

## ПРОЯВЛЕНИЕ ФЕРРОМАГНЕТИЗМА В СЛАБО ЛЕГИРОВАННЫХ КИСЛОРОДОМ МОНОКРИСТАЛЛАХ $\text{La}_2\text{CuO}_4 + \delta$ В МАГНИТНЫХ ПОЛЯХ $H < 50\text{Э}$

А.А.Захаров, А.А.Никонов, О.Е.Парфенов

Российский научный центр "Курчатовский институт"

123182 Москва, Россия

Поступила в редакцию 26 июня 1996 г.

С помощью метода дифференциальной магнитной восприимчивости исследованы зависимости  $\chi(T, H)$  монокристаллов  $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$  с  $\delta < 0.015$  в магнитных полях  $0.1 < H < 450\text{Э}$ . Обнаружено, что при легировании кислородом образуются ферромагнитные области, проявляющиеся в появлении характерной зависимости магнитной восприимчивости  $\chi(T, H)$ , которая наблюдается только в магнитных полях меньших  $50\text{Э}$ . Это можно объяснить образованием ферронов [1] в антиферромагнитной матрице.

PACS: 74.72.Dn, 75.30.-m, 75.50.Ee,

Существование сверхпроводящего состояния в купратах требует понимания процесса образования металлического состояния при легировании исходной диэлектрической антиферромагнитной матрицы, а также процессов взаимодействия электронной и магнитной подсистем. Исследование характеристик носителей в слабо легированном состоянии существенно упрощается по сравнению с металлическим состоянием, в котором изначальные состояния перенормированы вследствие высокой концентрации носителей.

Известно, что в стехиометрическом состоянии  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  является антиферромагнетиком со скрытым слабым ферромагнетизмом [2]. Антиферромагнитное (АФ) состояние очень чувствительно к легированию избыточным кислородом, что подразумевает сильное взаимодействие магнитной решетки с подсистемой дырок. Механизм подавления АФ состояния до сих пор не понят. Наиболее распространенным объяснением является фruстрационный механизм, подразумевающий возможное образование квазичастиц типа феррона [1]. Наличие таких квазичастиц должно проявляться в появлении характерных особенностей поведения магнитной восприимчивости, которые можно наблюдать только в слабых магнитных полях. Во всех известных работах по изучению магнитных свойств купратов, магнитные измерения проводились в полях выше  $50\text{Э}$  и часть информации о магнитном поведении примесной подсистемы могла быть потеряна.

Целью работы является изучение поведения дифференциальной магнитной восприимчивости  $\chi_{ac} = dM/dH$  монокристаллов  $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$  в слабых магнитных полях.

Чтобы показать независимость обнаруженных свойств от метода изготовления кристаллов, измерения проводились на образцах, приготовленных двумя разными методами. Образец N1 был выращен методом раствора расплава [3] при температуре  $1100^\circ\text{C}$  и затем накислораживался в бомбе при температуре  $600^\circ\text{C}$  и давлении кислорода 3 кбара. Образец N2 был выращен безтигельным методом зонной плавки [4], накислораживание происходило в

процессе роста. Температуры Нееля  $T_{N1} = 245$  К,  $T_{N2} = 235$  К. Концентрация избыточного кислорода определялась с помощью рентгена по параметрам кристаллической решетки  $\delta_1 = 0.01$  и  $\delta_2 = 0.015$ . Мозаичность кристаллов по оси  $c$  10 и 20° соответственно. Измерения  $\chi(T)$  до 4.2 К показали отсутствие какого-либо парамагнитного возрастания восприимчивости, что указывает на отсутствие магнитных примесей. Ширина антиферромагнитных пиков меньше 10 К, что позволило оценить однородность распределения кислорода по образцу  $\Delta\delta < 10^{-3}$ .

Анализ литературных данных показал, что применяемые для измерения намагниченности методы для достижения необходимой чувствительности требуют относительно сильного магнитного поля (весы Фарадея, магнитометры с колеблющимся образцом). Даже СКВИДу для увереной работы при высоких температурах приходится сильно повышать поле. Идеальной методикой для измерения магнитной восприимчивости являются измерения дифференциальной магнитной восприимчивости в слабом переменном поле. В [5] нами был предложен способ повышения чувствительности этого метода с помощью двойного синхронного детектирования. Во время измерения образец, находясь в слабом переменном магнитном поле  $h = h_0 \sin \omega t$ , периодически перемещается из одной приемной катушки в другую, включенную навстречу первой. В результате возникает амплитудная модуляция высокочастотного сигнала. Глубина модуляции пропорциональна  $\chi_{ac}$ . В наших измерениях  $h_0 = 0.1 - 30$  Э,  $f = 3$  кГц, частота перемещений образца 2.5 Гц. Температура изменялась в диапазоне 4.2–350 К, величина постоянного поля, которое накладывалось параллельно переменному, составляла 0–450 Э.

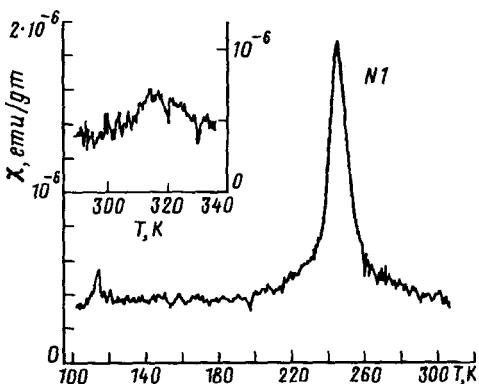


Рис.1. Магнитная восприимчивость  $\chi(T)$  образца N1, измеренная в нулевом постоянном магнитном поле ( $H = 0$ ), переменное поле  $h \parallel c$   $h_0 = 3$  Э. На вставке показаны данные  $\chi(T)$  после высокотемпературного отжига

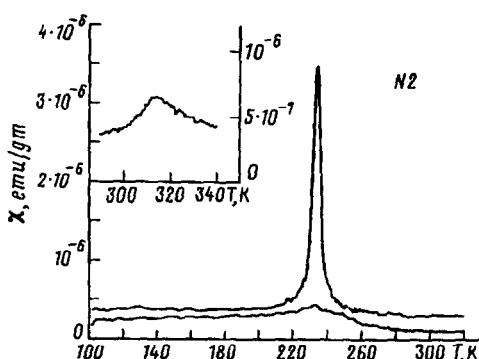


Рис.2. Магнитная восприимчивость  $\chi(T)$  образца N2, измеренная в нулевом постоянном магнитном поле ( $H = 0$ ), переменное поле  $h \parallel c$  и  $h \perp c$  (верхняя и нижняя кривая соответственно),  $h_0 = 3$  Э. На вставке показаны данные  $\chi(T)$  после высокотемпературного отжига

На рис.1 и 2 показаны зависимости  $\chi_{ac}(T)$ , измеренные в нулевом магнитном поле  $H$ , амплитуда переменного поля  $h_0 = 3$  Э. На вставках показаны зависимости  $\chi_{ac}(T)$ , после высокотемпературного отжига в вакууме  $T = 700$  °С,  $t = 10$  час. Видно, что для образцов без избыточного кислорода  $\chi_{ac}(T)$  имеет известную [2] для перехода в АФ состояние со скрытым слабым ферромаг-

нетизмом форму. Из этой зависимости получено значение слабого ферромагнитного момента  $m = 2 \cdot 10^{-3} \mu_B$ , однако температура Нееля положительна и  $\theta = 240$  К. При расчетах принимался во внимание вклад диамагнитной восприимчивости  $2.5 \cdot 10^{-7}$  э.м.е/г. Высота пиков для накислорожденных образцов имеет аномально высокое значение при ширине  $\Delta T < 10$  К. Выше  $T_N$  поведение магнитной восприимчивости можно описать зависимостью, характерной для нормального ферромагнитного перехода  $\chi = C/(T - T_N)$ , где  $C = 1.4 \cdot 10^{-4}$  (для ед.объема). Предполагая, что плотность магнитных моментов ответственных за ферромагнетизм определяется количеством избыточного кислорода, то для наших образцов с  $\delta = 0.01$  для величины магнитного момента получено значение  $m = 1.3 \mu_B$ . Это хорошо совпадает со значением магнитного момента феррона предлагаемого в различных моделях разрушения АФ состояния. У образца N1 при  $T = 110$  К имеется маленький пик, часто наблюдаемый другими авторами и объясняемый как температура замерзания некоего магнитного состояния похожего на спиновое стекло. У образца N2 этот пик отсутствует, что может быть связано с происходящим в этом образце процессом фазового расслоения, который приводит к сверхпроводимости при  $T_c = 30$  К с объемной долей сверхпроводимости порядка 1%. Для образца N2 показано еще измерение восприимчивости с полем направленным параллельно плоскости ab (нижняя кривая). Видно, что имеется сильная анизотропия магнитной восприимчивости как ниже, так и выше  $T_N$ . Наложение постоянного магнитного поля  $H$  параллельно оси с приводит к подавлению пиков при  $T_N$ . Уже в поле  $H = 80$  Э форма пиков приобретает обычный вид как у отожженных образцов. Значения  $m = 2 \cdot 10^{-3} \mu_B$  и  $\theta = 110$  К. Совпадение значений  $\theta$  и температуры маленького пика может быть не случайным. Форма и амплитуда этого пика не зависит от поля. Изменение зависимости  $\chi(T)$  и высоты пика представлено на рис.3. Наличие подобия в поведении  $\chi(T, H)$  и температуры замерзания характерно для магнитных явлений типа суперпарамагнетизма связанного с образованием ферромагнитных микрообластей.

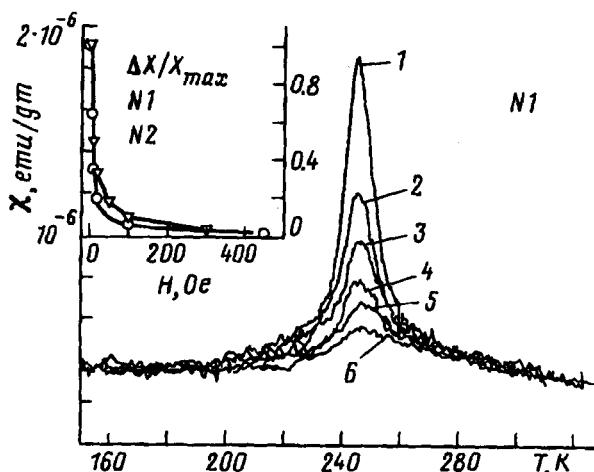


Рис.3. Полевая зависимость  $\chi(T, H)$  образца N1. Постоянное поле  $H \parallel c$ ,  $H_{1-6} = 0; 10; 20; 50; 100; 300$  Э соответственно,  $h_0 = 3$  Э. На вставке показана зависимость высоты пика за вычетом остаточного состояния, отнормированная по пику снятому в нулевом поле для двух образцов

С ростом концентрации дырок при дипировании  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  АФ состояние постепенно разрушаясь переходит в состояние, близкое к спиновому стеклу.

Обнаруженные нами особенности поведения дифференциальной магнитной восприимчивости можно объяснить образованием одной дыркой ферромагнитной области – феррона, с магнитным моментом  $m = 1.3\mu_b$ . Однако такое объяснение не является единственным и для подтверждения требует исследования магнитной микроструктуры. Если роль избыточного кислорода более или менее ясна, то роль скрытого слабого ферромагнетизма еще не выявлена, что предполагает проведение измерений на кристаллах с другой структурой не допускающей существование последнего.

Авторы выражают благодарность Ожогину В.И. и Бажану А.Н. за участие в обсуждении полученных результатов, а также Шикову А.А. и Цетлину М.Б. за предоставленные образцы.

- 
1. A.Aharony, R.J.Birgeneau, A.Coniglio et al., Phys. Rev. Lett. **60**, 1330 (1988); L.I.Glassman and A.S.Ioselevich, Z. Phys. B **80**, 268 (1990).
  2. T.Thio et al., Phys. Rev. B**38**, 905 (1988); А.С.Боровик-Романов, А.И.Буздин, Н.М.Крейнес, С.С.Кротов, Письма в ЖЭТФ **47**, 600 (1988); А.Н.Бажан, В.Н.Бевз, В.А.Мержанов и др., Письма в ЖЭТФ **48**, 21 (1988).
  3. S.N.Barilo, A.P.Ges, S.A.Guretski et al., Int. Conf. on HTSC: Material Aspect, Garmisch-Partenkirchen, **1**, 107 (1990).
  4. A.M.Balbashev, D.A.Shulyatev, G.Kh.Panova et al., Phys. C **256**, 371 (1996).
  5. А.А.Никонов, ПТЭ **6**, 168 (1995).