериментальные результаты. В данной работе изучалось поведение второй ( $A_2$ ) и третьей ( $A_3$ ) гармоник для кристаллов  $R_2CuO_4$   $R = Eu, Pr, Gd$ . Методика измерений была аналогична использованной нами ранее при исследовании нелинейной диэлектрической восприимчивости [16]. Естественно в отличие от случая диэлектрических измерений образец помещался в переменное магнитное поле. Применялся индукционный метод регистрации, при котором измеряется наведенная образцом эдс индукции на удвоенной или утроенной частотах по отношению к частоте приложенного поля. Измерялись температурные зависимости  $A_2(T)$  и  $A_3(T)$  в интервале температур 77–350 К. Измерения производились на ряде частот возбуждающего магнитного поля  $\omega$  в диапазоне 1–30 кГц. Амплитуда магнитного поля  $h_0$  изменялась в пределах 0.5–5 Ое. Зависимости величин  $A_2(h_0^2)$  и  $A_3(h_0^3)$  в указанных для  $h_0$  пределах были близки к линейным. Измерения проводились также и при приложении постоянного внешнего магнитного поля  $H_0 \leq 1$  кОе. Чувствительность установки, как и в [16], определялась величиной амплитуды паразитных гармоник, которая была порядка  $10^{-6}$  от амплитуды возбуждающего поля  $h_0$ . При этом отношение амплитуд паразитного сигнала к полезному для значения  $A_{3,max}$  составляло  $10^{-3}$ – $10^{-4}$ .



**Рис. 1.** Температурная зависимость амплитуды третьей гармоники кристалла  $Gd_2CuO_4$ . 1 — режим ZFC, 2 — режим FC, 3 — температурная зависимость  $A_3$  для критической области (режимы ZFC и FC практически совпадают). На вставке: 3 — в более грубом масштабе по оси ординат, но в более растянутом масштабе по температуре.



**Рис. 2.** Температурная зависимость амплитуды третьей гармоники кристалла  $Eu_2CuO_4$ . Частота измерений  $3\omega$  (kHz): 1 — 6, 2 — 30.

Температурные зависимости амплитуд нелинейных гармоник каждый раз снимались при нагревании образца, который предварительно охлаждался от комнатной температуры до  $T \sim 77$  K как без постоянного магнитного поля ( $H_0 = 0$ , Zero Field Cooling—ZFC-режим), так и в присутствии постоянного магнитного поля (FC-режим). При низкой температуре, в случае охлаждения в режиме FC, поле  $H_0$  отключалось и измерения (при отогреве) производились при  $H_0 = 0$ .

а)  $Gd_2CuO_4$ . Результаты измерений зависимостей  $A_3(T)$  для кристаллов  $Gd_2CuO_4$  приведены на рис. 1. Похожие зависимости наблюдались и для второй гармоники. Однако амплитуда  $A_2$  была в 30–50 раз меньше, чем  $A_3$ . Как видно из рис. 1, для  $Gd_2CuO_4$  имеются гармоники  $A_3 \neq 0$ , снятые как в режиме ZFC, так и в режиме FC. При этом имеется мощный пик амплитуды  $A_3$  вблизи температуры  $T \simeq 290$  K  $\simeq T_N$  и значительно более слабые сигналы в области температур, более низких, чем  $T_N$ .

При повторном приложении поля  $H_0 \neq 0$  при отогреве кристаллов низкотемпературные сигналы  $A_2$  сначала существенно увеличивали амплитуду, а затем, при дальнейшем увеличении поля ( $H_0 > 200$  Ое), происходило подавление сигналов как  $A_3$ , так и  $A_2$ .

б)  $\text{Eu}_2\text{CuO}_4$ . На рис. 2 представлены амплитуды гармоник  $A_3$  для кристаллов  $\text{Eu}_2\text{CuO}_4$ . Отметим, что в  $\text{Eu}_2\text{CuO}_4$  в отличие от  $\text{Gd}_2\text{CuO}_4$  в режиме ZFC сигналов  $A_2$  и  $A_3$  во всем рабочем диапазоне температур не наблюдалось. Однако в режиме FC, при выключении постоянного поля при самой низкой температуре, возник сигнал третьей гармоники, который также значительно превышал сигнал второй гармоники, как и в  $\text{Gd}_2\text{CuO}_4$ . Как видно из рис. 1 и 2, амплитуда сигнала  $A_3$  для  $\text{Eu}_2\text{CuO}_4$  сравнима по величине с такой же амплитудой для  $\text{Gd}_2\text{CuO}_4$  в области низких температур. В отличие от  $\text{Gd}_2\text{CuO}_4$  в кристаллах  $\text{Eu}_2\text{CuO}_4$  не наблюдается максимума на температурной зависимости  $A_3(T)$  вблизи  $T \simeq T_N$ . Кроме того, сигналы  $A_3 \neq 0$  лишь при температурах ниже 150–160 К.

Если при измерениях в процессе отогрева прикладывали повторно внешнее постоянное магнитное поле  $H_0 \simeq 20$  Ое, то сигнал  $A_3$  полностью стирался (но обратимым образом, т.е. при снятии поля сигнал восстанавливался).

с)  $\text{Pr}_2\text{CuO}_4$ . Для кристаллов  $\text{Pr}_2\text{CuO}_4$  при всех перечисленных выше условиях гармоники  $A_2$  и  $A_3$  не возникали.

Необходимо отметить, что сигналы  $A_2$  и  $A_3$  во всех перечисленных выше случаях для всех трех кристаллов наблюдались лишь при ориентациях переменного поля  $h$  и постоянного поля  $H_0$  в плоскости  $(ab)$  кристаллов. При ориентации полей вдоль оси  $(c)$  нелинейные эффекты не наблюдались.

### 1.3. Анализ экспериментальных данных.

а)  $\text{Gd}_2\text{CuO}_4$ . Как известно (см. [2]), в кристаллах  $\text{Gd}_2\text{CuO}_4$  при температурах  $T < 600$  К имеются ромбические искажения  $T'$ -структуры и слабый ферромагнитный момент в плоскости  $ab$  кристалла при  $T < T_N$ . При этом мощный пик амплитуды  $A_3$ , наблюдаемый при 290 К (см. рис. 1), естественно связать с критической областью вблизи  $T_N$ . Однако, как видно из рис. 1, для  $\text{Gd}_2\text{CuO}_4$  имеются также и более слабые, но четко фиксируемые в эксперименте сигналы нелинейных гармоник  $A_3$  при более низких температурах, вне критической области. Как уже отмечалось, такая низкотемпературная нелинейность может быть обусловлена либо доменной структурой в случае, если в кристалле имеется однородный 3D дальний магнитный порядок. Либо она может быть обусловлена подмешиванием разупорядоченной фазы к однородному магнитному состоянию.

б)  $\text{Eu}_2\text{CuO}_4$ . Способ формирования сигнала  $A_3$  при  $T \leq 150$ –160 К в  $\text{Eu}_2\text{CuO}_4$ , описанный выше, указывает на индуцирование внешним постоянным магнитным полем остаточного, неравновесного магнитного момента в плоскости  $(ab)$  кристалла.

Полагаем, что в области температур  $T \leq 150$ –160 К в кристалле имеются слабо-ферромагнитные моменты в плоскости  $(ab)$  на локальных масштабах (*RF*-состояние).

Температурная зависимость  $A_3(T)$  при  $T \leq 160$  К (см. рис. 2), с одной стороны, близка к температурной зависимости магнитного параметра порядка, хотя и имеются некоторые нерегулярности на этой зависимости вблизи температур 120 и 150 К. С другой стороны, аналогичный вид имеет температурная зависимость интенсивности сверхструктурного рефлекса, обнаруженного при  $T \leq 150$ –160 К в  $\text{Eu}_2\text{CuO}_4$  в работе [8]. Интенсивность сверхструктурного рефлекса обращается в нуль при той же температуре, что и сигнал  $A_3$  (см. рис. 5 в [8]). Таким образом, структурный фазовый переход при  $T \simeq 150$ –160 К сопровождается одновременно и изменением магнитных свойств.

Согласно [8], при структурном фазовом переходе в  $\text{Eu}_2\text{CuO}_4$  вблизи  $T \simeq 150$ –160 К имеются ромбические искажения на локальных масштабах, обусловленные смещениями ионов кислорода вокруг ионов  $\text{Cu}^{2+}$  в слоях  $\text{CuO}_2$ . Наличие таких искажений в ограниченных областях при температурах  $T \leq 150$ –160 К обеспечивает возможность появления на тех же локальных масштабах слабых ферромагнитных моментов (ориентированных в  $(ab)$ -плоскостях), приводящих к возникновению сигналов  $A_3 \neq 0$ . При температурах  $T \geq 160$  К ромбические искажения исчезают. При этом исчезают и слабые ферромагнитные моменты и вместе с ними и сигналы третьей гармоники.

Таким образом, можно считать, что в кристаллах  $\text{Eu}_2\text{CuO}_4$  в области низких температур ( $T \leq 150$ –160 К) имеется квази-2D антиферромагнитное состояние со слабым ферромагнитным моментом на локальных масштабах, обладающее нелинейными свойствами, т.е. в низкотемпературной области, как и при температурах  $T \geq 150$ –160 К (см. [6]), в кристалле имеется *RF*-состояние.

с)  $\text{Pr}_2\text{CuO}_4$ . В кристаллах  $\text{Pr}_2\text{CuO}_4$ , как уже отмечалось, при тех же условиях эксперимента, что и в случаях  $\text{Eu}_2\text{CuO}_4$  и  $\text{Gd}_2\text{CuO}_4$ , сигналов  $A_3$ ,  $A_2 \neq 0$  не наблюдалось. Это указывает на то, что в этом кристалле во всей исследованной области температур нет слабоферромагнитных состояний даже на локальных масштабах. Видимо, локальные структурные искажения, экспериментально фиксируемые и в кристаллах  $\text{Pr}_2\text{CuO}_4$ , не нарушают тетрагональной симметрии кристалла.

## 2. СВЧ динамические магнитная и диэлектрическая восприимчивости

В данном разделе опишем результаты исследований СВЧ динамических магнитной и диэлектрической восприимчивостей в кристаллах  $\text{Pr}_2\text{CuO}_4$  и  $\text{Gd}_2\text{CuO}_4$  и сравним их с полученными ранее данными для  $\text{Eu}_2\text{CuO}_4$  [5]. Метод измерений и расчетов величин восприимчивостей подобен использованному в работе [5].

2.1. Постановка задачи. Ситуация в кристалле  $\text{Eu}_2\text{CuO}_4$ . В работе [5] в кристалле  $\text{Eu}_2\text{CuO}_4$  были обнаружены однородные ( $c \ q = 0$ ), хорошо определенные ( $c$  затуханием  $\gamma \ll \omega_0$ ) спин-волновые возбуждения типа спиновых волн в слоях  $\text{CuO}_2$ . Эти возбуждения существовали, начиная с температур  $T > 120$  К, вплоть до температуры  $T \simeq 450$  К, до которой производились измерения. Таким образом, спин-волновые возбуждения возникали при  $T \ll T_N$  и, не изменяясь при возрастании температуры и не имея особенностей при  $T \simeq T_N$ , существовали вплоть до  $T \gg T_N$ . Это указывает на 2D характер наблюдаемых спин-волновых возбуждений.

Мы фиксировали наличие описанных выше спин-волновых возбуждений методом СВЧ динамической магнитной восприимчивости. При этом наблюдались следующие особенности.

1) Динамическая магнитная восприимчивость значительно превышала статическую магнитную восприимчивость;

2) Вещественная часть динамической магнитной восприимчивости значительно превышала мнимую ее часть (т.е. возбуждения были высокодобротными);

3) Для ориентации переменного магнитного поля вдоль оси ( $c$ ) кристалла, при температуре  $T \simeq 120$  К вещественная часть динамической магнитной восприимчивости становилась отрицательной величиной. Для нашего случая диэлектрического кристалла последнее может быть обусловлено дисперсией вещественной части магнитной восприимчивости вблизи резонансного поглощения, когда частота, на которой проводились измерения, несколько превышала резонансную частоту и учтены слабые потери (см. [5]).

Таким образом, для  $\text{Eu}_2\text{CuO}_4$  в широком диапазоне температур, включая как температуры  $T < T_N$ , так и температуры, значительно превышающие  $T_N$ , наблюдалась щель в спектре 2D спин-волновых возбуждений. Величина щели  $\omega_0 \sim 0.1$  meV [5].

В работе [5] были проанализированы условия существования однородных, хорошо определенных спин-волновых возбуждений в 2D гейзенберговских антиферромагнетиках. Для таких антиферромагнетиков в обменном приближении спин-волновые возбуждения с волновым вектором  $q$  являются хорошо определенными, если корреляционный радиус 2D гейзенберговских антиферромагнитных спиновых флуктуаций  $\xi \gg a$  и выполняется условие  $q\xi \gg 1$ . При этом собственная частота  $\omega_0$  и затухание  $\gamma$  таких возбуждений определяются формулами (см. работу [17])

$$\omega_0 = cq, \quad \gamma = ck. \quad (3)$$

Здесь  $c$  — скорость спиновых волн, а величина  $k = 1/\xi$ . Ясно, что в обменном приближении однородные ( $c \ q = 0$ ) спин-волновые возбуждения могут быть только затухающими.

Ситуация изменяется при учете сильной анизотропии, имеющей симметрию, не сохраняющую спин, например,

одноосной. В этом случае наряду с корреляционным радиусом 2D гейзенберговских антиферромагнитных спиновых флуктуаций  $\xi = a \exp(2\pi\rho_s/k_B T)$  [17], появляется и масштаб корреляции спинов в слоях за счет анизотропии —  $\xi_a = a \exp(2\pi\rho_s/k_B T_a)$ , где  $T_a$  — эффективная температура, характеризующая энергию анизотропии. В работе [5] показано, что для достаточно сильной одноосной анизотропии, при выполнении условий  $\xi \gg a$  и  $q_a \xi \gg 1$ , где  $q_a = 1/\xi_a$ , собственная частота и затухание спин-волновых возбуждений с волновыми векторами  $0 \leq q \ll q_a$  имеют вид

$$\omega_0 = cq_a, \quad \gamma = ck. \quad (4)$$

Такие спин-волновые возбуждения, в том числе и однородные, являются хорошо определенными.

Было показано, что источником сильной одноосной анизотропии, необходимой для формирования масштаба  $q_a \gg k$ , для кристалла  $\text{Eu}_2\text{CuO}_4$  является изинговское случайное молекулярное поле 2D орбитального стекла [4,5].

Таким образом, наличие 2D однородных, хорошо определенных спин-волновых возбуждений указывает на то, что в температурном диапазоне существования таких возбуждений в кристалле  $\text{Eu}_2\text{CuO}_4$  имеются 2D гейзенберговские антиферромагнитные спиновые флуктуации с большими корреляционными радиусами  $\xi \gg a$  и сильная одноосная анизотропия, такая, что величина  $q_a \xi \gg 1$ . Отметим, что если в кристалле при температурах  $T < T_N$  имеется RF-состояние, то 2D однородные, хорошо определенные спин-волновые возбуждения могут существовать и при  $T < T_N$ . В наших экспериментах такие спин-волновые возбуждения возникают при температурах  $T \geq 120$  К. Приведенные в разделе 1 данные по нелинейной  $ac$ -восприимчивости для кристалла  $\text{Eu}_2\text{CuO}_4$  свидетельствуют в пользу того, что и при температурах  $T < 120$  К (вплоть до нижнего предела измерения 77 К) в кристалле сохраняется RF-состояние.

В результате, обобщая данные по СВЧ спиновой динамике и нелинейной восприимчивости, приходим к заключению, что в  $\text{Eu}_2\text{CuO}_4$  во всей области температур имеется квази-2D состояние типа RF. При этом имеются два фазовых перехода — при  $T \sim 150$ –160 и 250–270 К. Вблизи температуры  $T \sim 150$ –160 К изменяется структурное состояние кристалла  $\text{Eu}_2\text{CuO}_4$  и изменяется характер магнитной анизотропии. При температурах  $T \leq 150$  К в слоях  $\text{CuO}_2$  имеются ромбические искажения на локальных масштабах и слабый ферромагнетизм в плоскостях ( $ab$ ) на тех же локальных масштабах. При температурах  $T \geq 150$  К симметрия кристалла тетрагональная (исчезают локальные ромбические искажения, приводящие к возникновению слабого ферромагнетизма в слоях), но появляется состояние орбитального стекла и однородные, хорошо определенные спин-волновые возбуждения в слоях  $\text{CuO}_2$ .

В соответствии с данными нейтронных исследований [9] температура  $T \sim 250$ –270 К является температурой Нееля для кристалла  $\text{Eu}_2\text{CuO}_4$ . В наших

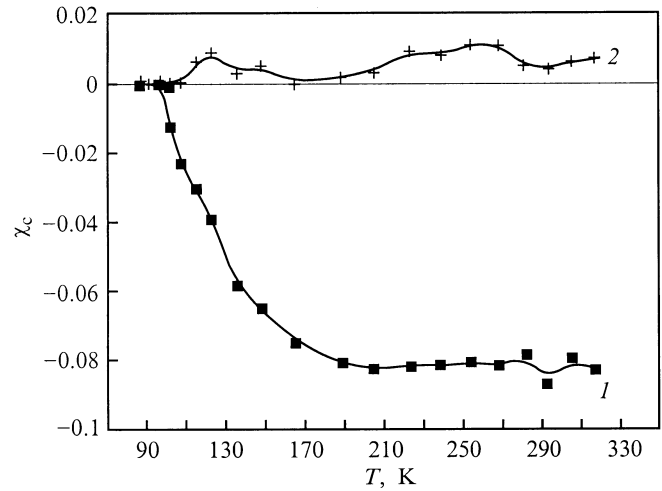
экспериментах по СВЧ спиновой динамике при температуре  $T \sim 250\text{--}270\text{ К}$  величина собственной частоты однородных спин-волновых возбуждений сравнивается с величиной затухания этих возбуждений ( $\omega_0 \simeq \gamma$ ). В результате спин-волновой режим при более низких температурах сменяется на режим затухающих спиновых возбуждений при  $T > 250\text{--}270\text{ К}$ . Однако фазовый переход сильно размыт из-за наличия  $RF$ -состояния.

Если состояние слоев  $\text{CuO}_2$ , а также механизмы анизотропии являются общими для кристаллов  $\text{R}_2\text{CuO}_4$  с различными РЗИ, то можно ожидать, что однородные, хорошо определенные спин-волновые возбуждения могут также наблюдаться и в кристаллах с другими РЗИ. В этой связи мы предприняли исследование кристаллов  $\text{R}_2\text{CuO}_4$  ( $\text{R} = \text{Pr}, \text{Gd}$ ). Как и в случае  $\text{Eu}_2\text{CuO}_4$ , для получения информации о структурном состоянии кристалла измерялись также и температурные зависимости СВЧ диэлектрической восприимчивости.

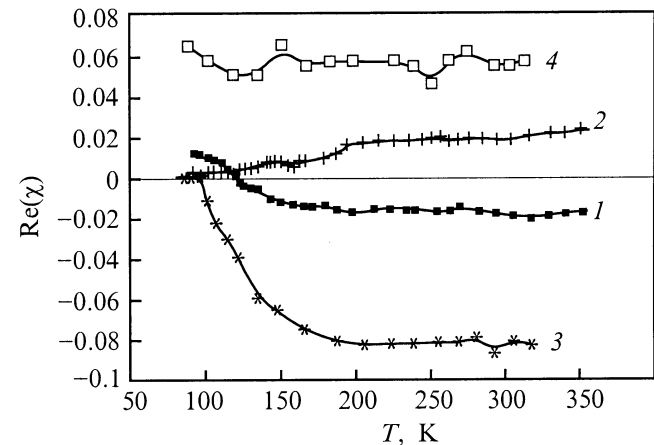
2.2. СВЧ магнитные и диэлектрические восприимчивости кристаллов  $\text{R}_2\text{CuO}_4$  ( $\text{R} = \text{Pr}, \text{Gd}$ ) и их анализ.

а)  $\text{Pr}_2\text{CuO}_4$ . На рис. 3 представлены данные для динамической магнитной восприимчивости кристаллов  $\text{Pr}_2\text{CuO}_4$ . На рис. 4 сравниваются данные для вещественных частей динамической магнитной восприимчивости кристаллов  $\text{Pr}_2\text{CuO}_4$  и  $\text{Eu}_2\text{CuO}_4$ . Как видно из рис. 3, основные особенности динамической магнитной восприимчивости для  $\text{Pr}_2\text{CuO}_4$  такие же, как и перечисленные выше для  $\text{Eu}_2\text{CuO}_4$  [5]. Отличие заключается лишь в некоторой разнице величин восприимчивости и сдвиге в более низкотемпературную область характерной температуры, при которой происходит изменение знака  $\text{Re}(\chi_c)$  (см. рис. 3 и 4). Таким образом, в кристалле  $\text{Pr}_2\text{CuO}_4$  в широкой области температур, начиная с  $T \sim 90\text{--}100\text{ К}$  и вплоть до максимальной температуры, до которой проводились измерения ( $T \sim 350\text{ К}$ ), также наблюдаются 2D однородные, хорошо определенные спин-волновые возбуждения, аналогичные тем, которые наблюдались в  $\text{Eu}_2\text{CuO}_4$  [5]. Это указывает на то, что и в  $\text{Pr}_2\text{CuO}_4$  в указанной области температур имеются 2D гейзенберговские антиферромагнитные спиновые флуктуации с большими корреляционными радиусами (т. е. в кристалле имеется квази-2D  $RF$ -состояние). При этом величина одноосной анизотропии близка к значению анизотропии  $\text{Eu}_2\text{CuO}_4$ .

Исходя из экспериментальных данных по СВЧ спиновой динамике, можно оценить характерные величины волновых векторов  $q_a$  и эффективных температур одноосной анизотропии для обоих кристаллов. Используя формулы (4), значение скорости спиновых волн из экспериментов по неупругому рассеянию нейтронов в  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  ( $c = 0.4 \cdot 10^6\text{ см/с}$ ) [18] и измеренное нами значение  $\omega_0 \sim 30\text{ GHz}$  (собственные частоты  $\omega_0$  близки для  $\text{Pr}_2\text{CuO}_4$  и  $\text{Eu}_2\text{CuO}_4$ ), получаем  $q_a \simeq 5 \cdot 10^5\text{ см}^{-1}$ . Для  $T = 200\text{ К}$ , учитывая, что  $a \simeq 4 \cdot 10^{-8}\text{ см}$ , получим  $k \simeq 5 \cdot 10^4\text{ см}^{-1}$ , т. е. условие  $q_a \gg k$  действительно выполняется. При этом по значению  $\xi_a = 1/q_a$  можно



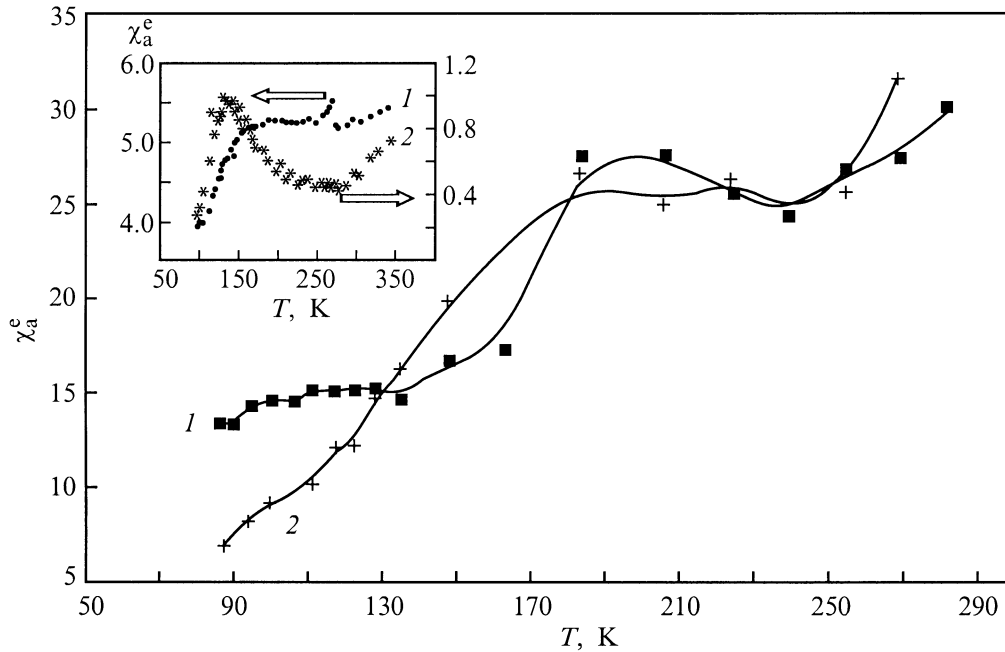
**Рис. 3.** Температурная зависимость динамической магнитной восприимчивости кристалла  $\text{Pr}_2\text{CuO}_4$ . 1 — вещественная часть восприимчивости вдоль оси  $c$  —  $\text{Re}\chi_c$ , 2 — мнимая часть этой восприимчивости —  $\text{Im}\chi_c$ . Частота — 36 GHz. Динамическая магнитная восприимчивость приведена в гауссовой системе единиц.



**Рис. 4.** Температурные зависимости вещественных частей динамической магнитной восприимчивости кристаллов  $\text{Eu}_2\text{CuO}_4$  (1,2) и  $\text{Pr}_2\text{CuO}_4$  (3,4) для ориентаций  $c$  (1,3) и  $a$  (2,4). Частота 36 GHz.

вычислить  $T_a \sim 250\text{ К}$ . Отметим, что для  $\text{Eu}_2\text{CuO}_4$  величина  $T_a \sim 250\text{ К}$  совпадает с температурой максимума плотности состояний орбитального стекла [4–6].

Смена знака вещественной части динамической магнитной восприимчивости вдоль оси  $c$  для кристаллов  $\text{Pr}_2\text{CuO}_4$  и  $\text{Eu}_2\text{CuO}_4$  при температурах  $T \simeq 90$  и  $120\text{ К}$  соответственно означает изменение значения собственной частоты  $\omega_0$  по отношению к фиксированной рабочей частоте при этих температурах. Действительно (см. [5]), для того, чтобы величина  $\text{Re}(\chi_c)$  была положительной, необходимо, чтобы рабочая частота была несколько ниже, чем  $\omega_0$ . Отрицательное значение  $\text{Re}(\chi_c)$  возникает в обратной ситуации, когда рабочая частота несколько превышает  $\omega_0$ . Как следует из формул (4), изменение



**Рис. 5.** Температурная зависимость диэлектрической восприимчивости  $\text{Pr}_2\text{CuO}_4$ . 1 — вещественная часть восприимчивости  $\text{Re}\chi_a^e$  в плоскости  $(ab)$  кристалла, 2 — мнимая часть этой восприимчивости —  $\text{Im}\chi_a^e$ . Частота — 33 GHz. На вставке приведена аналогичная зависимость для  $\text{Eu}_2\text{CuO}_4$  из работы [5].

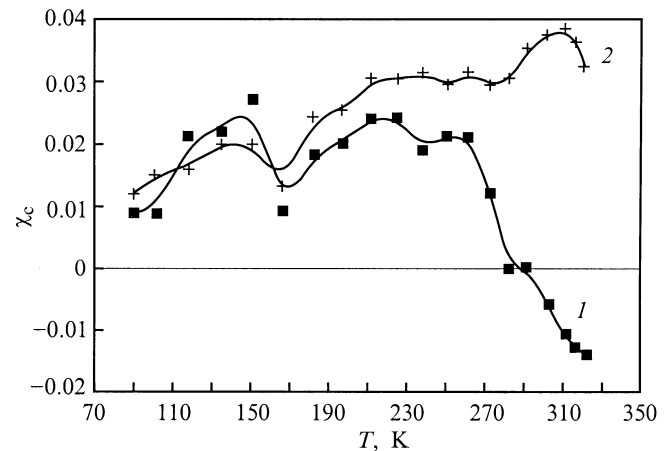
величины  $\omega_0$  может быть обусловлено изменением величины магнитной анизотропии.

На рис. 5 приведены данные для вещественной и мнимой частей диэлектрической восприимчивости для кристаллов  $\text{Pr}_2\text{CuO}_4$  для ориентации переменного электрического поля в плоскости  $(ab)$ . Особенности на температурных зависимостях диэлектрической восприимчивости, также как и в кристалле  $\text{Eu}_2\text{CuO}_4$ , наблюдаются только в такой ориентации. Как видно из рис. 5, имеется растянутая по температуре область аномального изменения вещественной и мнимой частей диэлектрической восприимчивости  $\chi_a^e$ , характерная для размытых структурных фазовых переходов. Из сравнения с аналогичными зависимостями для  $\text{Eu}_2\text{CuO}_4$  (см. вставку на рис. 5) видно, что структурный фазовый переход в  $\text{Pr}_2\text{CuO}_4$  происходит приблизительно при тех же температурах, но является еще более размытым.

Итак, обобщая экспериментальные данные по нелинейной  $ac$ -магнитной восприимчивости и СВЧ динамике, полагаем, что в  $\text{Pr}_2\text{CuO}_4$  имеется структурный фазовый переход, сопровождаемый изменением магнитной анизотропии кристалла. Переход аналогичен тому, который наблюдается в  $\text{Eu}_2\text{CuO}_4$  при температуре  $T \simeq 150\text{--}160$  К. Однако в  $\text{Pr}_2\text{CuO}_4$  этот переход происходит при более низкой температуре и еще более размыт. Локальные структурные искажения в  $\text{Pr}_2\text{CuO}_4$  не нарушают тетрагональной симметрии и слабый ферромагнетизм не возникает.

б)  $\text{Gd}_2\text{CuO}_4$ . На рис. 6 приведены данные для динамической магнитной восприимчивости кристаллов  $\text{Gd}_2\text{CuO}_4$ . Видно, что для  $\text{Gd}_2\text{CuO}_4$  картина несколько

иная в сравнении с  $\text{Pr}_2\text{CuO}_4$  и  $\text{Eu}_2\text{CuO}_4$ . Величины динамической магнитной восприимчивости по-прежнему значительно превышают статические, а потому однородные, хорошо определенные моды существуют и в этом кристалле. Однако, значения  $\text{Re}(\chi_c)$  и  $\text{Im}(\chi_c)$  в широкой области температур практически равны друг другу, т.е. спин-волновые возбуждения не так добротны, как в кристаллах  $\text{Pr}_2\text{CuO}_4$  и  $\text{Eu}_2\text{CuO}_4$ . И величина  $\text{Re}(\chi_c)$  становится отрицательной лишь вблизи  $T \simeq 290\text{--}300$  К, т.е. изменение величины магнитной анизотропии в  $\text{Gd}_2\text{CuO}_4$



**Рис. 6.** Температурная зависимость динамической магнитной восприимчивости кристалла  $\text{Gd}_2\text{CuO}_4$ . 1 — вещественная часть восприимчивости вдоль оси  $(c)$  —  $\text{Re}\chi_c$ , 2 — мнимая часть этой восприимчивости —  $\text{Im}\chi_c$ . Частота — 36 GHz.

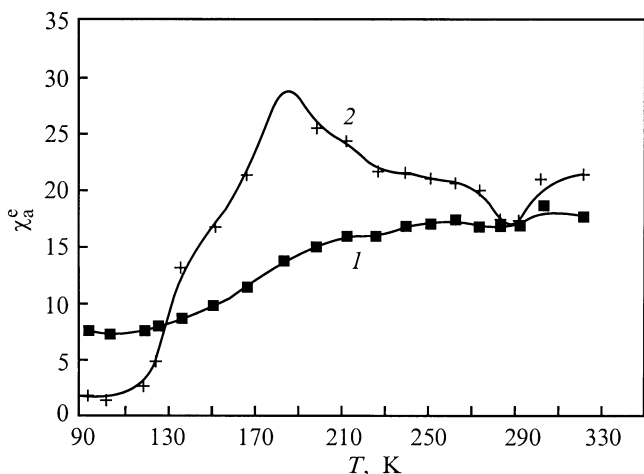


Рис. 7. Та же зависимость, что и на рис. 5, но для  $Gd_2CuO_4$ .

происходит при значительно более высокой температуре, чем в кристаллах  $Pr_2CuO_4$  и  $Eu_2CuO_4$  (практически в критической области вблизи  $T_N$ ).

На рис. 7 приведены данные для вещественной и мнимой частей диэлектрической восприимчивости для кристалла  $Gd_2CuO_4$  при ориентации переменного электрического поля в плоскости ( $ab$ ). Особенности на температурных зависимостях диэлектрической восприимчивости и в  $Gd_2CuO_4$  наблюдаются только в такой ориентации, что также согласуется с результатами непосредственных исследований характера структурных искажений в работе [2]. Видно, что и в кристаллах  $Gd_2CuO_4$  (рис. 7) также наблюдается размытый структурный фазовый переход, но при несколько более высоких температурах, чем в кристаллах  $Pr_2CuO_4$  и  $Eu_2CuO_4$ , с более четким максимумом мнимой части диэлектрической восприимчивости при  $T \approx 180-190$  К.

Совместный анализ данных по СВЧ спиновой динамике и нелинейной восприимчивости позволяет заключить, что в кристалле  $Gd_2CuO_4$  наряду с однородным 3D антиферромагнитным дальним порядком, со слабым ферромагнетизмом в плоскости ( $ab$ ), имеется также и подмешивание  $RF$ -фазы при  $T < T_N$ . Действительно, только в этом случае при температуре  $T < T_N \approx 290$  К могут существовать 2D антиферромагнитные спиновые флуктуации с большими корреляционными радиусами, обеспечивающими возможность существования 2D однородных хорошо определенных спин-волновых возбуждений. Последние обладают большими величинами затухания, чем в кристаллах  $Pr_2CuO_4$  и  $Eu_2CuO_4$ , что может быть обусловлено большей неоднородностью состояния кристалла.

Итак, во всех трех изученных кристаллах при температурах  $T < T_N$  имеются неоднородное магнитное и структурное состояния типа  $RF$ . Для кристалла  $Gd_2CuO_4$  такое неоднородное состояние подмешано к основному 3D однородному состоянию с дальним магнитным порядком. Возможные причины возникновения  $RF$ -состояния в кристаллах  $R_2CuO_4$  обсуждаются в работе [19]. Отметим,

что предположение о существовании в изученных нами кристаллах состояния типа  $RF$  и предложенная физическая ситуация не противоречат имеющимся в литературе экспериментальным данным и в ряде случаев помогают понять эти данные. Например, наличие малого скачка при  $T \approx 150$  К и дальнейшего, практически линейного падения с температурой интенсивности нейтронного брэгговского пика для  $Eu_2CuO_4$  [9]; расталкивание ветви акустических фононов с некой спин-волновой модой, обладающей независимой от температуры щелью, в кристаллах  $Pr(Nd)_2CuO_4$  [20]; наблюдение стеклоподобного состояния в кристаллах  $Eu_2CuO_4$  методом ЭПР [21].

Работа поддержана Российским фондом фундаментальных исследований (грант № 97-02-18061).

## Список литературы

- [1] H. Muller-Buschbaum, W. Wollschlager. Z. Anorg. Allg. Chem. **414**, 76 (1975).
- [2] M. Braden, W. Paulus, A. Cousson, P. Vigoureux, G. Heger, A. Goukassov, P. Bourges, D. Petitgrand. Europhys. Lett. **25**, 625 (1994).
- [3] А.В. Бабинский, Е.И. Головенчиц, Н.В. Морозов, В.А. Санина, Л.М. Сапожникова. ФТТ **34**, 60 (1992).
- [4] А.В. Бабинский, С.Л. Гинзбург, Е.И. Головенчиц, В.А. Санина. Письма в ЖЭТФ **57**, 5, 289 (1993).
- [5] Е.И. Головенчиц, С.Л. Гинзбург, В.А. Санина, А.В. Бабинский. ЖЭТФ **107**, 1641 (1995).
- [6] Е.И. Головенчиц, В.А. Санина, А.В. Бабинский. ЖЭТФ **110**, 714 (1996).
- [7] Е.И. Головенчиц, В.А. Санина, А.А. Левин, Ю.И. Смолин, Ю.Ф. Шепелев. ФТТ **39**, 1600 (1997).
- [8] V.P. Plakhty, A.B. Stratilatov and S. Beloglazov. Sol. Stat. Commun. **103**, 12, 683 (1997).
- [9] T. Chattopadhyay, J.W. Lynn, N. Rosov, T.E. Grigereit, S.N. Barilo, D.I. Zhigunov. Phys. Rev. **B49**, 9944 (1994).
- [10] R.J. Birgeneau, R.A. Cowly, G. Shirane, H. Yoshizawa. J. of Stat. Phys. **34**, 817 (1984).
- [11] А.З. Паташинский, В.Л. Покровский. ЖЭТФ **46**, 994 (1964).
- [12] S.V. Maleev. Soc. Sci. Rev. A Phys. **8**, 323 (1987).
- [13] И.Д. Лузянин, В.П. Хавронин. ЖЭТФ **87**, 2129 (1984).
- [14] И.Д. Лузянин, В.П. Хавронин. ЖЭТФ **92**, 1798 (1987).
- [15] D. Dzyaloshinski. J. Phys. Chem. Sol. **4**, 241 (1958); T. Moriya. Phys. Rev. **120**, 91 (1960).
- [16] Е.И. Головенчиц, В.А. Санина, А.В. Бабинский. Письма в ЖЭТФ **63**, 634 (1996).
- [17] S. Chakravarty, V. Halperin, D. Nelson. Phys. Rev. **B39**, 2344 (1989).
- [18] T. Thio, T.R. Thurston, N.W. Preyer, P.J. Picone, M.A. Kastner, H.P. Jenssen, D.R. Gabbe, C.Y. Chen, R.J. Birgeneau, A. Aharony. Phys. Rev. **B38**, 905 (1988); T.Thio, C.Y. Chen, B.S. Freer, D.R. Gabbe, H.P. Jenssen, M.A. Kastner, P.J. Picone, N.W. Preyer, R.J. Birgeneau. ibid. **41**, 231 (1990).
- [19] Е.И. Головенчиц, В.А. Санина. ФТТ **41**, 7, 132 (1999).
- [20] Д.В. Филь, И.Г. Колобов, И.Д. Филь. ФНТ **21**, 1225 (1995).
- [21] R.D. Zysler, M. Tovar, C.Rettori, D. Rao, H. Shore, S.B. Oseroff, D.C. Vier, S. Shultz, Z. Fisk, S.-W. Cheong. Phys. Rev. **B44**, 9467 (1991).