Физика низких температур, 1996, т. 22, № 11, с. 1356–1359

Анизотропия полей спиновой переориентации в Nd_2CuO_4

Т. В. Игнатова, А. Л. Гайдук, И. Г. Колобов, В. Д. Филь

Физико-технический институт низких температур им. Б. И. Веркина НАН Украины, Украина, 310164, г. Харьков, пр. Ленина, 47

Д. В. Филь

Институт монокристаллов НАН Украины, Украина, 310001, г. Харьков, пр. Ленина, 60

С. Н. Барило, Д. И. Жигунов

Институт физики твердого тела и полупроводников АН Беларуси, Беларусь, 270072, г. Минск, ул. П. Бровки, 17

С использованием данных о магнитоупругих свойствах изучена анизотропия полей спин-переориентационных фазовых превращений в Nd_2CuO_4 в области гелиевых температур. Оценено соотношение параметров модельного четырехподрешеточного гамильтониана, позволяющего описать наблюдаемую анизотропию при $T > 1{,}5$ К. Обнаруженные при более низких температурах особенности модулей упругости также характеризуются значительной анизотропией, однако для их объяснения необходим явный учет редкоземельной спиновой структуры.

З використанням даних про магнітопружні ефекти вивчено анізотропію полів спін-переорієнтаційних фазових переутворювань в Nd_2CuO_4 в області гелійових температур. Оцінено співвідношення параметрів модельного чотирьохпідграткового гамільтоніана, який дозволяє описати спостережувану анізотропію при $T > 1{,}5$ К. Виявлені при більш низьких температурах особливості модулів пружності також характеризуються значною анізотропією, проте для їх пояснення необхідно явне урахування рідкісноземельної спінової структури.

Введение

Соединение Nd_2CuO_4 является базовым для синтеза ВТСП, обладающих, по некоторым данным, электронным типом проводимости. Кроме того, чрезвычайно интересно поведение его магнитной подсистемы, характеризующееся рядом как спонтанных, так и стимулированных магнитным полем спин-переориентационных фазовых превращений (СПФП).

Напомним основные этапы эволюции магнитной структуры Nd_2CuO_4. При 250 К спины меди антиферромагнитно упорядочиваются в плоскостях CuO_2 с векторами антиферромагнетизма соседних плоскостей L_1 и L_2, параллельными естественным кристаллографическим осям группы I_4/mmm. При 70 и 30 К наблюдаются спонтанные СПФП, заключающиеся в скачкообразном повороте одного из векторов антиферромагнетизма на угол π [1]. При $T \approx 5$ К происходит потеря устойчивости ортогональной конфигурации, и при $T < 5$ К фиксируется «косая» фаза с углами $\theta \neq 0, \pi/2, \pi$ между L_1 и L_2 [2] (СПФП ферроэластического типа).

В магнитном поле H_c неколлинеарная фаза трансформируется в коллинеарную с $\theta = 0, \pi$. Благодаря магнитоупругой связи этот СПФП сопровождается значительными скачками упругого модуля C_{66}, по которым фазовый переход легко фиксируется [2]. Ниже 1 К при $\mathbf{H} \| [100]$ ($H < H_c$) в поведении C_{66} наблюдались дополнительные особенности, которые также можно интерпретировать как новые СПФП, природа которых, однако, в настоящее время не выяснена [2].

Подчеркнем, что для всех вышеупомянутых СПФП заметные аномалии наблюдаются только в модуле C_{66}, другие же поперечные модули практически не меняются. Этот факт указывает на то, что в полях $H < 40$ кЭ векторы L_1 и L_2 всегда остаются в плоскости (001).

В настоящем сообщении изложены результаты изучения (по данным о магнитоупругих эффектах)

© Т. В. Игнатова, А. Л. Гайдук, И. Г. Колобов, В. Д. Филь, Д. В. Филь, С. Н. Барило, Д. И. Жигунов, 1996

анизотропии H_c при вращении поля в плоскости (001). Сравнение ее с возможными теоретическими зависимостями позволило установить соотношение между феноменологическими параметрами модельного гамильтониана и описать конфигурацию магнитной подсистемы на всех этапах спиновой перестройки.

Спин-переориентационные фазовые превращения при $T > 1{,}5$ K

Введем угловую координату φ, характеризующую отклонение магнитного поля от оси [100]. Зависимость $H_c(\varphi)$ при $T = 2{,}5$ K представлена на рис. 1. При измении T в интервале 1,5–10 K она несколько трансформируется, однако качественно остается подобной изображенной на рис. 1 — спад вблизи $\varphi = 0$ и слабое изменение при $\varphi \approx \pi/4$.

Для анализа данных воспользуемся моделью четырехподрешеточного антиферромагнетика, оперирующей только со спинами меди и сводящей влияние редкоземельных ионов к перенормировке феноменологических параметров модельного гамильтониана [2,3]:

$$E = 1/2J(F_1^2 + F_2^2) - \mathrm{H}(\mathrm{F}_1 + \mathrm{F}_2) + 16D(\mathrm{L}_1\mathrm{L}_2)^2 + \\ + 8\Lambda(\mathrm{L}_1\mathrm{L}_2)u_{xy} + \beta/4(\mathrm{L}_1\mathrm{L}_2)^4 + 2C_{66}u_{xy}^2 - \\ - a(L_{1x}L_{2y} + L_{1y}L_{2x}) + h_t(L_{1x}^2L_{1y}^2 + L_{2x}^2L_{2y}^2). \qquad (1)$$

Здесь F_1 и F_2 — векторы ферромагнетизма соседних CuO_2 - плоскостей ($(\mathrm{F}_1\mathrm{L}_1) = (\mathrm{F}_2\mathrm{L}_2) = 0$).

В (1) первое слагаемое ($J > 0$) описывает антиферромагнитный обмен внутри CuO_2 - плоскостей, второе — зеемановскую энергию. Коэффициент D отвечает за межплоскостной биквадратичный обмен, Λ — за магнитоупругое взаимодействие. Предпоследнее слагаемое вводит межплоскостную анизотропию, последнее — одноионную тетрагональную анизотропию [3]. Эти два слагаемых использованы для описания анизотропии задачи (поскольку для меди $S = 1/2$, появление h_t в (1) обусловлено исключительно влиянием редкоземельных ионов [3]).

Как несущественные в (1) не учтены следующие слагаемые: межплоскостной квадратичный по спинам обмен ($J'(\mathrm{F}_1\mathrm{F}_2)$, $J' \ll J$); магнитоупругое слагаемое $(\mathrm{F}_1\mathrm{F}_2)u_{xy}$ ($|\mathrm{F}_i| \ll |\mathrm{L}_i|$); упругий вклад с $C_{ik} \neq C_{66}$ и члены типа γL_z^2 ($\gamma > 0$), запрещающие выход векторов L_i из плоскости (001). Знак перед

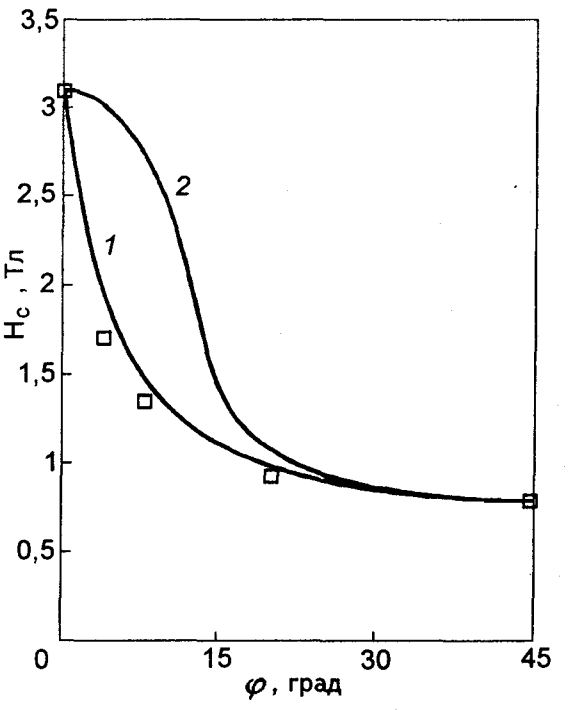

Рис. 1. Анизотропия поля фазового перехода в коллинеарную фазу в Nd_2CuO_4 при $T = 2{,}5$ K: эксперимент (□); расчет при $h_t = 0$ (*1*), расчет при $\alpha = 0$ (*2*).

слагаемым, описывающим межплоскостную анизотропию, выбран таким образом, чтобы при $a > 0$ векторы L_1, L_2 и ось z образовывали правовинтовую систему координат.

Пусть α — угол между L_1 и H. Минимизируя (1) по переменным F_1, F_2, u_{xy}, θ, α, получаем систему уравнений, связывающих $H_c(\varphi)$ (т.е. $\theta = 0, \pi$) и α:

$$B + H_c^2/(2J)\cos 2\alpha - 2h_t\cos^2 2(\alpha - \varphi) = 0 \qquad (2а)$$

$$H_c^2/(2J)\sin 2\alpha \pm a\cos 2(\alpha - \varphi) - \\ h_t/2\sin 4(\alpha - \varphi) = 0. \qquad (2б)$$

Здесь $B = 32(D - \Lambda^2/2C_{66}) + \beta + h_t$. Знак плюс в (2б) отвечает конфигурации $\theta = \pi$, знак минус $-\theta = 0$.

Анализ экспериментальных данных, полученных при $H = 0$ [2,4], показывает, что в Nd_2CuO_4 вплоть до 30 мК реализуется ситуация $\beta > 0$, $B > 0$. Кроме того, при спонтанном СПФП ($T = 5$ K) обращается в нуль комбинация $B - \beta$.

При $\varphi = \pm\pi/4$ независимо от конфигурации и от соотношения параметров a и h_t критическое поле $H_c^2(\pi/4) = H_c^2(-\pi/4) = 2JB$ и $\alpha = \pm\pi/2$. Одна-

ко в общем случае H_c зависит от a и h_t, но оценить соотношение между a и h_t не возможно, поэтому проанализируем поведение $H_c(\varphi)$ в предельных случаях.

1. Основной вклад в $H_c(\varphi)$ дает межплоскостная анизотропия, и одноионной анизотропией можно пренебречь ($h_t = 0$). Введем параметр $A = H_c(\pi/4)/H_c(0)$, характеризующий предельную анизотропию поля СПФП. Как следует из рис. 1, $A \approx 0{,}25$.

Рассмотрим случай $\varphi = 0$. Из (2а) получаем $\cos 2\alpha = -A^2$, т.е. $\alpha = \pm(\pi/4+\varepsilon)$, ($\varepsilon \approx 0{,}5\,A^2$, как и в (1), верхний знак плюс соответствует конфигурации $\theta = \pi$). Для поля спиновой переориентации с точностью до A^4 получаем $H_c^2(0) = 2J(|a|B)^{1/2}$. Следует подчеркнуть, что при этом $B/|a| \approx A^4 << 1$, т.е. только такое соотношение феноменологических параметров гамильтониана совместимо с наблюдаемой анизотропией. Этот факт не должен вызывать удивления, поскольку система находится вблизи ферроэластического перехода и $B \sim \beta$.

Вычислим наклон $H_c(\varphi)$ при $\varphi = 0$. С точностью до A^4 имеем

$$\frac{1}{H_c}\frac{dH_c}{d\varphi}\Big|_{\varphi=0} = \mp\frac{1}{2A^2}. \qquad (3)$$

Разумеется, это не означает, что зависимость $H_c(\varphi)$ будет асимметрична относительно $\varphi = 0$. Просто при $\varphi < 0$ более выгодна конфигурация с $\theta = \pi$, а при $\varphi < 0$ — с $\theta = 0$. При $|\sin 2\varphi| >> A^2$, $H_c^2(\varphi) = H_c^2(\pi/4)/|\sin 2\varphi|$. Расчетная зависимость $H_c(\varphi)$ представлена на рис. 1 (кривая *1*).

2. Рассмотрим теперь ситуацию, когда основной вклад в $H_c(\varphi)$ дает одноионная анизотропия ($a = 0$).

При $\varphi = 0$ уравнению (2б) удовлетворяет $\sin 2\alpha = 0$, т.е. $\alpha = \pm\pi/2$. Из (2а) получаем $1/A^2 = 1 - 2h_t/B >> 1$ и $H_c^2(\varphi) = -4Jh_t$, т.е. только при $h_t < 0$ и $|h_t|/B >> 1$ можно удовлетворить требуемому соотношению полей СПФП. В отличие от 1-й ситуации $dH_c(\varphi)/d\varphi\big|_{\varphi=0} = 0$. Полный вид зависимости $H_c(\varphi)$ в этом случае также приведен на рис. 1 (кривая *2*).

Сравнение расчетных кривых с экспериментом недвусмысленно указывает на то, что наблюдаемая зависимость $H_c(\varphi)$ полностью определяется вкладом межплоскостной анизотропии и влиянием h_t можно пренебречь. Отметим, однако, что при $H = 0$ вклад h_t может оказаться определяющим, поскольку температура ферроэлластического перехода обусловлена равенством $B - \beta = 0$, и в эту комбинацию α вообще не входит.

Интересно отметить, что в случае 1 при любом φ в поле H_c с точностью до A^2 угол $\alpha - \varphi = \pi/4$. Поскольку этот угол есть фактически отклонение $\mathbf{L}_i$ от оси [100], это означает, что векторы $\mathbf{L}_1$ и $\mathbf{L}_2$ при СПФП всегда располагаются перпендикулярно оси анизотропии (в нашем случае [110]) и только при $\varphi = \pi/4$ они ортогональны H. Нетрудно также убедиться, что при любом $H < H_c$ и любом φ векторы $\mathbf{L}_1$ и $\mathbf{L}_2$ развернуты практически симметрично относительно оси [110].

Близость расчетной зависимости к экспериментальной свидетельствует, по нашему мнению, о допустимости использования четырехподрешеточной модели при описании магнитных свойств Nd_2CuO_4 при $T > 1{,}5$ K.

Аномалии C_{66} при $T < 1{,}5$ K

Ниже 1,5 K поведение C_{66} при малых φ значительно усложняется. Для $\varphi = 0$, $T \le 0{,}5$ K и $H < H_c$ на зависимостях $C_{66}(H)$ наблюдались скачкообразные аномалии, определенно указывающие на проявление новых СПФП [2]. Характер изменения C_{66} следующий: с увеличением H в поле H_1 модуль C_{66} претерпевает скачок в сторону увеличения, в поле H_2 — в обратном направлении и далее в поле H_c модуль C_{66} снова увеличивается. При отклонении H от оси [100] вплоть до $\varphi = 8°$ температурный интервал существования аномалии расширяется в сторону более высоких температур (рис. 2,*а*). На рис. 2,*б* приведен низкотемпературный фрагмент H,T-диаграммы. Следует обратить внимание на практически скачкообразную ее трансформацию при увеличении угла: при $\varphi = 8°$ ниже 1,5 K еще существует восходящая ветвь H_c, но уже при 9° она отсутствует и ветви H_1 и H_c сливаются, повторяя качественно эволюцию $H_c(T)$ для $\varphi = \pi/4$. Ветвь H_2 при этом также практически исчезает и для $\varphi = 9°$ только при самых низких температурах удается зарегистрировать слабые аномалии на зависимости $C_{66}(T)$, которые по своему характеру могут быть отнесены к ветви H_2.

В настоящее время нам не известна какая-либо интерпретация указанных особенностей. Очевидно, что для их описания необходимо явно учесть РЗМ подсистему, поскольку в обсуждавшейся выше модели никаких дополнительных СПФП существовать не может. По-видимому, справедлив так-

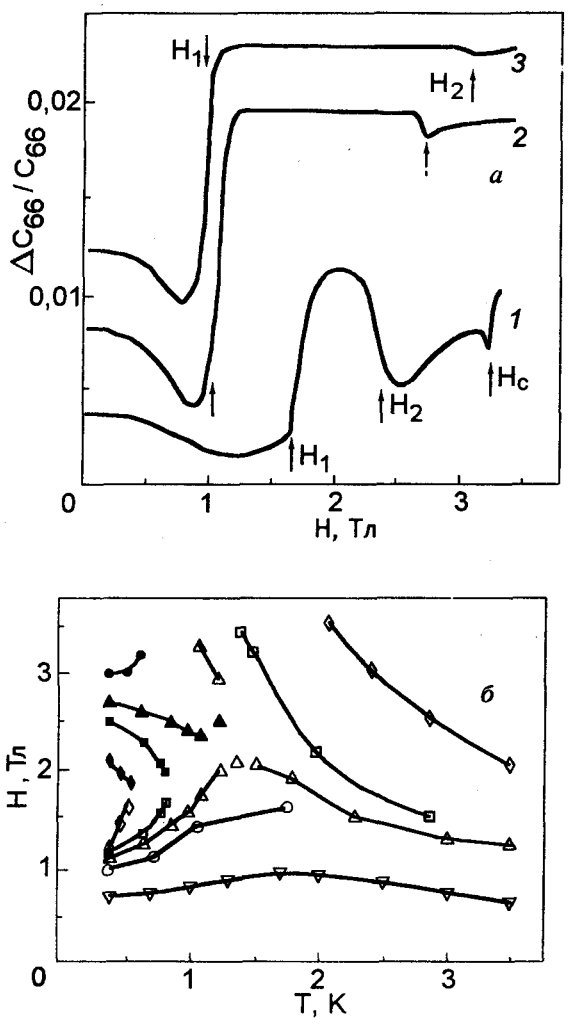

Рис. 2. Примеры экспериментальных зависимостей $C_{66}(H)$ при $T < 1{,}5$ K (*а*) . Низкотемпературный фрагмент H, T-диаграммы Nd_2CuO_4 при различных φ, град: 0(◇); 4(□); 8(△); 9(○); 45 (▽), поля H_c ,H_1 ; 0(◆); 4 (■) ;8(▲;) ; 9(●), поле H_2 (*б*).

же вывод, что модель с полностью поляризованной медью системой РЗМ, сводящаяся к обсуждавшейся выше четырехподрешеточной модели, ниже 1,5 K непригодна и спины РЗМ ведут себя достаточно независимо от спинов меди (т.е. возможно вращение спинов неодима относительно спинов меди).

Работа частично поддержана Международной соросовской программой образования в области точных наук (ISSEP), грант N PSU 052062.

1. S. Skanthakumar, J. W. Lynn, J. L. Peng, and Z. Y. Li, *Phys. Rev.* **B 47**, 6173 (1993).
2. С. В. Жерлицын, Г. А. Звягина, В. Д. Филь, И. М. Витебский, С. Н. Барило, Д. И. Жигунов, *ФНТ* **19**, 1318 (1993).
3. Д. А. Яблонский, *СФХТ* **3**, 2706 (1990).
4. S. Zherlitsyn, V. D. Fil, D. Finsterbusl, J. Molten, B. Wolf, G. Bruls, B. Lüthi, S. N. Barilo, and D. I. Zhigunov, *Physica* **B 211**, 168 (1995)

Field anisotropy of spin reorientation in Nd_2CuO_4

T. V. Ignatova, A. L. Gaiduk, I. G. Kolobov, V. D. Fil, D. V. Fil, S. N. Barilo, and D. I. Zhigunov

Magnetoelastic study into field anitstropy of spin-reorientation phase transitions in Nd_2CuO_4 is carried out at helium temperatures. The result at $T > 1.5$ K is described in terms of the four-sublattice antiferromagnet model and the relation of the phenomenological Hamiltonian parameters is evaluated. The peculiarities of the elastic moduli at lower temperatures also reveal a marked anisotropy, but to treat them an inclusion of the rare earth spin structure in the explicit form is necessary.