

Спиновая динамика и фазовые переходы в квази-2D антиферромагнетиках R_2CuO_4 ($R = Pr, Nd, Sm, Eu$ и 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@mail.ioffe.ru

(Поступила в Редакцию 14 января 2003 г.)

В миллиметровом диапазоне электромагнитных волн изучены спиновая динамика и динамика решетки квази-2D антиферромагнитных кристаллов R_2CuO_4 ($R = Pr, Nd, Sm, Eu$ и Gd). Обнаружены резкие изменения коэффициента поглощения вблизи температур $T \approx T_0$. Вблизи температур T_0 наблюдались также линии поглощения электрической природы, обусловленные динамикой решетки. Предполагается, что причиной обнаруженных аномалий являются фазовые переходы при $T \approx T_0$, при которых изменяются структурные и магнитные свойства.

Работа поддержана Российским фондом фундаментальных исследований (гранты № 02-02-16140а и частично 00-15-96757), а также частично фондом „Фундаментальные исследования“ Президиума РАН (проект „Квантовая макрофизика“).

Изучены спектры поглощения электромагнитных волн квази-2D антиферромагнетиков R_2CuO_4 ($R = Pr, Nd, Sm, Eu$ и Gd) в диапазоне частот 20–250 GHz в интервале температур 5–350 K. Измерения проводились на стехиометрических диэлектрических монокристаллах.

Кристаллы R_2CuO_4 с $R = Pr, Nd, Sm, Eu$ обладают при всех температурах тетрагональной T' -типа симметрией (пространственная группа $I4/mmm$ [1]). В La_2CuO_4 и Gd_2CuO_4 при температурах 600–650 K наблюдались структурные переходы из высокотемпературной (тетрагональной) в низкотемпературную (орторомбическую) фазу [2,3].

Структура La_2CuO_4 и R_2CuO_4 с редкоземельными ионами (РЗИ) для $R = Pr, Nd, Sm, Eu$ и Gd представлена на рис. 1. Общей особенностью структуры всех этих кристаллов является ее квази-2D характер. Однако при этом ближайшее окружение ионов Cu^{2+} в La_2CuO_4 и R_2CuO_4 с РЗИ различается. В La_2CuO_4 это октаэдр из ионов O^{2-} (координационное число $Z = 6$), а в R_2CuO_4 с РЗИ – квадраты из ионов кислорода ($Z = 4$) в слоях CuO_2 .

В отношении магнитных свойств La_2CuO_4 и все кристаллы R_2CuO_4 с РЗИ являются квази-2D гейзенберговскими антиферромагнетиками, построенными на основе слоев CuO_2 с ионами Cu^{2+} (спин $S = 1/2$). В слоях имеется сильное 2D гейзенберговское обменное взаимодействие (обменная константа $J_{IP} \sim 120–150$ meV [4]). Температуры Нееля (T_N) квази-2D дальнего антиферромагнитного порядка, обусловленного слабым межслоевым обменом $J_{OP} \sim 10^{-5}J_{IP}$, составляют $T_N \sim 250–300$ K. Неколлинеарная антиферромагнитная структура, магнитная анизотропия, спектры спин-волновых возбуждений и роль псевдодипольных взаимодействий $R^{3+}-Cu^{2+}$ и $Cu^{2+}-Cu^{2+}$ в тетрагональных кристаллах R_2CuO_4 с РЗИ рассмотрены в работах [5,6].

Экспериментально спиновая динамика R_2CuO_4 изучалась ранее методами антиферромагнитного резонанса

(АФМР) [7,8] для кристаллов с $R = Pr, Nd$ и Gd и неупругого рассеяния нейтронов [6,9,10] для кристаллов с $R = Pr$ и Nd .

В работах [7,8] наблюдались линии магнитного резонанса в области низких температур $T < 15–20$ K. При повышении температуры резонансные линии, измеренные при развертке внешнего магнитного поля, уширялись и практически исчезли. В работах по неупругому рассеянию нейтронов наблюдались как внутрислоевые (со щелью Δ_{IP}), так и межслоевые (со щелью Δ_{OP}) спин-волновые возбуждения [6,9,10]. Величины щелей Δ_{IP} для Pr_2CuO_4 и Nd_2CuO_4 , полученные в работах по неупругому рассеянию нейтронов, и частоты АФМР несколько различались.

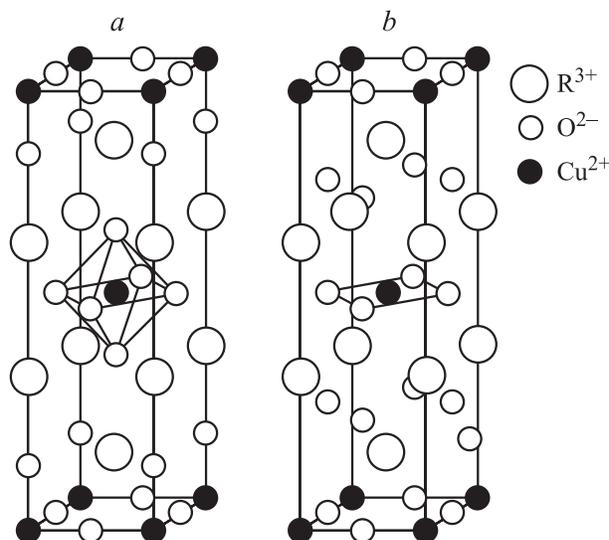


Рис. 1. Структура кристаллов La_2CuO_4 с симметрией T -типа в высокотемпературной фазе (a) и кристаллов R_2CuO_4 ($R = Pr, Nd, Sm, Eu, Gd$) с тетрагональной симметрией T' -типа (b).

В настоящей работе изучались температурные и частотные зависимости для спектров поглощения R_2CuO_4 с РЗИ ($R = Pr, Nd, Sm, Eu$ и Gd) квазиоптическим методом как в отсутствие, так и при наличии внешнего магнитного поля. Это позволило исследовать те линии и полосы поглощения, которые не зависели (или слабо зависели) от магнитного поля и не могли наблюдаться при обычном методе исследования АФМР (на фиксированных частотах при развертке внешнего магнитного поля). В результате наряду с линиями магнитных резонансов, изученными в работах [7,8], были обнаружены полосы и линии поглощения, не наблюдавшиеся ранее. Наличие таких полос характерно для всех исследованных нами кристаллов R_2CuO_4 .

В случае Pr_2CuO_4 положение низкочастотного края полосы поглощения и его температурная зависимость согласуются с соответствующими данными для щели внутриплоскостных спин-волновых возбуждений, полученными методом неупругого рассеяния нейтронов [10].

В кристаллах R_2CuO_4 с $R = Pr, Sm$ и Eu упомянутые выше полосы поглощения, обусловленные возбуждением внутриплоскостных спиновых волн, проявлялись при нагревании кристалла в виде резкого увеличения поглощения вблизи температур $T \approx T_0 = 20, 80$ и 150 К соответственно. Ранее в кристалле Eu_2CuO_4 именно вблизи $T \approx T_0 = 150$ К различными экспериментальными методами [11–14] был обнаружен фазовый переход, при котором одновременно изменялись структурные и магнитные свойства кристалла. Подобие температурных зависимостей измеренных спектров поглощения кристаллов R_2CuO_4 с различными РЗИ позволяет предположить, что во всех этих кристаллах при температурах $T \approx T_0$ происходят аналогичные фазовые переходы.

Наряду с полосами поглощения спиновой природы во всех кристаллах, в которых происходят фазовые переходы при $T \approx T_0$, вблизи этих же температур наблюдались также линии поглощения, видимо обусловленные динамикой решетки. Эти линии расположены в диапазоне частот $f > 20$ GHz и вплоть до края полосы поглощения внутриплоскостных спин-волновых возбуждений, частично с ней перекрываясь. Таким образом, в изученных кристаллах по крайней мере в области температур, близких к T_0 , внутриплоскостные спин-волновые и решеточные возбуждения являются смешанными.

1. Экспериментальные результаты

Измерения спектров поглощения монокристаллов R_2CuO_4 ($R = La, Pr, Nd, Sm, Eu$ и Gd) проводились в диапазоне частот 20–250 GHz в интервале температур 5–300 К. Образцы представляли собой пластинки размером $5 \times 4 \times 0.5$ mm с развитой плоскостью, перпендикулярной оси c кристалла. Монокристаллы выращивались методом спонтанной кристаллизации, описанным в [15,16]. Использовался квазиоптический спектрометр, в котором в качестве генератора применялись лампы

обратной волны (ЛОВ), а в качестве приемника — охлаждаемые жидким гелием детекторы из InSb. Более подробно методика эксперимента описана в [17].

Образец своей развитой плоскостью ориентировался перпендикулярно направлению распространения СВЧ-мощности. При этом обеспечивался плоский фронт распространяемой волны, так что переменные магнитное \mathbf{h} и электрическое \mathbf{e} поля были ориентированы в плоскости образца. Имелась возможность разворота образца вокруг оси его держателя. При этом электрическое поле \mathbf{e} было параллельно оси держателя и при разворотах образца сохраняло ориентацию в развитой плоскости. Переменное же магнитное поле \mathbf{h} при развороте образца отклонялось от этой плоскости на соответствующий угол. Можно было прикладывать постоянное магнитное поле \mathbf{H}_0 величиной до 1.6 Т перпендикулярно направлению распространения СВЧ-мощности.

На фиксированных частотах измерялись температурные зависимости проходящей через образец СВЧ-мощности $P(T)$. Рассчитывались температурные зависимости относительных коэффициентов поглощения $\Gamma = 1 - P(T)/P(T = 5 \text{ К})$ при фиксированных частотах $\Gamma_f(T)$. Исходя из зависимостей $\Gamma_f(T)$ были получены частотные зависимости относительного коэффициента поглощения образца при фиксированных температурах $\Gamma_T(f)$. Следует заметить, что для количественного

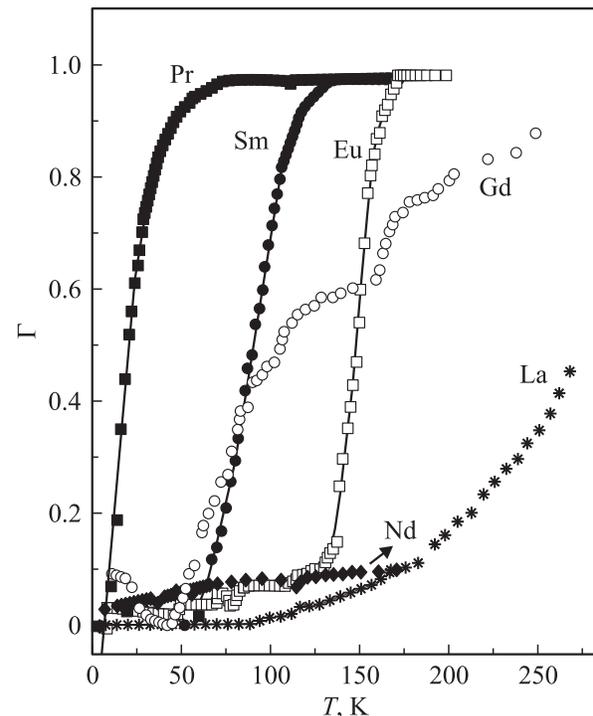


Рис. 2. Зависимость относительного коэффициента поглощения от температуры на частоте $f = 169$ GHz для кристаллов La_2CuO_4 , Pr_2CuO_4 , Nd_2CuO_4 , Sm_2CuO_4 , Eu_2CuO_4 и Gd_2CuO_4 . Кривые получены при медленном отогреве после предварительного медленного остывания образцов. Сплошные линии для кристаллов R_2CuO_4 ($R = Pr, Sm$ и Eu) — аппроксимация уравнениями Больцмана.

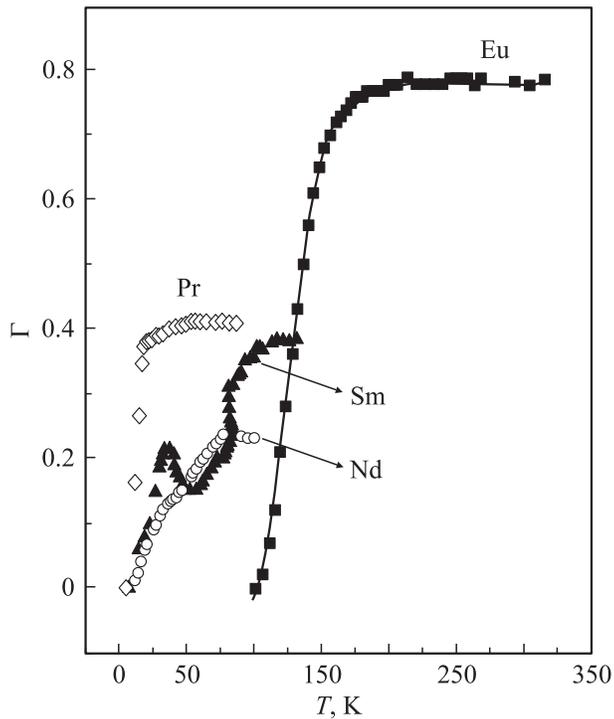


Рис. 3. Ступенеобразное поглощение вблизи температур T_0 для кристаллов Pr_2CuO_4 , Nd_2CuO_4 , Sm_2CuO_4 и Eu_2CuO_4 на частотах 30.5, 29, 33.9, 34 GHz соответственно.

определения коэффициента поглощения нужна также информация о фазе прошедшей волны и об отраженной мощности, которые трудно получить, не обеспечив одноименный режим измерений. Однако для определения положения полос и линий поглощения в спектре, что являлось главной задачей настоящей работы, допустимо ограничиться измерением коэффициента $\Gamma_f(T)$. Заметим также, что при измерении относительных коэффициентов поглощения неравномерность частотной характеристики генератора (ЛОВ) не существенна.

В исследованных кристаллах в диапазоне частот 20–250 GHz наблюдалось три типа зависимостей $\Gamma_f(T)$, различающихся по своим свойствам.

1) Резкие интенсивные ступенеобразные изменения коэффициентов поглощения $\Gamma_f(T)$ в узком интервале температур вблизи $T_0 = 20, 80$ и 150 K для кристаллов R_2CuO_4 с $\text{R} = \text{Pr}, \text{Sm}, \text{Eu}$ соответственно (рис. 2). Эти скачки имели место для широкого набора частот $f > 100\text{--}120$ GHz и вплоть до 250 GHz (максимальная частота, на которой проводились измерения).

2) Также довольно резкие, но более слабые изменения коэффициента поглощения $\Gamma_f(T)$ в кристаллах R_2CuO_4 с $\text{R} = \text{Pr}, \text{Nd}, \text{Sm}$ и Eu , возникающие вблизи температур $T \approx T_0 = 20, 6, 80$ и 150 K соответственно (рис. 3). В отличие от полос поглощения первого типа эти скачки поглощения наблюдались в узком частотном интервале вблизи 30 GHz.

3) Линии поглощения, т.е. максимумы на зависимостях $\Gamma_f(T)$ (рис. 4). Эти линии наблюдались в кристаллах R_2CuO_4 ($\text{R} = \text{Pr}, \text{Nd}, \text{Sm}$ и Eu) вблизи температур $T \approx T_0$ в широком диапазоне частот от 20 GHz до частот, соответствующих низкочастотному краю широкой полосы поглощения первого типа. Наиболее четко на склоне широкой полосы поглощения эти линии видны в кристалле Eu_2CuO_4 , в котором их интенсивность была наибольшей (см. рис. 2 в [18]).

При температурах $T < T_0$, при которых исследуемые кристаллы были практически прозрачными при частотах $f > 100$ GHz, наблюдались линии поглощения, сильно зависящие от внешнего магнитного поля (они видны на рис. 2 для Gd_2CuO_4 при $T \approx 10$ K, на рис. 3 для Nd_2CuO_4 при $T \approx 30$ и 75 K и для Sm_2CuO_4 при $T \approx 30$ K). В данной работе эти линии, являющиеся, по-видимому, линиями магнитных резонансов, подробно не изучались.

Рассмотрим более детально особенности перечисленных выше трех типов спектров поглощения.

Прежде всего обсудим свойства широкой интенсивной полосы поглощения при частотах $f > 100$ GHz, возникающей вблизи температур $T \approx T_0$. Как видно из рис. 2, для кристаллов R_2CuO_4 с $\text{R} = \text{Pr}, \text{Sm}, \text{Eu}$ изменение поглощения имеет вид гладкой ступени, причем коэффициент $\Gamma_f(T)$ в довольно узком интервале температур вблизи $T \approx T_0 = 20, 80$ и 150 K соответственно меняется в десятки раз, а затем при нарастании температуры остается практически постоянным. Такая

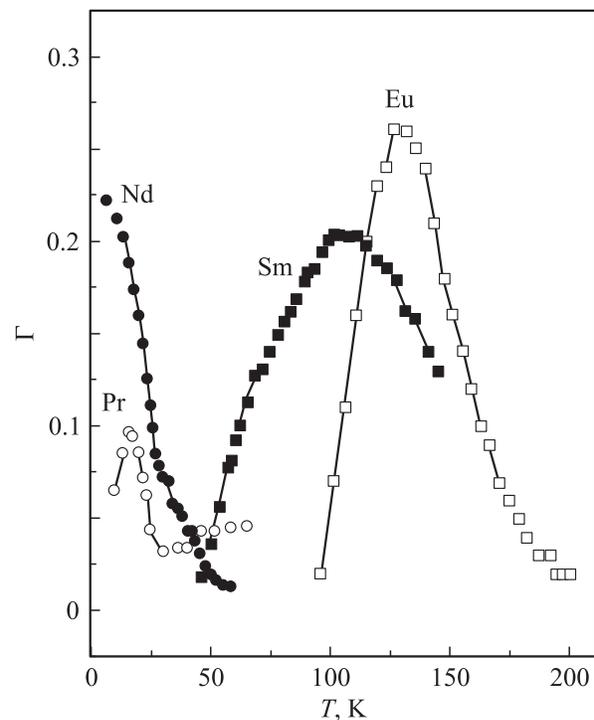


Рис. 4. Линии поглощения вблизи температур T_0 для Pr_2CuO_4 , Nd_2CuO_4 , Sm_2CuO_4 и Eu_2CuO_4 на частоте 55 GHz. Сплошные линии — визуализация экспериментальных зависимостей.

картина наблюдается вплоть до предельной частоты 250 GHz. Следует отметить, что температурная зависимость коэффициента поглощения $\Gamma_f(T)$ для кристалла La_2CuO_4 , приведенная для сравнения на рис. 2, иная. В этом случае происходит более плавное увеличение поглощения с возрастанием температуры до 400 K без выхода на постоянный уровень. Частотной зависимости поглощения в рабочем диапазоне для этого кристалла не наблюдается. Заметим, что величина поглощения для La_2CuO_4 при максимальной температуре (рис. 2) значительно меньше, чем в кристаллах R_2CuO_4 ($R = Pr, Sm, Eu$) при $T > T_0$. Такое поглощение естественно связать с термоактивацией носителей из ловушек. Вообще говоря, подобного типа поглощение должно иметь место во всем классе изучаемых кристаллов, однако на фоне мощных полос поглощения оно практически не проявляется в кристаллах R_2CuO_4 ($R = Pr, Sm, Eu$).

Поглощение в наблюдаемой мощной полосе имеет в основном магнитную природу. Это проверялось с помощью поляризационных измерений. При развороте образцов относительно оси держателя происходило резкое уменьшение относительного коэффициента поглощения $\Gamma_f(T)$. При таком развороте переменное магнитное поле выходит из плоскости, соответствующей слоям CuO_2 кристалла, а переменное электрическое поле сохраняет свою ориентацию в этих слоях. Скорее всего, наблюдаемая магнитная полоса поглощения связана со спин-волновыми возбуждениями в слое CuO_2 .

Анализ показал, что наилучшее (с минимальными среднеквадратичными отклонениями) описание экспериментальных точек на рис. 2, 3 получается при использовании уравнения Больцмана вида $\Gamma = \{(\Gamma_1 - \Gamma_2)/1 + \exp[(T - T_0)/dT]\} + \Gamma_2$, описывающего ступенчатое изменение параметра Γ в интервале температур dT вблизи T_0 . Здесь Γ_1 — коэффициент поглощения при $T = -\infty$; Γ_2 — при $T = +\infty$; T_0 — значение температуры, при которой величина $\Gamma = 0.5(\Gamma_1 + \Gamma_2)$; dT — ширина интервала температуры, в котором происходит резкое изменение величины Γ . Компьютерная подгонка дает значения всех четырех параметров в возможных рамках их изменений при минимальной погрешности. Значения параметров T_0 и dT для кристаллов R_2CuO_4 ($R = Pr, Sm$ и Eu) соответственно составляют: для Pr 19.52 ± 2.13 K, 13.03 ± 0.79 K при дисперсии $\chi^2 = 0.00039$, характеризующей точность аппроксимации; для Sm 86.09 ± 0.24 K, 10.49 ± 0.21 K при $\chi^2 = 0.00023$; для Eu 115.82 ± 0.62 K, 10.78 ± 0.53 K при $\chi^2 = 0.00052$. Видно, что для кристаллов Eu_2CuO_4 и Sm_2CuO_4 отношение величин $dT/T_0 \ll 1$, в то время как в Pr_2CuO_4 $dT/T_0 \sim 0.7$. Таким образом, величины dT для этих кристаллов близки, а значения температур T_0 зависят от типа РЗИ.

В кристаллах Gd_2CuO_4 увеличение коэффициента поглощения с ростом температуры было более плавным, чем в R_2CuO_4 ($R = Pr, Sm, Eu$), хотя по характеру температурной и частотной зависимостей, а также по величине коэффициента поглощения ситуация ближе

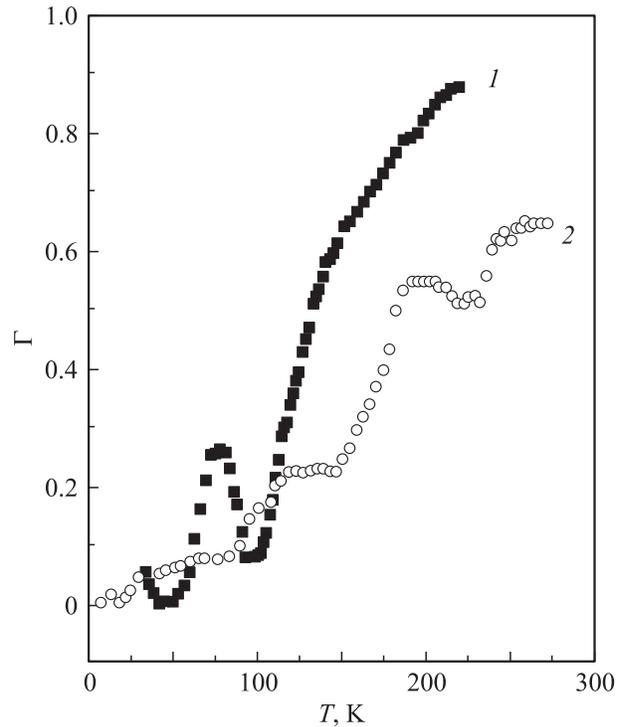


Рис. 5. Особенности температурной зависимости коэффициента поглощения кристалла Gd_2CuO_4 при медленном отогреве после предварительного медленного (1) и быстрого (2) охлаждения.

к случаю тетрагональных R_2CuO_4 ($R = Pr, Sm, Eu$), чем к случаю La_2CuO_4 (рис. 2). Поглощение в Gd_2CuO_4 существенно зависело от предыстории образца: скорости охлаждения, наличия и способа приложения внешнего магнитного поля. В неравновесных образцах, охлажденных с большой скоростью (> 30 K/min) или после приложения в окрестности температуры Нееля магнитного поля величиной 1.5 T, нарастание поглощения с ростом температуры происходило не плавно, а скачками. Характер зависимости $\Gamma(T)$ в случае быстрого охлаждения показан на рис. 5. Из этого рисунка также видно, что в равновесном образце (охлаждение со скоростью < 1 K/min без внешнего поля) при температуре ~ 75 K и $f = 169$ GHz имеется линия поглощения магнитной природы. Эта линия размывалась при закалке образца и смешалась внешним магнитным полем.

В Nd_2CuO_4 резкого изменения коэффициента $\Gamma_f(T)$, аналогичного случаю R_2CuO_4 ($R = Pr, Sm, Eu$), при частотах $f \leq 250$ GHz не наблюдалось (рис. 2).

На рис. 6 приведены зависимости $\Gamma_f(T)$ при медленном нагревании и остывании образцов. Видно, что в Eu_2CuO_4 имеется сильный температурный гистерезис. Гистерезис, хотя и значительно более слабый, наблюдался и в кристаллах Pr_2CuO_4 и Sm_2CuO_4 .

Рассмотрим теперь свойства поглощения вблизи 30 GHz. Как уже отмечалось, это поглощение возникало в кристаллах R_2CuO_4 с $R = Pr, Nd, Sm$ и Eu (рис. 3) при

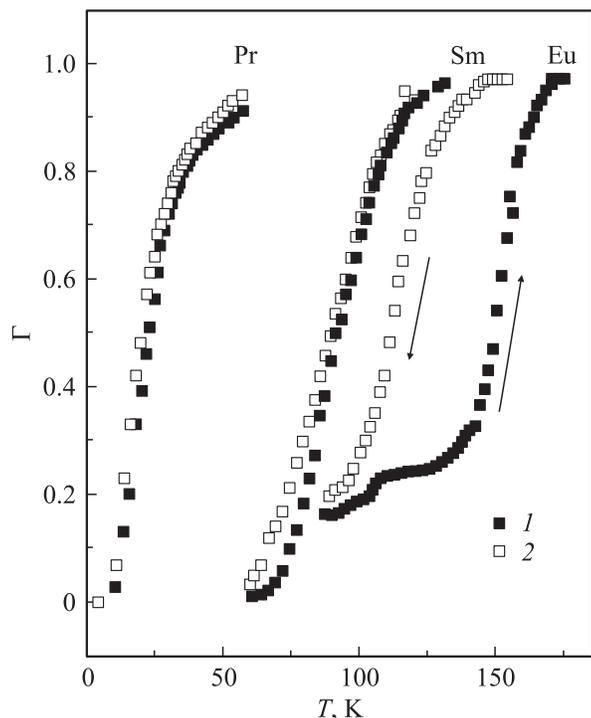


Рис. 6. Гистерезис температурной зависимости коэффициента поглощения Pr_2CuO_4 , Sm_2CuO_4 и Eu_2CuO_4 на частоте 169 GHz при медленных нагреве (1) и охлаждении (2).

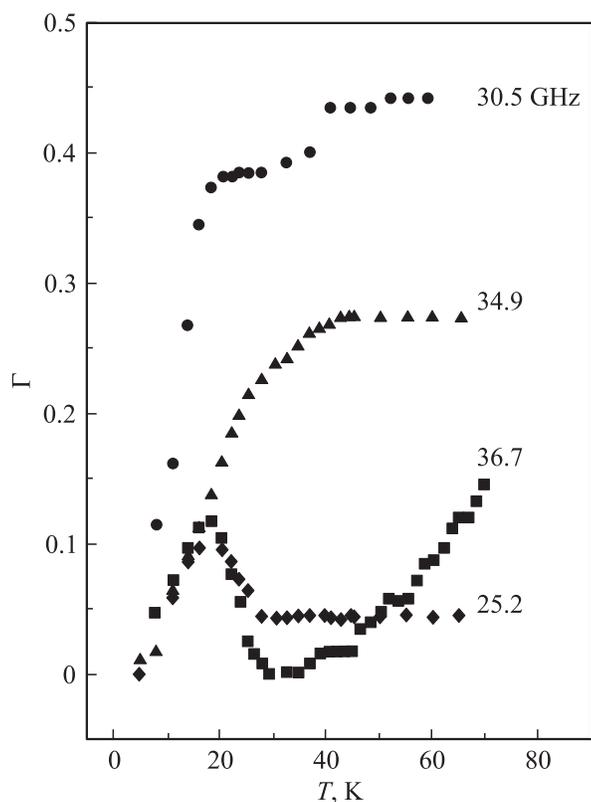


Рис. 7. Температурная зависимость относительного коэффициента поглощения кристаллов Pr_2CuO_4 на частотах, близких к 30 GHz.

температурах $T \approx T_0 = 20, 6, 80$ и 150 К соответственно, а при $T > T_0$ практически не зависело от температуры вплоть до 300–350 К. Величина $\Gamma_f(T)$ при $T > T_0$ в этом случае меньше, чем для ступеней первого типа. На рис. 7 для примера приведен ряд зависимостей $\Gamma_f(T)$ на частотах вблизи 30 GHz для Pr_2CuO_4 , иллюстрирующий немонотонный характер изменения значений $\Gamma_f(T)$ при $T > T_0$ и изменении частоты вблизи 30 GHz. Аналогичные зависимости вблизи и выше температур $T \approx T_0 = 6, 80$ и 150 К наблюдались и в кристаллах Nd_2CuO_4 , Sm_2CuO_4 и Eu_2CuO_4 соответственно.

И наконец, рассмотрим линии поглощения третьего типа. Эти линии наблюдались вблизи температур $T \approx T_0$ в кристаллах R_2CuO_4 ($\text{R} = \text{Nd}, \text{Pr}, \text{Sm}$ и Eu) в довольно широком интервале частот выше 20 GHz (рис. 4). Верхний частотный край этого поглощения определить трудно, так как он перекрывается с краем интенсивной спиновой полосы поглощения первого типа. Поляризационные исследования показали, что эти линии возбуждаются преимущественно переменным электрическим полем, так как при разворотах образца относительно оси держателя, вдоль которого направлено переменное электрическое поле, относительный коэффициент поглощения образца мало изменялся. На положение и интенсивность линий поглощения внешнее магнитное поле практически не влияло.

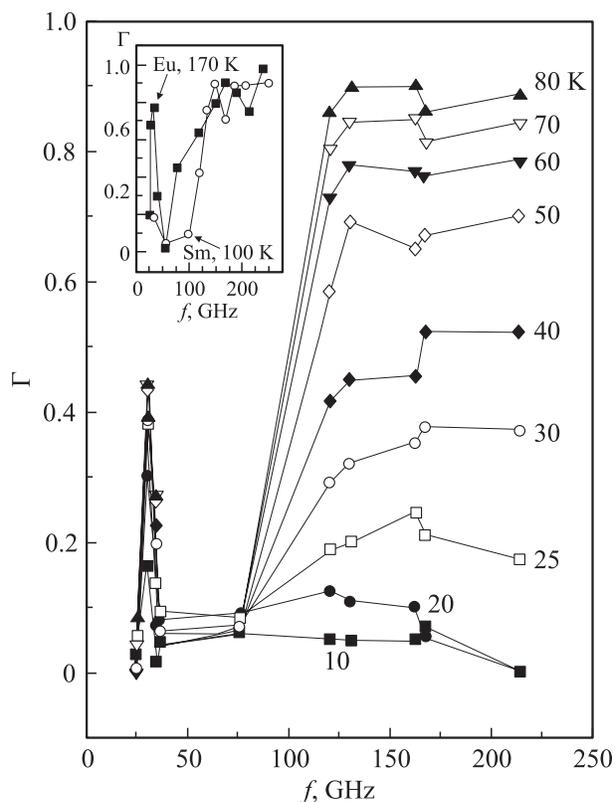


Рис. 8. Частотная зависимость относительного коэффициента поглощения кристаллов Pr_2CuO_4 при фиксированных температурах. На вставке — та же зависимость для Sm_2CuO_4 и Eu_2CuO_4 при температурах 100 и 170 К соответственно.

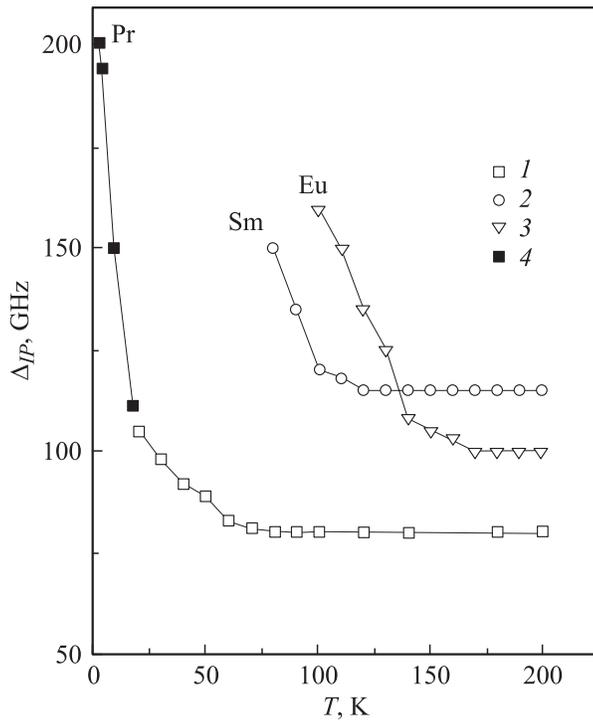


Рис. 9. Температурные зависимости щелей внутрислоистых спин-волновых возбуждений Δ_{IP} кристаллов Pr_2CuO_4 , Sm_2CuO_4 и Eu_2CuO_4 . 1–3 — результаты данной работы, 4 — данные по неупругому рассеянию нейтронов для Pr_2CuO_4 [10].

На рис. 8 представлены частотные зависимости коэффициента поглощения $\Gamma_T(f)$ кристаллов R_2CuO_4 ($R = Pr, Sm$ и Eu) для ряда температур, пересчитанные из экспериментально измеренных зависимостей $\Gamma_f(T)$ (рис. 2, 3 и 7). Видны узкая линия поглощения вблизи 30 GHz и широкая полоса поглощения при более высоких частотах. Положение края этой полосы (т.е. щель для соответствующих спиновых возбуждений) можно характеризовать значением частоты f_{gap} , отвечающей половинному поглощению от уровня насыщения при каждой фиксированной температуре. Как видно, с ростом температуры край поглощения смещается в сторону более низких частот, его положение перестает изменяться при температурах $T > 90$ K (для Pr_2CuO_4). На рис. 9 приведены температурные зависимости щелей соответствующих спиновых возбуждений для кристаллов R_2CuO_4 ($R = Pr, Sm$ и Eu).

2. Анализ экспериментальных данных

Экспериментальные данные, приведенные в предыдущем разделе, показывают, что спектры поглощения тетрагональных кристаллов R_2CuO_4 с различными РЗИ обнаруживают ряд общих свойств.

В области температур $T > T_0$ в широкой полосе частот выше 100 GHz во всех кристаллах, за исключением

Nd_2CuO_4 , наблюдалась интенсивная полоса поглощения, по-видимому обусловленная возбуждением внутрислоистых спиновых волн. В случае Pr_2CuO_4 величина щели таких возбуждений и ее температурная зависимость согласуются с величиной и температурной зависимостью щели Δ_{IP} , полученной в работе [10] (рис. 9).

Учитывая близость величин щелей для наблюдаемых мощных магнитных полос поглощения и подобие их температурных зависимостей в кристаллах R_2CuO_4 ($R = Pr, Sm, Eu$) (рис. 9), можно предположить, что для всех этих кристаллов полосы обусловлены внутрислоистыми спин-волновыми возбуждениями в слоях CuO_2 со щелями Δ_{IP} . При этом величины щелей определяются внутрислоистой анизотропией, которая близка для кристаллов с $R = Pr, Sm$ и Eu и обусловлена в основном $Cu-Cu$ -взаимодействием в слоях. При этом РЗИ ($R = Pr, Sm$ и Eu) слабо влияют на внутрислоистую анизотропию. Действительно, Pr_2CuO_4 и Eu_2CuO_4 имеют практически немагнитные РЗИ в основном состоянии, а в Sm_2CuO_4 магнитные моменты ионов Sm^{3+} ориентированы вдоль оси c кристалла [19].

Согласно данным по неупругому рассеянию нейтронов в Nd_2CuO_4 [9], величина щели Δ_{IP} почти на порядок выше, чем в Pr_2CuO_4 . Наши рабочие частоты ниже величины щели Δ_{IP} , и, видимо по этой причине, мы не наблюдали такой полосы в Nd_2CuO_4 . Как известно, в Nd_2CuO_4 магнитные моменты ионов Nd^{3+} , как и ионов Cu^{2+} , ориентированы в плоскостях CuO_2 , и взаимодействие $Nd-Cu$ действительно может изменять внутрислоистую анизотропию и сдвигать щель.

Как уже отмечалось, в случае кристалла Eu_2CuO_4 в работе [11] было установлено, что вблизи температуры $T \approx T_0 = 150$ K происходит фазовый переход, при котором изменяются структурные и магнитные свойства (см. также [12,14,15,20]). В [11] было обнаружено, что при температурах $T \leq T_0$ в слоях CuO_2 на локальных масштабах $\sim 30 \text{ \AA}$ возникают ромбические искажения, обусловленные преимущественно смещениями ионов кислорода. Изменение коэффициента поглощения и температурную зависимость величины щели Δ_{IP} в Eu_2CuO_4 вблизи 150 K естественно связать с наличием такого фазового перехода. При этом в рабочем диапазоне частот широкая полоса поглощения наблюдается в высокотемпературной тетрагональной фазе и отсутствует в низкотемпературной фазе с локальными ромбическими искажениями. Наличие таких искажений в слоях CuO_2 в низкотемпературной фазе приводит к более сильной связи между слоями и большей внутрислоистой магнитной анизотропии, что увеличивает щель и приводит к наблюдаемому просветлению кристалла. Согласно данным работ [12,14], в высокотемпературной тетрагональной фазе в Eu_2CuO_4 имеет место также дисперсия диэлектрической восприимчивости вдоль оси c , характерная для структурного стекольного состояния. Возможно, с этим связана аномально большая ширина наблюдаемой спиновой полосы поглощения.

Учитывая подобие характеристик наблюдаемых полос поглощения вблизи температур T_0 в кристаллах R_2CuO_4

($R = \text{Pr}$, Sm и Eu), можно предположить наличие аналогичных фазовых переходов и в кристаллах R_2CuO_4 ($R = \text{Pr}$ и Sm) при температурах $T_0 \approx 20$ и 80 К соответственно. Температурный гистерезис коэффициента поглощения для R_2CuO_4 ($R = \text{Sm}$ и Eu) (см. рис. 6, а также рис. 2 в [18]) свидетельствует о фазовом переходе первого рода. В Pr_2CuO_4 такой переход размыт ($dT/T_0 \sim 0.7$) и, видимо, является переходом первого рода, близким к переходу второго рода.

В [9,10] была обнаружена сильная температурная зависимость для величин щелей Δ_{IP} в Nd_2CuO_4 и Pr_2CuO_4 в области температур $T < 10$ К и $T < 20$ К соответственно. В случае Nd_2CuO_4 авторы связывали такую температурную зависимость с сильной зависимостью намагниченности ионов Nd^{3+} от температуры и с влиянием взаимодействия $\text{Nd}^{3+}-\text{Cu}^{2+}$ на величину внутрислоеистой магнитной анизотропии. Температурная зависимость щели Δ_{IP} в Pr_2CuO_4 , в котором ион Pr^{3+} практически немагнитный, объяснялась спин-спиновыми взаимодействиями в $2D$ слоях CuO_2 , возникающими при учете квадратной магнитной анизотропии [21].

Однако, если предположить наличие фазовых переходов вблизи температур T_0 , температурная зависимость щели может быть обусловлена также изменением внутрислоеистой анизотропии за счет структурных искажений при таком переходе.

Обсудим теперь линии электрической природы, которые мы связываем с динамикой решетки вблизи фазовых переходов в кристаллах R_2CuO_4 ($R = \text{Pr}$, Nd , Sm и Eu) (рис. 4). Эти линии наблюдаются в сплошном частотном интервале от 20 GHz до края полос спинового поглощения, и их можно связать с динамикой набора сосуществующих релаксаторов, для которых вблизи температур T_0 выполняется условие $\omega\tau = 1$. Времена жизни τ для таких релаксаторов распределены в интервале $0.8 \cdot 10^{-11} \geq \tau > 0.5 \cdot 10^{-12} \text{ s}^{-1}$, что указывает на ограниченный масштаб областей со структурными корреляциями, существующими вблизи температур T_0 . Для Eu_2CuO_4 это согласуется с данными структурных исследований [11]. Перекрытие частот линий решеточной динамики с полосами спиновой природы вблизи температур T_0 свидетельствует о смешивании решеточной и спиновой динамики вблизи температур T_0 .

Как отмечалось выше, в Nd_2CuO_4 в отличие от кристаллов в ионами $R = \text{Pr}$, Sm , Eu мощной спин-волновой полосы не наблюдалось. Однако вблизи температуры 6 К была видна линия, подобная линиям решеточной динамики, которые наблюдались вблизи температур T_0 в кристаллах R_2CuO_4 ($R = \text{Pr}$, Sm , Eu). По-видимому, и в Nd_2CuO_4 имеется аналогичный фазовый переход при $T_0 \approx 6$ К, а для наблюдения спин-волновых полос необходимо повысить рабочую частоту.

Таким образом, в серии подобных кристаллов R_2CuO_4 ($R = \text{Pr}$, Nd , Sm и Eu), отличающихся типом R-ионов, предполагается наличие аналогичных фазовых переходов, имеющих место при различных температурах T_0 . В этом случае естественно связать различия температур T_0 с типом R-ионов.

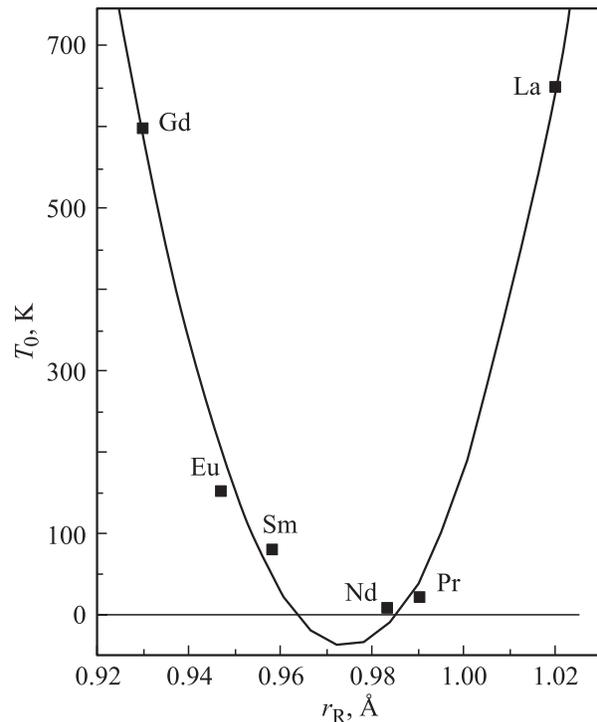


Рис. 10. Зависимость температур фазовых переходов T_0 от радиусов R-ионов (r_R) кристаллов R_2CuO_4 ($R = \text{La}$, Pr , Nd , Sm , Eu и Gd). Величины ионных радиусов взяты из [22].

Мы проанализировали наличие корреляций между значениями T_0 и магнитными моментами, а также ионными радиусами r_R R-ионов (по данным Шеннона [22]). Для исследованных кристаллов температуры T_0 слабо коррелируют с магнитным состоянием соответствующих R-ионов. Так, для немагнитного в основном состоянии иона Eu^{3+} (7F_0) величина $T_0 \approx 150$ К. Для слабомагнитных ионов Pr^{3+} (спиновый синглет в основном состоянии) значение температуры $T_0 \approx 20$ К. Для магнитных ионов Sm^{3+} и Nd^{3+} (основное состояние — крамерсовы дублеты) $T_0 \approx 80$ и 6 К соответственно. Обнаруживается, однако, корреляция температур T_0 и ионных радиусов РЗИ (рис. 10), что является аргументом в пользу того, что фазовые переходы вблизи температур T_0 связаны с изменением структурного состояния кристаллов. Немонотонный характер зависимости $T_0(r_R)$, которая при компьютерной подгонке наилучшим образом аппроксимируется кривой второго порядка, указывает на то, что имеется некий диапазон оптимальных для T' -структуры значений r_R , при которых эта структура устойчива вплоть до самых низких температур. Уменьшение или увеличение r_R по сравнению с этими оптимальными значениями приводит к неустойчивости T' -структуры, степень которой зависит от размера R-ионов. Отметим, что значения T_0 для кристаллов с $R = \text{Nd}$, Pr и Sm , полученные нами, и значения температур структурных фазовых переходов для кристаллов с $R = \text{La}$, Gd и Eu , определенные ранее

в независимых экспериментах [2,3,11], разумным образом укладываются на кривую, показанную на рис. 10.

Согласно данным работ [3,20,23–25], в Gd_2CuO_4 существуют макроскопические области с ромбической и тетрагональной симметрией (структурные домены) и структура кристалла близка к неустойчивости. Картина наблюдаемых в данной работе особенностей спектров внутриволновых спин-волновых возбуждений в Gd_2CuO_4 согласуется с представлением о существовании при всех температурах ниже температуры Нееля таких структурных доменов. С ростом температуры количество тетрагональной фазы нарастает либо плавно, либо скачками в зависимости от способа приготовления и состояния образца (рис. 5).

Обратимся теперь к узким линиям поглощения вблизи 30 GHz, наблюдающимся в кристаллах R_2CuO_4 ($R = Pr, Nd, Sm, Eu$ и Gd) при температурах $T > T_0$ (рис. 3, 7 и 8). Эти линии соответствуют обнаруженным нами ранее в кристаллах R_2CuO_4 ($R = Pr, Eu$ и Gd) аномалиям динамической магнитной восприимчивости в этом же диапазоне частот [14,26,27]. В этих работах предполагалось, что наблюдаемые аномалии обусловлены 2D однородными, хорошо определенными спин-волновыми возбуждениями в слоях CuO_2 . Величина щели (ω_{2D}) таких возбуждений определялась достаточно сильной одноосной анизотропией вдоль оси c , обеспечивающей корреляцию спинов на масштабах, меньших, чем корреляционный радиус 2D спиновых флуктуаций [14,26]. Такая интерпретация природы узких линий поглощения вблизи 30 GHz не противоречит результатам данной работы. При этом из того факта, что в кристаллах R_2CuO_4 ($R = Pr, Nd, Sm, Eu$ и Gd) спин-волновые возбуждения ω_{2D} наблюдаются на близкой частоте ~ 30 GHz, следует, что во всех этих кристаллах при температурах $T > T_0$ в слоях CuO_2 имеются 2D спиновые флуктуации с большими корреляционными радиусами и близкая по величине одноосная анизотропия вдоль оси c .

Таким образом, в кристаллах R_2CuO_4 с $R = Pr, Sm, Eu$ при температурах $T > T_0 \approx 20, 80$ и 150 K соответственно обнаружены подобные по свойствам полосы поглощения при частотах выше 100 GHz. В кристаллах R_2CuO_4 с $R = Pr, Nd, Sm, Eu$ при температурах $T > T_0 \approx 20, 6, 80$ и 150 K соответственно выявлены подобные линии поглощения вблизи 30 GHz. Эти полосы и линии обусловлены соответственно квази-2D внутриволновыми спин-волновыми возбуждениями и хорошо определенными 2D спин-волновыми возбуждениями, определяемыми одноосной анизотропией вдоль оси c . В этих же кристаллах вблизи температур T_0 в сплошном спектре частот от 20 GHz до щели внутриволновых спин-волновых поглощений обнаружены также линии поглощения, обусловленные динамикой решетки. Наблюдаемые особенности спиновой и решеточной динамики позволяют предположить наличие в этих кристаллах фазовых переходов вблизи температур T_0 , связанных с изменением структурных и магнитных свойств кристаллов. Температуры T_0 зависят от типа РЗИ, при

этом имеется корреляция между величинами T_0 и радиусами РЗИ.

Наблюдаемые особенности спин-волновых полос и линий поглощения свидетельствуют о неоднородности квази-2D спиновых и структурных состояний при $T > T_0$ и о наличии спин-решеточных корреляций вблизи температур T_0 .

Список литературы

- [1] H. Muller-Buschbaum, W. Wollschlager. *Z. Anorg. Allg. Chem.* **414**, 76 (1975).
- [2] Л.А. Мурадян, Р.А. Тамазян, А.М. Кеворков, Х.С. Багдасаров, В.И. Симонов. *Кристаллография* **35**, 861 (1990).
- [3] M. Braden, W. Paulus, A. Cousson, P. Vigouroux, G. Heger, A. Goukassov, P. Bourges, D. Petitgrand. *Europhys. Lett.* **25**, 625 (1994).
- [4] S. Chakravarty, V. Halperin, D. Nalson. *Phys. Rev. B* **39**, 2344 (1989).
- [5] R. Sachidanandam, T. Yildirim, A.B. Harris, A. Aharony, O. Entin-Wohlman. *Phys. Rev. B* **56**, 260 (1997).
- [6] D. Petitgrand, S.V. Maleyev, P. Bourges, A.S. Ivanov. *Phys. Rev. B* **59**, 1079 (1999).
- [7] В.В. Еременко, С.А. Звягин, В.В. Пишко. *Письма в ЖЭТФ* **52**, 955 (1990).
- [8] А.И. Смирнов, С.Н. Барилло, Д.И. Жигунов. *ЖЭТФ* **100**, 1690 (1991).
- [9] A.S. Ivanov, P. Bourges, D. Petitgrand, J. Rossat-Mignod. *Physica B* **213-214**, 60 (1995).
- [10] A.S. Ivanov, P. Bourges, D. Petitgrand. *Physica B* **259-261**, 879 (1999).
- [11] V.P. Plakhty, A.B. Stratilatov, S. Beloglazov. *Solid State Commun.* **103**, 12, 683 (1997).
- [12] А.В. Бабинский, С.Л. Гинзбург, Е.И. Головенчиц, В.А. Санина. *Письма в ЖЭТФ* **57**, 5, 289 (1993).
- [13] T. Chattopadhyay, J.W. Lynn, N. Rosov, T.E. Grigereit, S.N. Barilo, D.I. Zhigunov. *Phys. Rev. B* **49**, 9944 (1994).
- [14] Е.И. Головенчиц, В.А. Санина, А.В. Бабинский. *ЖЭТФ* **110**, 714 (1996).
- [15] А.В. Бабинский, Е.И. Головенчиц, Н.В. Морозов, В.А. Санина, Л.М. Сапожникова. *ФТТ* **34**, 60 (1992).
- [16] А.А. Левин, Ю.И. Смолин, Ю.Ф. Шепелев, Е.И. Головенчиц, В.А. Санина. *ФТТ* **42**, 147 (2000).
- [17] Е.И. Головенчиц, В.А. Санина. *ЖЭТФ* **69**, 1301 (1975).
- [18] Е.И. Головенчиц, В.А. Санина. *Письма в ЖЭТФ* **74**, 20 (2001).
- [19] I.W. Sumarlin, S. Skanthakumar, J.W. Lynn, J.L. Peng, Z.Y. Li, W. Jiang, R.L. Greene. *Phys. Rev. Lett.* **68**, 2228 (1992).
- [20] Е.И. Головенчиц, В.А. Санина. *ФТТ* **41**, 1437 (1999).
- [21] S.V. Maleyev. *Phys. Rev. Lett.* **85**, 3281 (2000).
- [22] R.D. Shannon. *Acta Cryst. A* **32**, 751 (1976).
- [23] M. Udagawa, Y. Nagaoka, N. Ogita, M. Masada, J. Akimitsu, K. Ohbavashi. *Phys. Rev. B* **49**, 585 (1994).
- [24] Z. Fisk, P.G. Pagliuso, J.A. Sanjurjo, C. Rettori, S.B. Oseroff, J.L. Sarrao, A.A. Martin, N.O. Moreno, H. Martinho. *Physica B* **305**, 48 (2001).
- [25] Е.И. Головенчиц, В.А. Санина, А.А. Левин, Ю.Ф. Шепелев, Ю.И. Смолин. *ФТТ* **44**, 2035 (2002).
- [26] Е.И. Головенчиц, С.Л. Гинзбург, В.А. Санина, А.В. Бабинский. *ЖЭТФ* **107**, 1641 (1995).
- [27] Е.И. Golovenchits, V.A. Sanina. *Physica B* **284-288**, 1369 (2000).