

MODOS RESONANTES ACOPLADOS FERRO-PARAMAGNETICOS EN $GdEuCuO_4$

A. Fainstein, M. Tovar,
*Centro Atómico Bariloche. Comisión Nacional de Energía Atómica,
C.C. 439, 8400 San Carlos de Bariloche*

Z. Fisk
Los Alamos National Laboratories, New Mexico, USA.

Dos resonancias magnéticas se observan en el compuesto $GdEuCuO_4$: una originada en el paramagnetismo de gadolinio trivalente, la otra asociada con un modo ferromagnético débil en los planos de Cu-O.

En este trabajo presentamos resultados experimentales que muestran una anisotropía y una dependencia con la temperatura del campo de resonancia paramagnética de los Gd^{3+} fuertemente anómala. Introducimos también un modelo teórico que explica estos datos en términos de modos resonantes acoplados ferro-paramagnéticos, originados en el acoplamiento por intercambio entre espines de Cu y Gd.

INTRODUCCION

El estudio de las propiedades físicas de los compuestos TR_2CuO_4 ($TR=Pr, Nd, Sm, Eu$ o Gd) presenta actualmente especial interés por ser los sistemas base de los superconductores de alta temperatura crítica $TR_{2-x}(Ce, Th)_xCuO_{4-\delta}$ ^[1]. Desde el punto de vista magnético y al igual que las versiones no superconductoras de los compuestos La_2CuO_4 y $YBa_2Cu_3O_7$, presentan orden antiferromagnético de los momentos de Cu^{2+} para temperaturas inferiores a 290K^[2]. La estructura cristalina de estos materiales es tetragonal, con planos de CuO_2 en los cuales los átomos de oxígeno están coordinados en forma cuadrado planar con los cobres; las tierras raras están fuera de los planos, coordinadas por ocho oxígenos^[1].

El compuesto $GdEuCuO_4$ pertenece a una subfamilia de éstos: la que constituyen los óxidos formados con mezclas de las tierras raras de menor radio iónico ($TR=Sm, Eu, Gd$ o Tb), con propiedades magnéticas particulares y complejas^[3]. Para temperaturas mayores que 290K, la susceptibilidad magnética es esencialmente descripta por el paramagnetismo de la TR, pero por debajo de esta temperatura aparecen cambios importantes: mediciones de magnetización vs. campo magnético muestran la aparición de una componente ferromagnética débil para el caso en que el campo magnético externo (H_0) es aplicado paralelo a los planos CuO_2 . Esto, junto con la dependencia con la temperatura de la magnetización, es interpretado^[3] como debido a la aparición de un campo interno, H_i , actuando sobre los Gd;

este campo interno es paralelo a los planos de CuO_2 y estaría originado por una pequeña componente ferromagnética de los espines de Cu ordenados esencialmente antiferromagnéticamente con la magnetización en los planos. Esta contribución ferromagnética débil a la magnetización es de $(2\pm 2)10^{-3}\mu_B/Cu$ y $H_{i2} \cong 800$ G para $T = 200K$. Además de esto, por debajo de $T \cong 290K$ se produce la aparición de una resonancia magnética a bajos campos (campo de resonancia $H_r < 500G$ para frecuencias de 35 Ghz) que ha sido asociada^[5] con un modo ferromagnético débil^[6] de los Cu levemente alabeados de un estado antiferromagnético puro. Este modo puede ser descripto, para H_0 paralelo a los planos, por la ecuación

$$\omega/\gamma = [H_0(H_0 + H_D)]^{1/2} \quad (1)$$

que relaciona la frecuencia de resonancia ω con la razón giromagnética $\gamma \cdot H_0$ y un campo efectivo H_D originado en un intercambio antisimétrico tipo Dzyaloshinsky-Moriya.

Una de las características más sobresalientes de este modo es una fuerte anisotropía (fig. 1), revelada por una divergencia tipo $1/\cos(\theta)$ en el campo de resonancia H_r al rotar el campo magnético H_0 desde los planos de Cu-O hacia una dirección perpendicular a éstos. Esto se debe a la fuerte anisotropía que "acuesta" la magnetización en los planos: en ese caso, el único campo efectivo para producir la resonancia es la componente paralela a los planos y entonces la ecuación (1) debe ser corregida por

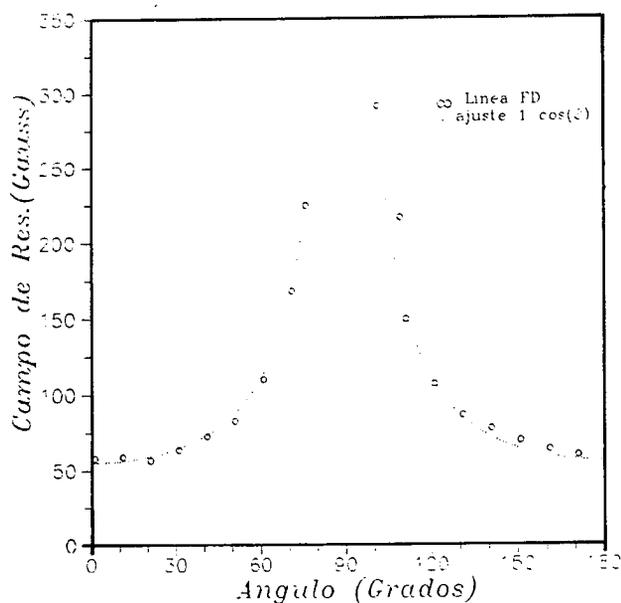


Fig. 1: Campo de resonancia para la línea de “bajos campos” en función del ángulo del campo magnético, la línea punteada corresponde a la forma $H_r(\theta) = H_r(0) / \cos(\theta)$ obtenida por cuadrados mínimos.

$$\omega/\gamma = [H_0 \cos(\theta) (H_0 \cos(\theta) + H_D)]^{1/2} \quad (2)$$

donde θ mide el ángulo desde los planos, y que da el comportamiento observado.

Estos compuestos presentan, además, la situación novedosa de presentar en un amplio rango de temperatura ($20\text{K} \leq T \leq 290\text{K}$), la coexistencia de dos sistemas magnéticos: estos planos ordenados anti-ferromagnéticamente y una red de TR en estado paramagnético.

En este trabajo presentamos datos referidos a la resonancia paramagnética correspondientes a Gd trivalente ($4f^7, {}^8\text{S}_{7/2}$), que muestran una sorprendente anisotropía, difícil de entender en términos de una resonancia paramagnética pura. Introducimos también un modelo que explica esencialmente estas anomalías, considerando los modos no como excitaciones independientes, sino como resonancias acopladas debido a una interacción de intercambio entre espines de Cu y Gd.

RESULTADOS EXPERIMENTALES

Hemos realizado un estudio de la dependencia, con la temperatura y el ángulo, del campo magnético de la resonancia asignada al G_d^{3+} en monocristales de

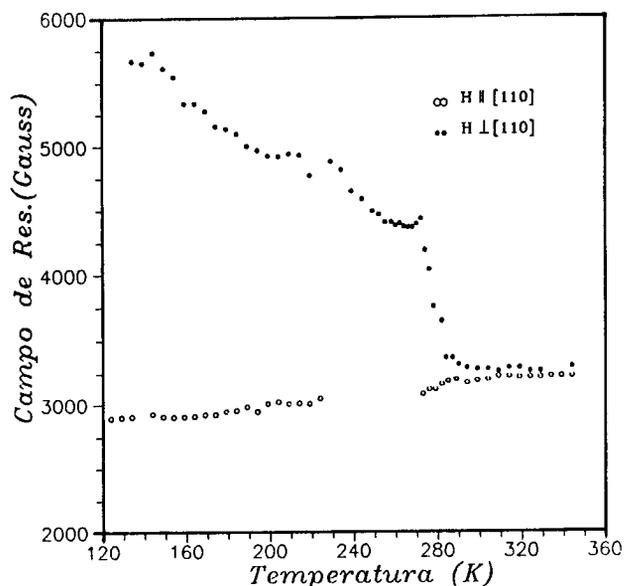


Fig. 2: Campo de resonancia para la línea de Gd en función de la temperatura, para dos ángulos $\theta = 0^\circ$ (paralelo a [110]) y $\theta \approx 90^\circ$ (perpendicular a los planos).

GdEuCuO_4 ; se observa una sola línea ancha ($\approx 2000\text{G}$) no resolviéndose la estructura fina debida al campo dipolar entre iones de G_d^{3+} . Las mediciones de ESR se hicieron con un espectrómetro Bruker ESP-300 operando a 9.5 Ghz y variando la temperatura entre 100 y 350K.

En la fig. 2 presentamos la dependencia con la temperatura del campo de resonancia H_r para dos ángulos del campo aplicado, uno en la dirección [110], paralela a los planos, y otra aproximadamente perpendicular. Se puede observar que, por sobre 290 K, la señal es esencialmente isotrópica y con H_r muy cercano al esperado para $g=2$ correspondiente al Gd. Sin embargo, al bajar la temperatura, el comportamiento es marcadamente distinto. Para H_0 paralelo al plano se produce un corrimiento de H_r , comenzando aproximadamente en 290 K y saturando en un valor de 320 ± 20 Gauss; esto es coherente con la aparición del H_i observado en la magnetización, en la dirección correcta, pero de un valor algo menor a los 800 Gauss esperados. Lo más sorprendente, en cambio, es un brusco corrimiento para H_0 perpendicular al plano, que aparece también a 290 K y que supera los 2000 Gauss.

Para tratar de entender esta anomalía, hicimos estudios a distintas temperaturas de la dependencia

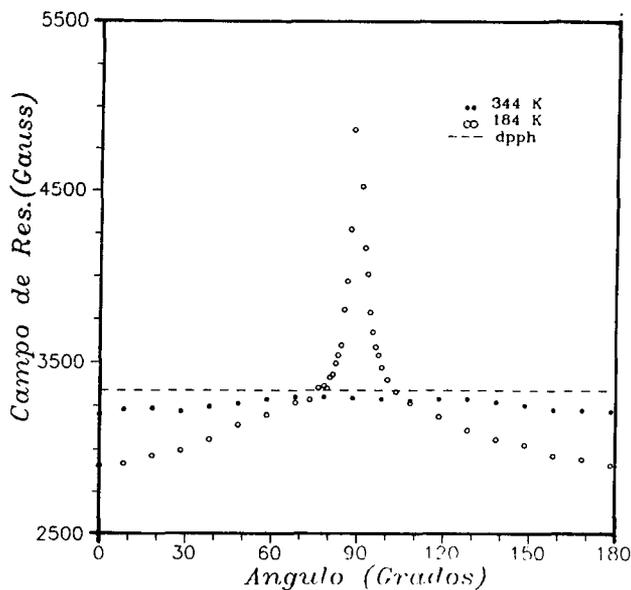


Fig. 3: Campo de resonancia para la línea de Gd en función del ángulo, para T=344K (círculos llenos) y T=184K (círculos vacíos). La línea cortada corresponde a g=2 (dpph).

angular de H_r al rotar el campo desde la dirección [110] en el plano, a otra perpendicular al mismo. En la fig. 3 mostramos estos datos para T=344K y T=184K, junto con el valor esperado para una resonancia de g=2(dpph). Se puede ver que, efectivamente, para T>290K la señal es esencialmente isotrópica, pero que, para T<290K, H_r muestra una dependencia angular anómala, aparentemente divergente cuando H_0 se pone perpendicular a los planos. Si H_0 fuese la única fuente que contribuyese al corrimiento, H_r tendería a H_{dpph} para $\theta=90^\circ$; sin embargo, este cruce se produce para $\theta \cong 65^\circ$, y después H_r continúa aumentando hasta valores extremadamente altos para θ tendiendo a 90° . Un análisis de los datos muestra que el comportamiento es también divergente como $1/\cos(\theta)$ al tender θ a 90° .

MODELO TEORICO

No es posible argumentar que actúa sobre los Gd un campo interno que diverge, más aún cuando no se observa nada similar en las mediciones de magnetización. Tampoco se puede usar el mismo argumento que explicaba una divergencia similar en la señal de bajos campos, ya que, estando los Gd en estado paramagnético, siguen al campo externo. Pensamos que este "contagio" del comportamiento tipo $1/\cos$

θ de la resonancia de Gd, indica un acople entre ambos sistemas magnéticos y por lo tanto formulamos una teoría de modos resonantes acoplados: el modo ferromagnético débil (FD) y el modo paramagnético (PM).

Proponemos un Hamiltoniano que describe al sistema del tipo

$$H = E_0 + \hbar\omega_{FD}c^+c + \hbar\omega_{PM}g^+g \quad (3)$$

donde E_0 es la energía del estado fundamental, $c^+|()>$ es un estado de un magnón ferromagnético débil con energía dada por la ecuación (2) y $g^+|0>$ describe las excitaciones paramagnéticas con energía dada por $\omega_{PM}/\gamma = H_0$. A este Hamiltoniano de excitaciones independientes le agregamos un término de acople tipo Heisenberg entre los espines de Cu y Gd

$$H_{int} = -J S \cdot s \quad (4)$$

donde J es la constante de intercambio, S corresponde al momento ferromagnético del Cu y s al Gd. Teniendo en cuenta que S está fijo en los planos, mientras que s sigue al campo H_0 , se puede transformar este H_{int} a operadores de 2^a cuantificación mediante la transformación de Holstein-Primakoff [7], obteniéndose

$$H_{int} = [\hbar\omega_{FD} + J\cos\theta]c^+c + [\hbar\omega_{PM} + JS\theta]g^+g - \frac{J}{2}(Ss)^{1/2}(1+\cos(\theta))[cg^+ + c^+g] \quad (5)$$

más términos que [ver ⁽⁵⁾] son de menor importancia para describir las excitaciones acopladas. Este Hamiltoniano tiene las componentes esenciales para describir los resultados experimentales: los elementos diagonales aparecen corridos, justamente debido a los campos internos de un sistema magnético sobre otro, mientras que el término no diagonal es el típico de un acople resonante. Es, además, fácilmente diagonalizable, proponiendo operadores del tipo $\alpha^+=uc^+ + vg^+$ y $\beta^+=vc^+ - ug^+$ con u y v reales, que satisfacen reglas de conmutación bosónicas si c y g lo hacen. Las frecuencias de las nuevas excitaciones son

$$\lambda_{\pm} = \left(\frac{\omega_{FD}^* + \omega_{PM}^*}{2}\right) \pm \left\{ \left(\frac{\omega_{FD}^* + \omega_{PM}^*}{2}\right)^2 + \omega_1^2 \right\}^{1/2} \quad (6)$$

donde los ω^* se refieren a las frecuencias corridas por los campos internos y $\hbar\omega_1 = (J/2)(Ss)^{1/2}(1+\cos(\theta))$ (I se refiere al término de interacción). El cálculo de los autovectores muestra que, para $\Delta\omega^* \gg \omega_1$, el

comportamiento es esencialmente el de las excitaciones independientes, pero que, cuando $\Delta\omega^*$ tiende a cero, es decir las excitaciones se hacen degeneradas, la mezcla es máxima y los nuevos modos resonantes son combinación con igual peso de ambos tipos de excitaciones. Para H_0 en el plano, se satisface que $\Delta\omega^* \gg \omega_1$ y por lo tanto puede hacerse un desarrollo de (6) para obtener la frecuencia de resonancia del Gd corregida por el acople

$$\omega/\gamma = H_0 + H_{iGd} - H_{iCu} - H_{iGd} / \{ [H_0 (H + H_D)]^2 + H_{iCu} - H_0 - H_{iGd} \} \quad (7)$$

donde H_{iGd} y H_{iCu} son los campos internos sobre el Gd y el Cu respectivamente. Se puede ver que H_r debe correrse entonces no sólo debido al campo interno H_{iGd} , como se observa en las mediciones de magnetización, sino que aparece un corrimiento, con el signo correcto, debido a un acople dinámico de los modos.

Los campos internos pueden obtenerse de las mediciones de magnetización y de la (7), y suponiendo que los ≈ 500 Gauss de diferencia ya

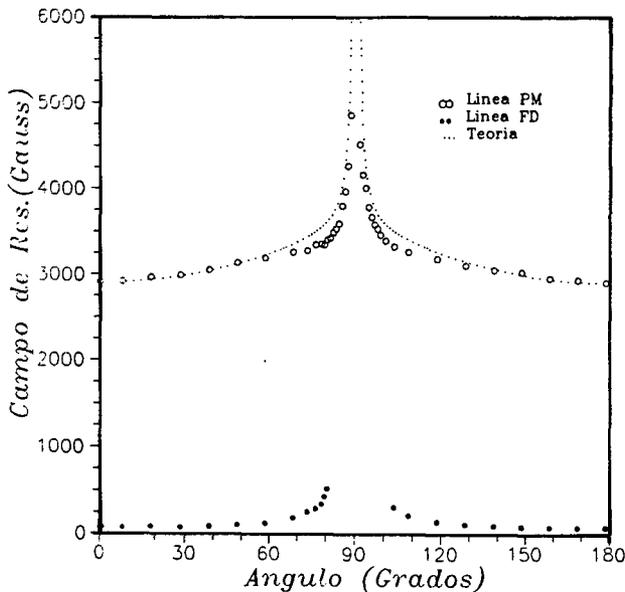


Fig. 4: Campos de resonancia en función del ángulo para la línea de bajos campos (círculos llenos) y la línea de Gd (círculos vacíos) para $T=184K$. La línea punteada corresponde a la teoría descrita en el texto.

citados tienen este origen, se puede obtener H_D . Con los datos de la fig.3 obtuvimos $H_D \approx 10^5$ Gauss, un valor coherente con los momentos ferromagnéticos débiles estimados, si se tiene en cuenta que los campos de intercambio entre cobres medidos en estos sistemas son del orden 10^7 Gauss [2]. Con este dato podemos modelar entonces el comportamiento de la resonancia asociada al Gd para cualquier ángulo usando la ecuación (6). En la figura 4 mostramos la dependencia del campo de resonancia con el apartamiento del plano Cu-O, junto con los resultados experimentales para los campos de resonancia de ambos modos en el caso particular de $T=184K$. El acuerdo entre teoría y experimento es bueno, especialmente hasta ángulos del orden de 70° separándose un poco ambas curvas luego, pero manteniendo un acuerdo cualitativo.

DISCUSION

Presentamos resultados experimentales que muestran una anomalía en el comportamiento angular de la resonancia asociada al Gd en $GdEuCuO_4$ y un modelo teórico que explica estos datos en términos de modos acoplados. El modelo predice la propagación del comportamiento divergente tipo $1/\cos(\theta)$, ya que las autofunciones ya no corresponden a excitaciones independientes, sino que son mezclas de ambos tipos de modos. Permite también explicar porque el corrimiento de la resonancia paramagnética para H_0 en el plano es distinto al H_{iGd} medido en condiciones estáticas, y de allí se puede obtener un valor para H_D . Por último, y sin parámetros libres, se puede explicar satisfactoriamente la dependencia angular de H_r .

REFERENCIAS

1. Y. Tokura et al., Nature 337,345 (1989).
2. J.M. Tranquada et al., Phys. Rev. Lett. 60, 156 (1988); J. W. Lynn et al., ibid. 60, 2781 (1988); D.C. Johnson et al., Phys. Rev., B36, 4007 (1987).
3. S.B. Oseroff et al., Phys. Rev. B41, 1934 (1990).
4. J.D. Thompson et al., Phys. Rev. B39, 6660 (1989).
5. A. Fainstein, M. Tovar, no publicado aún.
6. P. Pincus, Phys. Rev. Lett. 5, 13 (1960).
7. C. Kittel, Quantum Theory of Solids, J. Wiley & Sons., 1963, pag. 63.