Письма в ЖЭТФ, том 57, вып.5, стр.289 - 295 ©1993 г. 10 марта

ОРБИТАЛЬНОЕ СТЕКЛО, ИНДУЦИРОВАННОЕ $2D$ АНТИФЕРРОМАГНИТНЫМИ ФЛУКТУАЦИЯМИ В Eu_2CuO_4

А.В.Бабинский, С.Л.Гинзбург, Е.И.Головенчиц, В.А.Санина*

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

**Петербургский институт ядерной физики им.Б.П.Константинова РАН*
188350, Ленинградская область, г.Гатчина, Россия

Поступила в редакцию 29 января 1993 г.

В диэлектрическом монокристалле Eu_2CuO_4 в интервале температур 120–300 К обнаружена низкочастотная дисперсия диэлектрической восприимчивости, характерная для структурных стекол [1]. Предложена модель, согласно которой стекольное поведение возникает в орбитальной магнитной системе ян-теллеровских ионов Cu^{2+}. Оно возникает вследствие того, что взаимодействие тетрагональных магнитных дублетов через $2D$ AFM-спиновую подсистему является знакопеременным и дальнодействующим. Мы предполагаем, что такое взаимодействие даже в упорядоченной системе вследствие стохастизации приводит к стекольному поведению.

При исследовании магнитной восприимчивости монокристаллов Eu_2CuO_4 выше температуры $3D$ антиферромагнитного (AF) упорядочения ($T_N = 165$ К) была обнаружена широкая по температуре область $2D$ AF спиновых флуктуаций в плоскостях CuO_2 [2]. Учитывая ян-теллеровскую (ЯТ) природу ионов Cu^{2+}, а также возможное взаимодействие ЯТ и спиновой подсистем, мы поставили задачу исследовать особенности диэлектрической восприимчивости (ϵ) в области температур существования $2D$ AF спиновых флуктуаций.

Исследования проводились в диапазоне частот 70 Гц – 1 МГц, в области температур 4,2 – 400 К. Для измерений отбирались наиболее совершенные диэлектрические ($\sigma < 10^{-9}$ Ом·см$^{-1}$ при 300 К) монокристаллы. Так как кристаллы растут в виде тонких пластинок с развитой плоскостью, перпендикулярной оси c, можно было измерять лишь поперечную к плоскости составляющую (ϵ_c). Из рис.1 видно, что в области низких температур, когда реализуется $3D$ AF порядок, реальная часть диэлектрической восприимчивости ($\mathrm{Re}\,\epsilon$) не зависит от температуры. При температурах, приближающихся к T_N ($T > 120$ К), начинается рост $\mathrm{Re}\,\epsilon$. При $T \sim 250$ К на низких частотах наблюдается максимум $\mathrm{Re}\,\epsilon$ и затем, при дальнейшем росте температуры, выход на новое постоянное значение. Наблюдается сильная низкочастотная дисперсия ϵ. Значения тангенса диэлектрических потерь в области дисперсии достаточно малы – в области температур начала роста $\mathrm{Re}\,\epsilon$ $\mathrm{tg}\,\delta \sim 0,01$, а в области температур выхода $\mathrm{Re}\,\epsilon$ на постоянное значение – $\mathrm{tg}\delta \sim 0,3$. Характер дисперсионных кривых рис.1 аналогичен зависимостям, наблюдаемым в спиновых [3] и структурных стеклах [1]. Мы полагаем, что у нас, как и обычно в стекольных системах, низкочастотная дисперсия обусловлена наличием релаксаторов с широким набором времен релаксации ($\tau_{min} \ll \tau \ll \tau_{max}$). Однако более тщательный анализ ситуации обнаруживает и некоторые отличия наблюдаемой нами картины от обычной для стекол.

Пусть T_f – температура максимума производной $\mathrm{Re}\,\epsilon$ от T при фиксированной частоте ω. Анализ зависимостей $\mathrm{Re}\,\epsilon$ от T (рис.1) показывает, что

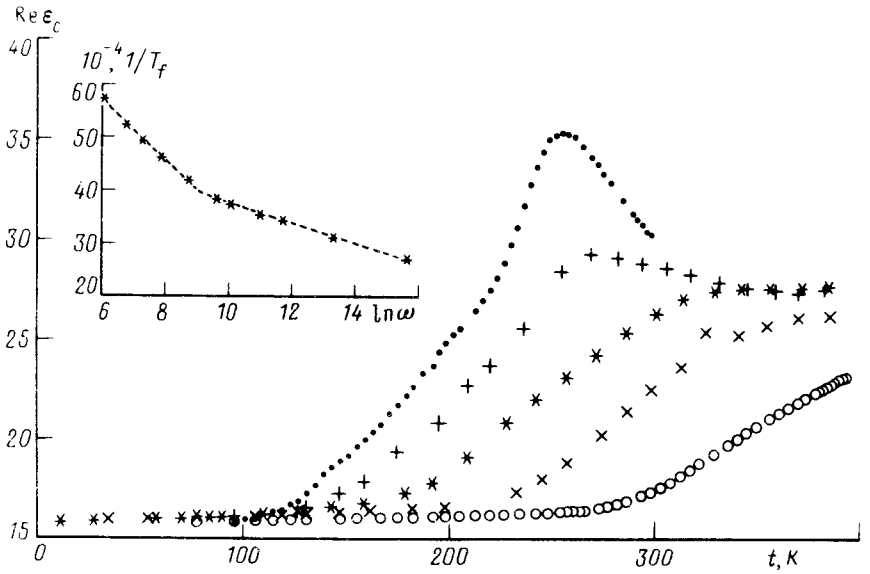

Рис.1. Зависимость Re ϵ_c от температуры для ряда фиксированных частот: ● – 70 Гц, + – 230 Гц, × – 1 кГц, x – 20 кГц, O – 1 МГц. На вставке – зависимость $1/T_f$ от $\ln\omega$

$\tau = 1/\omega = \tau_0 \cdot \exp(E_A/kT_f)$ и имеются (см. вставку к рис.1) два линейных участка зависимости $1/T_f$ от $\ln\omega$ с изломом при значениях $T_f = T_{cr} = 250$ K и $\tau = \tau_{cr} = 2 \cdot 10^{-4}$ с. При этом величины параметров E_A и τ_0 следующие: $-E_A = 0,13$ эВ, $\tau_0 = 1,2 \cdot 10^{-7}$ с ($120\,\text{K} < T < 250\,\text{K}$); $-E_A = 0,37$ эВ, $\tau_0 = 4 \cdot 10^{-14}$ с ($T > 250$ K). Обычно в стекольных системах наблюдается один линейный участок. Отметим, что значение E_A при низких температурах меньше, чем при высоких, а величина τ_0 изменяется на несколько порядков при переходе с низкотемпературного на высокотемпературный участок.

Проведем обработку частотных зависимостей Re ϵ, позволяющую получить плотность состояний релаксаторов $-g(1/\omega, T)$ [1,3]. В случае, если в системе имеется широкий набор времен релаксации ($\tau_{min} \ll \tau \ll \tau_{max}$), и с учетом соотношений Крамерса–Кронига можно получить [1,3]

$$\epsilon = 1 + 4\pi\chi, \quad \chi = \Delta(y) + i\pi/2\alpha\Delta'(y), \quad y = -\alpha\ln(\omega\tau_0). \tag{1}$$

Формула (1) верна при условиях $y \propto 1$ и $\alpha \ll 1$. Величина $\alpha\Delta'(y)$ и есть $g(1/\omega, T)$. Вблизи измеряемой частоты ω_0 разложение (1) дает

$$\chi(\omega) \simeq \Delta(y_0) - \alpha\Delta'(y_0)(\ln\omega/\omega_0 - i\pi/2), \quad y = -\alpha\ln(\omega_0\tau_0). \tag{2}$$

Обычно в стекольных системах наблюдается линейная зависимость Re ϵ от $\ln\omega$, что согласно (1) и (2) говорит о том, что в пределах этой зависимости имеется постоянная по $1/\omega$ плотность состояний релаксаторов $-g(1/\omega, T)$. В нашем случае (см. рис.2) имеются два участка постоянной плотности состояний: $g_1 - [(1/\omega)_{cr} < 1/\omega < (1/\omega)_{max}]$ и $g_2 - [(1/\omega)_{min} < 1/\omega < (1/\omega)_{cr}]$. При $1/\omega = 1/\omega_{cr} = 2 \cdot 10^{-4}$ с происходит скачок плотности состояний. На вставке рис.2

представлены температурные зависимости g_1 и g_2 – верхняя и нижняя кривые, соответственно. Верхняя кривая довольно естественно раскладывается на две – с максимумами при $T = 165$ K и $T = 250$ K. Первый максимум, как видно, соответствует T_N, а второй – значению $T_f = T_{cr}$ на рис.1. Отметим также, что значения $1/\omega_{cr} = 2 \cdot 10^{-4}$ с, полученные из данных рис.1 и рис.2, оказались практически одинаковыми. По-видимому в нашей стекольной системе имеется критическое время релаксации.

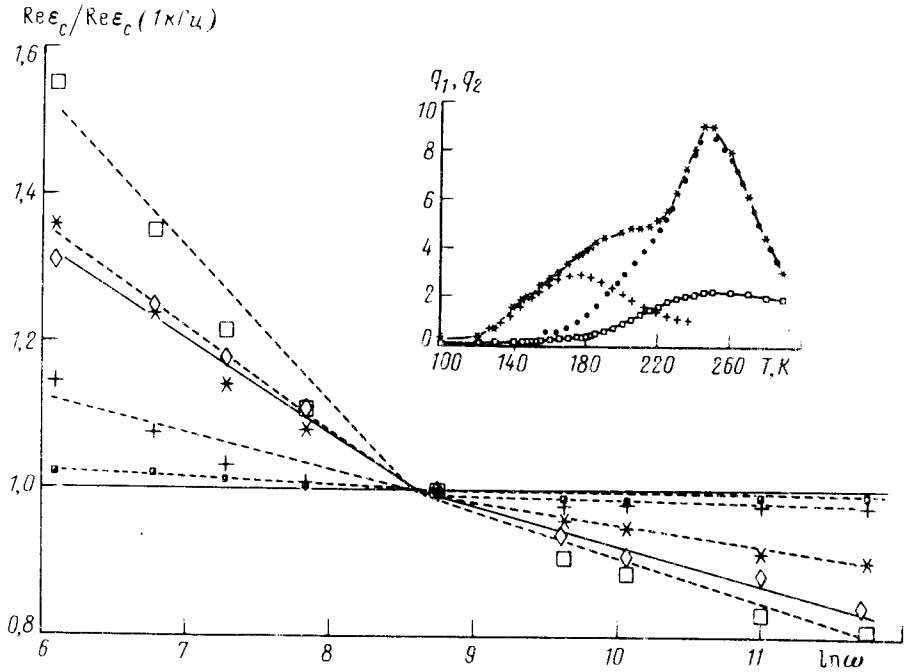

Рис.2. Зависимость аномальной дисперсионной части диэлектрической восприимчивости $\mathrm{Re}\,\epsilon_c/\mathrm{Re}\,\epsilon_c$ (1 кГц) от $\ln\omega$ для ряда фиксированных температур (K): ■ – 100, + – 150, * – 200, □ – 250, ◇ – 290. На вставке – зависимость g_1, g_2 от температуры

Анализ экспериментальных данных по температурным и частотным зависимостям $\mathrm{Re}\,\epsilon$ показывает, что в стехиометрическом и структурно-упорядоченном монокристалле Eu_2CuO_4 наблюдается стекольное поведение, характерное для неупорядоченных, фрустрированных (со знакопеременным конкурирующим взаимодействием) систем. Мы полагаем, что стекольные свойства проявляет ЯТ подсистема ионов Cu^{2+}, и они являются результатом взаимодействия спиновой и ЯТ подсистем.

Спиновая (S) подсистема меди является квазидвумерным обменным гейзенберговским AF с обменной константой J_1 (для La_2CuO_4 $J_1 \sim 1500$ K [4]). Слабый межплоскостной обмен приводит к $3D$ AF упорядочению с $T_N = 165$ K[2]. При $T > T_N$ благодаря большой величине J_1 и $S = 1/2$ в широкой области температур существуют $2D$ AF спиновые флуктуации с большим радиусом корреляции [4] $\xi \sim a \cdot \exp(2\pi\rho_s/kT)$, a – постоянная решетки, ρ_S – спиновая жесткость ($2\pi\rho_S \sim J_1$). При $T \sim T_N$ величина $\xi \sim 10^3 a$.

Обратимся теперь к ЯТ системе ионов Cu^{2+}. Eu_2CuO_4 имеет тетрагональную структуру типа [5] $T'(I4/mmm)$. Для объяснения экспериментальных данных сделаем следующие предположения.

1. Основное состояние орбитальной подсистемы меди является тетрагональным дублетом Γ_5^t (в обозначениях [6]), возникшем из кубического триплета $\Gamma_5(t_{2g})$. Известно, что орбитальный дублет Γ_5^t является магнитным. Аналогичная гипотеза об основном состоянии орбитальной системы меди для La_2CuO_4 была сделана в [7].

2. Спин-орбитальное (SO) взаимодействие ионов Cu^{2+} намного сильнее взаимодействия орбиталей с фононами.

Отметим, что эти предположения приводят к аналогу эффекта Яна–Теллера на магнонах с заменой вибронных (то есть орбитально-фононных) на спинонные (то есть орбитально-магнонные) состояния.

Если спроектировать оператор SO-взаимодействия $-\mathrm{LS}-$ на базис тетрагонального дублета, то получим взаимодействие $-\sigma^z S^z-$, где матрица σ^z оперирует в пространстве магнитных орбиталей с проекцией $L_z = \pm 1$. В этом отличие этих состояний от дублета Γ_3, в котором аналогичные матрицы формально отражают двукратное вырождение.

Гамильтониан взаимодействия имеет вид

$$H = \sum_{ij} J_{1ij} \mathbf{S}_i \mathbf{S}_j + \lambda \sum_i S_i^z \sigma_i^z, \tag{3}$$

где $\mathbf{S}_i$ – спин i-го узла, J_{1ij} – квазидвумерный спиновый AF-обмен; константа J_{1ij} отлична от нуля лишь для ближайших соседей; λ – константа спин-орбитального взаимодействия. Полагаем, что $J_{1ij} > \lambda$ и возможно применение теории возмущений.

Эффективный гамильтониан для σ-подсистемы имеет вид

$$H_{eff}^{\sigma} = \lambda \sum_i \langle S^z \rangle_i \sigma_i^z + \lambda^2 \sum_{(ij)} K_{ij}^{zz} \sigma_i^z \sigma_j^z \tag{4}$$

$K_{ij}^{zz} = \langle S_i^z S_j^z \rangle - \langle S_i^z \rangle \langle S_j^z \rangle$ – корреляционная функция S-подсистемы, (ij) – суммирование по всем парам узлов решетки. Первая сумма в (4) описывает действие эффективного поля $h_i^z = \lambda \langle S_i^z \rangle$ на σ-подсистему; вторая – взаимодействие σ-подсистемы через флуктуации S-подсистемы. Проанализируем последнее взаимодействие. Запишем, следуя [4], $S_i^{\alpha} = (-1)^{d_i} \Omega_i^{\alpha}$; Ω_i^{α} – компонента AF параметра порядка, $d_i = 0, 1$ в зависимости от того, в какой из двух подрешеток AF находится узел i,

$$\langle \Omega_i^{\alpha} \Omega_j^{\beta} \rangle = \delta_{\alpha\beta} L(r_i - r_j), \quad K_{ij}^{zz} = (-1)^{d_i + d_j} L(r_i - r_j). \tag{5}$$

Согласно [4] $L(r_i - r_j) \sim (r_{ij})^{-1/2} \exp(-r_{ij}/\xi)$, $\quad r_{ij} = r_i - r_j$,

$$H_{eff}^{z} = \sum_i h_i^z \sigma_j^z + \sum_{(ij)} J_{2ij}^{zz} \sigma_i^z \sigma_j^z; \tag{6}$$

H_{eff}^{z} является эффективным гамильтонианом ЯТ подсистемы за счет орбитально-магнонного взаимодействия. Взаимодействие $J_{2ij}^{zz} = \lambda^2 (-1)^{d_i + d_j} L(r_{ij})$, с одной стороны, является дальнодействующим, а с другой, изменяет знак на каждой постоянной решетки. Отметим также, что молекулярное поле $\Sigma J_{2ij}^{zz} \langle \sigma_j^z \rangle$

значительно усилено по сравнению с величиной $J^{zz}_{2i_j}$ за счет большого радиуса взаимодействия $J^{zz}_{2i_j}$. Таким образом, в σ-подсистеме, благодаря наличию в S-подсистеме $2D$ AF-флуктуаций с большим радиусом корреляции, возникает знакопеременное (фрустрирующее) и дальнодействующее взаимодействие.

Известно [1,3], что в случайных системах именно знакопеременное взаимодействие приводит к возникновению стекольного поведения. В нашем же случае имеется кристалл с упорядоченной ЯТ подсистемой, но со специфическим знакопеременным и дальнодействующим взаимодействием. Упорядоченные системы со знакопеременным, но короткодействующим взаимодействием интенсивно изучались в последнее время [8,9]. В таких системах получены довольно сложные фазовые диаграммы, но нет спинового стекла.

Мы полагаем, что в упорядоченных фрустрированных системах с дальнодействием происходит стохастизация системы. По этой причине в таких упорядоченных системах возможно стекольное поведение. Физически такое предположение представляется довольно естественным, хотя оно требует дополнительных аргументов, которые можно получить, в частности, в машинном эксперименте. Отметим, что стохастизация в упорядоченных фрустрированных системах (другого типа) изучалась ранее [10,11].

Вернемся к нашей экспериментальной картине. В результате локального эффекта ЯТ орбитально-магнонного типа возникают двухуровневые системы для вырожденных орбитальных дублетов с различными значениями $\langle\sigma^z\rangle$, обусловленные взаимодействием с магнонами. Малое орбитально-решеточное взаимодействие приводит к зависимости смещений ионов Cu^{2+} (и соответственно измеряемой нами диэлектрической восприимчивости) от значений $\langle\sigma^z\rangle$. В нашем случае, в области низких температур, $\lambda\langle S^z\rangle > J^{zz}_2\langle\sigma^z\rangle$. При этом эффективное поле $\lambda\langle S^z\rangle$ подавляет стекольное состояние [3] и приводит к состоянию типа "staggered field" в σ-подсистеме. При $T \to T_N$ величина $\langle S\rangle \to 0$ и начинают проявляться стекольные свойства ЯТ орбитальной подсистемы, которые сохраняются и при $T > T_N$. Затем, при $T \gg T_N$, радиус взаимодействия и величина молекулярного поля $J^{zz}_2\langle\sigma^z\rangle$ уменьшаются и стекольное поведение ЯТ орбитальной подсистемы должно исчезать.

---

1. E.Courtens, Phys. Rev. B **33**, 2975 (1986).
2. А.В.Бабинский, Е.И.Головенчиц, Н.В.Морозов и др., ФТТ **34**, 60 (1992).
3. С.Л.Гинзбург, Необратимые явления в спиновых стеклах, М.: Наука, 1989.
4. S.Chakravarty, B.Halperin, and D.Nelson, Phys. Rev. B **39**, 2344 (1989).
5. J.M.Tranquada, S.Heald, and S.Moodenbaugh, Phys. Rev. B **36**, 8401 (1988).
6. А.Абрагам, Б.Блини, Электронный парамагнитный резонанс переходных ионов, **2**, М.: Мир, 1972.
7. М.Д.Каплан, Д.И.Хомский, Письма в ЖЭТФ **47**, 631 (1988).
8. P.Chandra, C.Coleman, and A.I.Larkin, Phys. Rev. B **64**, 88 (1990).
9. A.Chubukov, Phys. Rev. Lett. **69**, 832 (1992).
10. P.Bak and R.Bruinsma, Phys. Rev. Lett. **49**, 249 (1982).
11. P.Bak, Phys. Rev. Lett. **46**, 791 (1981).