УДК 538.945;537.621.32

В.А. Бородин[1], В.Д. Дорошев[1], Ю.Г. Пашкевич[1], Т.Н. Тарасенко[1], С.Н. Барило[2]

ИНДУЦИРОВАННАЯ ДАВЛЕНИЕМ НОВАЯ МАГНИТНАЯ ФАЗА В Gd_2CuO_4

[1]Донецкий физико-технический институт им. А.А. Галкина НАН Украины
340114, г. Донецк, ул. Р. Люксембург, 72

[2]Институт физики твердого тела и полупроводников НАН Беларуси
220072, г. Минск, ул. П. Бровки, 17

Статья поступила в редакцию 27 октября 1998 года

При изучении влияния высокого гидростатического давления на магнитное упорядочение медных подрешеток в слабоферромагнитном квазидвумерном магнетике Gd_2CuO_4 обнаружена новая магнитная фаза, индуцированная высоким давлением $P > 10,5$ кбар.

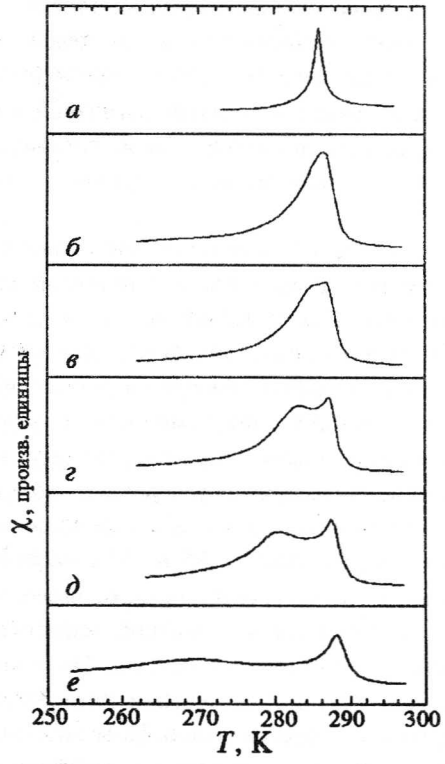
Настоящая работа продолжает исследования влияния высокого давления на магнитное упорядочение квазидвумерных магнетиков – купратов R_2CuO_4 (R – лантаноиды). Ранее при изучении методом ЯКР ^{139}La [1,2] влияния всестороннего сжатия на подрешеточную намагниченность орторомбического La_2CuO_4 (пространственная группа Cmca) были объяснены причины неоднозначности существовавших литературных данных для dT_N/dP и оценена роль различных внутри- и межслоевых взаимодействий в формировании магнитного порядка. К сожалению, в случае кристаллов с R = Pr, Nd, Sm, Eu (имеющих более простую кристаллическую тетрагональную структуру T'-типа с пространственной группой I4/mmm и чисто антиферромагнитное упорядочение) резонансные радиочастотные исследования (ЯМР $^{63/65}Cu$) вблизи $T_N(Cu) \approx 275$ K не могут быть реализованы по причине чрезмерного увеличения скорости ядерной магнитной релаксации, а прямые измерения магнитной восприимчивости малоинформативны ввиду отсутствия острых аномалий. Такое положение является досадным, поскольку теоретическая интерпретация данных для T'-структуры была бы более простой и однозначной.

Купрат Gd_2CuO_4 – последнее соединение в ряду R_2CuO_4, которое может быть синтезировано при нормальном давлении, поскольку T'-структура становится неустойчивой при дальнейшем уменьшении радиуса редкоземельного иона. Как показали многочисленные исследования (напр., [3]), уже в случае Gd_2CuO_4 присутствуют локальные искажения T'-структуры, заключающиеся в развороте кислородного квадрата, координирующего ион меди, на угол 5,2°. Для Gd_2CuO_4 предложена орторомбическая пространственная группа Acam, однако различие параметров решетки a и b настолько мало, что не может быть измерено экспериментально [4]. Тем не менее понижение симметрии обусловливает появление слабого ферромагнетизма и характерного для легкоплоскостных слабых ферромагнетиков очень острого пика магнитной восприимчивости при $T_N(Cu) \approx 285$ K [5] с шириной по температуре ~ $(H_D/H_E)^2$. Наличие этой аномалии дает возможность провести надежные исследования влияния высокого давления на $T_N(Cu)$. Интерес к изучению магнетизма Gd_2CuO_4 обусловлен не только низкой размерностью магнитной подсистемы. Этот кристалл характеризуется каскадом фазовых превращений. Так, при понижении температуры ниже 658 K происходит кристаллографический переход из тетрагональной фазы I4/mmm в орторомбическую Acam. Далее при $T_N(Cu) \approx 285$ K реализуется скошенное антиферромагнитное упорядочение медных подрешеток, при $T_C \approx 20$ K – переход слабый ферромагнетизм–антиферромагнетизм [6], а при $T_N(Gd) \approx 6,4$ K – спонтанное антиферромагнитное

упорядочение редкоземельных подрешеток в виде чередующихся ферромагнитных слоев с противоположными направлениями моментов [7]. Кроме того, Gd_2CuO_4 является единственным соединением в ряду $R_{2-x}(Ce,Th)_xCuO_4$, которое не обнаруживает сверхпроводимости при допировании.

Измерения начальной магнитной восприимчивости выполнены радиочастотным методом на частоте 1 МГц. Образцами служили плотные спеченные поликристаллы Gd_2CuO_4, синтезированные по стандартной керамической технологии из окислов, а также порошки, полученные размельчением исходных поликристаллов. Гранулометрический анализ порошков выполнен методами оптической микроскопии. Высокие гидростатические давления до 16 кбар создавались в стальной камере типа цилиндр–поршень с каналом диаметром 11 мм. Средой, передающей давление, в большинстве случаев являлся полиэтилсилоксан ПЭС-5. Величина давления измерялась манганиновым манометром, а температура – термопарой медь–константан.

На рис. 1 представлены характерные температурные зависимости восприимчивости вблизи T_N(Cu) при различных давлениях для порошка с размером гранул ~ 10–20 мкм (что меньше размеров кристаллитов исходного спеченного поликристалла). До давлений порядка 10,5 кбар наблюдается одиночный острый пик восприимчивости при T_N(Cu), который с ростом давления смещается в сторону высоких температур со скоростью $dT_N(Cu)/dP \approx$ $\approx$ 0,15 К/кбар. Это значение барического коэффициента температуры Нееля гораздо ниже величины 0,75 К/кбар, измеренной в [1,2] для La_2CuO_4, и в несколько раз ниже оценочного значения, вытекающего из скорости изменения внутриподрешеточного обменного интеграла J_{AF} под давлением в слоистых купратах [1]. Теоретический анализ влияния обменных и релятивистских взаимодействий на значение T_N в La_2CuO_4, приведенный в [1], наглядно показал, в частности, что барический коэффициент T_N может изменяться в широ-



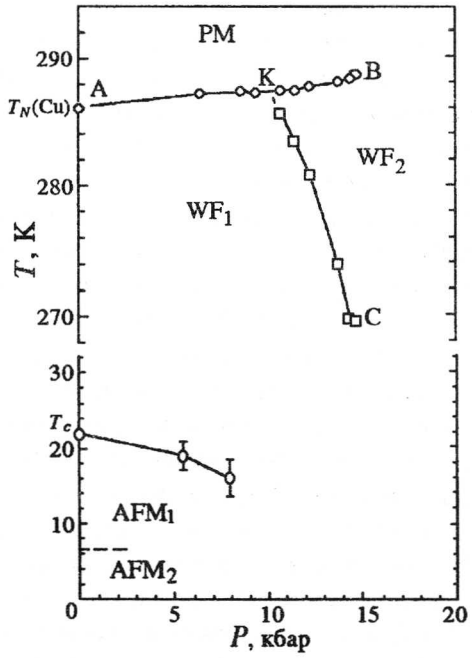


Рис. 1. Температурные зависимости начальной восприимчивости в окрестности T_N(Cu) при различных давлениях, кбар: *а* – 0; *б* – 10,3; *в* – 10,8; *г* – 11,4; *д* – 12,3; *е* – 14,5

Рис. 2. (*P*,*T*)-магнитная фазовая диаграмма Gd_2CuO_4 (пояснения в тексте)

ких пределах (вплоть до изменения знака) в зависимости от направления изменения соответствующего параметра при возрастании давления. Например, увеличение под давлением взаимодействия Дзялошинского может существенно понизить скорость возрастания T_N, обусловленную ростом обменного интеграла J_{AF}. Таким образом, теоретический полуколичественный анализ барической зависимости T_N(Cu) Gd_2CuO_4, аналогичный работе [1], может стать возможным только при наличии результатов кристаллографических исследований структуры этого соединения под давлением.

При увеличении приложенного давления выше критического значения $P_к \approx 10{,}5$ кбар появляется дополнительный уширенный, но весьма интенсивный пик восприимчивости, который движется в сторону низких температур со значительной скоростью 5–10 К/кбар (рис. 1). Этот новый максимум не регистрируется в неразмолотых спеченных поликристаллах, а также в грубых порошках с размерами гранул, превышающими размеры кристаллитов спеченных поликристаллов. Контрольный опыт с использованием мелкого одиночного монокристалла в высокогидростатичной среде – бензине – показал, что дополнительный максимум проявляется именно в однородном состоянии Gd_2CuO_4 и маскируется в неоднородных состояниях, возможно, вследствие неоднородности напряжений.

Экспериментальные данные в форме (P,T)-фазовой диаграммы представлены на рис. 2. Выше линии АКВ, отвечающей основному узкому пику восприимчивости, как медная, так и редкоземельная подсистемы находятся в парамагнитном состоянии. Ниже этой линии в медной подсистеме возникает антиферромагнитный порядок со слабым ферромагнетизмом, а редкоземельная подсистема остается парамагнитной. Линия КС, отображающая положение дополнительного уширенного пика восприимчивости, разделяет область слабого ферромагнетизма на две области WF_1 и WF_2, а точка К является тройной точкой. Известно [6], что при понижении температуры до $T_C \approx 20$ К в Gd_2CuO_4 реализуется фазовый переход слабый ферромагнетизм–антиферромагнетизм, а в процессе дальнейшего понижения температуры упорядочивается гадолиниевая подсистема при T_N(Gd) = 6,4 К [7], разделяя антиферромагнитную область на две – AFM_1 и AFM_2. Поскольку измерения начальной восприимчивости позволяют только обнаружить фазовый переход, относительно природы нового фазового перехода и магнитной структуры Gd_2CuO_4 в области WF_2 можно только сделать следующие предположения:

1. Линия КС является продолжением на P,T-диаграмме линии кристаллографического перехода из тетрагональной фазы I4/mmm в орторомбическую Acam, берущей начало в точке $P = 0$, $T = 658$ К. Но в таком случае магнитный фазовый переход на линии КВ должен отвечать чисто антиферромагнитному упорядочению в тетрагональной фазе, при котором не должен наблюдаться острый пик восприимчивости. Однако экспериментально не отмечено изменение характера температурной аномалии восприимчивости вдоль линии АКВ. Кроме того, крутизна линии КС ~ 40 К/кбар слишком высока для оксидных кристаллов.

2. Линия КС есть продолжение линии фазового перехода $WF_1 \Leftrightarrow AFM_1$, берущей начало в точке $P = 0$, $T_C \approx 20$ К, а область WF_1 является замкнутой. Для проверки данного предположения мы изучали поведение восприимчивости в доступной для нас низкотемпературной области $20 \le T \le 77$ К. Предварительные результаты показывают, что температура этого перехода понижается с ростом давления (см. рис. 2), т.е. сделанное предположение также маловероятно.

3. В настоящее время мы считаем наиболее вероятным, что линия КС отвечает ориентационному магнитному фазовому переходу в слабоферромагнитной фазе, индуцированному высоким давлением $P > 10{,}5$ кбар. Такой переход может иметь место в результате изменения характера внутриплоскостной магнитной анизотропии Gd_2CuO_4. Согласно данным магнитных измерений легкими направлениями в Gd_2CuO_4 при нулевом давлении являются