Физика низких температур, 1996, т. 22, №11, с. 1333–1336

Орбитальное стекло в квазидвумерном гейзенберговском антиферромагнетике Eu_2CuO_4

Е. И. Головенчиц, В. А. Санина, А. В. Бабинский

Физико-технический институт им. А.Ф.Иоффе РАН
Россия, 194021, г. Санкт-Петербург, ул. Политехническая, 26

E-mail:egol@golov.ioffe.rssi.ru

В квазидвумерном гейзенберговском антиферромагнетике Eu_2CuO_4 исследуется состояние орбитального стекла, индуцированное 2*D* гейзенберговскими антиферромагнитными флуктуациями с большими корреляционными радиусами. Такое орбитальное стекло наряду с традиционными для спиновых стекол свойствами обладает рядом специфических свойств. Обсуждаются свойства орбитального стекла, обусловленные самосогласованным воздействием спиновой и орбитальной подсистем кристалла.

В квазідвовимірному гейзенбергівському антиферомагнетику Eu_2CuO_4 досліджено стан орбітального скла, індукований 2*D* гейзенбергівськими антиферомагнітними флуктуаціями з великими кореляційними радіусами. Таке орбітальне скло поряд з традиційними для спінових стекол властивостями має ряд специфічних властивостей. Обговорюються властивості спінового скла, обумовлені самоузгодженим впливом спінової та орбітальної підсистем кристала.

В [1] сообщалось об обнаружении состояния орбитального стекла (OG) в квазидвумерном гейзенберговском антиферромагнетике (HAF) Eu_2CuO_4, обладающем тетрагональной симметрией типа T' [2]. В наиболее совершенных (диэлектрических и стехиометрических) монокристаллах Eu_2CuO_4 в диапазоне температур $120\ \text{K} < T < 450\ \text{K}$ (предел измерения) наблюдалась низкочастотная дисперсия диэлектрической восприимчивости, характерная для структурных стекол [3] (рис. 1). При этом предполагалось, что в Eu_2CuO_4 при $T < T_N \simeq 150$ K реализуется антиферромагнитный (AF) дальний порядок [4,5]. Межслоевое обменное взаимодействие для тетрагонального AF с квадратной решеткой в слое обусловлено либо биквадратным обменным взаимодействием [6], либо нулевыми квантовыми флуктуациями [7,8]. При $T > T_N$ в слоях CuO_2 возникают двумерные (2*D*) HAF спиновые флуктуации с большими корреляционными радиусами $\varepsilon = a \exp(2\pi\rho_s/T)$ [9]. Здесь a — постоянная решетки; $2\pi\rho_s$ — спиновая жесткость; $2\pi\rho_s \simeq J$, где J — величина обменного интеграла. Для La_2CuO_4 величина $J \sim 1250-1500$ K [9]. Если принять, что для Eu_2CuO_4 величина J такая же, то при $T \simeq 150$ K значение величины $\xi \sim 2000a$.

Отметим, что в недавно появившейся работе [10] по исследованию брэгговского нейтронного рассеяния в Eu_2CuO_4 указано другое значение $T_N \simeq 270$ K. При $T \simeq 150$ K отмечен лишь небольшой скачок интенсивности брэгговского пика, природа которого не объяснена. При температурах $T > 150$ K наблюдалось практически линейное по температуре уменьшение интенсивности пика вплоть до $T \sim 270$ K, выше которой интенсивность рассеяния резко падает. Наши экспериментальные данные по исследованию Eu_2CuO_4 [1,4,11] интерпретировались в предположении, что значение $T_N \simeq 150$ K. Мы полагаем, что при $T > 150$ K квазитрехмерный (3*D*)

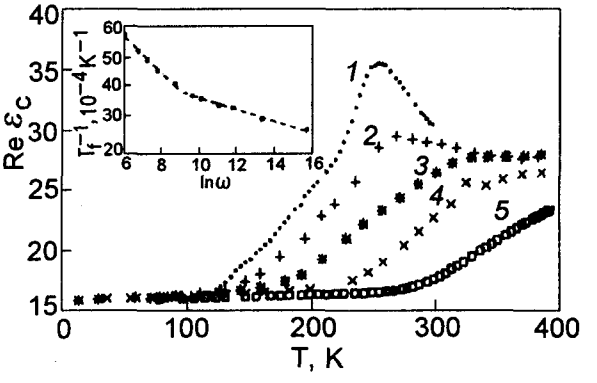

Рис. 1. Зависимость Re ε_c от температуры для фиксированных частот: 70 (*1*) и 230 (*2*) Гц; 1 (*3*) и 20 (*4*) кГц. На вставке — зависимость $1/T_f$ от $\ln\omega$.

© Е. И. Головенчиц, В. А. Санина, А. В. Бабинский, 1996

дальний AF порядок отсутствует, а имеются лишь ограниченные области $3D$ порядка, которые могут приводить к наблюдаемому в [10] брэгговскому рассеянию при $T > 150$ K. Более подробно эта ситуация рассматривается ниже.

Если считать, что значение $T_N \simeq 150$ K, то из рис. 1 видно, что в области $3D$ AF дальнего порядка реальная часть диэлектрической восприимчивости $\mathrm{Re}\,\varepsilon_c$ не зависит от температуры. При температурах, приближающихся к T_N (начиная с $T \geq 120$ K), наблюдается рост $\mathrm{Re}\,\varepsilon_c$ и сильная низкочастотная дисперсия ε_c. Мы полагаем, что низкочастотная дисперсия обусловлена, как и обычно в стеклах, 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 $\mathrm{Re}\,\varepsilon_c = f(T)$ при фиксированной частоте ω. Анализ зависимостей $\mathrm{Re}\,\varepsilon_c$ от T (рис. 1) показывает, что $\tau_0 = 1/\omega = \tau_0 \exp(E_A/kT)$ и имеются (см. вставку на рис. 1) два линейных участка зависимости $1/T_f$ от $\ln\omega$ с изломом при значениях $T_f = T_{\mathrm{cr}} = 250$ K и $\tau = \tau_{\mathrm{cr}} = 2\cdot10^{-4}$ с. При этом величины параметров E_A и τ_0 следующие: $E_A = 0{,}13$ эВ, $\tau_0 = 1{,}2\cdot10^{-7}$ с ($120\ \mathrm{K} < T < 250$ K); $E_A = 0{,}37$ эВ, $\tau_0 = 4\cdot10^{-14}$ с ($T > 250$ K). Обычно в стекольных системах имеется один линейный участок.

На рис. 2 приведены частотные зависимости $\mathrm{Re}\,\varepsilon_c$, позволяющие получить плотность состояний релаксаторов $g(1/\omega, T)$ [3,12]. Обычно в стекольных системах наблюдается линейная зависимость $\mathrm{Re}\,\varepsilon$ от $\ln\omega$, что свидетельствует о наличии в пределах этой зависимости постоянной по $1/\omega$ плотности состояний релаксаторов $g(1/\omega, T)$ [3,12]. В нашем случае (см. рис. 2) имеются два участка постоянной плотности состояний g_1 [$(1/\omega)_{\mathrm{cr}} < 1/\omega < (1/\omega)_{\max}$] и g_2 [$(1/\omega)_{\min} < 1/\omega < (1/\omega)_{\mathrm{cr}}$]. Скачок плотности состояний происходит при $1/\omega = (1/\omega)_{\mathrm{cr}} = 2\cdot10^{-4}$ с. На вставке на рис. 2 представлены температурные зависимости g_1 и g_2 (верхняя и нижняя кривая соответственно). Верхняя кривая, естественно, состоит из двух — с максимумами при $T \simeq 150$ K и $T \simeq 250$ K. Первый максимум соотвествует T_N, а второй — значению $T = T_{\mathrm{cr}}$ на рис. 1.

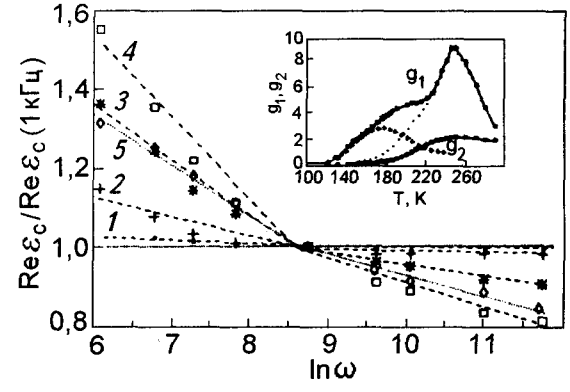

Рис. 2. Зависимость аномальной дисперсионной части диэлектрической восприимчивости $\mathrm{Re}\,\varepsilon_c / \mathrm{Re}\,\varepsilon_c$ (1 кГц) от $\ln\omega$ для различных фиксированных температур T,K: 100 (*1*), 150 (*2*), 200(*3*), 250 (*4*), 290 (*5*). На вставке — зависимости g_1 и g_2 от температуры.

В работе [1] мы полагали, что наблюдаемое стекольное состояние в упорядоченном кристалле Eu_2CuO_4 (не обладающем случайным беспорядком в распределении ионов в решетке) является орбитальным стеклом. Последнее обусловлено наличием орбиталь-орбитального взаимодействия через $2D$ HAF спиновые флуктуации. Это взаимодействие является дальнодействующим (с радиусом действия порядка радиуса корреляции $2D$ HAF спиновых флуктуаций $\xi(T)$) и знакопеременным на каждой постоянной решетки из-за AF характера спиновых флуктуций. Мы полагали в [1], что взаимодействие, обладающее указанными свойствами, в упорядоченной системе приводит к стохастизации и образованию стекольного состояния.

В основу предложенной в работе [1] модели положены следующие предположения: основное орбитальное состояние ионов Cu^{2+} представляет собой тетрагональный дублет Γ_5^t (в обозначениях [13]), возникший из кубического триплета $\Gamma_5(t_{2g})$; величина $2D$ HAF обмена превышает величину спин-орбитального взаимодействия ионов Cu^{2+} ($J > \lambda$); орбиталь-орбитальное взаимодействие через магноны сильнее взаимодействия орбиталей с фононами. Отметим, что эти предположения приводят к аналогу эффекта Яна—Теллера на магнонах с заменой вибронных (орбиталь-фононных) состояний на спинонные (орбиталь-магнонные) состояния.

В [11] при изучении спиновой динамики на СВЧ в той же области $120\ \mathrm{K} < T < 450$ K, в которой наблюдалось состояние OG, было обнаружено существование хорошо определенных ($\gamma \ll \omega_0$) однород-

ных ($q = 0$) ферромагнитных спин-волновых возбуждений типа спиновых волн (ω_0 — частота; γ — затухание; q — волновой вектор). Возможность возникновения таких возбуждений при $T > T_N$ обусловлена влиянием на спиновую подсистему (S-подсистему) случайных изинговских полей $h^z_{i\sigma} = \lambda < \sigma^z_i >$ в состоянии OG, где $<\sigma^z_i>$ — локальное значение замороженного орбитального момента в состоянии OG. Таким образом, имеется самосогласованное взаимодействие спиновой и орбитальной подсистем.

Мы полагаем, что в орбитальной подсистеме в состоянии OG имеется случайное изинговское поле с компонентами $h^z_\sigma(q^z_\sigma)$, для которых волновые векторы q^z_σ изменяются в пределах $q^z_{\sigma\,\min} < q^z_\sigma < q^z_{\sigma\,\max}$, т.е. предполагается, что состояние OG в упорядоченной системе можно представить как сосуществование волн орбитальной плотности с широким набором волновых векторов.

Рассмотрим обратное влияние случайных полей $h^z_\sigma(q^z_\sigma)$ на состояние $2D$ HAF спиновых флуктуаций в S-подсистеме. Согласно работе [9], при выполнении условий $T << 2\pi\rho_s$ и $q_s\xi(T) \geq 1$ статическая восприимчивость S-подсистемы $\chi(q_s, T) \simeq \sigma_{\alpha\beta}\chi^0_\perp$ (при этом волновой вектор $q_s = q - q_{AF}$ отсчитывается от положения AF вектора, соответствующего брэгговскому пику, а $\chi^0_\perp$ — однородная восприимчивость в перпендикулярном AF вектору направлении при $T = 0$ K).

Проанализируем изменение состояния $2D$ S-подсистемы (при $T > T_N$) под влиянием поля $h^z_\sigma(q^z_\sigma)$, когда величина q^z_σ является определенной и соответствует предельным случаям $q^z_{\sigma\,\min}$ и $q^z_{\sigma\,\max}$, характерным для OG. При этом для S^z-компонент спинов наряду с корреляционным радиусом $\xi(T)$ возникает масштаб корреляции $\varepsilon^z_\sigma = 1/q^z_\sigma$ под влиянием поля $h^z_\sigma(q^z_\sigma)$. Пусть $q^z_{\sigma\,\min} \to 0$, при этом $\varepsilon^z_\sigma \to \varepsilon^z_{\sigma\,\max}$ и можно считать, что при всех температурах $T > T_N$ величина $\varepsilon^z_{\sigma\,\max} > \xi(T)$. В S-подсистеме сохраняется изотропный радиус $2D$ HAF спиновых флуктуаций, а на локальном масштабе $l << \xi(T)$ имеется практически однородное поле $h^z_\sigma(q^z_{\sigma\,\min})$. При $q^z_{\sigma\,\min} \to 0$ величина $q_s \to q_{AF}$ и $\chi(q_s, T) \simeq \chi^0_\perp$. В результате в слоях в S-подсистеме на масштабе $l << \xi(T)$ возникнет слабый ферромагнитный момент $m^z_i \propto \chi^0_\perp h^z_\sigma(q^z_\sigma)$. При этом на масштабе $l << \xi(T)$ AF вектор будет расположен в плоскости xy.

Если же $q^z_{\sigma\,\max} \to q_{AF}$, то $\xi^z_\sigma \to \xi^z_{\sigma\,\min} \sim a$ и при всех температурах $T > T_N$ величина $\xi^z_{\sigma\,\min} < \xi(T)$. На локальных масштабах $l << \xi(T)$ на $2D$ HAF спиновые флуктуации действует поле $h^z_\sigma(q_{AF})$ (типа staggered field) и в S-подсистеме произойдет кроссовер от $2D$ гейзенберговского к $2D$ изинговскому ($2D$ Is) состоянию. AF вектор при этом на локальном масштабе $l << \xi(T)$ ориентирован вдоль оси z.

Поскольку мы приняли, что в состоянии OG имеется сосуществование компонент $h^z_\sigma(q^z_\sigma)$ с $q^2_{\sigma\,\min} < q^z_\sigma < q^z_{\sigma\,\max}$, можно допустить, что в S-подсистеме в слоях могут сосуществовать как локальные состояния со слабым ферромагнитным моментом ($2D$ HAF фаза), так и локальные состояния с AF вектором вдоль оси z ($2D$ IsAF фаза). При этом $2D$ HAF фаза будет характерна для сравнительно малых q^z_σ, примыкающих к $q^z_{\sigma\,\min}$, а $2D$ IsAF фаза — для q^z_σ, примыкающих к $q^z_{\sigma\,\max}$. Соотношение фазовых объемов этих двух фаз будет изменяться при варьировании температуры вследствие зависимости $\xi(T)$. При каждой температуре, при которой происходит кроссовер от $2D$ HAF к $2D$ IsAF состоянию, имеется $q^z_{\sigma\,\mathrm{cr}} = 1/\xi^z_{\sigma\,\mathrm{cr}}$. Существует и температура $T = T_{\mathrm{cr}}$, при которой кроссовер $2D$ HAF—$2D$ IsAF происходит для наиболее вероятных в Гауссовом распределении состояний орбитального стекла.

Отметим, что для $2D$ HAF фазы $<m^z_i> = 0$. Однако из-за наличия AF межслоевого обмена с константой $J^\perp (J^\perp << J)$ на масштабе $l << \xi(T)$ возникнет взаимодействие $J^\perp m^z_i m^z_k$ (позиции i и k — ближайшие ионы Cu^{2+} в соседних слоях), которое может приводить к появлению ограниченных областей квазидвумерного порядка с AF векторами в плоскостях xy. Однако в присутствии изинговского случайного поля h^z_σ дальний $3D$ AF порядок возникнуть не может [14].

В $2D$ IsAF фазе корреляционный радиус спиновых флуктуаций значительно меньше, чем для $2D$ HAF фазы [15] и нет усиления орбиталь-орбитального взаимодействия через магноны из-за дальнодействия. Мы полагаем, что для $2D$ IsAF фазы преобладает орбиталь-орбитальное взаимодействие через фононы, приводящее к вибронному эффекту Яна—Теллера. В результате возникают локальные структурные искажения и орбитальное стекло, описываемое плотностью состояний $g_2(1/\omega, T)$.

Работа поддержана Российским фондом фундаментальных исследований (ГР No. 94-02-05025) и совместным грантом (J5X 100) Международного научного фонда и Российского правительства.

1. А. В. Бабинский, С. Л. Гинзбург, Е. И. Головенчиц, В. А. Санина, *Письма в ЖЭТФ* 57, 289 (1993).
2. J. M. Tranquada, S. Heald, and S. Moodenbaugh, *Phys. Rev.* **B36** 8401 (1988).
3. E. Courtens, *Phys. Rev.* **B33**, 2975 (1986).
4. А. В. Бабинский, Е. И. Головенчиц, Н. В. Морозов, В. А. Санина, Л. М. Сапожникова, *ФТТ* **34**, 60 (1992).
5. S. Iha, D. Suyanto, and R. Hogg, *Hyperfine Interaction* **61**, 1143 (1990).
6. С. В. Малеев, *Письма в ЖЭТФ* **61**, 43 (1995).
7. M. Matsuda, K. Yamada, K. Kakurai, H. Kadowaki, T. R. Thurston, Y. Endoh, Y. Hidako, R. J. Birgeneau, M. A. Kastner, P. M. Gehring, A. H. Moudden, and G. Shirane, *Phys. Rev.* **B42** 10098 (1990).
8. T. Yildrim, A. B. Harris, O. Entin-Wohiman, and A. Aharony, *Phys. Rev. Lett.* **72**, 3710 (1994).
9. S. Chakravarty, B. Halperin, and D. Nelson, *Phys. Rev.* **B39**, 2344 (1989).
10. T. Chatopadhyaya, J. W. Lynn, N. Rosov, T. E. Grigereit, S. N. Barilo, and D. I. Zhigunov, *Phys. Rev.* **B49**, 9944 (1994).
11. Е. И. Головенчиц, С. Л. Гинзбург, В. А. Санина, А. В. Бабинский, *ЖЭТФ* **107**, 1641 (1995).
12. С. Л. Гинзбург, *Необратимые явления в спиновых стеклах*, Наука, Москва (1989).
13. A. Abragam and B. Bleaney, *Electron Paramagnetic Resonance of Transition Ions*, Clarendon Press, Oxford (1970).
14. Y. Imre and S. Ma, *Phys. Rev. Lett.* **35**, 1399 (1975).
15. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Статистическая физика*, Наука, Москва (1964).

Orbital glass state in quasi-two-dimensional Heisenberg antiferromagnet Eu_2CuO_4

E. I. Golovenchits, V. A. Sanina, and A. V. Babinsky

The orbital glass state, induced by 2*D* Heisenberg antiferromagnetic spin fluctuations with large correlation radii, is studied. Such an orbital glass possesses a lot of specific properties along with traditional ones typical of spin glasses. The properties of the orbital glass are supposed to be due to the self-consistent interaction between spin and orbital subsystens of the crystal.