

АНОМАЛЬНЫЙ МАГНЕТИЗМ МОНОКРИСТАЛЛОВ $\text{La}_2\text{CuO}_{4+x}$ А.А.Никонов¹⁾, О.Е.ПарфеновРоссийский научный центр "Курчатовский институт"
123182 Москва, Россия

Поступила в редакцию 19 октября 2000 г.

С помощью измерения дифференциальной магнитной восприимчивости исследованы изменения магнитных свойств $\text{La}_2\text{CuO}_{4+x}$, возникающие при допировании кислородом в интервале концентраций $0 < x < 0.011$. В кристаллах с $0.005 < x < 0.011$ обнаружен магнитный фазовый переход ферромагнитного типа при $T_c > T_N$ и существующий даже в кристаллах с $T_N \sim 0$. Построена концентрационная зависимость $T_c(x)$.

PACS: 74.72.Dn, 75.25.+z, 75.30.-m

Одними из нерешенных проблем ВТСП, привлекающими к себе пристальное внимание, являются: механизм разрушения антиферромагнитного (AFM) порядка при постепенном увеличении концентрации электронных дырок, природа сильных магнитных флуктуаций в той части фазовой диаграммы, где происходит переход диэлектрик – металл, и их значение для возникновения сверхпроводимости.

Для изучения этих проблем ранее нами были проведены комплексные исследования слабо допированных кислородом монокристаллов $\text{La}_2\text{CuO}_{4+x}$ [1, 2]. Новым результатом явилось обнаружение на температурной зависимости дифференциальной магнитной восприимчивости $\chi_c(T)$ в критической области антиферромагнитного перехода необычной расходимости. Расходимость существовала только у поперечной магнитной восприимчивости χ_c и наблюдалась только при измерении в слабых полях. При увеличении магнитного поля до величины $H_c \sim 100$ Э расходимость постепенно исчезала. Такое поведение магнитной восприимчивости характерно для магнитного фазового перехода антиферромагнетика со слабым ферромагнетизмом (WFM) [3]. Однако, элементарная кристаллическая ячейка *Btab* орторомбической решетки La_2CuO_4 не совпадает с элементарной магнитной ячейкой AFM решетки. В такой ситуации теория симметрии запрещает существование в нулевом поле WFM [4]. В то же время, появление WFM становится возможным при наложении параллельно кристаллической оси *c* сильного магнитного поля $H \sim 2$ Тл [5] из-за переворота части спинов AFM решетки. В данном случае, вызванное полем изменение симметрии магнитной решетки снимает запрет на появление WFM.

В процессе изучения возможной корреляции магнитных и структурных свойств $\text{La}_2\text{CuO}_{4+x}$ [2] нами было показано, что аномальная расходимость появлялась только после введения избыточного кислорода. Помимо этого, была найдена корреляция высоты ферромагнитной аномалии восприимчивости как с величиной орторомбического искажения кристаллической решетки, так и с кинетикой процессов упорядочения кислорода. Высота ферромагнитного пика связана с величиной среднего магнитного момента и величиной магнитной корреляционной длины. При этом упорядочение способствовало увеличению расходимости. Особо следует отметить, что нами были

¹⁾ e-mail: nikonov@issph.kiae.ru

обнаружены следы сверхструктуры в кристаллической решетке. Симметрия кристаллической решетки наших кристаллов, допированных кислородом, по-видимому, отличается от симметрии простой *Bmab* орторомбической решетки стехиометрического La_2CuO_4 .

Возможно, появление ферромагнитного момента в AFM состоянии $\text{La}_2\text{CuO}_{4+x}$ вызвано изменением симметрии, произошедшем благодаря искажению не магнитной, а кристаллической решетки. В то же время, чтобы изменить кристаллическую симметрию, искажение кристаллической решетки должно носить не локальный, а именно когерентный характер типа сверхструктуры. Возникшая ситуация интересна тем, что введение примеси приводит не только к появлению нового магнитного состояния, но и к быстрому разрушению AFM решетки. Поэтому, по мере разрушения трехмерного AFM порядка, роли магнитного порядка и кристаллических искажений в механизме формирования обнаруженного нового магнитного состояния могут меняться.

Целью данной работы являлось изучение поведения обнаруженного нами ранее [2] необычного слабого ферромагнетизма монокристаллов La_2CuO_4 при постепенном разрушении антиферромагнитного порядка с увеличением степени допирования кислородом.

В этой работе исследовались монокристаллы, выращенные методом раствора-расплава [6]. Особенностью этих кристаллов является низкая подвижность примесного кислорода [2]. Это приводит к тому, что наши образцы не испытывают “макроскопического” расслоения на фазы с разной концентрацией кислорода в интервале $0 < x < 0.03$ [1, 7]. По своей структуре фазовая диаграмма этих кристаллов [1] аналогична диаграмме системы $\text{La}_{2-y}\text{Sr}_y\text{CuO}_4$. Температурные и концентрационные зависимости магнитных фазовых переходов AFM и SG, полученные в данной работе с использованием магнитного поля $H = 450$ Э, хорошо коррелируют с данными для кристаллов $\text{La}_{2-y}\text{Sr}_y\text{CuO}_4$ [8], в которых для изучения магнетизма использовались магнитные поля $H = 5$ кЭ.

После выращивания наши кристаллы имели температуру AFM упорядочения $T_N \sim 245$ К. Чтобы избежать внедрения избыточных вакансий в системе решеточного кислорода, отжига при парциальном давлении кислорода < 100 торр проводились при температуре не выше 700 С. Накислораживание проводилось при температуре 900 С и избыточном давлении кислорода до 10 атм. Магнитные свойства изучались с помощью измерения дифференциальной магнитной восприимчивости в слабом переменном поле $h = h_0 \sin(\omega t)$, $h_0 = 1$ Э, $f = 1$ кГц. Подробно методика измерения описана в [9]. Используя справедливость закона Вегарда для малых отклонений от стехиометрии [10], концентрацию избыточного кислорода x определяли по формуле $c = 13.137 + 1.065x$, где c – параметр решетки, измеренный с помощью рентгеноструктурного анализа.

На рис.1 показано, как менялась $\chi_c(T)$ при изменении концентрации кислорода. Зависимости $\chi_c(T)$ измерены как в нулевом постоянном внешнем поле, так и в поле $H = 450$ Э, поле приложено параллельно кристаллической оси c . В области концентраций $0 < x < 0.011$ возникновение нового магнитного состояния носит характер фазового перехода с ярко выраженной анизотропией, ферромагнитная аномалия наблюдается только у поперечной восприимчивости $\chi_c(T)$ и только в поле $H < 100$ Э. Хотя с ростом концентрации избыточного кислорода уменьшается как критическая

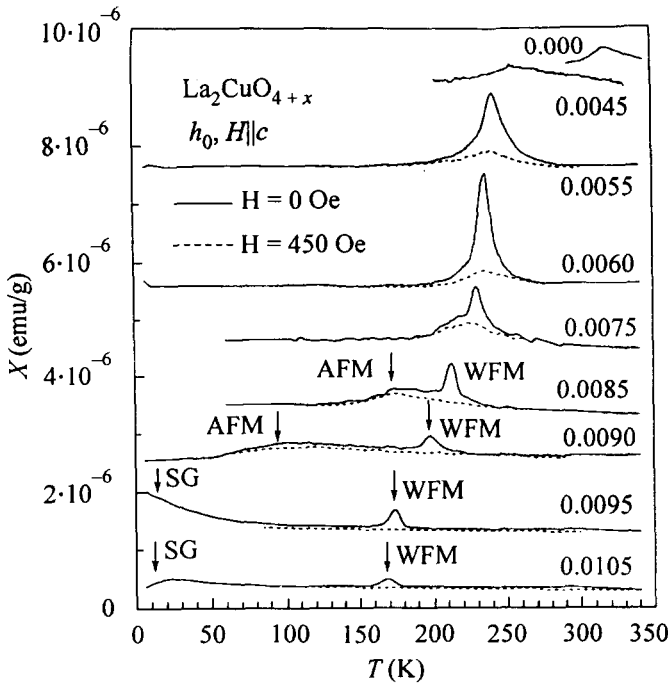


Рис.1. Изменение поперечной магнитной восприимчивости монокристаллов $\text{La}_2\text{CuO}_{4+x}$ при допировании кислородом. Цифрами указана величина концентрации избыточного кислорода x . Для удобства восприятия кривые сдвинуты по вертикали с сохранением масштаба. Для получения истинной картины нужно привести значение восприимчивости при 350 К к величине $3 \cdot 10^{-7}$ э.м.е./г

температура T_c , так и интенсивность расходимости, критическая область обнаруженного магнитного перехода практически не размывается. Ширина температурного интервала критической области не превосходит 20 К, что говорит о хорошей пространственной однородности магнитной системы. Еще одной особенностью аномалии восприимчивости является почти симметричная форма пика по отношению к точке максимума. Критические индексы перехода $\chi_c = \tau^{-\gamma}$, $\chi_c = h^{-\alpha}$ в интервале концентраций $0.005 < x < 0.011$ были: $\gamma = 1.9 + 0.2$ и $\alpha = 0.8 + 0.2$. Полученные значения γ , α хорошо согласуются со значениями критических индексов двумерной модели Изинга [11].

Одним из новых и наиболее важных результатов, полученных в данной работе, является то, что дальний AFM порядок с увеличением x разрушается быстрее, чем уменьшается T_c (рис.2). Более того, новый фазовый переход наблюдается в образцах с $T_N \sim 0$, в которых при температурах $T \gg T_N$ существует парамагнитное состояние или состояние двумерной спиновой жидкости, а при низких температурах возникает состояние спинового стекла, регистрируемого по характерному поведению магнитной восприимчивости $\chi(T)$. При измерении в поле $H = 450$ Э кристаллов с $T_N \sim 0$ в критической области ферромагнитной аномалии на $\chi_c(T)$ и $\chi_{ab}(T)$ в пределах чувствительности установки мы не обнаружили никаких следов антиферромагнитного перехода. Эти данные указывают на то, что, по крайней мере в интервале концентраций $0.008 < x < 0.011$, для обнаруженного магнетизма в $\text{La}_2\text{CuO}_{4+x}$ существование дальнего AFM порядка не имеет решающего значения. Следовательно, в данном интервале концентраций наблюдаемую аномалию $\chi_c(T)$ нельзя трактовать ни как WFM, возникающий в результате слабой неколлинеарности спинов в AFM решетке, ни как ферримагнетизм, возникающий при раскомпенсации магнитных подрешеток. Вследствие высокого значения $T_c > 150$ К следует отклонить вариант возникновения

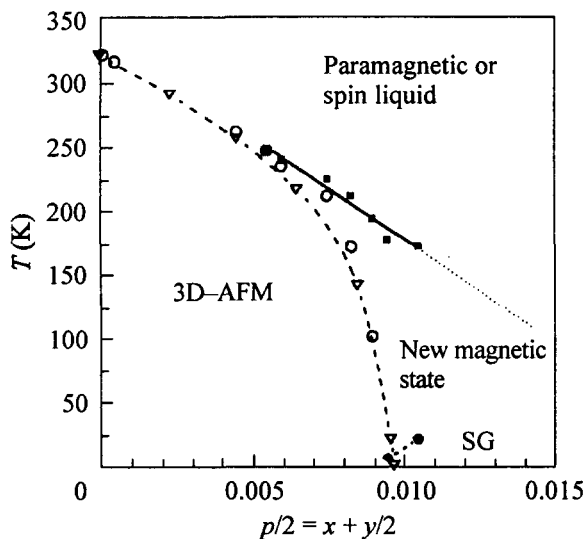


Рис.2. Фазовая диаграмма монокристаллов $\text{La}_2\text{CuO}_{4+x}$: T_c нового магнитного перехода – черные квадратик, T_N AFM – светлые кружки, SG – темные кружки. Здесь же показаны данные по AFM переходу, полученные в работе [8] на монокристаллах $\text{La}_{2-y}\text{Sr}_y\text{CuO}_4$, – треугольники

в парамагнитной матрице перехода ферромагнитного типа из-за диполь-дипольного взаимодействия в системе ферромагнитных кластеров, состоящих из упорядоченных спинов меди. Пришлось бы предположить наличие у этих областей неправдоподобно большого магнитного момента.

В данной ситуации возникает несколько важных вопросов, на которые пока нет ответа.

Что является параметром порядка обнаруженного магнитного фазового перехода? А именно, является ли наблюдаемый фазовый переход собственным магнитным переходом или он является проявлением структурного фазового перехода, чей параметр порядка связан с намагниченностью?

Какова микроскопическая природа намагниченности? Возникает ли обнаруженная ферромагнитная аномалия в результате корреляции ферромагнитно упорядоченных кластеров, находящихся в парамагнитной матрице, или она возникает благодаря изменению симметрии кристаллической решетки в однородном состоянии магнитной системы?

Поскольку T_c имеет слабую зависимость от x , то, возможно, обнаруженный ферромагнетизм может сосуществовать при концентрациях кислорода, достаточных для возникновения сверхпроводимости. Однако все эти вопросы требуют дальнейших исследований.

Авторы выражают глубокую признательность С.Н.Барило, вырастившему и любезно предоставившему нам высококачественные образцы. Также авторы выражают свою благодарность А.А.Захарову, А.Н.Бажану, Е.П.Красноперову, А.А.Чернышеву, за проявленное внимание к работе и ряд ценных замечаний, высказанных при обсуждении полученных экспериментальных данных. Авторы благодарят за поддержку и помощь при проведении экспериментов М.Б.Цетлина, М.Н.Хлопкина, А.А.Шикова, В.С.Круглова, П.В.Волкова.

Работа выполнена в рамках Госконтракта (грант # 107-1(00)-П) Миннауки Российской Федерации ИФТТ РАН федеральной научно-технической программы "Исследования и разработки по приоритетным направлениям развития науки и техники гражданского значения" по теме "микрорасслоение".

-
1. A.A.Zakharov, A.A.Nikonov, O.E.Parfionov et al., *Physica C* **223**, 157 (1994); A.A.Zakharov, S.N.Barilo, A.A.Nikonov, and O.E.Parfionov, *Physica C* **235-240**, 341 (1994); A.A.Захаров, А.А.Никонов, Письма в ЖЭТФ **60**, 340 (1994).
 2. А.А.Захаров, А.А.Никонов, О.Е.Парфенов, Письма в ЖЭТФ **64**, 152 (1996); А.А.Никонов, О.Е.Парфенов, А.А.Захаров, Письма в ЖЭТФ **66**, 159 (1997); A.A.Zakharov, A.A.Nikonov, and O.E.Parfionov, *Phys. Rev.* **B57**, R3233 (1998-II).
 3. А.С.Боровик-Романов, Н.М.Крейнес, ЖЭТФ **33**, 1119 (1957).
 4. Е.А.Туров, *Физические свойства магнитоупорядоченных кристаллов*, М.: Изд. АН СССР, 1963.
 5. А.Н.Бажан, В.Н.Бевз, В.А.Мержанов и др., Письма в ЖЭТФ **48**, 21 (1988); Tineke Thio, T.R.Thurston, N.W.Preyer et al., *Phys. Rev.* **B38**, 905 (1988); K.Fukuda, M.Sato, S.Samato et al., *Sol. St. Com.* **63**, 811 (1987); D.C.Jonston, S.K.Sinha, A.J.Jacobson, and J.M.Newsam, *Physica C* **153-155**, 572 (1988).
 6. S.N.Barilo, A.P.Ges', S.A.Guretskii et al., *Int.Conf. on HTSC Material Aspect*, Garmisch-Partenkirchen, v.1, 1990, p. 107.
 7. V.Yu.Pomjakushin, A.A.Zakharov, A.Amato et al., *Physica C* **272**, 250 (1996); A.M.Balagurov, V.Yu.Pomjakushin, V.G.Simkin, and A.A.Zakharov, *Physica C* **272**, 277 (1996).
 8. F.C.Chou, F.Borsa, J.H.Cho et al., *Phys. Rev. Lett.* **71**, 2323 (1993); D.C.Jonston, F.Borsa, J.H.Cho et al., *J. All. Comp.* **207/208**, 206 (1994).
 9. А.А.Никонов, ПТЭ **6**, 168 (1995), (ИЕТ **38**, N.6, part2, 807 (1995)).
 10. J.C.Grenier, N.Laqueyte, A.Wattianx et al., *Physica C* **202**, N 3-4, 209 (1992).
 11. R.J.Birgeneau, J.Als-Nielsen, and G.Shirane, *Phys. Rev.* **B16**, 280 (1977).