Физика низких температур, 1995, т. 21, № 12, с. 1225–1235 УДК 538.951

Новая колебательная мода звукового типа в монокристаллах $Nd(Pr)_2CuO_4$

Д. В. Филь

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

И. Г. Колобов, В. Д. Филь

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

С. Н. Барило, Д. И. Жигунов

Институт физики твердого тела и полупроводников АН Беларуси, 220726, г. Минск, ул. П. Бровки, 17
E-mail: fil@ilt.kharkov.ua

Статья поступила в редакцию 29 июня 1995 г., после переработки 27 июля 1995 г.

Измерены скорости звука в монокристаллах системы $Nd(Pr)_2CuO_4$ вдоль основных кристаллографических направлений и их угловые зависимости в плоскостях типа (100), (110). Для последних обнаружены аномалии, интерпретируемые как результат взаимодействия упругих колебаний с дополнительной плоскостной модой акустического типа. Согласно предлагаемой интерпретации, спектр дополнительной моды имеет двумерный характер, а ее происхождение связано с электронными степенями свободы в CuO_2-плоскостях. Предложена феноменологическая модель для описания спектров акустических мод в изучаемых системах. На основе эниионной модели ВТСП проанализирован возможный микроскопический сценарий возникновения дополнительной моды. В рамках феноменологической модели рассчитаны величины температур Дебая, согласующиеся с калориметрическими данными. Приведены значения компонент тензора модулей упругости.

Виміряно швидкості звуку в монокристалах системи $Nd(Pr)_2CuO_4$ уздовж основних кристалографічних напрямків і їх кутові залежності у площинах типу (100), (110). Для останніх виявлено аномалії, що інтерпретуються як результат взаємодії пружних коливань з додатковою площинною модою акустичного типу. Згідно пропонуємої інтерпретації , спектр додаткової моди має двовимірний характер, а її походження пов'язано з електронними ступенями свободи у CuO_2-площинах. Запропоновано феноменологічну модель для опису спектрів акустичних мод у вивчених системах. На підставі еніонної моделі ВТНП проаналізовано можливий мікроскопічний сценарій виникнення додаткової моди. У рамках феноменологічної моделі розраховано величини температур Дебая, узгоджені з калориметрічними даними. Наведено значення компонент тензора модулів пружності.

Высокотемпературные сверхпроводники и родственные им материалы оказались чрезвычайно интересными объектами не только из-за рекордных температур сверхпроводящего перехода. Значительное своеобразие их свойств обусловлено поведением ансамбля слабосвязанных электрически и магнитно CuO_2-плоскостей. Это обстоятельство вызвало к жизни большое количество теоретических построений, использующих квазидвумерность для объяснения многих физических свойств этих объектов. Достаточно упомянуть, например, эниионный механизм сверхпроводящего спаривания [1]. Следствием квазидвумерности является также значительная анизотропия сверхпроводящих, резистивных и магнитных параметров.

В то же время ВТСП материалы не проявляют сколько-нибудь значимой анизотропии упругих модулей (вдоль и поперек CuO_2-слоев) и, казалось бы, по своим упругим свойствам эти материалы могут считаться обычными трехмерными объектами.

Однако в монокристаллах системы Nd_2CuO_4 угловые зависимости скорости звука при выходе волнового вектора **q** из базовой плоскости выявляют мощные аномалии [2], происхождение которых невозможно объяснить, оставаясь в рамках стандартной теории упругости [3]. Предложенное феноменологическое объяснение [2] хотя и не затрагивает микроскопической природы этих аномалий, но также в значительной мере базируется на идее о квазидвумерности слоистых купратов.

Настоящая работа посвящена экспериментальному изучению акустических характеристик монокристаллов системы $Nd(Pr)_2CuO_4$ и подробному обсуждению структуры феноменологической мо-

© Д. В. Филь, И. Г. Колобов, В. Д. Филь, С. Н. Барило, Д. И. Жигунов, 1995

дели, предполагающей существование в них новой коллективной плоскостной моды звукового типа. Кратко обсуждены возможные пути микроскопического обоснования феноменологической модели. Проведен также расчет решеточной теплоемкости с учетом дополнительной колебательной моды, и оценены величины температуры Дебая, удовлетворительно согласующиеся с калориметрическими данными.

1. Экспериментальные результаты

В первоначальной постановке целью данной работы являлось возможно более точное измерение всех компонент тензора модулей упругости в одном из базовых соединений (Nd_2CuO_4), анализ влияния замены Nd на Pr, а также выявление возможных изменений модулей упругости при церировании. Степень совершенства исследованных монокристаллов, возможность получения образцов достаточно больших размеров, отсутствие в этих веществах структурных превращений выше 5 K и, как следствие, монодоменность кристаллов позволяли надеяться на получение достоверных данных, пригодных в качестве справочного материала.

Измерения скорости звука были проведены модифицированным фазовым методом [4,5], позволяющим свести к минимуму погрешности, возникающие из-за неоднородности образцов, и добиться точности не хуже ± 0,5% при длине акустического пути 3–4 мм.

Результаты измерений скорости звука вдоль симметричных кристаллографических направлений в различных монокристаллах обсуждаемой системы приведены в табл. 1. Отметим два факта: 1) церирование практически не сказывается на скорости звука, 2) замена Nd на Pr также слабо влияет на модули упругости, приводя к незначительному ужесточению решетки.

Используя приведенные в табл. 1 данные, в принципе, можно было бы рассчитать все компоненты тензора модулей упругости, за исключением c_{13}. Для определения последнего необходимы измерения при q, направленном под углом $\Theta(0 < \Theta < \pi/2)$ к оси z. Для тетрагональной решетки с группой симметрии, содержащей плоскости симметрии, параллельные оси c_4, удобно расположить q в одной из таких плоскостей. В этом случае из трех возможных акустических мод одна (T_1) — чисто поперечная с поляризацией, ортогональной плоскости симметрии. Две другие моды (квазипродольная L и квазипоперечная T) не являются чистыми, однако их поляризации лежат строго в плоскости симметрии вне зависимости от величины упругих констант. Последнее облегчает раздельное возбуждение мод T и T_1, зачастую имеющих достаточно близкие скорости. В частности, для плоскости (010) скорости L- и T-мод, определяемые из уравнения Кристоффеля [3], имеют следующий вид:

$$\rho v_{L,T}^2 = \frac{c_{11}n_1^2 + c_{33}n_3^2 + c_{44}}{2} \pm \left\{ \frac{\left[\left(c_{11} - c_{44}\right)n_1^2 - \left(c_{33} - c_{44}\right)n_3^2\right]^2}{4} + \left(c_{13} + c_{44}\right)^2 n_1^2 n_3^2 \right\}^{1/2}. \quad (1)$$

Здесь n_1 и n_3 — направляющие косинусы q.

Таблица 1

Скорости звука в симметричных направлениях в $Nd_{2-x}Ce_xCuO_4$ и Pr_2CuO_4

Направление q	Поляризация	Скорость звука, 10^5 см/с			
		Nd_2CuO_4 ρ = 7,3 г/см^3		$Nd_{1,87}Ce_{0,13}CuO_4$ ρ = 7,35 г/см^3	Pr_2CuO_4 ρ = 7,16 г/см^3
		300 K	77 K	77 K	77 K
	∥[100]	5,90	6,05	6,08	6,12
∥[100]	∥[010]	4,18	4,22	4,17	4,21
	∥[001]	2,43	2,46	2,44	2,59
∥[001]	∥[001]	5,63	5,85	5,83	5,80
	∥[100]		2,48		
∥[110]	∥[110]	6,62	6,86	6,77	6,83
	∥[1$\bar{1}$0]	2,73	2,79	2,80	2,83

Величина c_{13} может быть найдена из измеренных значений v_T и v_L. Поскольку c_{13} в (1) входит с множителем $n_1 n_3$, предпочтительнее для получения максимальной точности выбирать Θ близкими к $\pi/4$. Однако малая толщина исходных кристаллов вдоль оси [001] ($\lesssim 1{,}5$ мм) не позволяла нам при $\Theta \approx \pi/4$ изготовить образец с достаточной длиной акустического пути. Поэтому вначале ограничились измерениями при $\Theta \sim 70°$. Результат оказался довольно обескураживающим: значения c_{13}, найденные из v_T и v_L, отличались более чем в два раза, что существенно превышало возможные ошибки измерений.

Для выяснения причин таких расхождений были измерены угловые зависимости скоростей всех трех акустических мод (T, T_1, L) с $\mathbf{q}$, расположенным в плоскости (010) (рис. 1). Необходимо отметить, что из-за упоминавшейся малой толщины исходных монокристаллов характерные размеры образцов при проведении этих измерений были достаточно малыми ($\approx 1{,}5$ мм), что ограничивало точность определения скоростей на уровне 2–3%. Тем не менее с учетом возможных погрешностей экспериментальная угловая зависимость скорости T-моды оказалась явно аномальной: быстрый спад при выходе $\mathbf{q}$ из базовой плоскости, затем скачкообразное (в интервале $\approx 5°$) увеличение более чем в два раза и далее приближение к ожидаемому значению (скорость c_{44}-моды). В области скачка регистрировались, как правило, два сигнала с разными скоростями. Совершенно очевидно, что такую зависимость $v_T(\Theta)$ невозможно объяснить, оставаясь в рамках стандартной теории упругости. Например, из (1) следует следующее «правило сумм»:

$$\rho\left(v_L^2 + v_T^2\right) = c_{11} + c_{44} + \left(c_{33} - c_{11}\right) n_3^2 . \quad (2)$$

Несложно убедиться, что из (2) вытекает следующее качественное утверждение: невозможно, чтобы одновременно v_L была меньше скорости более мягкой c_{ii}-моды (в нашем случае $i = 3$ (см. табл. 1)) и v_T меньше скорости c_{44}-моды. Из рис. 1 видно, что в области $50° < \Theta < \pi/2$ это правило нарушено практически везде. На рис. 2 также продемонстрировано, что в указанной области Θ равенство (2) явно не выполняется.

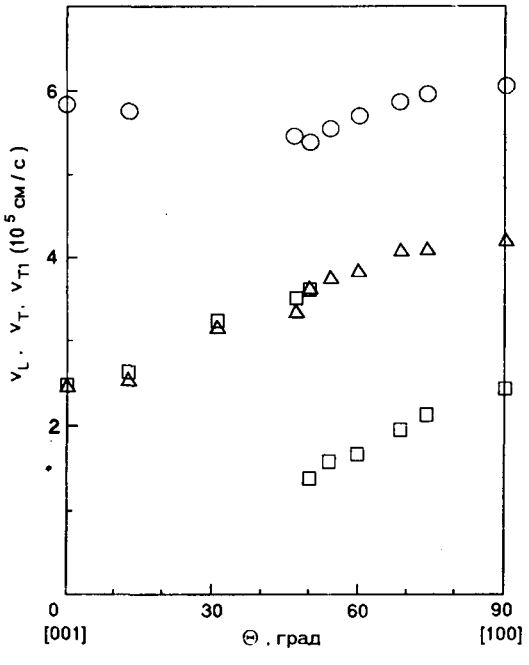

Рис. 1. Экспериментальные зависимости скоростей звука от полярного угла Θ при $\mathbf{q} \perp [010]$ в Nd_2CuO_4 (○ — скорость квазипродольной моды v_L; □ — скорость квазипоперечной моды v_T с поляризацией в плоскости вращения волнового вектора, △ — скорость поперечной моды v_{T1} с поляризацией перпендикулярной плоскости вращения).

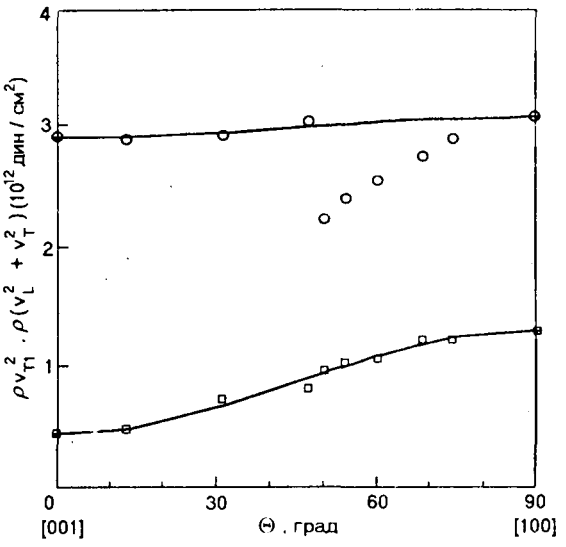

Рис. 2. Экспериментальные зависимости $\rho(v_L^2 + v_T^2)$ (○) и ρv_{T1}^2 (□) от полярного угла Θ при $\mathbf{q} \perp [010]$ в Nd_2CuO_4. Сплошными линиями показаны теоретические зависимости, следующие из уравнения Кристоффеля.

Возможной причиной уменьшения эффективной скорости звука могут оказаться хаотически расположенные по объему образца микротрещины и микропоры. Их влияние должно было бы сказаться и на скорости T_1-моды, для которой справедливо равенство

$$\rho v_{T1}^2 = c_{66} + \left(c_{44} - c_{66}\right) n_3^2 . \quad (3)$$

Рисунок 2 демонстрирует также, что равенство (3) в исследуемых образцах в пределах точности эксперимента выполняется вполне удовлетвори-

тельно, что указывает, по нашему мнению, на отсутствие этих дефектов в образцах.

Подчеркнем, что использованная методика эксперимента [4,5] позволяла измерять скорость первого сигнала, прошедшего образец по кратчайшему пути. Однако при измерении скорости T-моды в образцах всегда возбуждалась и примесь квазипродольной L-моды, присутствовавшей в качестве очень слабого сигнала, опережающего T-моду. Ее амплитуда была по крайней мере на порядок меньше амплитуды T-моды. Тем не менее можно предположить, что описанные эффекты возникают вследствие интерференции остатков L-моды с T-модой. Кроме того, из-за ограниченности размеров образцов не исключено, в принципе, и влияние вторичных сигналов, появляющихся при отражении звука на боковых границах, интерференция которых с сигналом, прошедшим по прямому кратчайшему пути, также могла бы привести как к кажущемуся уменьшению эффективной скорости, так и к ее скачкообразным изменениям. В обоих случаях интерференционные эффекты должны быть чувствительны к частоте звука,а в последнем — и к форме образца.

Основные измерения были выполнены на частотах $f \approx 50$ МГц, но в области Θ, отвечающей спаду

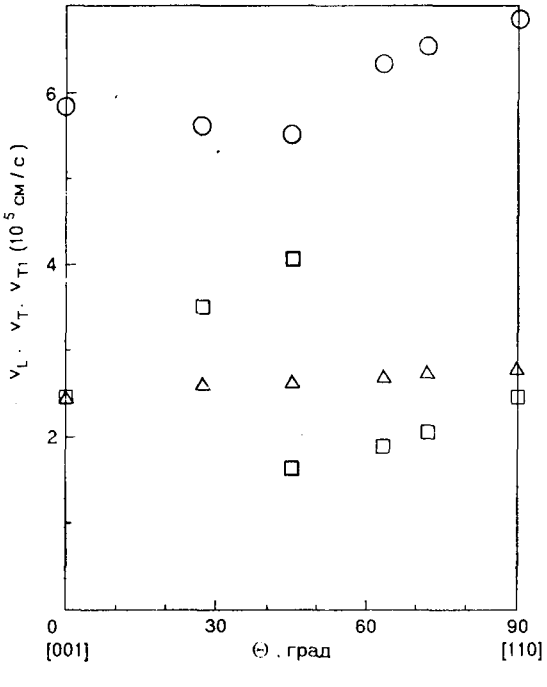

Рис. 3. Экспериментальные зависимости скоростей звука от полярного угла Θ при $\mathbf{q} \perp [110]$ в Nd_2CuO_4 : v_L(○), v_T (□), v_{T1} (△).

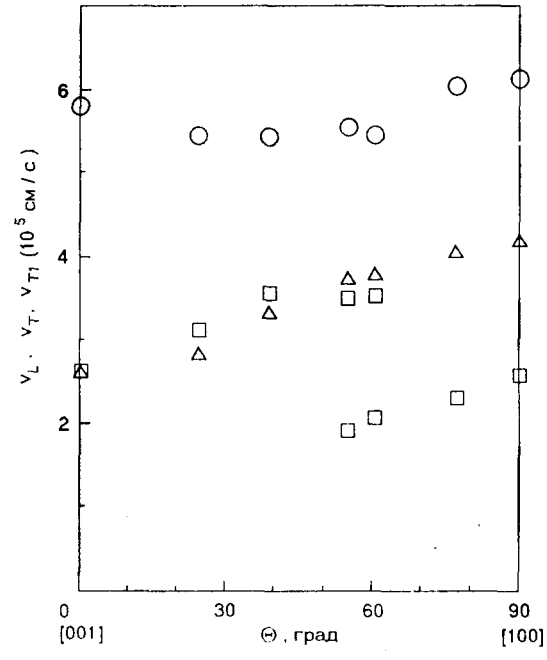

Рис. 4. Экспериментальные зависимости скоростей звука от полярного угла Θ при $\mathbf{q} \perp [010]$ в Pr_2CuO_4 : v_L(○), v_T (□), v_{T1} (△).

v_T, были выборочно проведены измерения для нескольких точек при $f \approx 30$ МГц. В пределах точности измерений не обнаружено какого-либо влияния измерительной частоты и формы образцов* на v_T. Таким образом, наблюдаемые аномалии не могут быть обусловлены интерференционными эффектами.

Более того, представленные на рис. 1, 2 данные получены на образцах, изготовленных из одного большого монокристалла. Была проделана вторая серия измерений на образцах, изготовленных из другого монокристалла: результаты практически совпали с полученными в первой серии. Измерения на церированном образце дали весьма похожие результаты [2].

На рис. 3 представлены измерения v_T в монокристаллах Nd_2CuO_4 с $\mathbf{q}$, лежащим в плоскости $(1\bar{1}0)$. Аномальное поведение v_T сохраняется, однако имеются определенные количественные отличия от результатов, представленных на рис. 1. И, наконец, на рис. 4 приведена зависимость $v_T(\Theta)$ в монокристаллах Pr_2CuO_4 (при $\mathbf{q}$, лежащем в плоскости (010)), имеющая полностью аналогичный характер.

* Разумеется, длина звуковой волны всегда при этом оставалась значительно меньшей характерных размеров образцов.

В основном все измерения скоростей звука выполнены при 77 K. Выборочные измерения для некоторых образцов показали, что аномалии поведения v_T сохраняются как при 300 K, так и при гелиевых температурах вплоть до 0,4 K. Также было установлено, что магнитное поле (до 30 кЭ), расположенное в базовой плоскости, либо ортогональное к ней (до 14 кЭ) практически не влияет на зависимость $v_T(\Theta)$.

Таким образом, «ужасный» вид угловых зависимостей $v_T(\Theta)$ не является результатом какой-либо методической ошибки, а отражает реальную физическую картину по крайней мере в монокристаллах системы $Nd(Pr)_2CuO_4$.

2. Феноменологическая модель

Изменение скорости $v_T(\Theta)$, представленное на рис. 1, 3, 4, с характерным скачкообразным переходом с одной ветви на другую, напоминает картину расталкивания двух сильно взаимодействующих мод, с тем, однако, отличием, что на оси абсцисс отложено не волновое число, а угловая координата. Возможно, что упругая волна взаимодействует с гипотетической плоскостной модой (в отсутствие взаимодействия распространяющейся только вдоль CuO_2-плоскостей), для которой изменение Θ означает, фактически, изменение проекции ее волнового вектора на q. Ввиду сильной анизотропии электронных свойств слоистых купратов происхождение такой моды естественно связать с электронными степенями свободы. Для построения феноменологической модели постулируем существование в системе двумерной акустической моды, взаимодействующей с упругими деформациями. Для моделирования такой моды в длинноволновом пределе введем в систему дополнительную степень свободы (для каждого слоя), которая отвечает колебаниям плотности ν некоторой двумерной жидкости. Функционал энергии жидкости в слое имеет вид

$$E_\nu = \int d^2r\left(\frac{1}{2}\nu v^2 + \gamma(\nu - \nu_0)^2\right), \qquad (4)$$

где v — скорость элемента жидкости; γ — параметр, описывающий потенциальную энергию флуктуаций плотности; ν_0 — средняя плотность жидкости. Для определения вида взаимодействия ν с тензором деформации u_{ik} учтем, что выбор изотропной модели для описания дополнительной моды разрешает линейное связывание электронной компоненты лишь с диагональными компонентами тензора деформации* и с учетом тетрагональной симметрии решетки взаимодействие дополнительной степени свободы с упругими деформациями может быть записано в виде

$$E_{\text{int}} = \int d^2r\nu\left(g_z u_{zz} + g_x(u_{xx} + u_{yy})\right). \qquad (5)$$

Константы g_z, g_x являются феноменологическими параметрами модели, величины которых следует оценить из экспериментальных данных. Упругая часть энергии имеет стандартный вид

$$E_u = \int d^3r\frac{1}{2}\left(\rho\dot{u}_i^2 + \lambda_{iklm}u_{ik}u_{lm}\right). \qquad (6)$$

Для нахождения спектра собственных колебаний системы воспользуемся уравнениями движения упругой среды

$$\rho\frac{\partial^2 u_i}{\partial t^2} = \partial\sigma_{ik}/\partial x_k$$

(σ_{ik} — тензор напряжений) и уравнениями двумерной гидродинамики

$$\frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} + \mathbf{v}(\nabla\mathbf{v}) = -\frac{1}{\rho}\nabla P, \quad \frac{\partial\nu}{\partial t} + \nabla(\nu\mathbf{v}) = 0,$$

где ∇ и P — двумерные градиент и давление. Рассматривая систему слоев и переходя к непрерывному по z пределу, приходим к следующей системе линеаризованных волновых уравнений:

$$\frac{\partial^2\nu_{(3)}}{\partial t^2} = v_e^2\Delta_2\nu_{(3)} + \bar{\nu}_{(3)}\Delta_2\left(g_z u_{zz} + g_x(u_{xx} + u_{yy})\right),$$
$$\rho\frac{\partial^2 u_i}{\partial t^2} = \lambda_{ijlm}\frac{\partial^2 u_m}{\partial x_j\,\partial x_l} + F_i, \qquad (7)$$
$$F_x = g_x\frac{\partial\nu_{(3)}}{\partial x}, \quad F_y = g_x\frac{\partial\nu_{(3)}}{\partial y}, \quad F_z = g_z\frac{\partial\nu_{(3)}}{\partial z}.$$

* Отсутствие заметного взаимодействия электронной моды с деформациями типа u_{xz} следует, по крайней мере, из совпадения скоростей c_{44} моды, измеренной при распространении звука вдоль осей [100] и [001]. В противном случае эти скорости должны были бы заметно различаться.

В системе (7) $\nu_{(3)}$ — трехмерная плотность жидкости; $\bar{\nu}_{(3)} = \nu_0/c$ (c — расстояние между слоями); $v_e = \sqrt{2\gamma\nu_0}$ — скорость звука в жидкости; $\Delta_2 = = \partial^2/\partial x^2 + \partial^2/\partial y^2$. Переходя к фурье-компонентам и заменяя электронную переменную $\nu_{(3)}$ на переменную $\tilde{\nu} = \nu_{(3)}/q_{\text{pl}}\sqrt{\rho\,\bar{\nu}_{(3)}}$, имеющую размерность длины (q_{pl} — проекция волнового вектора на плоскость (001)), получаем аналог уравнения Кристоффеля в рассматриваемой модели

$$\left|\hat{M} - \hat{I}v^2\right| = 0\,, \tag{8}$$

где

$$\hat{M} = \begin{pmatrix} \lambda_{11}n_1^2 + \lambda_{66}n_2^2 + \lambda_{44}n_3^2 & (\lambda_{12}+\lambda_{66})n_1n_2 & (\lambda_{13}+\lambda_{44})n_1n_3 & i\tilde{g}_x n_1 n_{\text{pl}} \\ (\lambda_{12}+\lambda_{66})n_1n_2 & \lambda_{11}n_2^2 + \lambda_{66}n_1^2 + \lambda_{44}n_3^2 & (\lambda_{13}+\lambda_{44})n_2n_3 & i\tilde{g}_x n_2 n_{\text{pl}} \\ (\lambda_{13}+\lambda_{44})n_1n_3 & (\lambda_{13}+\lambda_{44})n_2n_3 & \lambda_{44}n_{\text{pl}}^2 + \lambda_{33}n_3^2 & i\tilde{g}_z n_3 n_{\text{pl}} \\ -i\tilde{g}_x n_1 n_{\text{pl}} & -i\tilde{g}_x n_2 n_{\text{pl}} & -i\tilde{g}_z n_3 n_{\text{pl}} & v_e^2 \end{pmatrix},$$

где $\lambda_{ik} = c_{ik}/\rho$; $\tilde{g}_{x,z} = g_{x,z}\sqrt{\bar{\nu}_{(3)}/\rho}$; $n_{\text{pl}}^2 = n_1^2 + n_2^2$. Для произвольного направления волнового вектора уравнение (8) определяет спектры четырех акустических мод, каждая из которых представляет собой гибридизованное электрон-решеточное возбуждение. При направлении q вдоль одной из осей симметрии левая часть уравнения (8) факторизуется, и часть мод становятся чисто упругими, что дает возможность, как и при отсутствии дополнительной моды, определить из скоростей звука в соответствующих направлениях часть компонент тензора модулей упругости (c_{44}, c_{66}, c_{33}, $c_{11} - c_{12}$).

При q, направленном вдоль оси [100] либо [110], электронная мода может гибридизоваться лишь с продольной упругой модой. Скорости двух гибридизованных мод в этом случае определяются уравнением

$$\left(v^2 - v_e^2\right)\left(v^2 - \lambda_r\right) - \tilde{g}_x^2 = 0\,, \tag{9}$$

где

$$\lambda_r = \frac{c_{11}}{\rho}\ \left(\mathbf{q} \parallel [100]\right)\,, \tag{10}$$

$$\lambda_r = \frac{c_{11} + c_{12} + 2c_{66}}{2\rho}\ \left(\mathbf{q} \parallel [110]\right)\,. \tag{11}$$

Вследствие инвариантности следа матрицы $\hat{M}$ должно выполняться условие сохранения суммы квадратов скоростей в базовой плоскости

$$v_L^2 + v_{T1}^2 + v_{eR}^2 = \text{const} = \frac{c_{11} + c_{66}}{\rho} + v_e^2\,, \tag{12}$$

где v_{eR} — перенормированная скорость электронной моды (содержащей примесь упругой компоненты). Это означает, что для базовой плоскости тетрагонального кристалла соотношение теории упругости

$$v_L^2 + v_{T1}^2 = \text{const}\,, \tag{13}$$

в принципе, нарушается, поскольку значения v_{eR} для двух рассматриваемых направлений различны в общем случае. Экспериментально, однако, условие (13) выполняется (см. табл. 1). Для анизотропного в базовой плоскости кристалла совместное выполнение условий (12) и (13) может означать только то, что $\tilde{g}_x = 0$.

В [2] рассмотрен противоположный случай ($\tilde{g}_x \neq 0$, $\tilde{g}_z = 0$). В принципе такой случай также может соответствовать наблюдаемому поведению скоростей звука в базовой плоскости, если предположить, что электронная жидкость анизотропна (т.е. анизотропна величина v_e). Тогда для совместного выполнения условий (12) и (13) при $\tilde{g}_x \neq 0$ анизотропия v_e^2 должна была бы быть зеркальным отражением упругой анизотропии

$$\rho\left(v_{e\mathbf{q}\parallel[110]}^2 - v_{e\mathbf{q}\parallel[100]}^2\right) = c_{66} - \frac{c_{11} - c_{12}}{2}\,,$$

что представляется маловероятным. Заметим, что при описании аномального поведения $v_T(\Theta)$ выбор канала взаимодействия не играет существенной роли и, как следует из дальнейшего рассмотрения, параметры модели (за исключением, естественно, c_{11}) очень близки для двух подходов.

В настоящей работе будем рассматривать как наиболее вероятную ситуацию, когда $\tilde{g}_z \neq 0$, $\tilde{g}_x = 0$, т.е. взаимодействие упругой и электронной компонент определяется первым слагаемым в интеграле (5).

В этом случае взаимодействие электронной моды со звуком в базовой плоскости отсутствует и значение продольной скорости в направлении [100] соответствует модулю c_{11}. Таким образом, из (8) необходимо определить лишь модуль c_{13}, а также параметры v_e и $\tilde{g}_z$. Из (8) следует, что при вращении q в плоскостях симметрии, параллельных оси c_4, электронная мода гибридизуется с квазипоперечной и квазипродольной упругими волнами. Скорости трех гибридизованных мод определяются уравнением

$$\left(v^2 - n_{pl}^2 v_e^2\right)\left[\left(v^2 - \lambda_{44}n_{pl}^2 - \lambda_{33}n_3^2\right)\left(v^2 - \lambda_r n_{pl}^2 - \lambda_{44}n_3^2\right) - n_{pl}^2 n_3^2\left(\lambda_{13} + \lambda_{44}\right)^2\right] -$$

$$- \tilde{g}_z^2 n_3^2 n_{pl}^2\left(v^2 - \lambda_r n_{pl}^2 - \lambda_{44}n_3^2\right) = 0\,, \qquad (14)$$

где λ_r для плоскостей (010) и $(1\bar{1}0)$ определяется формулами (10) и (11) соответственно. Из анализа (14) следует, что поведение $v_T(\Theta)$ (рис. 1, 3, 4) может быть разумно описано при

$$c_{44} < \rho v_e^2 < c_{11}\,. \qquad (15)$$

Действительно, при выходе q из плоскости (001) включается взаимодействие дополнительной моды с квазипоперечной волной, что приводит к понижению v_T при уменьшении Θ. При этом дополнительная мода приобретает поперечную упругую компоненту, в то время как квазипоперечная волна становится частично «электронной». В некотором диапазоне углов Θ вблизи Θ_0 (Θ_0 определяется из условия $v_e n_{pl} = v_T^{(0)}(n_{pl}, n_3)$, где $v_T^{(0)}$ — скорость квазипоперечной моды в отсутствие взаимодействия) амплитуды упругих компонент в обеих модах

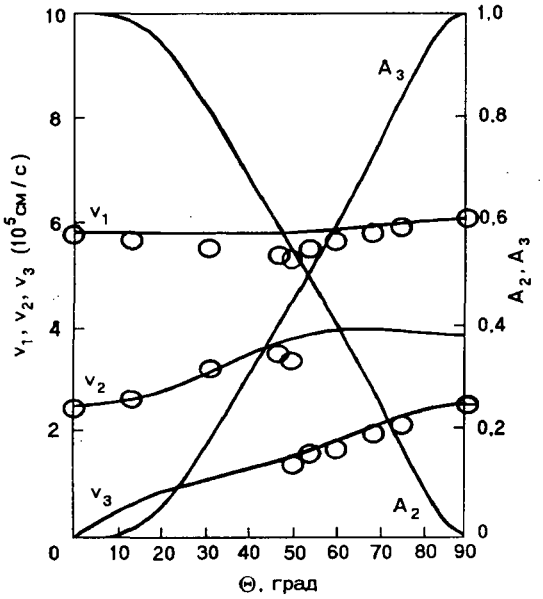

Рис. 5. Зависимости скоростей звука гибридизованных «электрон»-решеточных мод (v_1, v_2, v_3) и амплитуд поперечного сигнала (A_2, A_3) от полярного угла Θ в модели с дополнительной модой в Nd_2CuO_4 при $\mathbf{q} \perp [010]$ (○ — эксперимент).

становятся сравнимыми. В этом диапазоне Θ пьезопреобразователь должен регистрировать два поперечных сигнала. При дальнейшем уменьшении Θ амплитуда поперечной компоненты в медленной моде падает, и регистрируется лишь быстрый сигнал, что соответствует переходу на верхнюю ветвь зависимости $v_T(\Theta)$. На рис. 5, 6 для системы Nd_2CuO_4 представлены теоретические угловые зависимости скоростей трех мод для $\mathbf{q} \perp [010]$ и $\mathbf{q} \perp [1\bar{1}0]$ и амплитуды поперечных упругих компонент двух нижних мод при поперечном возбуждении (соответствующая амплитуда в квазипродольной моде слишком мала, чтобы быть показанной в данном масштабе). Значения упругих модулей даны в табл. 2; $v_e = 3{,}83 \cdot 10^5$ см/с; $\tilde{g}_z = 1{,}56 \cdot 10^{11}$ см^2/с^2.

Таблица 2

Модули упругости (в 10^{11} дин/см^2) для $Nd(Pr)_2CuO_4$ при 77 К. В рамках выбранной модели доверительные интервалы для c_{ik} составляют: c_{11}, c_{44}, c_{66} — ± 1%, c_{33}, c_{12} — ± 3%, c_{13} — ± 10%

Образец	c_{11}	c_{12}	c_{13}	c_{33}	c_{44}	c_{66}
Nd_2CuO_4	26,72	15,36	12,82	24,98	4,42	13,00
Pr_2CuO_4	26,82	15,35	10,72	24,09	4,80	12,69

Параметры c_{13}, v_e и $\tilde{g}_z$ определялись из условия наилучшего соответствия расчетных значений скоростей экспериментальным величинам. На рис. 7 аналогичные зависимости даны для системы Pr_2CuO_4 (значения упругих модулей приведены в табл. 2; $v_e = 3{,}71 \cdot 10^5$ см/с; $\tilde{g}_z = 1{,}25 \cdot 10^{11}$ см^2/с^2). Как видно из приведенных рисунков, феноменологическая модель позволяет с удовлетворительной точностью описать экспериментальные данные. Некоторое расхождение модели с экспериментом заключается в том, что величина параметра $\tilde{g}_z$, позволяющая моделировать угловую зависимость скоростей, соответствует достаточно широкому диапазону углов, при которых должны регистрироваться два поперечных сигнала. В эксперименте

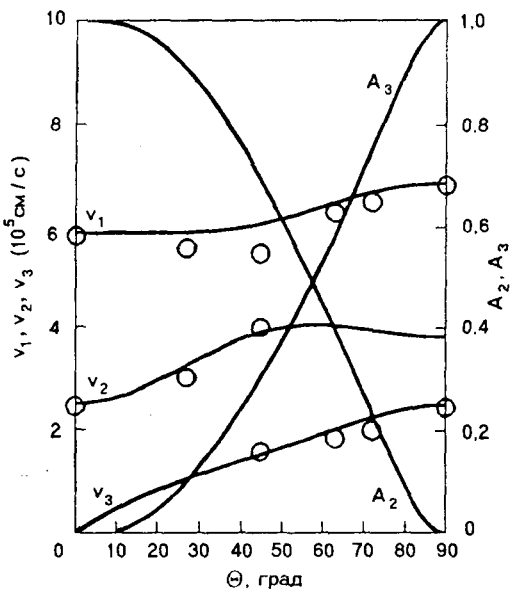

Рис. 6. Расчетные зависимости v_1, v_2, v_3 и A_2, A_3 от полярного угла Θ в Nd_2CuO_4 при $\mathbf{q} \perp [1\bar{1}0]$ (○ — эксперимент).

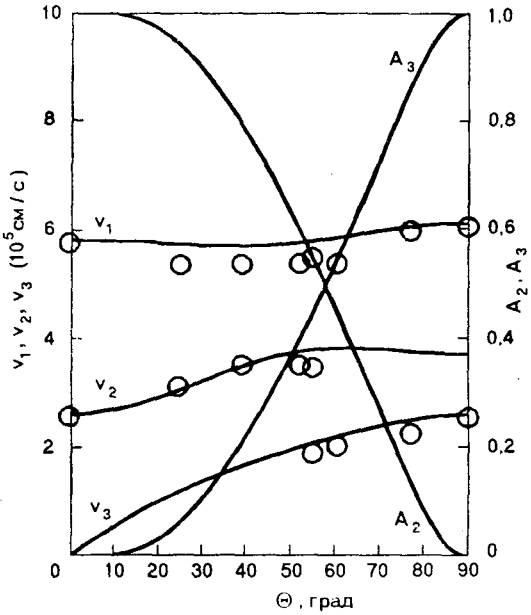

Рис. 7. Расчетные зависимости v_1, v_2, v_3 и A_2, A_3 от полярного угла Θ в Pr_2CuO_4 при $\mathbf{q} \perp [010]$ (○ — эксперимент).

такой диапазон существенно меньше. Это расхождение, возможно, объясняется неучтенным в модели затуханием электронной компоненты, которое, как можно показать, приведет к сужению диапазона углов, в котором амплитуды поперечных сигналов сравнимы друг с другом.

Таким образом, можно сделать вывод, что результаты акустических измерений хорошо объясняются в рамках модели с плоскостной модой и могут рассматриваться как экспериментальное доказательство существования таковой в Nd_2CuO_4 и Pr_2CuO_4.

3. Возможная микроскопическая интерпретация

Построение микроскопической теории, в рамках которой возможно описание свойств дополнительной акустической моды в изучаемых системах, представляет собой отдельную проблему, подробное рассмотрение которой выходит за рамки настоящей работы. В этом разделе мы хотим представить некоторый анализ, которой можно рассматривать лишь как возможный микроскопический подход.

Сценарий базируется на энионной модели электронной подсистемы ВТСП, которая, в частности, предсказывает существование акустической коллективной моды — энионного звука*. Механизм возникновения энионных возбуждений в CuO_2-плоскостях связан с формированием кирального спин-жидкостного состояния в системе сильно коррелированных электронов [6]. В такой ситуации взаимодействие калибровочных степеней свободы (связанных с флуктуациями фазы спин-жидкостного параметра порядка) с квазичастицами приводит к тому, что последние обретают дробную статистику.

Теория взаимодействия фононов с энионами рассматривалась в работах [7,8]. Здесь мы хотим установить соответствие между феноменологической моделью и энионной интерпретацией.

Запишем энионную часть Лагранжиана системы в представлении взаимодействующих фермионного (Ψ) и калибровочного черн-саймоновского (a_0, a) полей.

$$L_a = \Psi^* \left(i\partial_t + \mu - a_0 - \frac{1}{2m} (\nabla + \mathrm{a})^2 \right) \Psi +$$

* Другой возможный подход, основанный на интерпретации дополнительной моды как спиновой волны, представляется неудовлетворительным, поскольку в реальных антиферромагнитных системах акустическая спиновая мода обычно имеет некоторую энергию активации, которая зависит от анизотропных взаимодействий, а также величины и направления внешнего магнитного поля. При этом характерная величина энергии активации существенно больше рабочей частоты, использовавшейся при акустических измерениях.

$$+\frac{N}{4\pi}\varepsilon^{\mu\nu\lambda}a_\mu\partial_\nu a_\lambda . \qquad (16)$$

В (16) параметр N связан с изменением фазы $\Delta\varphi$ волновой функции при обходе одного эниона другим через соотношение $\Delta\varphi = 2\pi(1 - 1/N)$. Физически интересный случай, соответствующий системе с энионным звуком, ограничивается целыми значениями N. Лагранжиан взаимодействия энионов с упругими деформациями запишем в виде, аналогичном соответствующему выражению в теории электрон-фононного взаимодействия

$$L_{\text{int}} = -g_a\Psi^*\Psi u_{zz} , \qquad (17)$$

где, как и в феноменологической теории, предполагается отсутствие взаимодействия флуктуаций энионной плотности с u_{xx} и u_{yy} компонентами.

В приближении среднего поля, в котором невозмущенная часть Лагранжиана включает взаимодействие с вектор-потенциалом фиктивного постоянного «магнитного» поля, с напряженностью поля b, определяемой средней концентрацией энионов n_0 и их статистикой ($b = 2\pi n_0/N$), после интегрирования по фермионным полям получаем следующий эффективный Лагранжиан:

$$L_{\text{eff}} = -\frac{N}{4\pi\omega_c}\left(e^2 + c_a^2\tilde{b}^2\right) - \frac{N}{4\pi}g_a\tilde{b}u_{zz} , \qquad (18)$$

где $e_i = \partial_0\tilde{a}_i - \partial_i\tilde{a}_0$; $\tilde{b} = \varepsilon_{ik}\delta_i\tilde{a}_k$ — «электрическая» и «магнитная» компоненты флуктуации калибровочного поля $\tilde{a}$ от среднего значения; $c_a = (2\pi n_0/m^2)^{1/2}$ — скорость энионного звука; $\omega_c = 2\pi n_0/mN$ — циклотронная частота. В (18) предполагается также, что температура ниже температуры перехода энионов в сверхтекучее состояние. Добавляя в (18) упругий Лагранжиан, а также слагаемое, фиксирующее калибровку, и записывая полный Лагранжиан в виде

$$L = \left(\tilde{a}_0^*(\mathbf{q},\omega)\,\tilde{a}_x^*(\mathbf{q},\omega)\,\tilde{a}_y^*(\mathbf{q},\omega)\,u_z^*(\mathbf{q},\omega)\right)\times$$

$$\times\hat{\Lambda}(\mathbf{q},\omega)\begin{pmatrix}\tilde{a}_0(\mathbf{q},\omega)\\ \tilde{a}_x(\mathbf{q},\omega)\\ \tilde{a}_y(\mathbf{q},\omega)\\ u_z(\mathbf{q},\omega)\end{pmatrix}, \qquad (19)$$

после перехода к непрерывному по z пределу из уравнения $|\hat{\Lambda}| = 0$ получаем дисперсионное уравнение, совпадающее с уравнением (8) при $g_z = g_a/m$. Таким образом, соответствие между энионной интерпретацией и феноменологической моделью следующее. Величина ν соответствует плотности энионов (линейно связанной с «магнитной» компонентой калибровочного поля), а в качестве дополнительной моды выступает акустическое коллективное возбуждение в газе энионов — энионный звук. При этом малая величина скорости дополнительной моды с учетом того, что характер угловой зависимости $v_T(\Theta)$ слабо зависит от температуры (и следовательно, должно выполняться неравенство $\omega_c >> T$) указывает на то, что энионы должны обладать достаточно большой массой ($m \approx 10^2 m_e$), т.е. энионная зона узкая.

Рассмотренная интерпретация соответствует случаю незаряженных энионов. Если энионы заряжены, то за счет кулоновского взаимодействия энионный звук в системе отсутствует (акустическая мода модифицируется в плазменные колебания с частотой $\omega_p = ((N\omega_c e^2/c)q_{\text{pl}}^2/(q_{\text{pl}}^2 + q_z^2) + c_a^2 q_{\text{pl}}^2)^{1/2}$, e — заряд энионов). В последнем случае дополнительная звуковая мода в энионной интерпретации может быть получена в двухкомпонентной энионной модели [9], в которой антифазные колебания плотностей энионов кулоновским взаимодействием не перенормируются*. В этой ситуации величина g_z связана с разностью констант энион-фононного взаимодеймствия для двух энионных компонент.

Основной вопрос в энионной интерпретации связан с природой основного состояния электронной системы, которое отвечает существованию энионов с необходимыми характеристиками. По-видимому, основное состояние должно быть более сложное, чем рассматриваемые обычно при анализе седловых точек t–J-модели (см. например, [11]), и характеризоваться как спин-жидкостными, так и антиферромагнитными параметрами порядка. Именно в решении такой проблемы лежит, по нашему мнению, возможный путь построения детальной микроскопической теории.

4. Расчет термодинамических характеристик монокристаллов $Nd(Pr)_2CuO_4$

Изложенные выше результаты и выводы являются достаточно дискуссионными, поэтому желательно найти им подтверждение, основанное на

* Заметим, что предположение о двухкомпонентности естественным образом вытекает из отрицательных результатов экспериментов, в которых предпринималась попытка экспериментально обнаружить нарушение T-четности в купратах [10].

независимых измерениях. Конечно, прямым доказательством было бы обнаружение дополнительной колебательной моды в области малых энергий в нейтронографическом либо оптическом эксперименте. Мы хотели бы обратить внимание читателей также на калориметрические данные, которые, по нашему мнению, содержат косвенное подтверждение существования описанных выше явлений.

Действительно, вполне возможен следующий сценарий. В самом начале наших экспериментов для измерения c_{13}, как этого и требуют соображения, основанные на уравнениях теории упругости, мы могли бы использовать кристалл с $\Theta \sim \pi/4$. В этом случае значения c_{13}, определенные из v_T и v_L, отличались бы не более чем на 15%, что вполне допустимо как из-за малой толщины образца, так и из-за того, что в выражение, определяющее c_{13}, входит достаточно много независимых параметров, требующих экспериментального определения.

Далее, пользуясь уравнением Кристоффеля для нахождения скоростей акустических сигналов при произвольном направлении q и стандартной процедурой усреднения, мы могли бы рассчитать температуру Дебая для наших кристаллов. Реализация такого сценария дает $\Theta_D = (419 \pm 3)$ K и $\Theta_D = (431 \pm 3)$ K для Nd_2CuO_4 и Pr_2CuO_4 соответственно. Результаты же калориметрических измерений [12] существенно отличаются: $\Theta_D = (319 \pm 5)$ K для Nd_2CuO_4 и $\Theta_D = (361 \pm 5)$ K для Pr_2CuO_4. Расхождение весьма значительное, чтобы его можно было разумно истолковать, оставаясь в рамках дебаевской модели.

Рассчитаем теперь теплоемкость с учетом предлагаемой нами дополнительной коллективной моды. Выражение для теплоемкости с учетом вклада дополнительной моды имеет вид

$$\frac{C}{V} = \frac{1}{(2\pi)^3}\frac{d}{dT}\sum_{\lambda}\int d^3q\,\frac{\omega_\lambda(\mathbf{q})}{\exp\left(\omega_\lambda(\mathbf{q})/T\right)-1}, \qquad (20)$$

где $\lambda = 1, 2, 3, 4$ — индекс, нумерующий акустические колебания в системе. В отсутствие взаимодействия формула (20) в низкотемпературной области дает результат

$$C = \alpha T^2 + \beta T^3, \qquad (21)$$

где коэффициент α определяется вкладом двумерной электронной моды, а β — вкладом трех упругих мод. Включение взаимодействия приводит к тому, что вклады электронной и упругих мод перестают разделяться, и формула (21), вообще говоря, перестает быть точной. Это видно из приведенных на рис. 8 рассчитанных зависимостей $C(T)/T^2$ (использовались данные табл. 2 и подгоночные значения v_e и $\tilde{g}_z$ (разд. 2)). Тем не менее в

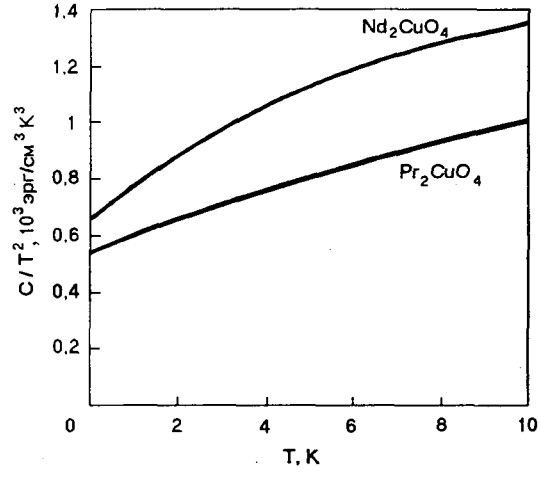

Рис. 8. Температурная зависимость фононной теплоемкости в модели с дополнительной модой.

первом приближении влияние взаимодействия на теплоемкость можно описать как перенормировку параметров α и β, аппроксимируя зависимости (рис. 8) прямыми линиями. Определяя из полученного таким образом коэффициента β значение температуры Дебая имеем $\Theta_D = 329$ K для Nd_2CuO_4, $\Theta_D = 375$ K для Pr_2CuO_4, что неплохо согласуется с экспериментальной величиной [12].

Удовлетворительно оценить из калориметрических данных величину α из-за сильно маскирующего вклада от спиновых степеней свободы в редкоземельной подсистеме не представляется возможным. С другой стороны, значение α, следующее из наших расчетов, может быть сильно завышено, поскольку мы пользовались линейной экстраполяцией спектров колебаний в область больших q_z при вычислении интеграла (20). Разумно предположить, что в коротковолновой области взаимодействие фононов с дополнительной модой модифицируется таким образом, что перенормировка скорости последней будет меньше, чем следует из линейной модели. Кроме того, возможно, что акустическая мода формируется как антифазные колебания в соседних слоях, что требует соответствующего уменьшения пределов интегрирования по q_z в (20). Все эти факторы могут привести к существенному (в несколько раз) уменьшению расчетного вклада $\sim T^2$, в то время как на значение β их влияние слабое.

Эта работа была частично поддержана Международной соросовской программой поддержки образования в области точных наук (ISSEP), грант N PSU 052062.

1. F. Wilchek, *Fractional Statistics and Anyon Superconductivity*, World Scientific, Singapore (1990).
2. I. G. Kolobov, V. D. Fil, D. V. Fil, S. N. Barilo, and D. I. Zhigunov, *Phys. Rev.* **B49**, 744 (1994).
3. Ф. И. Федоров, *Теория упругих волн в кристаллах*, Наука, Москва (1965).
4. Н. Г. Бурма, А. Л. Гайдук, С. В. Жерлицын, И. Г. Колобов, В. Д. Филь, А. С. Панфилов, И. В. Свечкарев, А. П. Гесь, С. Н. Барило, Д. И. Жигунов, *ФНТ* **18**, 247 (1992).
5. Е. В. Безуглый, Н. Г. Бурма, И. Г. Колобов, В. Д. Филь, И. М. Витебский, А. Н. Книгавко, Н. М. Лавриненко, С. Н. Барило, Д. И. Жигунов, Л. Е. Сошников, *ФНТ* **21**, 86 (1995).
6. X. G. Wen, F. Wilczek, and A. Zee, *Phys. Rev.* **B39**, 11413 (1989).
7. О. И. Токарь, Д. В. Филь, *ФНТ* **19**, 928 (1993).
8. D. V. Fil and O. I. Tokar, *Physica* **C203**, 207 (1994).
9. C. R. Hagen, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 3821 (1992).
10. K. B. Lyons, J. Kwo, J. F. Dillon, Jr. , G. P. Espinosa, M. McGlashan-Powell, A. P. Ramirez, and L. F. Schneemeyer, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 2949 (1990); S. Spielman, K. Fesler, C. B. Eom, T. H. Geballe, M. M. Fejer, and A. Kapitulnik, *Phys. Rev. Lett.* **65**, 123 (1990).
11. L. B. Ioffe and A. I. Larkin, *Phys. Rev.* **B39**, 8988 (1989).
12. M. F. Hundley, J. D. Thompson, S.-W. Cheong, Z. Fisk, and S. B. Oseroff, *Physica* **C158**, 102 (1989).

New vibrational mode of the acoustic type in $Nd(Pr)_2CuO_4$ single crystals

D. V. Fil, I. G. Kolobov, V. D. Fil,
S. N. Barilo, and D. I. Zhigunov

Sound velocities along main symmetry directions as well as their angle dependences in (100),(110)-type planes are measured in $Nd(Pr)_2CuO_4$. Anomalies in the angle dependences are found, which are interpreted as a result of the interaction of elastic vibrations with an additional plane mode of the acoustic type. According to the proposed interpretation, the bare spectrum of the additional mode is two-dimensional, and the origin of the mode is connected with the electron degrees of freedom in the CuO_2-planes. A phenomenological model for description of acoustic mode spectra in the investigated systems is proposed. On the basis of the anion model of HTSC, a possible microscopic scenario of the appearance of the additional mode is analyzed. In the framework of the phenomenological model, the Debye temperatures are computed, which are in agreement with the specific heat data. The values of the components of the elastic moduli tensor are given.