

Фазовая диаграмма $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-y}$ при $T < T_c$ по данным поперечной ядерной релаксации $\text{Cu}(2)$

М. В. Еремин¹⁾, Ю. А. Сахратов, А. В. Савинков, А. В. Дуглав, И. Р. Мухамедшин, А. В. Егоров

Казанский государственный университет, 420008 Казань, Россия

Поступила в редакцию 16 апреля 2001 г.

Обнаружено два максимума в скорости поперечной релаксации ядер меди $\text{Cu}(2)$ в $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-y}$, при $T = 35$ К и $T = 47$ К. Сопоставление скоростей релаксации изотопов $^{63}\text{Cu}(2)$ и $^{65}\text{Cu}(2)$ при $T = 47$ К свидетельствует о магнитном характере релаксации. Усиление при $T = 47$ К флуктуаций локальных магнитных полей, перпендикулярных плоскостям CuO_2 , обусловлено критическими флуктуациями орбитальных токов. Пик при $T = 35$ К связывается с появлением неоднородной сверхпроводящей фазы. Полученные экспериментальные результаты, с учетом литературных данных, позволили предложить качественно новую фазовую диаграмму сверхпроводящего состояния.

PACS: 74.25.-q, 74.72.Bk, 76.60.Gv

Аномальное поведение температурной зависимости скорости поперечной релаксации намагниченности ядер меди в плоскостях CuO_2 сверхпроводящего соединения $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-y}$ было обнаружено еще на заре исследований ВТСП [1–5]. В сверхпроводящих образцах с уровнем допирования вблизи оптимального при температуре $T = 35$ К скорость поперечной релаксации довольно резко возрастает, что, по мнению авторов работ [2, 6, 7], свидетельствует о фазовом переходе. Окава²⁾ [6] этот переход интерпретировал как второй сверхпроводящий переход в бислое $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-y}$. Крамер и Меринг³⁾ [7] связывают его с переходом $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-y}$ в состояние с волнами зарядовой плотности (ВЗП). Эта интерпретация, однако, как подчеркивали сами авторы работы [7], требует дальнейшей проверки на образцах с другой дозой допирования по кислороду. Недавно она критиковалась в работе [8], где приведены результаты новых измерений ширины линии ЯКР $\text{Cu}(2)$ в слегка передопированном $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-y}$ с $T_c = 89.5$ К. Авторы [8] подчеркивают наличие хорошо выраженного максимума ширины линии не на 35 К, а на 60 К.

Наши исследования ЯКР $\text{Cu}(2)$ в ряде образцов $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-y}$ подтверждают наличие максимума в скорости поперечной релаксации при $T = 35$ К. Новый результат данной работы состоит в том, что нами обнаружен еще один максимум в поперечной релаксации на $T = 47$ К. Более того, оказывается, такого рода максимум присутствует и в данных работ [5, 9], но на него не обращали должного внима-

ния. Между тем наличие в ряде случаев двух максимумов в температурной зависимости поперечной релаксации ядер $\text{Cu}(2)$ в $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-y}$, по нашему мнению, свидетельствует в пользу существования не одного, а двух фазовых переходов ниже T_c .

Предлагаемое нами уточнение схематической диаграммы сосуществования фаз в сверхпроводящем состоянии в области оптимального допирования, обсуждавшейся ранее в [10], изображено на рис.1. В дополнение к предложенной ранее фазе спонтанных

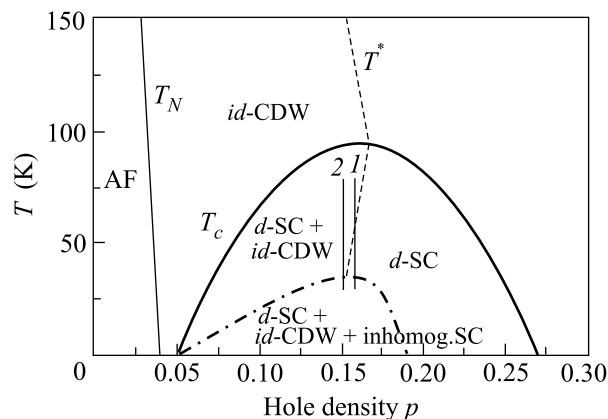


Рис.1. Схематический вид фазовой диаграммы $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-y}$. p — концентрация дырок в расчете на одну позицию $\text{Cu}(2)$, как в фазовых диаграммах работы [10]

токов или, другими словами, волн зарядовой плотности с мнимым параметром порядка (id -ВЗП) [11–13] мы предполагаем наличие по крайней мере еще одной фазы в сверхпроводящем состоянии — фазы, в которой появляются куперовские пары с суммарным

¹⁾е-mail: Mikhail.Eremine@ksu.ru

квазиимпульсом, отличным от нуля, или, иными словами, неоднородной компоненты сверхпроводящей фазы d -типа (неодн. СП). Принципиальная возможность сосуществования нескольких фаз в недодопированных купратах связана с пайерлсовского типа нестабильностью квазидвумерной системы и обсуждалась в [11–13]. Сценарий конкуренции id -ВЗП и d -СП хорошо объясняет немонокотное поведение эффективной щели около T_c [14]. Недавно он был привлечен для объяснения данных по рассеянию нейтронов [15] и аномального поведения спин-решеточной релаксации в сверхпроводящих купратах при низких температурах [16].

Штриховую линию на рис.1, как и в [11, 12], сопоставим границе id -ВЗП, сплошную колоколообразную линию – границе сверхпроводящей фазы d -типа (d -СП). Поведение границы раздела фаз, изображенное на рис.1 штриховой линией, отличается от приведенного в работе [10] и построено в соответствии с расчетами [11, 12]. Наличие границы раздела фаз, обозначенное штрих-пунктирной линией, мы выводим из данных по поперечной ядерной релаксации, обсуждаемых ниже. В области малого допирования поведение этой границы в данной работе не определено, и этот вопрос требует дальнейшего исследования. Правый край границы, изображенной штрих-пунктирной линией, согласован с данными, обсуждаемыми в [10].

В наших исследованиях использовались два образца $YBa_2Cu_3O_7$ ($YBCO_7$), приготовленных методом твердофазного синтеза. Критические температуры образцов (начало перехода), найденные из измерений восприимчивости на СКВИДе, равны 91.6 К (образец 1) и 91.2 К (образец 2). Измерения ЯКР меди проводились с помощью широкодиапазонного когерентного импульсного ЯКР/ЯМР спектрометра.

Поперечная ядерная релаксация $Cu(2)$ в обоих образцах была изучена при температурах от 77 до 4.2 К. Кривые спада поперечной намагниченности хорошо описывались функцией

$$M(\tau) = M_0 \exp\left(-\frac{(2\tau)^2}{2T_{2G}^2}\right) \exp\left(-\frac{2\tau}{T_{2L}}\right). \quad (1)$$

Первая экспонента в этом выражении представляет известный гауссов спад намагниченности за счет косвенных спин-спиновых взаимодействий ядер $Cu(2)$ [17], вторая экспонента учитывает возможность появления дополнительного канала поперечной релаксации. Вклад Редфилда в поперечную релаксацию становится заметным только при $T > 60 - 70$ К и не учитывался. Полученные в соответствии с (1) скорости поперечной релаксации T_{2G}^{-1} и T_{2L}^{-1} приведены на рис.2. Видно, что ниже T_c гауссов вклад T_{2G}^{-1}

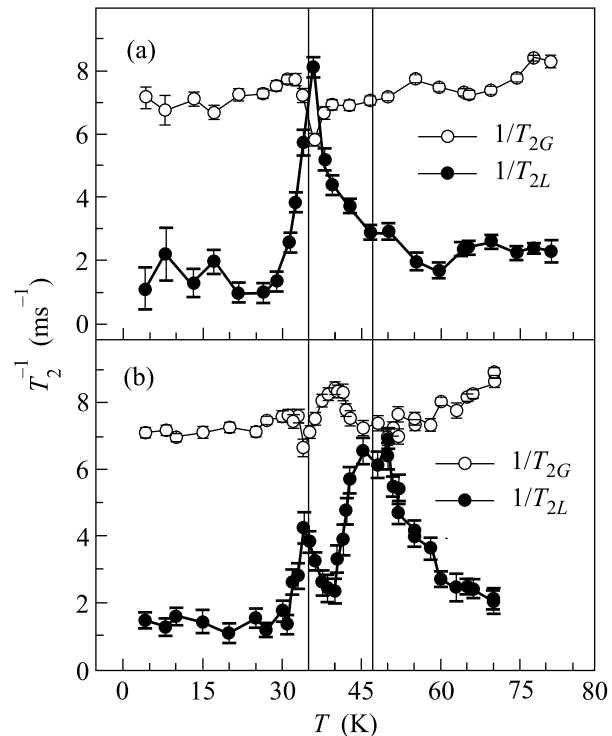


Рис.2. Температурная зависимость скоростей поперечной релаксации T_{2G}^{-1} (темные точки) и T_{2L}^{-1} (светлые точки) для $^{63}Cu(2)$: (а) – в образце 1, (б) – в образце 2. Вертикальные прямые соответствуют 35 и 47 К

от температуры не зависит, дополнительный вклад T_{2L}^{-1} имеет один максимум при $T = 35$ К в образце 1 и два максимума при $T = 35$ К и 47 К в образце 2.

Ядерная спин-решеточная релаксация $Cu(2)$ в обоих образцах была изучена при температурах от 300 до 4.2 К. Кривые восстановления продольной намагниченности описывались функцией

$$\frac{M(t) - M_0}{M_0} = \exp\left(-\frac{t}{T_1}\right)^N, \quad (2)$$

где M_0 – равновесная намагниченность, $M(t)$ – продольная намагниченность через время t после насыщающего $\pi/2$ -импульса, а параметр N характеризует степень распределения времен релаксации отдельных ядерных спинов: $N = 1$ для однородной системы, в которой все спины релаксируют с одинаковой скоростью, и $N < 1$ – для неоднородной системы, в которой флуктуирующие поля, вызывающие релаксацию, неодинаковы на разных спинах.

Температурная зависимость скорости спин-решеточной релаксации $Cu(2)$ показана на рис.3. Для обоих образцов в диапазоне температур от 300 до 10 К скорость спин-решеточной релаксации

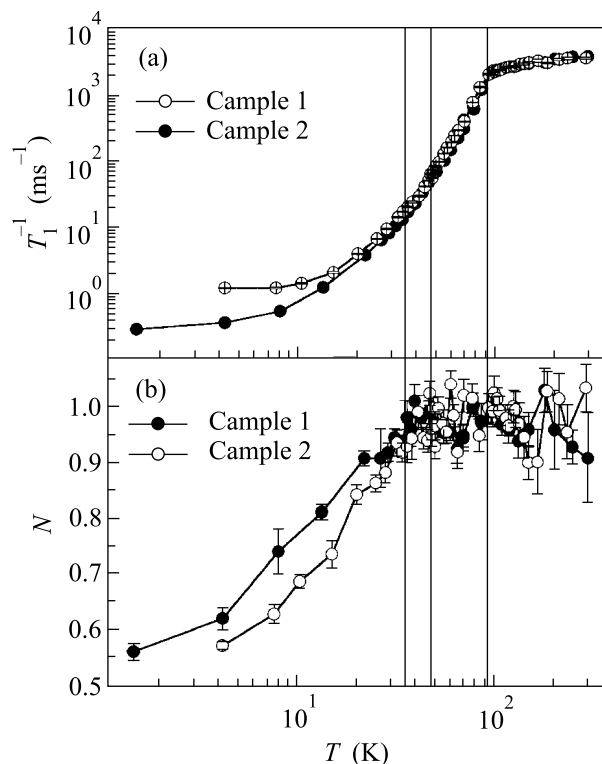


Рис.3. Температурная зависимость: (а) скорости спин-решеточной релаксации $^{63}\text{Cu}(2)$ и (б) параметра N (см. текст) в образце 1 (темные точки) и в образце 2 (светлые точки). Вертикальные прямые соответствуют 35, 47 и 91.4 К

зависит от температуры одинаково и очень быстро уменьшается ниже T_c , что, как известно, связано с появлением сверхпроводящей щели в спектре возбуждений сверхпроводника. Ниже 35–40 К кинетика спин-решеточной релаксации постепенно становится неэкспоненциальной ($N < 1$). Никаких особенностей скорости спин-решеточной релаксации вблизи $T = 35$ К и 47 К не наблюдается.

На рис.1 видно, что в области оптимального допирования при понижении температуры вдоль линии 1 в сверхпроводящем состоянии дважды пересекаются границы раздела фаз. Поскольку температура раздела двух фаз, обозначенная штриховой линией, весьма сильно зависит от уровня допирования, при небольшом его отличии от оптимального останется лишь одно пересечение с границей раздела фаз (например, при понижении температуры вдоль линии 2), которое естественно связать с пиком в T_2^{-1} при $T \approx 35$ К.

Известно, что продольная релаксация магнитных моментов ядер может быть вызвана полями, флуктуирующими с частотой ЯМР (ЯКР) и направленными перпендикулярно оси квантования, совпадаю-

щей с направлением градиента электрического поля на ядре в случае ЯКР, а поперечная – полями, флуктуирующими с низкой частотой и направленными вдоль оси квантования. Поскольку ядра изотопов ^{63}Cu и ^{65}Cu имеют различные гиромангнитные отношения и квадрупольные моменты ($^{63}\gamma/^{65}\gamma = 0.933$, $^{63}Q/^{65}Q = 1.081$), измерения на разных изотопах позволяют определить, чем вызвана релаксация, флуктуациями магнитного поля или градиента электрического поля на ядре. Кроме того, если поперечная релаксация вызывается взаимодействием между одинаковыми ядерными спинами, ее скорость для изотопа ^{63}Cu должна быть в 1.3 раза выше, чем для ^{65}Cu [17, 18], вследствие меньшей концентрации (естественной распространенности) последнего.

Орбитальные токи, циркулирующие в плоскостях CuO_2 , создают флуктуирующие магнитные поля на ядрах меди $\text{Cu}(2)$, направленные вдоль оси c кристалла. Так как градиент электрического поля на ядрах $\text{Cu}(2)$ также направлен вдоль оси c , изменения в фазе спонтанных токов будут приводить к критическому ускорению главным образом поперечной ядерной магнитной релаксации, мало сказываясь на спин-решеточной релаксации. Это обстоятельство хорошо соответствует эксперименту (рис.3а). Предпринятое нами сравнение относительных скоростей релаксации на изотопах ^{63}Cu и ^{65}Cu подтверждает магнитный характер дополнительного канала поперечной релаксации (вторая экспонента в (1)), возникающего при $T = 47$ К, и свидетельствует о том, что он не связан с взаимодействием между одинаковыми ядерными спинами: $^{63}T_{2L}^{-1}/^{65}T_{2L}^{-1} = 0.89 \approx (^{63}\gamma/^{65}\gamma)^2$.

Характер дополнительного канала релаксации, возникающего при $T = 35$ К, нам достоверно установить не удалось из-за недостаточной долговременной стабильности температуры, не позволяющей с приемлемой точностью “удержаться” на остром пике поперечной релаксации в процессе накопления сигнала. Согласно работе [7], дополнительная поперечная релаксация при 35 К в недопированном $YBCO7$ вызывается флуктуациями градиента электрического поля на ядрах $\text{Cu}(2)$, что вполне объясняется, если предположить, что при переходе через границу фаз вдоль линии 2 на рис.1 фаза спонтанных токов практически не изменяется, но ниже 35 К возникает неоднородная сверхпроводящая фаза с пространственно модулированным зарядом (U -фаза по терминологии [11]). При этом наличие возможной, по оценкам [16], фазы спонтанных спиновых токов, вообще говоря, также не исключается. В пользу фазового перехода в неоднородное (несоизмеримое) состояние свидетельствует наблюдаемое

Положение максимумов в скорости поперечной релаксации Cu(2) ниже T_c

Вещество	T_c , К	Макс.1, К	Макс.2, К	Ссылка
YBa ₂ Cu ₃ O _{6.98}	92	35	52	[5]
YBa ₂ Cu ₃ O _{7-y}	90	35		[7]
YBa ₂ Cu ₃ O _{7-y}	93	35		[3]
YBa ₂ Cu ₃ O _{6.95}	≈ 91	35	50	[9]
YBa ₂ Cu ₃ O _{6.925}	≈ 91	35		
YBa ₂ Cu ₃ O _{7-y}	91.6	35	–	Наши данные
	91.2	35	47	

нами изменение характера временной зависимости восстановления сигнала спинового эха (рис.3b): при температуре ниже 30-40 К параметр N в (2) становится меньше единицы, то есть кривая восстановления сигнала отклоняется от экспоненты. В этой связи уместно вспомнить рис.4,5 из работы [19], где при $T < 30$ К зафиксировано качественно иное, нежели при $T > 35$ К, поведение температурного хода гауссовой скорости спин-спиновой релаксации Cu(2) в YBa₂Cu₃O_{6.98} и в LaBa₂Cu₃O_{6.93}, что также свидетельствует в пользу фазового перехода при $T \approx 30$ К.

Сильная зависимость положения второго максимума в T_2^{-1} в области оптимального допирования от дефицита кислорода (см. таблицу) хорошо укладывается в картину довольно сильной зависимости температуры исчезновения фазы спонтанных токов от степени допирования. Наклон линии раздела СП и смешанной (СП+*id*-ВЗП) фаз влево на рис.1 свидетельствует о тенденции выталкивания фазы спонтанных токов из сверхпроводящего состояния. Эта тенденция предсказывалась в [11] на основе решения интегральных уравнений.

В заключение приведем еще один аргумент в пользу неоднородной сверхпроводящей фазы. Цепочечные структуры YBCO7 обнаруживают поведение, свойственное системам с ВЗП, уже при $T > T_c$ (см., например, [20]). Гибридизация цепочечных и плоскостных зон “способствует” появлению неоднородной сверхпроводящей фазы и в плоскости. В этой связи становится также понятным, почему в соединении La_{2-x}Sr_xCuO₄ аномалии в скорости поперечной релаксации ядер меди в области $T \sim 30$ К отсутствуют [3].

Работа поддержана Российской федеральной программой “Сверхпроводимость”, проект # 98014-1.

1. О. Н. Бахарев, Р. Ш. Жданов, А. В. Егоров и др., Письма в ЖЭТФ **47**, 383 (1988) [JETP Lett. **47**, 458 (1989)].

2. А. В. Бондарь, С. М. Рябченко, Ю. В. Федотов и др., Письма в ЖЭТФ **50**, 133 (1989) [JETP Lett. **50**, 146 (1989)].
3. K. Kumagai, Y. Nakamichi, Y. Nakamura et al., J. Phys. Soc. Jpn. **59**, 2336 (1990).
4. M. Tei, H. Takai, K. Mizoguchi et al., Z. Naturforsch. **45a**, 429 (1990); M. Tei, H. Takai, K. Mizoguchi et al., Solid State Comm. **74**, 1117 (1990).
5. Y. Itoh, H. Yasuoka, and Y. Ueda, J. Phys. Soc. Jpn. **59**, 3463 (1990).
6. F. J. Ohkawa, J. Phys. Soc. Jpn. **61**, 639 (1992).
7. S. Krämer and M. Mehring, Phys. Rev. Lett. **83**, 396 (1999); Phys. Rev. Lett. **84**, 1637 (2000).
8. B. Grevin, Y. Berthier, and G. Collin, Phys. Rev. Lett. **84**, 1636 (2000).
9. M. Tei, K. Mizoguchi, and K. Kume, in: *The physics and chemistry of oxide superconductors*, Springer Proc. in Physics, Vol.60, p. 369, Eds. Y. Iye and H. Yasuoka, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, 1992.
10. J. L. Tallon and J. W. Loram, cond-mat/0005063.
11. М. В. Еремин, И. А. Ларионов, Письма в ЖЭТФ **68**, 583 (1998) [JETP Lett. **68**, 611 (1998)].
12. E. Cappelluti and R. Zeycher, Phys. Rev. **B59**, 6475 (1999).
13. S. Chakravarty, R. B. Laughlin, D. K. Morr et al., Phys. Rev. **B63**, 094503 (2001).
14. T. Ekino, Y. Sezaki, and H. Fujii, Phys. Rev. **B60**, 6916 (1999); T. Ekino, S. Hashimoto, and H. Fujii, J. of Phys. Chem. Solids **62**, 149 (2001).
15. S. Tewari, H.-Y. Kee, Ch. Nayak et al., cond-mat/0101027.
16. M. Eremin and A. Rigamonti, cond-mat/0103282.
17. C. H. Pennington, D. J. Durand, C. P. Slichter et al., Phys. Rev. **B39**, 274 (1989); C. H. Pennington and C. P. Slichter, Phys. Rev. Lett. **66**, 381 (1991).
18. A. Abragam, *The Principles of Nuclear Magnetism*, Oxford at the Clarendon Press, 1962, p. 125.
19. Y. Itoh, K. Yoshimura, T. Ohomura et al., J. Phys. Soc. Jpn. **63**, 1455 (1994).
20. B. Grevin, Y. Berthier, and G. Collin, Phys. Rev. Lett. **85**, 1310 (2000).