

## Спиновая динамика и структурные фазовые переходы в квази-2D антиферромагнетиках $R_2CuO_4$ ( $R = Pr, Sm$ и $Eu$ )

*Е. И. Головенчиц<sup>1)</sup>, В. А. Санина*

*Физико-технический институт им. А. Ф. Иоффе РАН, 194021 Санкт-Петербург, Россия*

Поступила в редакцию 24 мая 2001 г.

Исследована спиновая динамика и динамика решетки в кристаллах  $R_2CuO_4$  ( $R = Pr, Sm$  и  $Eu$ ) в диапазоне частот 20–250 ГГц, в интервале температур 5–350 К. Обнаружено резкое изменение коэффициента поглощения в широкой полосе частот выше 120 ГГц при температурах 20, 80 и 150 К, в кристаллах  $R_2CuO_4$  ( $R = Pr, Sm$  и  $Eu$ ), соответственно. Скачки поглощения обусловлены структурными фазовыми переходами. В высокотемпературной фазе во всех изученных кристаллах наблюдались широкие полосы спин-волновых возбуждений. Вблизи температур структурных фазовых переходов в широком диапазоне частот, в том числе и на частотах, соответствующих полосам спин-волновых возбуждений, были видны линии поглощения, обусловленные динамикой решетки.

PACS: 64.60.Ht, 75.30.Ds, 76.50.+g

Кристаллы  $R_2CuO_4$  ( $R = La, Pr, Nd, Sm, Gd$  и  $Eu$ ) являются квази-2D антиферромагнетиками с гигантским обменом в слоях  $CuO_2$  (обменная константа  $J_{pl} \simeq 120–150$  мэВ [1]). Квази-2D дальний порядок, обусловленный слабым межслоевым обменом, характеризуется температурами Нееля  $T_N \simeq 250–300$  К.

Обычно принято считать, что кристаллы семейства  $R_2CuO_4$  с редкоземельными ионами имеют при всех температурах тетрагональную структуру  $T'$ -типа. Однако в ряде работ отмечалось наличие структурных искажений и структурных фазовых переходов в некоторых из этих кристаллов. Например, в  $Eu_2CuO_4$  рентгеновские исследования [2] показали, что при температуре  $T \sim 150$  К происходит структурный фазовый переход. В низкотемпературной фазе на ограниченных масштабах наблюдались ромбические искажения в слоях  $CuO_2$ . При температурах выше 150 К эти искажения исчезали. Магнитные, низкочастотные диэлектрические и СВЧ исследования  $Eu_2CuO_4$  [3–5] показали, что при фазовом переходе вблизи  $T \sim 150$  К изменяются одновременно структурные и магнитные свойства. Как показали результаты настоящей работы, наличие структурных фазовых переходов и связь спин-волновых и решеточных возбуждений, по-видимому, характерно для кристаллов  $R_2CuO_4$ .

Работа посвящена изучению спиновой динамики и динамики решетки кристаллов  $R_2CuO_4$  ( $R = Pr, Sm$  и  $Eu$ ). Исследовались температурные зависимости коэффициента поглощения электромагнитных волн в

диапазоне частот 20–250 ГГц и в интервале температур 5–350 К. Измерения проводились на квазиоптическом спектрометре. В качестве источника излучения использовались лампы обратной волны, в качестве приемников – детекторы на основе  $InSb$ . Образцы в виде пластинок с плоскостью, перпендикулярной оси с кристалла, располагались перпендикулярно направлению распространения электромагнитной волны, полностью перегораживая пучок. При этом переменные электрическое и магнитное поля ориентированы в плоскости  $ab$  кристалла (слои  $CuO_2$ ). Электрическое поле направлено вдоль оси держателя образца, относительно которого возможен его разворот. На фиксированных частотах изучались температурные зависимости относительного коэффициента поглощения  $\Gamma = 1 - P(T)/P(T = 5\text{ К})$ , где  $P(T)$  и  $P(T = 5\text{ К})$  – мощности СВЧ сигналов, прошедшие через образец при текущей температуре и  $T = 5\text{ К}$ , соответственно. Из зависимостей  $\Gamma(T)$  при различных частотах строились частотные зависимости этого коэффициента при фиксированных температурах. Вообще говоря, для количественного определения коэффициента поглощения нужна информация о фазе прошедшей волны и об отраженной мощности. Однако для поиска полос поглощения, что являлось главной задачей работы, можно было ограничиться измерением коэффициента  $\Gamma$ .

Из рис.1 видно резкое нарастание коэффициента  $\Gamma$  в узком температурном интервале вблизи температур 20, 80 и 150 К для кристаллов  $R_2CuO_4$  ( $R = Pr, Sm$  и  $Eu$ ), соответственно. При температурах ниже скачков кристаллы на данной частоте являются практически прозрачными. При температурах вы-

<sup>1)</sup>e-mail: E.Golovenchits@pop.ioffe.rssi.ru

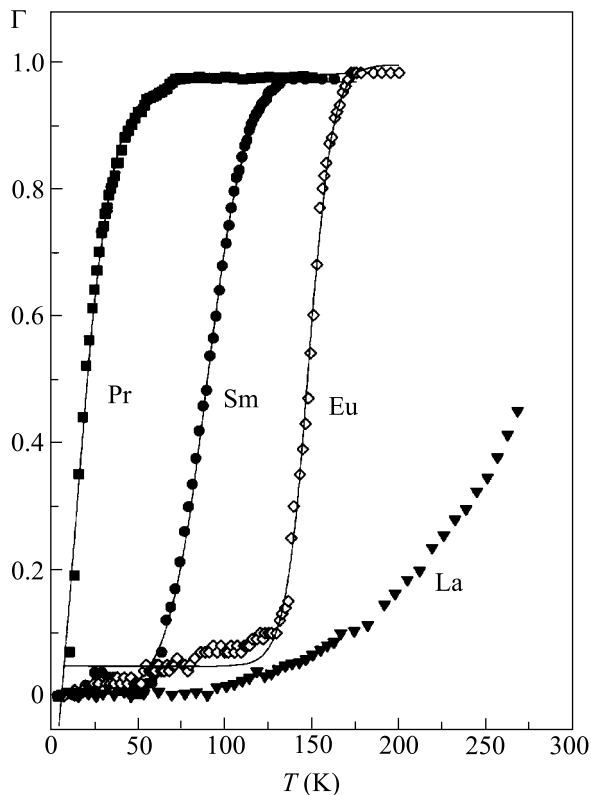


Рис.1. Зависимость относительного коэффициента поглощения  $\Gamma$  от температуры для кристаллов  $R_2CuO_4$  ( $R = La, Pr, Sm$  и  $Eu$ ). Частота 169 ГГц. Внешнее магнитное поле  $H_0 = 0$ . Кривые сняты в режиме медленного нагрева. Сплошные линии – аппроксимация уравнениями Больцмана  $\Gamma = \frac{\Gamma_1 - \Gamma_2}{1 + \exp((T - T_0)/dT)} + \Gamma_2$ . Здесь  $\Gamma_1$  – коэффициент поглощения при температуре  $T = -\infty$ ;  $\Gamma_2$  – при  $T = +\infty$ ;  $T_0$  – значение температуры, при которой величина  $\Gamma = 0.5(\Gamma_1 + \Gamma_2)$ ;  $dT$  – ширина интервала температур, в котором происходит резкое изменение коэффициента  $\Gamma$ . Значения  $T_0$  и  $dT$  (К) для кристаллов  $R_2CuO_4$  ( $R = Pr, Sm$  и  $Eu$ ) равны соответственно: Pr –  $19.52 \pm 2.13$ ,  $13.03 \pm 0.79$ ; Sm –  $86.09 \pm 0.24$ ,  $10.49 \pm 0.21$ ; Eu –  $115.82 \pm 0.62$ ,  $10.78 \pm 0.53$

ше скачков – коэффициент  $\Gamma$  резко возрастает и при дальнейшем повышении температуры до 300–350 К практически не изменяется. Видно также, что температурные зависимости коэффициента поглощения для кристаллов  $R_2CuO_4$  ( $R = Pr, Sm$  и  $Eu$ ) подобны и качественным образом отличаются от такой же зависимости для  $La_2CuO_4$ . В последнем наблюдается плавное нарастание поглощения с ростом температуры, которое, видимо, обусловлено носителями, термоактивированными из примесей и дефектов. Как видно, это затухание (которое можно считать близким по величине для всех кристаллов  $R_2CuO_4$ ) зна-

чительно слабее поглощения, наблюдаемого в исследуемых кристаллах при температурах выше  $T_0$  (см. подпись к рис.1).

Из факта скачкообразного изменения поглощения при изменении температуры можно предположить, что мы имеем дело с фазовыми переходами вблизи температур  $T_0$ . Действительно, как отмечалось выше, в  $Eu_2CuO_4$  при  $T \sim 150$  К наблюдался структурный фазовый переход. Подобие кривых на рис.1 для всех кристаллов наводит на мысль об общности природы скачков  $\Gamma(T)$ , то есть о наличии структурных фазовых переходов в кристаллах  $Pr_2CuO_4$  и  $Sm_2CuO_4$  при температурах 20 и 80 К, соответственно. При этом в низкотемпературной фазе на соответствующих частотах в кристаллах нет собственных полос поглощения, а в высокотемпературной фазе – такие полосы возникают. Из поляризационных свойств полос поглощения можно заключить, что они связаны со спин-волновыми возбуждениями в плоскости  $CuO_2$  кристаллов. Коэффициент поглощения падал при повороте образца относительно оси держателя на малый угол (несколько градусов). При таком повороте переменное электрическое поле оставалось в плоскости  $ab$  кристалла, а переменное магнитное поле выходило из этой плоскости. Угол поворота был достаточно мал, чтобы сквозного просачивания СВЧ мощности помимо образца не возникало.

Как видно из рис.2, структурные фазовые переходы в кристаллах  $Sm_2CuO_4$  и  $Eu_2CuO_4$  являются переходами первого рода. В  $Eu_2CuO_4$  имеется сильный гистерезис коэффициента поглощения: при нагревании величина  $T_0 \simeq 150$  К, а при остывании –  $T_0 \simeq 120$  К. В  $Sm_2CuO_4$  и  $Pr_2CuO_4$  подобный гистерезис, но меньший по величине (5–10 К), также наблюдался вблизи температур 80 и 20 К, соответственно. В области частот, в которой нет полос спин-волнового поглощения, в  $Sm_2CuO_4$  вблизи структурного фазового перехода на зависимости  $\Gamma(T)$  наблюдалась S-образная неустойчивость: при равномерном нагревании скорость изменения температуры образца замедлялась и происходило его остывание (см. вставку к рис.2). Среди изученных кристаллов фазовый переход в  $Pr_2CuO_4$  оказался наиболее размытым (скорее всего I-го рода, близким ко II-му).

В кристаллах  $Pr_2CuO_4$  и  $Eu_2CuO_4$  в области частот, в которой нет полос спин-волновых возбуждений, вблизи температур  $T_0$  наблюдались добавочные линии поглощения (см. линии 1 и 2 рис.3). Эти линии естественно связать с динамикой решетки вблизи структурных фазовых переходов. Отметим, что при упомянутых выше разворотах образца относительно оси держателя интенсивность линий типа 1

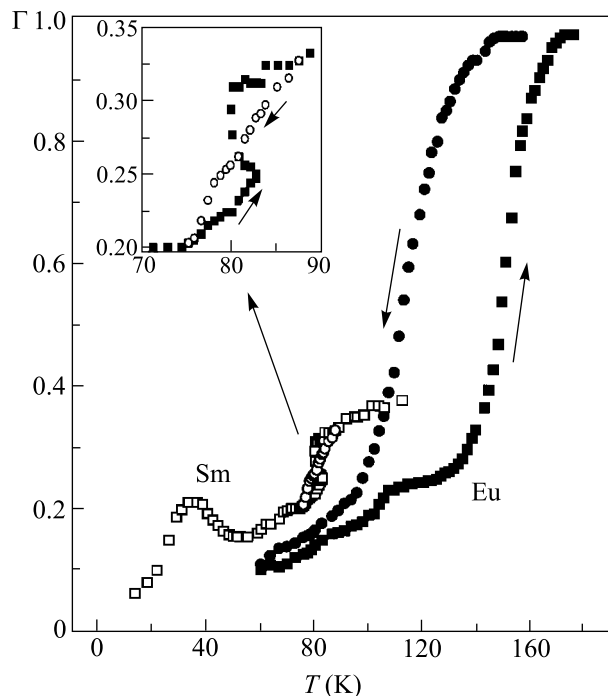


Рис.2. То же, что на рис. 1, для кристаллов  $\text{Eu}_2\text{CuO}_4$  (частота  $f = 169$  ГГц) и  $\text{Sm}_2\text{CuO}_4$  ( $f = 34$  ГГц), снятые в режиме медленных остывания и нагревания вблизи температур 150 и 80 К. Стрелками показаны направления изменения температуры. Для  $\text{Sm}_2\text{CuO}_4$  вблизи  $T \approx 40$  К видна линия поглощения магнитной природы. На вставке показана область  $S$ -образной неустойчивости и гистерезиса для  $\text{Sm}_2\text{CuO}_4$

на рис.3 не изменялась, что свидетельствует об их электрической природе.

Из рис.3 видно, что характер температурных зависимостей коэффициентов поглощения существенно отличается для разных частот. Для  $\text{Eu}_2\text{CuO}_4$  на частотах 55 и 78.8 ГГц четко проявляются линии, обусловленные динамикой решетки. На частотах выше 120 ГГц преимущественно наблюдаются полосы поглощения, обусловленные спин-волновыми модами. Для  $\text{Pr}_2\text{CuO}_4$  и  $\text{Sm}_2\text{CuO}_4$  зависимости подобны приведенным на рис.3 на тех же частотах, но особенности на них смещены к температурам 20 и 80 К, соответственно.

Коротковолновый край спин-волновых полос для всех кристаллов (см. рис.4) не удалось наблюдать вплоть до максимальной частоты, до которой проводились измерения – 250 ГГц. Частоты наблюдаемых нами полос, обусловленные колебаниями полного момента, близки по энергии к полосе, обнаруженной при неупругом рассеянии нейтронов в  $\text{Pr}_2\text{CuO}_4$  для антиферромагнитного вектора [6, 7]. Согласно этим ра-

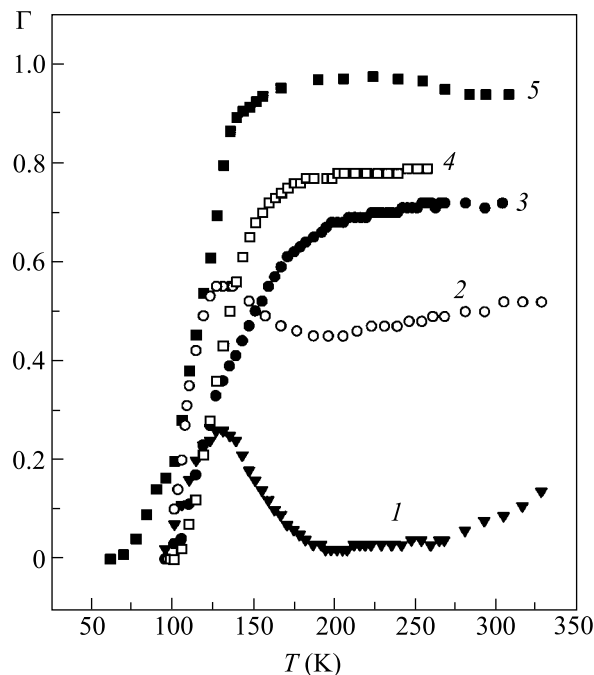


Рис.3. То же, что на рис.1, для кристаллов  $\text{Eu}_2\text{CuO}_4$  для ряда частот, при которых наблюдаются наиболее характерные зависимости. Кривые 1–5 относятся к частотам (ГГц): 1–55, 2–78.8, 3–120, 4–150, 5–170

ботам, полоса обусловлена внутрислоистой спин-волновой модой, величина щели для которой определяется квадратной анизотропией в слое  $\text{CuO}_2$ .

Как видно из рис.4, для внутрислоистой спин-волновой моды имеется сильная температурная зависимость коэффициента поглощения (и наклона низкочастотного края полосы) при температурах вблизи  $T_0$ , которая прекращается при нарастании температуры выше 90, 100 и 170 К для кристаллов  $\text{R}_2\text{CuO}_4$  ( $\text{R} = \text{Pr}, \text{Sm}$  и  $\text{Eu}$ ), соответственно. При этом для края полосы поглощения – щели спин-волновых возбуждений, определяемой по половинному уровню на низкочастотном склоне, наблюдается температурная зависимость, на существование которой в  $\text{Pr}_2\text{CuO}_4$  указано в работе [6]. В работе [8] эта температурная зависимость объясняется взаимодействием спиновых волн при учете анизотропии, не сохраняющей величину полного спина. Однако, как видно из приведенных выше результатов, возможна и другая причина температурной зависимости щели, связанная с наличием структурных фазовых переходов. Действительно, вблизи фазовых переходов с изменением температуры изменяется соотношение сосуществующих низкотемпературной и высокотемпературной фаз, имеющих различные спектры спин-волновых возбуждений.

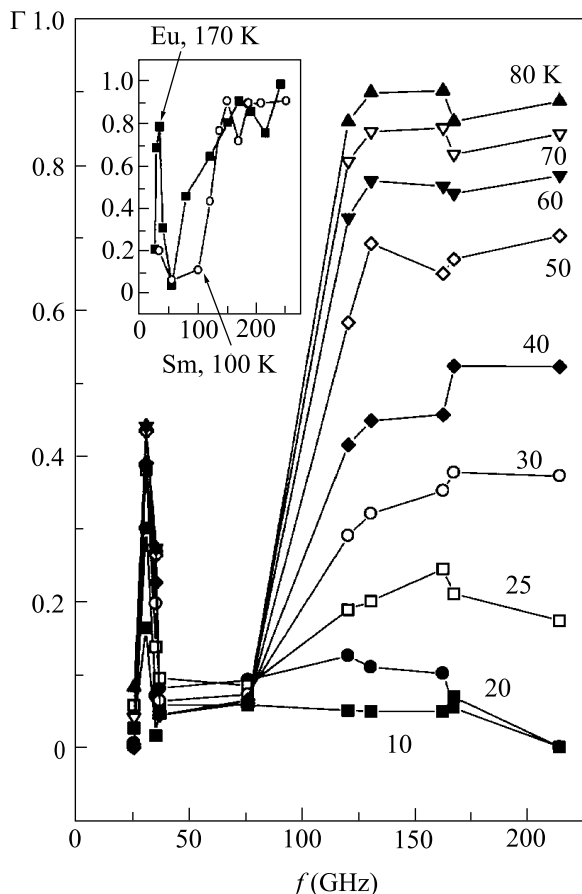


Рис.4. Зависимости коэффициента поглощения от частоты для  $\text{Pr}_2\text{CuO}_4$  для ряда температур в интервале 10–80 К. На вставке то же для кристаллов  $\text{Eu}_2\text{CuO}_4$  при  $T = 170$  К, и для  $\text{Sm}_2\text{CuO}_4$  при  $T = 100$  К

Для кристаллов  $\text{Eu}_2\text{CuO}_4$  и  $\text{Pr}_2\text{CuO}_4$  в высокотемпературной фазе наблюдалась также и сравнительно узкая линия поглощения вблизи 30 ГГц (см. рис.4). Эту линию мы связываем с 2D однородными, хорошо определенными спин-волновыми возбуждениями в слоях  $\text{CuO}_2$ , существование которых предполагалось ранее при изучении СВЧ магнитной восприимчивости [5, 9].

Заметим, что с ростом частоты интенсивность линий поглощения, связанных с динамикой решетки (линии типа 1 и 2 на рис.3), увеличивается. При этом они продолжают существовать и на частотах внутриволновых мод. В результате, вблизи температур структурных фазовых переходов полосы поглощения на частотах выше 120 ГГц скорее всего не являются чисто спин-волновыми, а

представляют собой смешанные спиновые и решеточные моды. Поскольку характер этих полос слабо изменяется с ростом температуры, то, возможно, смешанный характер возбуждений сохраняется во всей высокотемпературной фазе. Большая ширина полос может быть связана со структурными неоднородностями, характерными для высокотемпературной фазы [4, 9]. Поглощение в полосе слабо зависит и от внешнего магнитного поля. При этом наблюдение антиферромагнитного резонанса обычным способом (с разверткой по полю) практически невозможно. В низкотемпературной фазе такие резонансы были видны в наших кристаллах (см. рис.2) и наблюдались в ряде других кристаллов ранее [10, 11].

Таким образом, в кристаллах  $\text{R}_2\text{CuO}_4$  ( $\text{R} = \text{Pr}, \text{Sm}$  и  $\text{Eu}$ ) при температурах 20, 80 и 150 К, соответственно, имеются структурные фазовые переходы. В высокотемпературной фазе динамические свойства всех изученных кристаллов оказались подобными. Значения температур структурных фазовых переходов и динамические свойства низкотемпературных фаз различны для разных кристаллов и, скорее всего, определяются типом редкоземельного иона.

Работа выполнена при частичной поддержке Фонда “Фундаментальные исследования” Президиума РАН и гранта Российского фонда фундаментальных исследований “Научные школы” # 00-15-96757.

1. S. Chakravarty, B. Halperin, and D. Nelson, *Phys. Rev.* **B39**, 2344 (1989).
2. V. P. Plakhty, A. B. Stratilatov, and S. Beloglazov, *Solid State Commun.* **103**, 683 (1997).
3. А. В. Бабинский, Е. И. Головенчиц, Н. В. Морозов и др., *ФТТ* **34**, 60 (1992).
4. А. В. Бабинский, С. Л. Гинзбург, Е. И. Головенчиц и В. А. Санина, *Письма в ЖЭТФ* **57**, 289 (1993).
5. Е. И. Головенчиц, С. Л. Гинзбург, В. А. Санина и А. В. Бабинский, *ЖЭТФ* **107**, 1641 (1995).
6. A. S. Ivanov, P. Bourges, and D. Petitgrand, *Physica* **B259-261**, 879 (1999).
7. D. Petitgrand, S. V. Maleyev, Ph. Bourges, and A. S. Ivanov, *Phys. Rev.* **B59**, 1079 (1999).
8. S. V. Maleyev, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 3281 (2000).
9. E. I. Golovenchits and V. A. Sanina, *Physica* **B284-288**, 1369 (2000).
10. В. В. Еременко, С. А. Звягин, В. В. Пишко и др., *Письма в ЖЭТФ* **52**, 955 (1990).
11. А. И. Смирнов, С. Н. Барилло, Д. И. Жигунов, *ЖЭТФ* **100**, 1690 (1991).