

ИССЛЕДОВАНИЕ ФЛУКТУАЦИЙ НАМАГНИЧЕННОСТИ В МЕТАЛЛОКСИДЕ $\text{La}_2\text{CuO}_{4-\delta}$

В.Е. Катаев, Е.Ф. Куковицкий, Ю.И. Таланов,
Г.Б. Тейтельбаум

При исследованиях магнитных свойств поликристаллического $\text{La}_2\text{CuO}_{4-\delta}$ обнаружен необычный антиферромагнитный резонанс, имеющий место в условиях, когда дальний магнитный порядок отсутствует.

В настоящее время имеются серьезные основания считать, что механизм высокотемпературной сверхпроводимости ^{1, 2} связан с необычными магнитными свойствами перовскитных структур типа $\text{La}_2\text{CuO}_{4-\delta}$ ^{3, 4}. Это обстоятельство стимулировало повышенный интерес к их исследованию ⁵⁻⁹. Установлено ⁵, что магнитные свойства подобных соединений существенно зависят от δ — отклонения содержания кислорода от стехиометрического количества. Например, даже небольшое (порядка 0,03) отклонение δ от нуля (по другим данным от величины, находящейся в интервале от 0 до -0,03) приводит к возрастанию температуры Нееля в этом соединении от 0 до 290 К ⁵. Целью настоящей работы является анализ магнитного состояния поликристаллических соединений $\text{La}_2\text{CuO}_{4-\delta}$, выяснение характера магнитных флуктуаций и их зависимости от наличия кислородных вакансий.

Исследования были выполнены на двух отличающихся значениями δ поликристаллических образцах $\text{La}_2\text{CuO}_{4-\delta}$, размолотых в порошок, причем отдельные кристаллиты, сорентированные сильным магнитным полем, были зафиксированы в парафине. Таким образом в образцах создавалось выделенное направление — ось ориентации. Однофазность кристаллитов и характер их ориентации контролировались с помощью рентгенографического анализа. Установлено, что в основном базисные ac плоскости отдельных кристаллитов выстраивались перпендикулярно оси ориентации, а некоторые под углом 60° к ней, что обусловлено, по-видимому, наличием кристаллических сростков. В ходе исследований измерялась магнитная восприимчивость (в поле 1,5 кГс) и снимались спектры магнитного резонанса на частоте 9400 МГц.

В образце № 1 со стехиометрическим содержанием кислорода ($\delta \approx 0$), как показали измерения магнитной восприимчивости, переход в антиферромагнитное состояние отсутствовал. Поведение восприимчивости образца № 2, который был получен из первого путем отжига на воздухе при температуре 950°C , и имел $\delta > 0$, обнаруживает характерный излом, соответствующий температуре Нееля 250 К. Заметим, что восприимчивость обоих образцов при $T < 50$ К имеет кюри-подобный подъем с $T_K \sim 1 - 3$ К, что говорит о наличии в этих соединениях локализованных магнитных моментов.

При ЭПР измерениях в образце № 2 при температурах меньше 90 К наблюдалась резонансная линия, ширина которой, составляющая 380 Гс, практически не менялась вплоть до температур ~ 7 К (рис. 1). При охлаждении ниже 35 К g -фактор этой линии, не зависящей от ориентации образца относительно постоянного магнитного поля H_0 , смещается от $g = 2,14$ к $g = 2,16$. Заметим, что эта линия всегда сопровождалась слабым сигналом с $g \sim 4$. Интегральные интенсивности обоих сигналов изменялись с температурой одинаковым образом, причем ход этого изменения согласовывался с кюри-подобным участком температурной зависимости восприимчивости. Эти сигналы относятся скорее всего к связанным ферромагнитным взаимодействием парам Cu^{2+} , возникающим в условиях, когда из-за дефектов происходит фрустрация антиферромагнитных связей. Другая возможность состоит в том, что эти линии относятся к высокоспиновой меди, локализованной в протяженных границах

двойникования с тетрагональной структурой. Помимо этих сигналов в том же температурном диапазоне наблюдалась линия поглощения (средняя на рис. 1), положение и интенсивность которой существенно зависели от температуры (рис. 2) и ориентации постоянного магнитного поля. Например, при $T = 24$ К этот сигнал с шириной ~ 200 Гс, который может быть идентифицирован как линия антиферромагнитного резонанса, смещается на 200 Гс в большие поля при отвороте магнитного поля на 60° от оси ориентации. При угле 90° сигнал исчезает совсем. С повышением температуры он сдвигается к линии с $g = 2,14$, падая по интенсивности почти до нуля. В интервале $90 \text{ К} < T < 250 \text{ К}$ никаких линий не наблюдалось, а выше $T = 250 \text{ К}$ появился широкий (~ 300 Гс) сигнал с центром при $g \sim 2$. Помимо него наблюдалась дополнительная линия, которая с повышением температуры смещается вверх по полю (см. рис. 2). Ее интенсивность падает при повороте H_0 перпендикулярно оси ориентации (сигнал при этом смещается в большие поля), а ширина практически неизменна и равна 340 Гс.

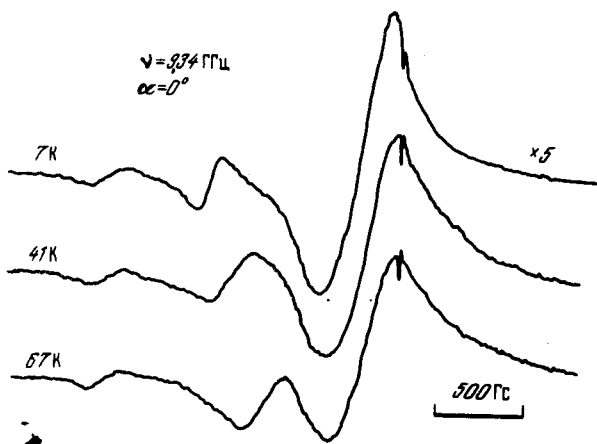


Рис. 1. Спектр магнитного резонанса образца № 2 при $T < T_N$

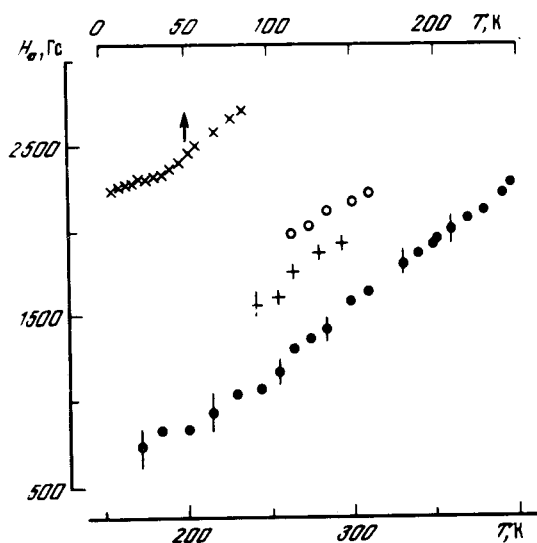


Рис. 2. Температурная зависимость значений поля H_0 , соответствующих антиферромагнитному резонансу в образце № 2 (x) и возбуждению спиновых волн в образцах № 1 (•, o) и № 2 (+)

ЭПР спектры образца № 1 при низких температурах также содержат сигналы с $g \sim 2$ и $g \sim 4$, хотя первый из них имеет более выраженное возрастание g -фактора при понижении температуры. При $90 \text{ К} < T < 170 \text{ К}$ сигналов резонанса не наблюдается, а, начиная со 180 К, появляются две линии поглощения с шириной ~ 300 Гс, которые с повышением температуры смещаются вверх по полю (см. рис. 2, 3). При отклонении поля от оси ориентации они смещаются в ту же сторону и резко уменьшаются по интенсивности. В экспериментах на не-

ориентированных магнитным полем образцах подобные сигналы отсутствуют. Кроме них при высоких температурах наблюдается очень широкий и слабый сигнал вблизи $g \sim 2$.

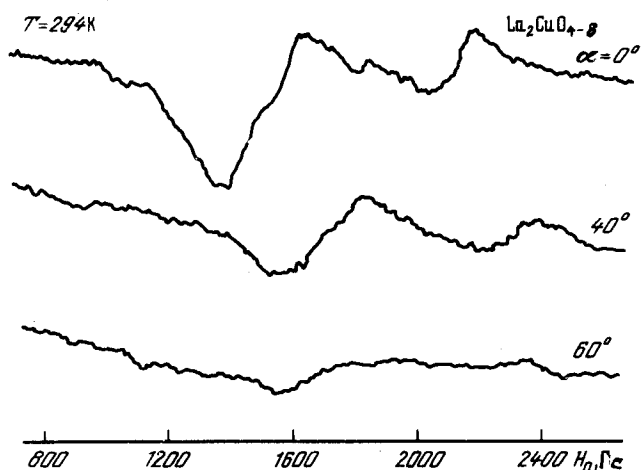


Рис. 3. Ориентационная зависимость сигналов поглощения при возбуждении спиновых волн в образце № 1. α — угол между магнитным полем и осью ориентации.

Для объяснения полученных результатов существенно, что магнитные моменты ионов Cu^{2+} ($S = 1/2$), находящиеся в плоскостях $\text{Cu}-\text{O}_2$, связаны почти изотропным гейзенберговским антиферромагнитным обменом⁶⁻⁹. Поэтому дальний антиферромагнитный порядок возможен лишь при наличии межплоскостной связи, которая возникает при отклонении от стехиометрии. При $\delta > 0$ реализуется антиферромагнитное состояние со слабой анизотропией в плоскости ac и с более сильной анизотропией вдоль оси b . Температурная (см. рис. 1, 2) и ориентационная зависимость линии антиферромагнитного резонанса говорит о том, что наблюдаемая картина близка к ситуации типа "легкая плоскость". Резонансная частота аппроксимируется формулой¹⁰

$$\omega_0 = \gamma \sqrt{2H_E |H_A(T)| + H_0^2}, \quad (1)$$

где H_E и H_A соответственно поля обмена и анизотропии вдоль оси b , γ — гиромагнитное отношение. Например при $T = 7$ К, положив $H_E \sim (k_B T_N / \gamma \hbar) \sim 1,95 \cdot 10^6$ Гс, из зависимости $\omega_0(T)$ получаем поле анизотропии вдоль оси b $|H_A| = 12,2$ Гс.

В случае $\delta = 0$, а также для $\delta > 0$ при $T > T_N$, дальний порядок невозможен, но тем не менее изотропный обмен J приводит к образованию в плоскостях $\text{Cu}-\text{O}_2$ антиферромагнитно скоррелированных флуктуационных областей⁷, размеры которых больше постоянной решетки a_0 в $\exp(2\pi J \rho_S / T)$ раз⁶. На расстояниях порядка среднего размера отдельных кристаллитов L ($\sim 6 \cdot 10^4$ Å) можно пренебречь флуктуационной перенормировкой входящей сюда спиновой жесткости ρ_S и, следовательно, считать, что размеры этих антиферромагнитных областей порядка L . Однородное РЧ поле возбуждает в каждой такой области спиновые волны с волновым вектором $k \sim 1/L$. В случае одинаковой ориентации всех кристаллитов это приводит к резонансному поглощению РЧ поля (рис. 3), которое определяется экстремальными размерами антиферромагнитных областей. Частоту спин-волновых резонансов ω_k можно получить, предположив, что намагниченность подрешеток во флуктуационно скоррелированных областях близка к насыщению. При этом ω_k дается формулой типа (1) с заменой $|H_A| \rightarrow |H_A| + Dk^2$, где $D = Ja_0^2 / \gamma \hbar$, но с другими значениями H_E и $H_A(T)$, соответствующими высокотемпературным кривым на рис. 2. Обработка этих зависимостей позволяет оценить обменный интеграл $J \sim 10^3$ К, что согласуется с результатами⁸. Это говорит о справедливости нашей оценки скоррелированных областей.

Таким образом необычные резонансные свойства $\text{La}_2\text{CuO}_{4-\delta}$ связаны с тем, что в этом соединении существуют достаточно большие флуктуационные области с двумерным антифер-

ромагнетизмом. Это обстоятельство может иметь немаловажное значение при разработке магнитных моделей высокотемпературной сверхпроводимости.

Авторы пользуются случаем поблагодарить В.Л.Покровского за полезное обсуждение результатов.

Литература

1. *Bednorz J.G., Müller K.A.* Z. Phys., 1986, **B64**, 189.
2. *Wu M.K., Ashburn J.R., Torng C.J. et al.* Phys. Rev. Lett., 1987, 58, 908.
3. *Anderson P.W.* Science, 1987, 235, 1196.
4. *Anderson P.W.* Proceedings of the Enrico Fermi International School of Physics, North-Holland, Amsterdam, 1987.
5. *Vaknin D., Sinha S.K., Moncton D.E. et al.* Phys. Rev. Lett., 1987, 58, 2802.
6. *Паташинский А.З., Покровский В.Л.* Флуктуационная теория фазовых переходов. М.: Наука, 1982.
7. *Shirane G., Endoh Y., Birgeneau R.J. et al.* Phys. Rev. Lett., 1987, 59, 1613.
8. *Lyons K.B., Fleary P.A., Remeika J.P. et al.* Phys. Rev., 1987, B37, 2354.
9. *Chakravarty S., Halperin B.I., Nelson D.R.* Phys. Rev. Lett., 1988, 60, 1057.
10. *Гуревич А.Г.* Магнитный резонанс в ферритах и антиферромагнетиках. М.: Наука, 1973.

Казанский физико-технический институт
Академии наук СССР

Поступила в редакцию
2 июня 1988 г