

# Спиновые корреляции в $\text{YBa}_2(\text{Cu}_{1-x}\text{Fe}_x)_3\text{O}_{7+y}$ -керамике

© Г.П. Копица, В.В. Рунов, А.И. Окорочков

Петербургский институт ядерной физики им. Б.П. Константинова Российской академии наук,  
188350 Гатчина, Ленинградская обл., Россия

(Поступила в Редакцию 10 апреля 1997 г.)

$\text{YBa}_2(\text{Cu}_{1-x}\text{Fe}_x)_3\text{O}_{7+y}$  керамика с  $x = 0.13$  и  $y = 0.4$  изучалась методом малоуглового рассеяния поляризованных нейтронов с целью обнаружения рассеяния на магнитных корреляциях и оценки их характерного масштаба. Измерения проводились в диапазоне температур  $15 \leq T \leq 315$  К и магнитных полей  $0 < H \leq 4500$  Ое. В температурной области  $T < 40$  К обнаружены аномалии в температурных зависимостях интенсивности  $I(T, q)$  (где  $q$  — переданный импульс) и поляризации  $P(T, q)$ . В этой же температурной области наблюдалась интерференция ядерного и магнитного рассеяния. Наблюдаемые эффекты интерпретируются как рассеяние на магнитных корреляциях масштаба  $70 < R < 370$  Å. Обсуждаются необратимые явления и тип магнитного упорядочения.

Несмотря на большое число работ, опубликованных за последние годы, система высокотемпературных сверхпроводников  $\text{YBa}_2(\text{Cu}_{1-x}\text{Fe}_x)_3\text{O}_{7+y}$  продолжает привлекать внимание исследователей в связи с проблемой сосуществования магнетизма и сверхпроводимости.

Согласно данным мессбауэровской спектроскопии [1–3], в данной системе в низкотемпературной области имеет место магнитное упорядочение атомов Fe, предположительно по типу спинового стекла, и, в то же время, сохраняется сверхпроводящее состояние при  $x \leq 0.15$  и достаточном кислородном обогащении. Это предположение подтверждается в ряде работ, выполненных разными экспериментальными методами [4,5]. Однако вопрос о типе и характерном масштабе магнитного упорядочения, на который могли бы дать ответ эксперименты по рассеянию нейтронов, остается открытым, хотя такие эксперименты проводились. В частности, в единственном известном нам эксперименте по малоугловому рассеянию нейтронов [5] наблюдалась крайне слабо выраженная температурная зависимость рассеяния нейтронов при  $T \leq 20$  К, которую авторы, привлекая данные магнитных измерений, интерпретировали как рассеяние на магнитных флуктуациях, не делая дальнейшего анализа предполагаемого магнитного рассеяния из-за его малости на фоне ядерного. В керамике, как известно [6] и отмечается в [5], наблюдается очень сильное ядерное малоугловое рассеяние, обусловленное флуктуациями ядерной плотности, поэтому наблюдать априори слабое магнитное рассеяние на его фоне предпочтительнее используя поляризованные нейтроны. В работе [7] были проведены дифракционные измерения на керамике  $\text{YBa}_2(\text{Cu}_{0.9}\text{Fe}_{0.1})_3\text{O}_{7.2}$  с использованием поляризованных нейтронов. Однако авторы [7] наблюдали лишь парамагнитное рассеяние в области температур 1.5–300 К без признаков дальнего или ближнего магнитного упорядочения, что находится в противоречии с предположениями мессбауэровской спектроскопии.

В настоящей работе найдено рассеяние на спиновых корреляциях в исследуемой керамике при  $T \leq 40$  К.

Вид импульсной зависимости магнитного малоуглового рассеяния, а также необратимости температурной зависимости поляризации при охлаждении и отогреве образца, указывают на возможное магнитное упорядочение по типу спинового стекла в данной системе в низкотемпературной области.

## 1. Описание эксперимента

Исследуемая система, согласно [8], является однофазной с температурой сверхпроводящего перехода  $T_c \cong 9$  К. Измерения проводились на двух образцах одного и того же состава разной толщины. Один из них имел форму цилиндра высотой 25 мм и диаметром 9 мм, другой — пластины  $25 \times 8$  мм<sup>2</sup> толщиной 3 мм. Поляризационные эффекты и рассеяние на тонком образце пропорционально меньше, и, естественно, их сложнее наблюдать. Однако при измерениях на тонком образце можно было пренебречь многократным ядерным рассеянием при анализе зависимости рассеяния от переданного импульса.

Температурные измерения проводились в криорефрижераторе RNK 10-300 в интервале  $15 \leq T \leq 315$  К с точностью  $\Delta T/T \leq 10^{-2}$ . Образец располагался между полюсами электромагнита, что давало возможность проводить измерения в диапазоне полей  $0 < H \leq 4500$  Ое. Электромагнит имел большую угловую апертуру и мог поворачиваться в горизонтальной плоскости на угол  $0 \leq \varphi \leq 30^\circ$  ( $\varphi$  — угол между направлением  $\mathbf{H}$  и  $\mathbf{q}$ ), что позволяло менять направление приложенного магнитного поля относительно  $\mathbf{q}$ .

Эксперимент проводился на реакторе ВВР-М ПИЯФ РАН на многодетекторной установке малоуглового рассеяния поляризованных нейтронов "Вектор" [9]. Многоканальный анализатор позволял проводить измерения поляризации рассеянных нейтронов  $P(T, q) = (I(\uparrow) - I(\downarrow)) / (I(\uparrow) + I(\downarrow))$ , где  $I(\uparrow)$  и  $I(\downarrow)$  — интенсивности нейтронов, ориентированных соответственно по или против направления  $\mathbf{H}$ , одновременно для 20-ти углов рассеяния. При измерении магнитно-ядерной интерференции анализатор

снимался и измерялась разность рассеянных нейтронов  $\Delta(T, q) = I(\uparrow) - I(\downarrow)$ . Основные параметры установки в данном эксперименте: средняя длина волны нейтронов  $\lambda = 9 \text{ \AA}$ ,  $\Delta\lambda/\lambda \cong 0.22$ ; диапазон переданных импульсов  $2.7 \cdot 10^{-3} \leq q \leq 3 \cdot 10^{-2} \text{ \AA}^{-1}$ ; поляризация падающего пучка  $P_0 \cong 0.94$ .

## 2. Результаты и обсуждение

Было проведено несколько циклов измерений при разных режимах измерения температуры и в разных магнитных полях, в которых наблюдалась воспроизводимость результатов. Наиболее детально исследовалась низкотемпературная область  $15 \leq T \leq 55 \text{ K}$ , где наблюдалась слабая аномалия, не превышающая 2%, в интенсивности рассеяния вблизи 20 К. Что касается диапазона  $T > 55 \text{ K}$ , то каких-либо изменений в  $P(T, q)$ , выходящих за статистическую ошибку, не наблюдалось. Следует сразу отметить, что в пределах статистической точности не найдено температурных изменений  $P(T, q)$  в рассеянном пучке (т.е. при  $q > 2.7 \cdot 10^{-3} \text{ \AA}^{-1}$ ), также как изменений  $I(T, q)$  и  $P(T, q)$  от величины и направления поля  $\mathbf{H}$  в исследуемом диапазоне. Не найдено также изменений  $I(T, q)$  и  $P(T, q)$  от скорости охлаждения и от температурных циклирования. В то же время предпосылки к этим изменениям есть. По-видимому, статистическая точность измерений и, возможно, диапазон магнитных полей малы для наблюдения этих эффектов.

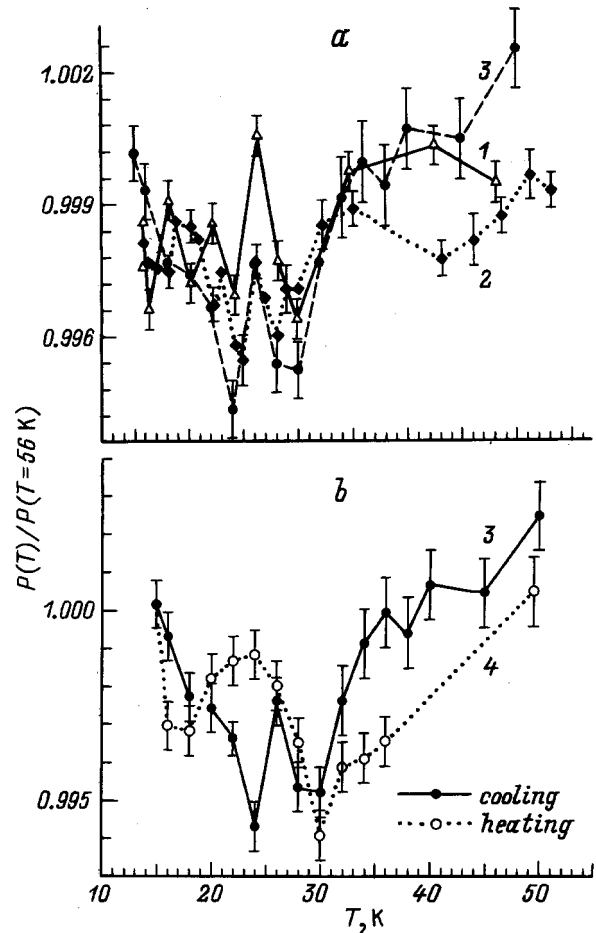
Типичные температурные зависимости  $P(T, 0)$  для нейтронов, рассеянных в пределах центрального счетчика ( $q \leq 2.7 \cdot 10^{-3} \text{ \AA}^{-1}$ ) при различных условиях изменений, приведены на рис. 1. Температурная зависимость разности рассеяния  $\Delta(T)$  показана на рис. 2. Как видно из рис. 1 и 2, наблюдаемые температурные зависимости в  $P(T)$  и  $\Delta(T)$  крайне малы, не превышают 1%, однако статистически разрешимы в эксперименте и имеют довольно хорошо выраженную "W"-образную форму с двумя минимумами и максимумом при  $T \approx 26 \text{ K}$ . Наблюдаемое отличие  $\Delta(T)$  от нуля обусловлено интерференцией ядерного и магнитного рассеяния и, как показано далее, характеризует ограничение видимого в данных измерениях масштаба магнитных корреляций сверху. Как показано в [10], разница  $\Delta(q) = I(\uparrow) - I(\downarrow)$  пропорциональна двум слагаемым

$$\Delta(q) \sim 2\text{Re}[\langle \psi_0 \psi_m^* \rangle + \langle \psi_n \psi_m^* \rangle]. \quad (1)$$

При этом из закона сохранения числа частиц следует, что

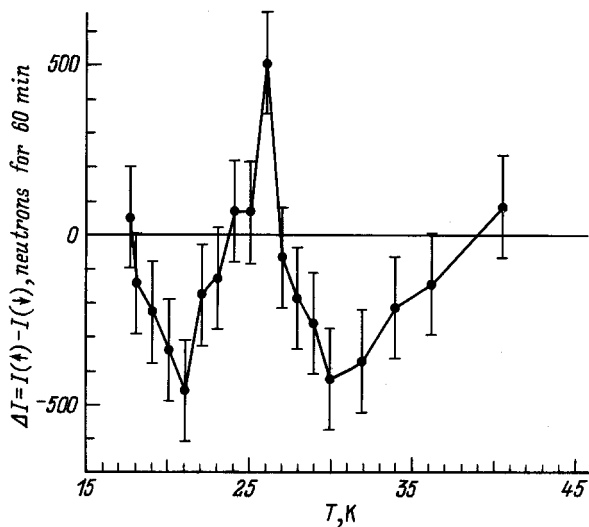
$$\int \Delta(q) dq = 0. \quad (2)$$

Первое слагаемое в (1) соответствует интерференции прямого пучка и магнитного рассеяния, а второе — интерференции ядерного и магнитного рассеяния ( $\psi_0, \psi_n, \psi_m$  — волновые функции нейтронов, не испытавших рассеяния и рассеянных соответственно на ядерном и



**Рис. 1.** Температурные зависимости поляризации нейтронов, рассеянных в пределах прямого пучка ( $q \leq 2.7 \cdot 10^{-3} \text{ \AA}^{-1}$ ), измеренные на образце толщиной 9 мм в различных режимах изменения  $T$  и в разных магнитных полях  $H$ . *a*) 1 — охлаждение в "нулевом" ( $H \approx 20 \text{ Oe}$ ) поле со скоростью  $\approx 2 \text{ K/h}$ , 2 — повторное охлаждение с той же скоростью в поле  $H = 4500 \text{ Oe}$ , параллельном  $\mathbf{q}$  ( $\phi = 0$ ), 3 — охлаждение в поле  $H = 4500 \text{ Oe}$  и  $\phi = 30^\circ$  со скоростью  $\approx 1.4 \text{ K/h}$ ; *b*) 3, 4 — цикл охлаждения-отогрев образца в поле  $H = 4500 \text{ Oe}$  и  $\phi = 30^\circ$ .

магнитном потенциале). Напомним, что знак потенциала магнитного взаимодействия зависит от ориентации поляризации нейтронов относительно поля, что, собственно, и позволяет выделить ядерно-магнитный интерференционный член. Амплитуды ядерного и магнитного рассеяния в борновском приближении выражаются через Фурье-преобразование, соответственно, ядерной и магнитной плотностей длин рассеяния (контраста)  $\delta b^{n,m} = b^{n,m}(\mathbf{r}) - \bar{b}^{n,m}$ , где  $b^{n,m}(\mathbf{r})$  и  $\bar{b}^{n,m}$  — соответственно локальная и средняя длина рассеяния в образце. Таким образом, интерференционный член пропорционален кросс-коррелятору магнитно-ядерных флуктуаций плотности длин рассеяния нейтронов. Как следует из условия (2), слагаемые в выражении (1) должны иметь разные знаки. Это означает, что знаки  $\Delta(q)$  в диапазоне  $q < q_{\min}$  (т.е. в области прямого пучка, где  $q_{\min}$  — предельное импульсное разрешение установки) и в диапазоне  $q > q_{\min}$



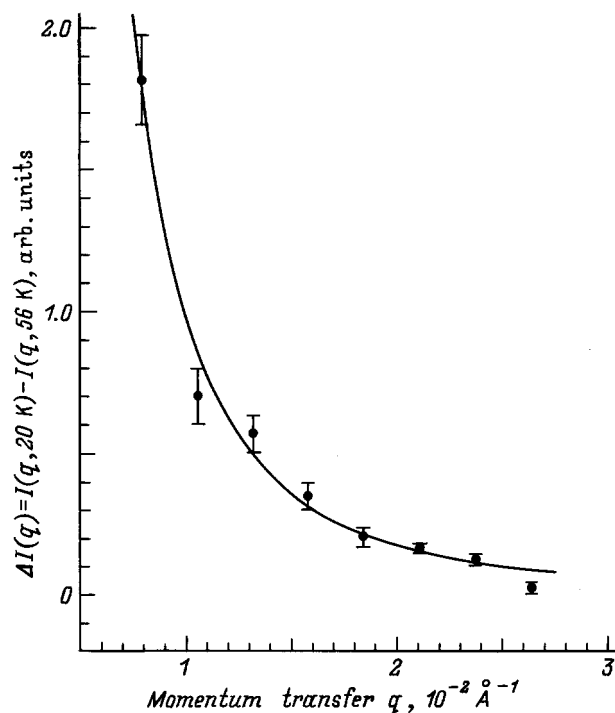
**Рис. 2.** Температурная зависимость разности интенсивностей нейтронов  $\Delta(T) = I(\uparrow) - I(\downarrow)$ , рассеянных в пределах  $q \leq 2.7 \cdot 10^{-3} \text{ \AA}^{-1}$ , с поляризацией по ( $\uparrow$ ) или против ( $\downarrow$ ) прикладываемого магнитного поля. Измерения на образце толщиной 9 мм при охлаждении в поле  $H = 4500 \text{ Oe}$  и  $\phi = 30^\circ$ .

(т.е. в области, где превалирует рассеяние) должны быть разными. Смена знака  $\Delta(q)$  в области прямого пучка и рассеянных нейтронов продемонстрирована в работе [10] при измерении интерференционного эффекта на сверхпроводящей YBCO-керамике. Из-за разности знаков слагаемых в (1) интерференция наблюдается как эффект определенного знака (т.е.  $\Delta(q) \neq 0$ , включая и  $q = 0$ ), если имеется рассеяние и разрешение прибора позволяет разделять рассеяние и прямой пучок. Иными словами, характерный размер рассеивающей системы  $R \leq R_{\text{max}}$ , где  $R_{\text{max}} \approx 1/q_{\text{min}}$  — предельное разрешение прибора. В данном эксперименте  $R_{\text{max}} \approx 370 \text{ \AA}$ . Эта оценка масштаба магнитных корреляций подтверждается и результатами анализа импульсной зависимости избыточной интенсивности рассеяния при низкой температуре, а именно  $\Delta I(q) = I(q, 20 \text{ K}) - I(q, 56 \text{ K})$ , показанной на рис. 3. Рассеяние удовлетворительно описывается зависимостью  $\Delta I(q) \approx 1/(q^2 + \kappa^2)^2$  с величиной характерного радиуса  $R = \kappa^{-1}$ , равной  $100 \pm 30 \text{ \AA}$ . Однако статистическая точность низка и не позволяет сделать выбора вида зависимости рассеяния от переданного импульса, отвечающей определенному виду коррелятора. Данные практически с той же степенью достоверности описываются и зависимостью  $\Delta I(q) \approx q^{-n}$ , где  $n = 2.5 \pm 0.1$ , так что величину характерного радиуса нужно понимать как непротиворечивую оценку, полученную из анализа интерференции, и как оценку масштаба снизу. Суммируя сказанное, можно прийти к выводу о том, что наблюдаемый в эксперименте масштаб магнитных корреляций лежит в диапазоне  $70 < R < 370 \text{ \AA}$ .

В настоящее время нет определенной модели, которая могла бы описать магнитно-ядерную интерференцию в образце. Однако наблюдается противоположный знак

$\Delta(q)$ , чем в работе [10], при наблюдении интерференции в YBCO-керамике при  $T < T_c$  и  $H < 1000 \text{ Oe}$  в режиме включения поля после охлаждения в нулевом поле. В [10] показано, что интерференция возникает при рассеянии на порах, в которые проникает магнитное поле. Противоположный знак интерференционного эффекта в исследуемом образце указывает на то, что изменения ядерной и магнитной рассеивающих плотностей, ответственных за интерференцию, синфазны в образце, т.е. их максимумы (минимумы) совпадают. Из данных по деполяризации с учетом полученной оценки характерного масштаба магнитных корреляций можно получить оценку средней индукции  $\langle B \rangle$  в образце, пользуясь, например, формулой Халперна–Холштейна [11]. В рамках этой модели (т.е. полагая, что для каждой  $i$ -й неоднородности размером  $d_i \approx \langle d \rangle \approx R$  индукция равна  $\delta B_i \approx \langle B \rangle$ , а число неоднородностей  $N = L/\langle d \rangle$ , где  $L$  — толщина образца) среднюю величину индукции можно оценить как  $200 < \langle B \rangle < 400 \text{ G}$  для уровня деполяризации 0.5%.

Полученные в эксперименте статистические точности не позволяют с необходимой достоверностью определить тип магнитных корреляций, однако наблюдаемый в эксперименте вид зависимости  $P(T)$  в какой-то мере аналогичен  $P(T)$ , полученной в [12], в которой изучался фазовый переход парамагнетик–спиновое стекло в неупорядоченном магнетике с конкурирующим обменным взаимодействием. Наблюдается аналогия в несовпадении максимумов  $I(T, q)$  и  $P(T)$  и в затягивании температуры



**Рис. 3.** Импульсная зависимость интенсивности магнитного рассеяния нейтронов (разности  $\Delta I(q) = I(q, 20 \text{ K}) - I(q, 56 \text{ K})$ ). Измерения на образце толщиной 3 мм при охлаждении в поле  $H = 50 \text{ Oe}$ . Точки — эксперимент, сплошная линия — подгонка по формуле  $\Delta I(q) = A/(q^2 + \kappa^2)^2$ .

перехода, а главное, как видно из рис. 1, *b*, в данной системе при охлаждении и отопреве наблюдается необратимость, как и в [12], что является определяющим свойством спин-стекольных систем. Возможно, что "W"- вид наблюдаемых аномалий в поляризации  $P(T)$  и магнитно-ядерной интерференции  $\Delta(T)$  связан с существованием предполагаемых в [13] двух типов упорядочения в данной системе, зависящих от спинового состояния атомов Fe, определяемого их кислородным окружением. Необходимы дальнейшие исследования для получения ответов на эти вопросы.

Авторы благодарны С.В. Малееву за полезные дискуссии, М.К. Руновой за помощь в обработке данных, С.В. Григорьеву, С.А. Клишко и О.В. Радионову за помощь в проведении измерений. Один из авторов (К.П.) благодарит Правительство г. Санкт-Петербурга за индивидуальную финансовую поддержку (грант для молодых ученых, категория "Кандидатский проект").

Работа выполнена на реакторе ВВР-М при финансовой поддержке Миннауки России (рег. № 01-48), а также в рамках Российской программы "Нейтронные исследования вещества" и частично поддержана Российским фондом фундаментальных исследований (проект Л-ЕН 96-1596755).

## Список литературы

- [1] Z.Q. Qiu, Y.W. Du, H. Tang, J.C. Walker, W.A. Bryden, K. Moorjani. *J. Magn. Magn. Mater.* **69**, L221 (1987).
- [2] T. Tamaki, T. Komai, A. Ito, Y. Maeno, T. Fujita. *Solid State Commun.* **65**, 43 (1988).
- [3] I.S. Lyubutin, V.G. Terziev, A.Ya. Shapiro. *Hyperfine Interact.* **61**, 1105 (1990); И.С. Любутин, Т.В. Дмитриева, В.Г. Терзиев. *ЖЭТФ* **102**, 5, 1615 (1992).
- [4] I. Mirebeau, M. Hennion, G. Coddens, T.E. Phillips, K. Moorjani. *Europhys. Lett.* **9**, 2, 181 (1989); I. Mirebeau, M. Hennion, J. Dianoux, V. Caignaert, K. Moorjani. *J. Appl. Phys.* **67**, 9, 4521 (1990).
- [5] S. Katano, T. Matsumoto, A. Matsushita, T. Hatano, S. Funahashi. *Phys. Rev.* **B41**, 4, 2009 (1990).
- [6] А.И. Огороков, В.В. Рунов, А.Д. Третьяков, С.В. Малеев, Б.П. Топерверг. *ЖЭТФ* **100**, 257 (1991).
- [7] J.L. Garcia-Munoz, J. Rodriguez-Carvajal, O. Schaefer, X. Obradors, S.H. Kilcoyne, R. Cywinski. *Physica* **C185-189**, 1173 (1991).
- [8] А.М. Балагуров, Г.М. Миронова, И.С. Любутин, В.Г. Терзиев, А.Я. Шапиро. *СФХТ* **3**, 4, 615 (1990).
- [9] С.В. Григорьев, О.А. Губин, Г.П. Копица, А.И. Огороков, В.В. Рунов, А.Д. Третьяков. Препринт ПИЯФ № 2028. Гатчина (1995).
- [10] B. Toperverg, G. Gordeyev, A. Okorokov, V. Runov, M. Runova, L. Axelrod, S. Grigoriev, I. Lazebnik, G. Kopitsa, A. Brulet, R. Kahn, R. Papoular, J. Rossat-Mignod, H. Eckerlebe, R. Kampmann, R. Wagner. Preprint PNPI N 2071 Gatchina (1995); *Physica B*, **234-236**, 837 (1997).
- [11] O. Halpern, T. Holstein. *Phys. Rev.* **59**, 960 (1941).
- [12] В.В. Рунов, С.Л. Гинзбург, Б.П. Топерверг, А.Д. Третьяков, А.И. Огороков, Е.И. Мальцев. *ЖЭТФ* **94**, 325 (1988).
- [13] И.С. Любутин, Т.В. Дмитриева. *ЖЭТФ* **105**, 954 (1994).