

## ЭЛЕКТРОННОЕ ФАЗОВОЕ РАССЛОЕНИЕ В НИЗКОТЕМПЕРАТУРНОЙ ТЕТРАГОНАЛЬНОЙ ФАЗЕ ЛАНТАН-СТРОНЦИЕВЫХ КУПРАТОВ ПО ДАННЫМ ЯКР $^{139}\text{La}$

Г.Б.Тейтельбаум, Е.Л.Вавилова, Б.Бюшнер<sup>+</sup>, Х.Лютгемайер\*

Физико-технический институт РАН  
420029 Казань, Россия

<sup>+</sup>Universitaet zu Koeln  
D-50937 Koeln, Germany

\*Forschungszentrum Juelich  
D-52425 Juelich, Germany

Поступила в редакцию 19 ноября 1997 г.

После переработки 26 января 1998 г.

Обнаружено неоднородное распределение электронной плотности и изучены долгоживущие магнитные флуктуации в  $\text{La}_{1-x-y}\text{Nd}_y\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  и  $\text{La}_{1-x-y}\text{Eu}_y\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ . Установлено, что динамика магнитных флуктуаций существенно зависит от магнитных свойств редкоземельных ионов, стабилизирующих низкотемпературную тетрагональную фазу.

PACS: 74.72.-h, 75.50.Ee

Вопрос о скоррелированном пространственном разделении зарядов и спинов в последнее время оживленно обсуждается в связи с обнаружением полосовых антиферромагнитных доменов ("stripes"), разделенных доменными стенками [1–3]. Эти стенки представляют собой области, в которых в результате фрустрированного электронного фазового расслоения [4] собираются носители тока. Есть весомые экспериментальные факты в пользу того, что в купратах лантана устойчивость подобной пространственно-модулированной структуры обусловлена переходом из низкотемпературной орторомбической (НТО) фазы в низкотемпературную тетрагональную (НТТ) фазу. Дело в том, что в этом случае потенциальный рельеф решетки обладает такими неоднородностями, что запиннигованные ими носители тока образуют линейные цепочки.

К сожалению, экспериментально к настоящему времени разделение зарядов и спинов удалось надежно обнаружить лишь в одном ВТСП соединении  $\text{La}_{1.6-x}\text{Nd}_{0.4}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ . В значительной степени это обусловлено тем, что прямым методом подобных исследований является нейтронное рассеяние, причем на монокристаллических образцах. Однако, несмотря на то, что путем замены Nd на другие редкоземельные ионы синтезирован целый ряд соединений, в которых реализуется НТТ фаза, пока удалось вырастить монокристаллы лишь одного из них, которое и было исследовано в работах [1, 2].

Поэтому, несмотря на исключительный интерес к проблеме электронного фазового расслоения, полная физическая картина подобных зарядовых и спиновых структур отсутствует. В свете отмеченных выше сложностей эффективным путем изучения зарядовых и спиновых структур может оказаться применение локальных методов исследования, и прежде всего ядерного квадрупольного резонанса (ЯКР), который не

требует внешнего поля, фиксирующего выделенное направление, и для которого разница между поликристаллическими и монокристаллическими образцами не играет роли. Кроме того, в силу того, что частота ЯКР определяется градиентом внутрикристаллического электрического поля, этот метод позволяет непосредственно фиксировать неоднородности распределения заряда в задачах об электронном фазовом расслоении [5–7].

Основная задача настоящей работы состояла в ЯКР исследовании электронного фазового расслоения в лантан-стронциевых соединениях, в которых появление НТТ фазы стабилизировалось путем допирования различными редкоземельными ионами: магнитными ионами Nd или немагнитными – Eu.

1. Две серии образцов  $La_{2-x-y}Nd_ySr_xCuO_4$  и  $La_{2-x-y}Eu_ySr_xCuO_4$  с различными  $x$  и  $y$  были приготовлены по стандартной технологии [8]. ЯКР измерения проводились на стандартном импульсном спектрометре в температурном диапазоне 1.2 – 25 К. Спектры ЯКР ядер  $^{139}La$  получены путем измерения амплитуды эха при последовательном изменении частоты в нулевом внешнем магнитном поле.

Обсуждение результатов начнем с серии  $La_{1.88-y}Nd_ySr_{0.12}CuO_4$ . Особое внимание здесь уделено случаю, когда содержание неодима  $y = 0.4$ , так как именно в таком соединении Транквადой с соавторами [1, 2] были обнаружены антиферромагнитные (АФ) антифазные домены, разделенные заряженными доменными стенками. Наши измерения ЯКР  $^{139}La$  в подобном соединении показали, что при достаточно низких температурах для переходов  $\pm 7/2 - \pm 5/2$  и  $\pm 5/2 - \pm 3/2$  наблюдаются асимметричные линии (первая из них приведена на рис.1а), ширины которых пропорциональны соответствующим квадрупольным частотам. Это свидетельствует о том, что уширение обусловлено неоднородным распределением квадрупольных частот. Вполне естественно представить наблюдаемый асимметричный сигнал в виде суперпозиции двух гауссовых линий различной ширины, отличающихся частотами ЯКР (см. рис. 1а). Мы связываем наличие двух вкладов с тем, что ядра La могут находиться как вблизи локализованной дырки, искажающей внутрикристаллическое поле, так и вдали от нее, что отражается в локальном изменении свойств ЯКР. В наблюдаемом сигнале основной вклад обусловлен экстремальными значениями частот. Поэтому в соответствии с известной зависимостью частоты квадрупольного резонанса  $^{139}La$  от концентрации носителей в купратах лантана [9–11] компонента, соответствующая более высокой частоте, может быть отнесена к областям, обедненным носителями (с развитыми АФ корреляциями). Низкочастотная же компонента – к областям их повышенной концентрации (заряженным доменным границам). Сигналы, относящиеся к АФ областям, имеют меньшую ширину (1–1.5 МГц), а ширина сигналов от доменных стенок, отличающихся большими неоднородностями градиента электрического поля, порядка 3.5 МГц.

Совместный анализ сигналов ЯКР, соответствующих высокочастотному ( $7/2 - 5/2$ ) и низкочастотному ( $5/2 - 3/2$ ) переходам, позволил определить параметры квадрупольного расщепления  $\nu_Q$  (он связан с градиентом электрического поля  $V_{zz}$  соотношением  $\nu_Q = eQV_{zz}/14$ ,  $e$  – заряд электрона,  $Q$  – квадрупольный момент ядра) и параметры асимметрии  $\eta$ . Для ядер лантана, находящихся в областях, не содержащих дырок, имеем  $\nu_Q \simeq 6.28$ ;  $\eta \simeq 0.15$ , а для ядер, находящихся в областях с дырками,  $-\nu_Q \simeq 6.112$ ;  $\eta \simeq 0.3$ .

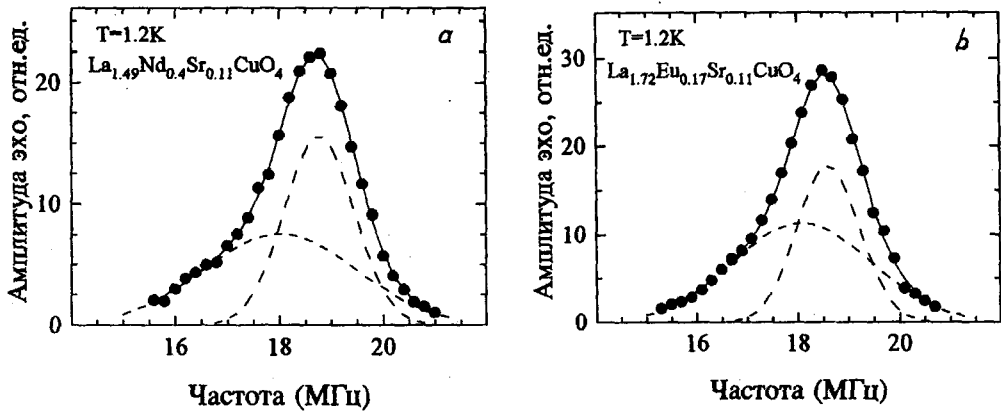


Рис.1. Спектры ЯКР  $^{139}\text{La}$  перехода ( $\pm 5/2 - \pm 7/2$ ) при температуре 1.2К для соединений  $\text{La}_{1.48}\text{Nd}_{0.4}\text{Sr}_{0.12}\text{CuO}_4$  (а) и  $\text{La}_{1.72}\text{Eu}_{0.17}\text{Sr}_{0.11}\text{CuO}_4$  (б). Сплошные линии – результат численного моделирования линии в виде суммы двух вкладов с различными частотами (штриховые линии)

Перейдем теперь к обсуждению серии  $\text{La}_{1.83-x}\text{Eu}_{0.17}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  с различным содержанием стронция  $x$  (известно [8], что по своему воздействию на переход в НТТ фазу замещение  $y = 0.17$  для Eu эквивалентно  $y = 0.40$  для Nd). Возникающая при некоторых температурах  $T(x) < T_{max} = 130$  К НТТ фаза приводит к полному или частичному подавлению сверхпроводимости [8]. В частности, для выбранной нами концентрации Eu граница перехода в сверхпроводящее состояние сдвигается в область больших значений  $x = x_c = 0.16$  (критические температуры образцов с  $x = 0.16; 0.18; 0.20; 0.22$  составляли соответственно 22.6; 29; 25.6; 22 К). Переход в НТТ фазу, начинающийся при  $x \simeq 0.07$ , отражается в поведении всех трех возможных линий ЯКР. Например, начиная с концентрации стронция  $x = 0.07$ , линии, соответствующие высокочастотным переходам  $\pm 7/2 - \pm 5/2$ , так же как и в случае La-Nd соединения, имеют асимметричную форму, эволюционирующую с ростом  $x$ , вплоть до  $x = x_c = 0.16$ . Соответствующий сигнал может быть представлен в виде суперпозиции двух линий: более широкой – низкочастотной и узкой – высокочастотной (рис.1б). Величина расщепления, возникающего при  $x = 0.07$ , растет с увеличением числа дырок в системе (см. рис.2), начиная с  $x = 0.07$ , вплоть до значений  $x = 0.16$ , соответствующих переходу в сверхпроводящее состояние. Заметим, что относительная интенсивность этих двух компонент, характеризующая доли слабодопированной (высокочастотная) и сильнодопированной (низкочастотная) фаз, существенно зависит от  $x$ . Вначале вклад высокочастотной линии возрастает с ростом  $x$ , достигая максимума при  $x = 0.12$ , а затем уменьшается вплоть до исчезновения при полном переходе системы в сверхпроводящее состояние, происходящем при  $x = 0.22$ .

Можно считать, что соответствующая разность градиентов электрического поля обусловлена неоднородностями (модуляцией) распределения электронной плотности в системе. Более того, тот факт, что это распределение проявляется в наблюдаемой линии ЯКР, позволяет считать, что оно носит стационарный характер на масштабе времени порядка обратной разности частот двух компонент спектра ЯКР.

Эти результаты свидетельствуют в пользу высказанных ранее гипотез [1–4] о том, что в недопированных лантан-стронциевых соединениях (не переходящих в НТТ фазу, но находящихся в окрестности такого перехода) также существуют подобные

"stripe"-структуры с тем лишь отличием, что они являются подвижными образованиями. Согласно [1–4], они могут представлять собой одномерные скопления дырок, разделяющих области с пониженной их концентрацией (не исключено, что и с АФ порядком), и, как показано в [12], их динамика сводится к перемещению в перпендикулярном направлении. Заметим, что при этом по частоте магнитных флуктуаций можно определить скорость перемещения заряженных доменных стенок.

2. Рассмотрим теперь процессы релаксации ядер  $^{139}\text{La}$ . Прежде всего отметим, что в соединении с Nd ее характерные скорости на два порядка выше, чем в соединении с Eu. Это однозначно указывает на роль магнитных моментов Nd в этом процессе (мы наблюдали ускорение релаксации по мере возрастания содержания Nd от нуля до 0.4). Они определяют основной канал релаксации, которая имеет типичный для релаксации через случайно расположенные магнитные моменты неэкспоненциальный характер [13]. Температурная зависимость эффективных времен релаксации (рис.3), записанных для  $T_1 \gg T_2$  в виде

$$1/T_{1,2} = (\gamma_n H_i^{\perp, \parallel})^2 \{ \tau / [1 + (\omega_Q \tau)^2], \tau \},$$

позволяет оценить время жизни флуктуаций. Здесь  $H_i^{\perp}$  и  $H_i^{\parallel}$  – средние абсолютные величины перпендикулярной и параллельной компонент внутреннего флуктуационного поля, создаваемого моментами Nd на ядре La,  $\tau$  – время жизни соответствующих флуктуаций,  $\gamma_n$  – гиромангнитное отношение для ядер La. Наши оценки  $\tau_{\text{Nd}}$  в точке  $\omega_Q \tau_{\text{Nd}} = 1$  (соответствующей  $\max 1/T_1$ ) дают  $\tau_{\text{Nd}} \sim 0.8 \cdot 10^{-8}$ . С учетом измеренной скорости релаксации это означает, что Nd создает на ядре La магнитное поле порядка 330 Э. Такая величина указывает на дипольный характер происхождения этого поля.

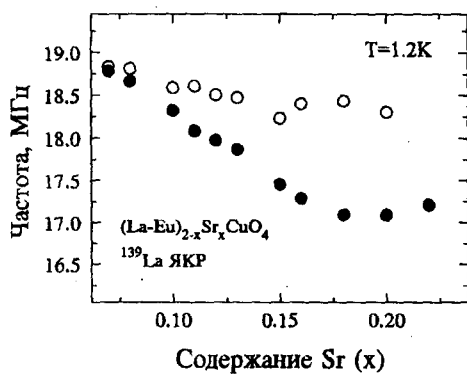


Рис.2. Зависимость частот ЯКР  $^{139}\text{La}$  перехода ( $\pm 5/2 - \pm 7/2$ ) от содержания Sr ( $x$ ) для двух составляющих спектра  $\text{La}_{1.83-x}\text{Eu}_{0.17}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  при температуре 1.2 K

Перейдем теперь к релаксации в La-Eu (рис.4). При достаточно малом содержании Sr и  $1/T_1$  и  $1/T_2$  определяются неэкспоненциальной релаксацией через локальные магнитные моменты (связанные с дырками) и зависят от температуры одинаково. Такая зависимость, сводящаяся к почти не зависящему от  $x$  замедлению продольной релаксации при понижении температуры, сохраняется для любых значений  $x$ . Однако в поперечной релаксации с увеличением  $x$  (в условиях развитой НТТ фазы) появляется дополнительный канал, который и доминирует при низких температурах в окрестности  $x = 1/8$ . Связанные с ним времена релаксации имеют порядок 1 мс. Этот критический вклад в релаксацию обусловлен ростом антиферромагнит-

ной скоррелированности магнитных моментов меди, что, с одной стороны, приводит к замерзанию локальных моментов, а с другой, к замедлению критических флуктуаций. То, что критические АФ флуктуации проявляются лишь в поперечной релаксации, позволяет предположить, что они связаны только с продольным относительно оси квантования полем. Не исключено, что оно возникает в результате так называемого кантинга, то есть выхода магнитных моментов меди из плоскости за счет взаимодействия Дзялошинского – Мориа, обусловленного наклонами  $\text{CuO}_6$  октаэдров, характерными для НТТ фазы. Оценки, выполненные с учетом обнаруженного в [14] замедления частоты АФ флуктуаций до  $10^{11} \text{ с}^{-1}$ , дают для средней величины флуктуирующего магнитного поля 2800 Э.

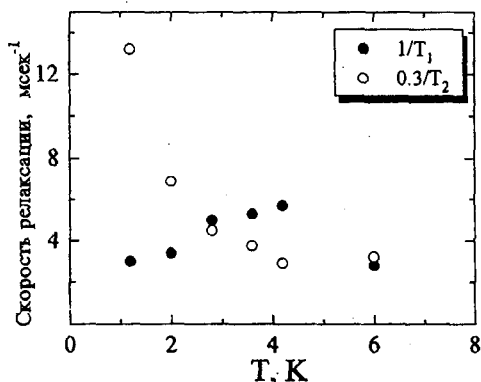


Рис.3. Температурная зависимость скоростей продольной (●) и поперечной (○) релаксаций ядер  $^{139}\text{La}$  в  $\text{La}_{1.48}\text{Nd}_{0.4}\text{Sr}_{0.12}\text{CuO}_4$

Обратим внимание на то, что ускорение поперечной релаксации указывает на значительный рост антиферромагнитной корреляционной длины  $\zeta_{\text{AF}}$  в La–Eu соединении (это обстоятельство отмечалось и в [14]). Не исключено, что в условиях, когда эта величина превышает расстояние между доменными стенками, в системе возможно появление синфазных доменов (в них ориентация соседних магнитных моментов, разделенных стенкой, одинакова, что отличается от ситуации в La–Nd системе, где, согласно [1, 2], они антипараллельны). В этом случае движение доменов затруднено [12, 15] и подавление сверхпроводимости происходит более эффективно.

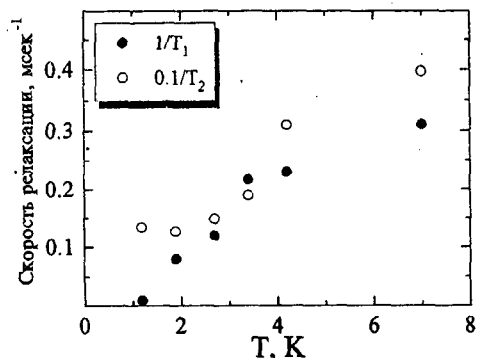


Рис.4. Температурная зависимость скоростей продольной (●) и поперечной (○) релаксаций ядер  $^{139}\text{La}$  в  $\text{La}_{1.72}\text{Eu}_{0.17}\text{Sr}_{0.11}\text{CuO}_4$

3. Таким образом, наш анализ показал, что в НТТ фазе для обеих исследованных систем имеет место неоднородное распределение зарядовой плотности, носящей ста-

ционарный на масштабах порядка  $10^{-5} - 10^{-6}$  с характер. Что же касается характерных времен жизни магнитных флуктуаций, то они для этих соединений существенно отличаются. При допировании ионами Nd магнитные флуктуации замедляются из-за подстройки к его упорядочивающимся магнитным моментам и имеют характерное время жизни  $10^{-8}$  с. В системе же, допированной немагнитными ионами Eu, время жизни флуктуаций, пусть даже испытывающих критическое замедление, значительно короче ( $10^{-10} - 10^{-11}$  с). Следовательно, можно сделать вывод о том, что упорядочения зарядов и спинов развязаны между собой, причем магнитные флуктуации зависят от свойств ионов, стабилизирующих НТТ фазу.

Авторы признательны Н.Н.Гарифьянову, В.Е.Катаеву и М.Пиперу за полезные обсуждения. Работа выполнена в рамках совместной российско-германской программы "Спектроскопия высокотемпературных сверхпроводников", а также поддержана грантом Российского фонда фундаментальных исследований 95-02-05942.

- 
1. J.M.Tranquada, B.J.Sternlieb, J.D.Axe et al., *Nature* **375**, 561 (1995).
  2. J.M.Tranquada, J.D.Axe, N.Ichikawa et al., *Phys. Rev.* **B54**, 7489 (1996).
  3. D.Poilblanc and T.M.Rice, *Phys. Rev.* **B39**, 9749 (1989); J.Zaanen and O.Gunnarson, *Phys. Rev.* **B40**, 7391 (1989).
  4. V.J.Emery, S.A.Kivelson, and H-Q.Lin, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 475 (1990); V.J.Emery and S.A.Kivelson, *Physica C* **209**, 597 (1993).
  5. P.C.Hammel, A.P.Reyes, E.T.Ahrens et al., *Proc. of the Intern. Conf. on Strongly Correlated Systems*, San Diego CA, 1993.
  6. G.B.Teitel'baum, B.Buechner, H.Luetgemeier et al., *J. Low Temp. Phys.* **105**, 407 (1996).
  7. M.A.Teplov, Yu.A.Sakhratov, A.V.Dooglav et al., *Pis'ma v ZhETF* **65**, 782 (1997).
  8. B.Buechner, M.Braden, M.Cramm et al., *Physica C* **185-189**, 903 (1991); B.Buechner, M.Cramm, M.Braden et al., *Europhys. Lett.* **21**, 953 (1993).
  9. T.Kobayashi, S.Wada, Y.Kitaoka et al., *J. Phys. Soc. Jpn.* **58**, 779 (1989).
  10. S.Ohshugi, Y.Kitaoka, H.Yamanaka et al., *J. Phys. Soc. Jpn.* **63**, 2057 (1994).
  11. E.F.Kukovitsky, H.Luetgemeier, and G.B.Teitel'baum, *Physica C* **252**, 160 (1995).
  12. A.H.Castro Neto, preprint, cond-mat/9611146 (1996).
  13. M.R.McHenry, B.G.Silbernagel, and J.H.Wernick, *Phys. Rev.* **B5**, 2958 (1972).
  14. V.E.Kataev, B.Rameev, B.Buechner et al., *J. Low Temp. Phys.* **105**, 449 (1996); *Phys. Rev.* **B55**, R3394 (1997).
  15. Yu.A.Krotov, D.-H.Lee, and A.V.Balatsky, *Phys. Rev.* **B56**, 8367 (1997).