Физика низких температур, 1995, т. 21, № 3, с. 270–277 УДК 537. 6

Слабоферромагнитный переход в монокристалле La_2CuO_4 в нестационарном поле

К. Л. Дудко, Н. В. Гапон, В. Н. Савицкий, В. В. Соловьев

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

Статья поступила в редакцию 28 июля 1994 г.

Исследован слабоферромагнитный фазовый переход в антиферромагнитном монокристалле La_2CuO_4 в импульсном магнитном поле длительностью 33 мс путем измерения проводимости образца. Обнаружено, что в возрастающем поле данный переход осуществляется в два этапа, а в спадающем имеет место один скачок. Показано, что трактовка данного факта в рамках ранее предложенных моделей магнитной структуры купрата лантана затруднительна. Предложены возможные способы уточнения традиционной модели, а также механизмы, способные объяснить наблюдаемый факт двухступенчатости перехода. Проведена аналогия с подобным поведением намагниченности $FeCO_3$ в так называемом «смешанном» состоянии.

Досліджено слабкоферомагнітний фазовий перехід в антиферомагнітному монокристалі La_2CuO_4 в імпульсному магнітному полі тривалістю 33 мс шляхом вимірювання провідності зразка. Виявлено, що в зростаючому полі даний перехід відбувається в два етапи, а в спадаючому має місце один стрибок. Показано, що трактування цього факту у рамках раніше пропонованих моделей магнітної структури купрату лантану є утрудненим. Запропоновано можливі способи уточнення традиційної моделі, а також механізми, які здатні пояснити факт двоступінчатості переходу, що спостерігається. Проведено аналогію з подібною поведінкою намагніченості $FeCO_3$ в так званому «змішаному» стані.

1. Введение

Оксидные соединения меди, типичным представителем которых является La_2CuO_4 , в настоящее время широко изучаются как теоретически, так и экспериментально [1–8]. Интерес к этому классу веществ обусловлен тесной связью их магнитных свойств со сверхпроводимостью. Некоторые исследователи полагают, что магнетизм данных соединений является главной причиной спаривания свободных носителей (см., например, [2]). Поэтому исследования магнитного упорядочения могли бы привести и к пониманию природы ВТСП.

При низких температурах купрат лантана стехиометрического состава является слоистым антиферромагнетиком. Кроме того, он обладает проводящими свойствами. Это обстоятельство позволяет надеяться, что измерения проводимости могут служить средством контроля состояния спиновой системы при воздействии на нее внешнего магнитного поля. Магнитное поле влияет на носители заряда непосредственно, а также косвенно через упорядоченную магнитную структуру.

Весьма благоприятные условия для определения параметров антиферромагнитного упорядочения появляются, в частности, при спин-переориентационных переходах. Вблизи них малые вариации поля приводят к значительным изменениям спиновой структуры, усиливая ее относительный вклад в изучаемые свойства, и незначительно влияют на механизмы проводимости, не связанные непосредственно с магнитным упорядочением.

Спин-переориентационный переход наблюдался, в частности, в La_2CuO_4 в работе [1]; скачок магнитного момента здесь сопровождается скачком проводимости. Однако в описанных в литературе экспериментах не полностью использовано упомянутое выше преимущество исследования ориентационного перехода: приведены результаты измерений магнитного момента и электросопротивления в основном лишь до и после переориентации спинов, в то время как сам интервал перехода остался почти не исследованным.

Нам представляется целесообразным восполнить этот пробел. Ниже описаны исследования проводимости La_2CuO_4 в области спин-переориентационного перехода. С точки зрения поставленной выше задачи отпадает необходимость в измерениях абсолютных величин проводимости, и в дальнейшем нас будут интересовать лишь ее относительные изменения.

Интерес к исследованиям свойств антиферромагнетиков вблизи фазовых переходов, индуцированных внешним магнитным полем, связан еще и с тем, что в этом интервале полей возможно появление многофазных неоднородных магнитных состояний типа промежуточного [9] или смешанного

© К. Л. Дудко, Н. В. Гапон, В. Н. Савицкий, В. В. Соловьев, 1995

[10]. Поиски таких структур в La_2CuO_4 и выяснение их взаимосвязи со сверхпроводящим состоянием близких по химическому составу фаз также стимулируют проведение подобных экспериментов.

Кроме того, наши исследования проведены не в стационарном, а в импульсном магнитном поле. Мы полагаем, что в быстро изменяющемся магнитном поле могут проявиться релаксационные процессы, способствующие пониманию механизма перехода.

2. Методика измерений и образцы

Образцы монокристаллического La_2CuO_4 * имеют форму, близкую к кубической, и размер около 5 мм. Для измерений проводимости σ использовались двух- и четырехзондовая методики. Последняя дает возможность исключить сопротивление контактов и получить абсолютные значения σ. Поскольку результаты измерений относительных изменений проводимости оказались одинаковыми, мы остановились на двухзондовой методике. Это дало возможность более подробно исследовать небольшие участки образца с целью проверки однородности его структуры.

Контактные провода приклеивались к образцу серебряной пастой, которая высушивалась на воздухе без сильного нагрева (температура сушки составляла 60–80 °С). Площадь контактов не превышала 0,5–0,6 мм^2. На поверхности образца удавалось разместить несколько контактов на расстоянии менее 1 мм друг от друга с сопротивлением несколько ом между ними при комнатной температуре.

Большинство экспериментов проведено в условиях, когда все контакты были расположены на одной из боковых граней. В тех случаях, когда контактные провода приклеивались на другие грани, были получены идентичные результаты. Термическое циклирование (охлаждение образца до гелиевых и отогрев до комнатных температур) заметно снижало качество контактов. Но в случае наиболее удачно выполненной технологии клейки удавалось осуществлять до 10 таких циклов без разрушения контактов.

Измерительный ток устанавливался от 10^{-5} до 10^{-2} А в зависимости от сопротивления образца. В отдельных экспериментах производилось изменение его направления на противоположное. Выяснено, что ни направление тока, ни его величина не оказывают заметного влияния на результаты измерений.

Эксперименты проведены с использованием импульсного магнитного поля длительностью 33 мс и амплитудой до 15 Тл. Зависимость напряженности магнитного поля от времени представлена на рис. 1 (кривая *2*). Скорость изменения напряженности поля, учет которой необходим при поисках возможных релаксационных процессов, достигала 10^3 Тл/с. Внешнее магнитное поле прикладывалось вдоль оси *b* кристалла (в соответствии с общепринятыми обозначениями кристаллографических осей; см., например, [7]). Имелась возможность изменять ориентацию поля относительно выбранной оси на угол ±3°.

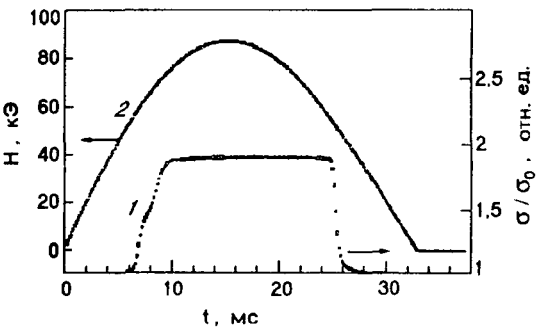

Рис. 1. Зависимости от времени относительной проводимости σ/σ_0 кристалла La_2CuO_4 при 20 К (*1*) и напряженности магнитного поля H (*2*).

Измерительный сигнал с контактов и сигнал с индукционной катушки, несущий информацию о напряженности магнитного поля, подавались на вход многоканального запоминающего цифрового осциллографа и затем передавались на ЭВМ для обработки.

3. Экспериментальные результаты

Типичная кривая изменения проводимости образца во время импульса магнитного поля представлена на рис. 1 (кривая *1*). Основные ее черты состоят в следующем. При возрастании напряженности магнитного поля, приложенного вдоль оси *b* кристалла, проводимость образца вначале практически не изменяется (низкополевое состояние). При достижении полем некоторой пороговой величины в сравнительно узком его интервале наблюдается резкое увеличение проводимости. При дальнейшем возрастании поля проводимость вновь практически не изменяется (высокополевое состояние). В спадающем магнитном поле происходит столь же резкий переход к низкополевому значению проводимости. На рис. 2,*а* для сравнения представлены зависимости проводимости от поля $\sigma(H)$ при увеличении (кривая *1*) и уменьшении поля (кривая *2*).

* Авторы выражают признательность С. Н. Барило (ИФТТП, г. Минск) за предоставленный для исследований монокристаллический образец.

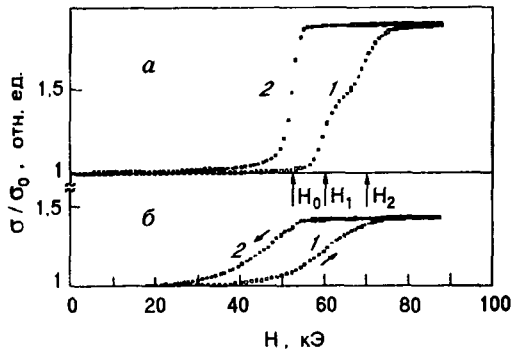

Рис. 2. Зависимость относительной проводимости La_2CuO_4 от напряженности нарастающего (*1*) и спадающего (*2*) магнитного поля при 20 К для двух различных участков образца.

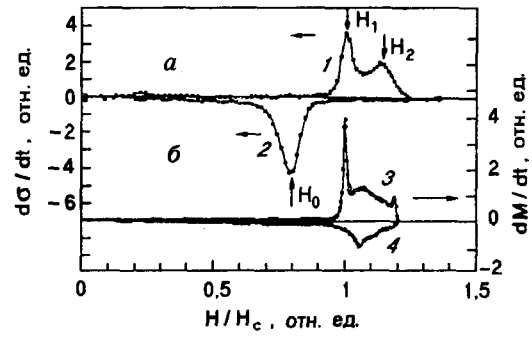

Рис. 3. Зависимости от приведенного магнитного поля производной проводимости $d\sigma/dt$ для купрата лантана (*а*) и производной намагниченности dM/dt для образца $FeCO_3$ (*б*), измеренные при T = 4,2 К в нарастающем (*1*, *3*) и спадающем (*2*, *4*) полях.

Рассмотрим вначале переход в спадающем магнитном поле, где он имеет простую структуру. Его анализ облегчается, если обратиться к производной проводимости по времени $d\sigma/dt$ (рис. 3,*а*). Здесь переходу в спадающем поле (область $d\sigma/dt < 0$) соответствует кривая *2* с одним всплеском производной. При температуре 77,4 К положению максимума этой кривой соответствует напряженность поля $H_0 = (48{,}0 \pm 0{,}5)$ кЭ. С понижением температуры до 20,4 и 4,2 К величина поля перехода изменяется до 50,1 и 46,7 кЭ соответственно. Ширина перехода, определенная как ширина кривой $d\sigma/dt(H)$ на половинной высоте, составляет $\Delta h_0 = (5{,}7 \pm 0{,}4)$ кЭ. С понижением температуры она возрастает и при 4,2 К достигает величины $\Delta h_0 = (9{,}7 \pm 0{,}7)$ кЭ.

Простая форма экспериментальной зависимости $d\sigma/dt(H)$ в области перехода в спадающем поле дает возможность использовать ширину кривой в качестве критерия однородности образца. Результаты, полученные с помощью зондов, расположенных на различных участках образца, показали, что свойства этих участков не везде одинаковы. В одних случаях мы наблюдали довольно узкий скачок, а в других он был растянут по полю (уширен примерно в 3,5 раза) и имел в 1,4 раза меньшую величину (рис. 2,*б*). Уширение перехода связано, скорее всего, с локальными несовершенствами образца. Аналогичные результаты получены и при увеличении расстояния между контактами, когда на измеряемые величины влияют свойства нескольких таких участков.

Одним из наиболее интересных результатов данной работы является обнаружение «тонкой структуры» перехода, которая проявляется в возрастающем поле. Действительно, излом на кривой в области перехода из низкополевого в высокополевое состояние (рис. 2,*а*, кривая *1*) свидетельствует о том, что этот переход происходит в два этапа — в полях H_1 и H_2 соответственно. Излом наблюдается на всех участках образца, где имеет место узкий переход в спадающем поле. Поэтому такие области мы считаем структурно однородными или совершенными. На несовершенных участках, где этот переход уширен, переход в возрастающем поле также уширяется и теряет свою четкую двуступенчатую структуру (см. рис. 2,*б*).

Наиболее отчетливо немонотонность перехода в возрастающем поле видна на кривой зависимости производной $d\sigma/dt$ от напряженности магнитного поля (рис. 3,*а*, кривая *1*), где значениям полей H_1 и H_2 отвечают четко выраженные максимумы. Интервал полей между ними при T = 77 К составляет $H_2 - H_1 = (5{,}9 \pm 1{,}4)$ кЭ. При понижении температуры его величина изменяется до 8,9 и 7,7 кЭ при 20,4 и 4,2 К соответственно. Ширины первого и второго скачков в возрастающем поле очень близки и составляют $\Delta h_1 = (9{,}9 \pm 0{,}7)$ кЭ и $\Delta h_2 = (10{,}6 \pm 0{,}7)$ кЭ соответственно.

Магнитный гистерезис, определяемый как разность между полями H_1 и H_0, в которых происходят скачки проводимости в возрастающем и спадающем полях, при T = 77 К мал и не превышает $(1{,}6 \pm 1)$ кЭ. С понижением температуры он становится более заметным и возрастает до (13 ± 1) кЭ при 4,2 К (см. рис. 3,*а*).

Абсолютная величина проводимости в настоящей работе не была предметом специального исследования; нас интересовали лишь ее относительные изменения в процессе перехода в магнитном поле. Относительная величина полного скачка проводимости (в полях $H > H_2$) оказалась зависящей от температуры; она изменяется от 8% при 77 К до 100 и 50% при 20,4 и 4,2 К соответственно. Как видно из рис. 2,*а*, величины двух отдельных скачков, составляющих полный, в возрастающем поле при T = 20,4 К примерно одинаковы.

С целью поиска медленно протекающих процессов мы проводили измерения при различных скоростях изменения магнитного поля в области пере-

хода. Это достигалось изменением амплитуды поля таким образом, чтобы переход происходил либо вблизи максимума импульса, либо в начале и конце его. Скорость изменения поля при этом варьировалась от 10 до 10^3 Тл/с. Оказалось, что в указанных пределах скорость изменения поля не влияет на поведение скачка проводимости при переходе.

4. Сравнение результатов и идентификация образца

Прежде всего рассмотрим вопрос, насколько полученные нами результаты соответствуют описанным в литературе. Как уже отмечалось, впервые спин-ориентационный переход в La_2CuO_4 наблюдался в стационарном поле на образце с температурой Нееля $T_N = 230$ K [1]. В этой работе приведены зависимости магнитного момента и относительного электросопротивления от величины внешнего магнитного поля. Наши эксперименты подтверждают как сам факт существования перехода, так и относительную величину скачка проводимости.

Практически все исследователи купрата лантана отмечают сильное влияние на его физические свойства даже незначительных отклонений от стехиометрического состава. Это придает особое значение определению концентрации сверхстехиометрического кислорода в образце. Поэтому рассмотрим данные, которые позволили бы сделать ее оценку применительно к образцу, использованному в нашем эксперименте.

В первую очередь, концентрация кислорода сказывается на величине температуры Нееля, которая чаще всего определяется по положению максимума на кривой температурной зависимости магнитной восприимчивости. Для чистого La_2CuO_4 значение T_N, приведенное в разных источниках, колеблется от 300 [1] до 250 K [7] и даже 220 K [5]. При внесении дополнительного кислорода T_N снижается до нуля, что по различным данным соответствует концентрации x в La_2CuO_{4+x} от 3 до 6% [1,8]. При этом кристалл переходит в сверхпроводящее состояние.

При изменении темературы Нееля изменяется и величина поля исследуемого перехода. На основании данных, полученных в [8] на нескольких образцах с T_N, находящейся в интервале от 300 до 70 K, можно утверждать, что значения полей перехода в этом интервале изменяются практически линейно с температурой Нееля. При температуре кипения жидкого азота величины полей уменьшаются от образца к образцу в указанном ряду более чем в два раза. На основании такой зависимости и используя величину поля H_0, измеренную на нашем образце при $T = 77$ K, мы определили, что его температура Нееля примерно равна 260 K, т. е. мы имеем дело с образцом стехиометрического состава. Эта величина соответствует данным и других авторов, использующих в своих экспериментах монокристаллы стехиометрического состава, изготовленные в ИФТТП (г. Минск).

Исследователи рассматриваемого перехода не приводят численные значения его ширины. Значения, полученные путем обработки приводимых ими графиков, имеют невысокую точность. Однако в пределах этой точности значение ширины перехода заметно не отличается от измеренной нами.

Полученная нами температурная зависимость величины скачка относительной проводимости также находится в согласии с результатами других исследователей [11,14]. Интересно, что его рост с понижением температуры, продолжающийся до значения ≈ 40 K, сменяется резким падением при дальнейшем понижении температуры.

Аналогичную температурную зависимость имеет величина поля перехода в слабоферромагнитное состояние H_0, измеренная в спадающем поле. Величина же H_1, измеренная в возрастающем поле, продолжает увеличиваться с понижением температуры, не проходя через максимум. Таким образом, экспериментально наблюдавшийся нами магнитный гистерезис в общих чертах согласуется с данными других авторов [1,8,14].

Перечисленные выше совпадения наших результатов с результатами других работ указывают на то, что, во-первых, примененная нами методика измерения в импульсном магнитном поле дает достоверные результаты, и, во-вторых, мы имеем дело с монокристаллическим образцом хорошего качества. Эти обстоятельства позволяют обратить внимание на более тонкие и менее заметные, на первый взгляд, особенности перехода. Существенное отличие наших данных от описанных в литературе заключается в двухступенчатости скачка проводимости в возрастающем поле.

5. Возможное влияние нестационарности поля

Можно предположить, что факт двухступенчатости имеет место не только в импульсном, но и в стационарном магнитном поле. Одной из причин того, что он не был обнаружен ранее, может быть недостаточное качество образцов, использованных в измерениях в стационарном поле. В пользу этого предположения говорит тот факт, что и в наших экспериментах на несовершенных участках образца двухступенчатость отсутствует. Возможной причиной является также малое количество экспериментальных точек на кривой, снятой в стационарном поле, и, как следствие, недостаточное разрешение.

Правомерным является и другое предположение: при намагничивании в стационарном поле двухступенчатость отсутствует и появляется лишь в нестационарном магнитном поле.

С одной стороны, наши результаты оказались не зависящими от скорости изменения магнитного поля в определенном ее диапазоне. Кроме того, на кривых намагничивания отсутствуют следы релаксации. Отсюда можно заключить, что процессы, формирующие общую картину перехода (за исключением его двуступенчатости), по-видимому, протекают намного быстрее, чем время наших измерений ($\approx$ 33 мс), и, с точки зрения этих процессов, наши измерения можно считать квазистационарными.

Этого нельзя уверенно сказать о механизме, обеспечивающем двухступенчатость кривой. Если говорить о времени его релаксации, то оно лежит в промежутке между временами намагничивания в двух сравниваемых экспериментах и имеет порядок секунд. В этом случае намагничивание в стационарном поле имеет дело с равновесной структурой по отношению к процессам, отвечающим за двухступенчатость, а намагничивание в импульсном поле — с метастабильной.

Наличие двух ступеней при переходе можно связать с двухфазностью метастабильного состояния, полагая, что переход происходит последовательно в одной, а затем в другой фазе. Эти фазы должны быть близкими по свойствам, поскольку интервал между ступенями невелик. Возникает вопрос, какая метастабильная структура может иметь такое время релаксации ($\approx$ 1 с) и обладать двухфазностью. Прежде всего отметим возможность метастабильного распределения кислорода, разделяющего слои CuO_2. Именно этот фактор определяет величину слабого межслоевого обмена и величину поля изучаемого магнитного перехода. При наличии большого числа вакансий распределение кислорода может быть в той или иной степени упорядоченным, что отразится на величине межслоевого обмена. Времена установления равновесия в слое связаны с перемещениями ионов кислорода лишь в соседнюю вакансию и могут быть достаточно малыми по сравнению с обычно большими временами диффузионных процессов. Принимая сказанное как один из возможных способов объяснения наблюдаемой двухступенчатости кривой, обсудим и другие, связанные с особенностями магнитной структуры.

6. О феноменологическом описании перехода

Рассмотрим основные черты кристаллографической и магнитной структуры исследуемого монокристалла, отвечающие мнению большинства исследователей. При высоких температурах ($T > 450$ K) кристалл имеет структуру пространственной группы $I4/mmm$ (D_{4h}^{17})). Ниже 450 K происходит переход в фазу с пространственной группой $Cmca$ (D_{2h}^{18}). А ниже температуры Нееля T_N кристалл переходит в упорядоченное антиферромагнитное состояние.

Основными элементами его магнитной структуры при $T < T_N$ являются слои антиферромагнитно упорядоченных ионов меди (CuO_2-слои). Спин такого иона равен 1/2, а средний магнитный момент $\mu \sim 0{,}5\,\mu_B$ [5]. Сильное обменное взаимодействие ($J = 1000$ K) внутри каждого слоя CuO_2 и значительно более слабый межплоскостной обмен ($\sim 3{,}7 \cdot 10^{-5}$ от внутриплоскостного [11]) приводят к тому, что в парамагнитной фазе ($T > T_N$), а по некоторым данным, и в сверхпроводящем состоянии сохраняются значительные спиновые корреляции с большой корреляционной длиной порядка 10–100 Å [12].

Для описания магнитных свойств в простейшем случае возникает необходимость ввести представление о четырех подрешетках. Спиновый гамильтониан системы, записанный как разложение по инвариантным произведениям проекций «внутриплоскостных» безразмерных векторов ферро- и антиферромагнетизма и полученный с помощью стандартных симметрийных соображений, приведен в работах [6,7]. В нем учитываются константы внутри- и межплоскостных обменных полей, соответствующие поля Дзялошинского и поля тетрагональной и ромбической симметрий.

Данный гамильтониан хорошо описывает высокополевое и низкополевое состояния системы, а также наличие фазовых переходов (ФП) в полях, ориентированных вдоль кристаллографических осей. Слабый симметричный анизотропный обмен и антисимметричный обмен Дзялошинского обусловливают легкоплоскостную неколлинеарную антиферромагнитную структуру, в которой спины упорядоченны в базисной плоскости вдоль оси c с небольшими скосами ($\sim 0{,}17°$) в bc-плоскости [1]. Этот скос и определяет значение слабоферромагнитного момента для каждой из плоскостей. Ориентация таких моментов для двух любых соседних слоев является антипараллельной, что и создает антиферромагнитное упорядочение всего кристалла вдоль оси b.

Если вдоль этой оси приложить магнитное поле, то при достижении им величины H_c, произойдет скачкообразный разворот слабоферромагнитных моментов, расположенных антипараллельно вектору напряженности внешнего магнитного поля H, в положение, параллельное ему (см., например, [6]).

Анализ гамильтониана показывает, что в зависимости от соотношения между параметрами опрокидывание может происходить как в плоскости

xz, так и в плоскости *xy* (обозначения соответствуют предложенным в [7]). Кроме того, ФП является не только спин-флоп, но спин-флип ФП, т. е. происходит не только переориентация вектора намагниченности каждого второго слоя, ориентированного в малых полях против поля, но и изменение знака вектора антиферромагнетизма этих слоев на противоположный, что влечет за собой уменьшение вдвое числа магнитных подрешеток.

При этом переход может происходить как путем ФП первого рода с реализацией промежуточного состояния (ПС), так и путем перехода второго рода с последующим ФП первого рода, и также с реализацией ПС из доменов исходной (четырехподрешеточной) и опрокинутой (двухподрешеточной) фаз. Допускается также возможность разворота подрешеток вокруг поля [13].

Таким образом, теория хорошо описывает все полученные нами экспериментальные данные кроме двухступенчатости. Именно этот результат заставляет считать описанную выше картину если и правильной в общих чертах, то, по крайней мере, неполной. Мы полагаем, что для понимания природы двухступенчатости перехода необходимо рассмотреть возможные усложнения представлений о магнитной структуре данного кристалла.

7. Интерпретация в рамках различных магнитных структур

Объяснение экспериментального факта двухступенчатости перехода должно исходить из двух возможностей: либо переориентация спинов происходит в два этапа однородно по всему кристаллу, либо имеют место два последовательных перехода в двух различных частях образца.

7.1. Однородная магнитная структура

Первая из этих возможностей предполагает наличие некоторого энергетического минимума при изменении угла ориентации вектора антиферромагнетизма подрешетки, слабоферромагнитный момент которой направлен против поля. В таком случае, если бы в рассматриваемом спиновом гамильтониане [6,7] были учтены члены четвертого порядка, то, вполне вероятно, могло бы быть получено теоретическое обоснование двухэтапности перехода.

7.2. Неоднородная магнитная структура

Вторая возможность исходит из неоднородной модели, согласно которой переход осуществляется одним скачком последовательно в двух частях образца, т. е. области, где происходят первый и второй переходы, пространственно разделены. Это может стать возможным, если отдельные области кристалла отличаются магнитными энергиями.

Как было отмечено, суть описываемого перехода состоит в том, что вектор антиферромагнетизма каждого второго слоя поворачивается на угол 180°. Поворот может иметь два возможных знака (направления вращения), которые могут определяться первоначальным отклонением вектора антиферромагнетизма от оси *y* в плоскости слоя. Такое отклонение может быть вызвано случайными причинами (например, несовершенством кристалла), что делает оба направления равновероятными.

В этом случае возможный механизм формирования двухступенчатости перехода состоит в следующем. После того как переход начался в соседних областях кристалла в противоположных направлениях, по мере разворота их векторов антиферромагнетизма эти области начинают блокировать друг друга. Второй всплеск намагниченности означает разрешение конфликта в пользу одного из возможных направлений вращения в поле, достаточном для преодоления потенциального барьера.

Неоднозначность в направлении вращения вектора антиферромагнетизма в слое могла бы быть причиной расщепления перехода в возрастающем поле и в том случае, если бы в гамильтониане присутствовали члены, линейные по компоненте вектора антиферромагнетизма вдоль оси *x* (l_x). Тогда в соседних доменах временно возникнут компоненты этого вектора противоположных знаков, что приведет к различию в их энергии. По этой причине ориентационный переход произойдет вначале в доменах с большей намагниченностью, а затем — с меньшей. Что касается перехода в спадающем поле, то его одноступенчатость диктуется однородностью магнитной структуры, созданной возрастающим полем.

Однако приведенная интерпретация двуступенчатости перехода находится в противоречии с принятыми представлениями о магнитной элементарной ячейке изучаемого кристалла, магнитная симметрия которого не допускает присутствия в гамильтониане члена, линейного по l_x (см. , например, [7]). Поэтому правомерность такого объяснения возможна лишь при условии пересмотра принятой магнитной структуры La_2CuO_4.

7.3. Усложненные магнитные структуры

Отличие реальной магнитной структуры от общепринятой может, в частности, заключаться в увеличении размера магнитной элементарной ячейки вплоть до возникновения несоизмеримых магнитных сверхструктур. Например, отклонение векторов антиферромагнетизма от оси *y* может отвечать состоянию термодинамического равновесия, если магнитная структура промодулирована элементами спиральности.

Необходимо отметить, что двухфазность купрата лантана уже обсуждалась в литературе. Так,

например, в работе [3] приведена фазовая диаграмма этого вещества и дана ее интерпретация в терминах спинового нематика. По мнению автора [3], La_2CuO_{4+x} при низких температурах представляет собой смесь металлической и диэлектрической фаз. В этом состоянии вещество практически сохраняет все признаки антиферромагнетика и поэтому в нем возможен магнитный фазовый переход. Несмотря на большую привлекательность такой модели, мы все же не считаем доказательным объяснение наших результатов с ее помощью, поскольку, согласно фазовой диаграмме [3], нематическое состояние предполагает наличие в образце сверхстехиометрического кислорода или очень низкую температуру, что противоречит условиям нашего эксперимента.

Одним из возможных способов описания двухступенчатости перехода могло бы быть использование представлений о так называемой спин-стекольной фазе. На ее существование в данном кристалле указывают ряд авторов [4,14]. В частности, в работе [14] сделано предположение о том, что наличием спин-стекольной фазы объясняется большой магнитный гистерезис, наблюдаемый в ряде экспериментальных работ (см., например, [8]). Не отрицая существования такой фазы в нашем образце, отметим, что объяснение данных эксперимента с ее помощью затруднительно, поскольку расстояние между ступенями и гистерезис имеют неодинаковую температурную зависимость.

7.4. Смешанное состояние

Поведение проводимости исследуемого образца при ориентационном переходе напоминает двухступенчатую кривую намагниченности антиферромагнитного $FeCO_3$ при магнитном ориентационном переходе из антиферро- в парамагнитное состояние [10]. На рис. 3 показаны зависимости производных по времени намагниченности $FeCO_3$ и проводимости La_2CuO_4 от напряженности магнитного поля.

Во-первых, обращает на себя внимание внешнее сходство приведенных кривых: в возрастающем поле намагничивание в обоих случаях происходит двухступенчато, а в спадающем поле — одной ступенькой. Во-вторых, имеет место аналогия и в природе ориентационных переходов: в обоих случаях в результате перехода в возрастающем поле появляется подрешеточное вырождение (спин-флип), в спадающем же поле вырождение снимается.

В работе [10] рассматривается два типа магнитных ориентационных переходов, идентифицируемых по типу структур, реализующихся в области перехода. В одном случае, когда переход происходит одной ступенькой, реализуется доменное, так называемое промежуточное состояние, в другом — смешанное. Эти неоднородные магнитные состояния названы так по аналогии с двумя возможными состояниями сверхпроводников в магнитном поле.

В связи с отмеченным сходством кривых, относящихся к антиферромагнитному $FeCO_3$ и исследуемой здесь протофазе ВТСП, и наличием внутренней аналогии между этими магнитными ориентационными переходами возникает вопрос об образовании в области исследуемого перехода магнитных вихрей, которые характерны для смешанного состояния сверхпроводника второго рода. Возникает также вопрос о связи такой возможной структуры со сверхпроводящим состоянием, в которое переходит купрат лантана при изменении концентрации кислорода в нем. Ответы на эти вопросы при имеющемся объеме экспериментальных данных представляются преждевременными, однако целесообразность дальнейших исследований не вызывает сомнений.

8. Заключение

Основные результаты исследования слабоферромагнитного перехода заключаются в следующем.

При варьировании скорости изменения магнитного поля в пределах от 10 до 10^3 Тл/с его нестационарность практически не влияет на магнитные свойства и проводимость монокристалла La_2CuO_4 в области перехода. В то же время в образце возможно протекание релаксационных процессов с характерным временем порядка секунд.

Обнаружено, что на различных участках образца переход имеет разную ширину. Размытие перехода по полю связано, по-видимому, с несовершенством соответствующих участков монокристалла. Поскольку другими методами эти несовершенства выявить не удается, мы считаем, что измерения ширины перехода можно использовать как чувствительный метод выявления немонокристалличности образца.

Обнаружена двухступенчатость изменения проводимости, интерпретация которой требует пересмотра традиционной магнитной структуры La_2CuO_4 . Сходство кривых намагничивания $FeCO_3$ с поведением исследуемой здесь протофазы ВТСП может свидетельствовать о внутренней аналогии этих ориентационных переходов и образовании структур, характерных для смешанного состояния сверхпроводников второго рода.

Авторы выражают искреннюю признательность В. В. Еременко за поддержку и интерес к работе.

Работа выполнена в рамках Государственной научно-технической программы по ВТСП Государственного комитета Украины по вопросам науки и технологий.

1. T. Thio, T. R. Thurston, N. W. Preyer, P. J. Picone, M. A. Kastner, H. P. Jenssen, D. R. Gabbe, C. Y. Chen, R. J. Birgeneau, and A. Aharony, *Phys. Rev.* **B38**, 905 (1988).
2. P. W. Anderson, *Science* **235**, 1196 (1987).
3. Л. П. Горьков, *Письма в ЖЭТФ* **52**, 1100 (1990).
4. L. I. Glazman and A. S. Ioselevich, *Z. Phys.* **B80**, 133 (1990).
5. D. Vaknin, S. K. Sinha, D. E. Moncton, D. C. Johnston, J. M. Newsman, C. R. Safinya, and H. E. King, Jr., *Phys. Rev. Lett.* **58**, 2802 (1987).
6. А. С. Боровик-Романов, А. И. Буздин, Н. М. Крейнес, С. С. Кротов, *Письма в ЖЭТФ* **47**, 600 (1988).
7. В. Г. Барьяхтар, В. А. Львов, В. М. Локтев, Д. А. Яблонский, *СФХТ* **2**, 59 (1989).
8. А. Н. Бажан, В. Н. Бевз, *СФХТ* **4**, 116 (1991).
9. К. Л. Дудко, В. В. Еременко, В. М. Фридман, *ЖЭТФ* **61**, 678 (1971).
10. К. Л. Дудко, В. В. Еременко, В. М. Фридман, *ЖЭТФ* **68**, 659 (1975).
11. S. W. Cheong, J. D. Thompson, and Z. Fisk, *Phys. Rev.* **B39**, 4395 (1989).
12. Y. Endon, K. Yamada, R. J. Birgeneau, D. R. Gabbe, H. P. Jenssen, M. A. Kastner, C. J. Peters, P. J. Picone, T. R. Thurston, J. M. Tranquada, G. Shirane, Y. Hidaka, M. Oda, Y. Enomoto, M. Suzuki, and T. Murakami, *Phys. Rev.* **B37**, 7443 (1988).
13. В. И. Ожогин, *ЖЭТФ* **45**, 1687 (1963).
14. А. А. Захаров, А. А. Теплов, Е. П. Красноперов, М. Б. Цетлин, А. К. Цыганков, С. Н. Барило, П. В. Грицков, *Письма в ЖЭТФ* **54**, 32 (1991).

Weak ferromagnetic transition in a single crystal La_2CuO_4 in nonstationary field

K. L. Dudko, N. V. Gapon,
V. N. Savitsky, and V. V. Soloviev

The weak ferromagnetic phase transition in an antiferromagnetic single crystal La_2CuO_4 has been studied in a pulsed magnetic field of 33 ms by measuring the sample conduction. In a rising field the present transition has been found to occur in two stages and in the decreasing one a single jump takes place. It is shown that the treatment of this fact within the earlier models of magnetic structure of lanthanum cuprate is difficult. Possible refinements of the conventional model have been suggested, as well as the mechanisms which can account for the observed two-stage transition. The analogy has been drawn with similar behavior of $FeCO_3$ magnetization in the so-called «mixed» state.