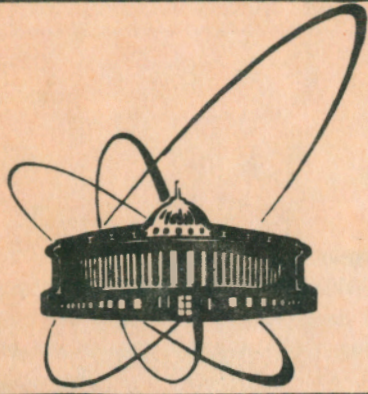


90-57

e
+

сообщения
объединенного
института
ядерных
исследований
дубна



A 537

P3-90-54

В.П.Алфименков, В.И.Лушиков, Ю.Д.Мареев,
Л.Б.Пикельнер

ИССЛЕДОВАНИЕ МАГНИТНОЙ СТРУКТУРЫ
ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНЫХ СВЕРХПРОВОДНИКОВ
С ПОМОЩЬЮ
ПОЛЯРИЗОВАННЫХ РЕЗОНАНСНЫХ НЕЙТРОНОВ

1990

Несмотря на многочисленные и активные исследования высокотемпературной сверхпроводимости в течение двух лет со времени ее открытия Мюллером и Беднорцем, природа этого явления до сих пор остается неизвестной. Несомненная важность проблемы стимулирует применение разнообразных и весьма изощренных методов современной экспериментальной физики для всестороннего исследования высокотемпературных сверхпроводников (ВТСП), а также разработку новых методических подходов к этой задаче. Важным моментом для понимания механизма спаривания электронов в ВТСП является изучение связи магнитной структуры и магнитных свойств ВТСП с наблюдаемой сверхпроводимостью. Информация об атомной магнитной структуре получается из экспериментов по дифракции тепловых нейтронов, а по микроструктуре внутренних магнитных полей — из исследований с имплантированными поляризованными мю-мезонами. Новые и дополнительные сведения о магнитной микроструктуре ВТСП могут быть получены с помощью предлагаемого нами метода пропускания поляризованных резонансных нейтронов через сверхпроводники, содержащие поляризованные ядра.

ОПИСАНИЕ МЕТОДА

О величине магнитного поля H в месте расположения некоторого атомного ядра, имеющего спин I и магнитный момент μ , можно судить по величине ядерной поляризации f_N , которая, в простейшем случае атома с нулевым спином электронной оболочки, равна

$$f_N = B_I(\mu H/kT), \quad (1)$$

где B — функция Бриллюена: $B_I(x) = (1+1/2I)\text{cth}((1+1/2I)x) - \text{cth}(x/2I)/2I$, k — постоянная Больцмана, T — температура образца. При малых значениях параметра $x = \mu H/kT$ $f_N \cong (I+1)x/3I$.

Из-за малости ядерных магнитных моментов заметная поляризация ядер при величине внутреннего магнитного поля $\cong 10^{-1}$ Тл может быть достигнута только при крайне низких температурах порядка 10^{-4} К. Для атомов с ненулевым спином электронной оболочки из-за сверхтон-

кого взаимодействия эффективное магнитное поле на ядре будет зависеть от состояния электронной оболочки. В случае редкоземельных атомов с незаполненной внутренней 4f-оболочкой это поле достигает чрезвычайно больших значений порядка 300 Тл (для Tb) и даже 700 Тл (для Ho), так что практически полная ядерная поляризация достигается при умеренно низких температурах $\cong 10^{-2}$ К. Величина поля, в силу глубокого расположения 4f-оболочки, практически не зависит от химического соединения, в состав которого входят редкоземельные атомы, однако его направление определяется ориентацией магнитного момента атома μ_A относительно осей кристаллической решетки. Поэтому средняя поляризация редкоземельных ядер в образце f_N будет равна степени поляризации атомных магнитных моментов f_A в заданном направлении, и в изотропном парамагнитном соединении при низких температурах можно считать, что

$$f_N \cong f_A = V_J (\mu_A H_i / kT), \quad (2)$$

где H_i — магнитное поле в месте нахождения парамагнитного иона, J — эффективный спин основного состояния этого иона. Поскольку величины атомных магнитных моментов μ_A на три порядка больше, чем ядерные магнитные моменты, вполне измеримая ядерная поляризация возникает при $H_i \cong 10^{-2}$ Тл и температурах $\cong 10^{-2}$ К.

Практически все соединения редкоземельных элементов сильно анизотропны, значения атомных магнитных моментов сложным образом зависят от направления приложенного магнитного поля по отношению к кристаллическим осям и для поликристаллических образцов прямое использование простого соотношения (2) невозможно. Сопоставляя, однако, результаты измерений зависимости ядерной поляризации от температуры и приложенного поля с данными измерений макроскопических магнитных моментов $M(H, T)$ (напомним, что в тех же приближениях, как и для выражения (2), $M = N_p \mu_A V_J (\mu_A H / kT)$, N_p = плотность парамагнитных атомов), можно получить величины эффективных атомных моментов μ_A .

Вклад различных магнитных атомов легко разделить, поскольку ядерная поляризация измеряется для конкретных ядер, не зависит прямым образом от их плотности, что может быть существенно для магнитно-разбавленных систем. Конечно, более полная информация может быть получена в экспериментах с монокристаллами либо сильно текстурированными образцами. В случае сверхпроводящих материалов, имеющих заметное диамагнитное экранирование или выраженную вихревую структуру внутреннего магнитного поля, можно также использовать результаты измерений ядерной поляризации, сопоставляя их с из-

мерениями на несверхпроводящих аналогах, например диэлектрических фазах ВТСП. В магнитно-упорядоченных материалах зависимость $f_N(H, T)$ будет иметь свои характерные особенности, в частности, для антиферромагнетиков $f_N = 0$.

Одним из методов измерения поляризации ядер может служить пропускание поляризованных резонансных нейтронов. Метод основан на сильной спиновой зависимости сечения резонансного взаимодействия нейтронов с ядрами. Подробное изложение теоретических и экспериментальных основ взаимодействия поляризованных нейтронов с ядрами можно найти, например, в работах^{1,2}. Мы приведем лишь краткое изложение, необходимое для понимания экспериментов.

В экспериментах по пропусканию поляризованных нейтронов спиновую зависимость полного нейтронного сечения наиболее удобно характеризовать эффектом пропускания:

$$\epsilon(E) = (N_a - N_p)/(N_a + N_p), \quad (3)$$

где N_p и N_a — скорости счета детектора нейтронов при параллельной и антипараллельной поляризации нейтронов и ядер, E — энергия нейтронов. Эффект пропускания может быть выражен в виде

$$\epsilon = f_n \operatorname{th}(n f_N \sigma_{ss}). \quad (4)$$

Здесь f_n и f_N — поляризация нейтронов и ядер соответственно, n — толщина мишени (яд./см²). Спин-спиновое (поляризационное) сечение для s -нейтронов

$$\sigma_{ss} = I(\sigma_+ - \sigma_-)/(2I + 1) \quad (5)$$

зависит от спина ядра-мишени I и разности сечений σ_{\pm} для состояний $J = I + 1/2$ и $J = I - 1/2$. Для изолированного резонанса реализуется одно из двух состояний J , поэтому сечение σ_{ss} достаточно велико для аккуратного измерения ϵ , и, при известных параметрах резонанса и поляризации нейтронов f_n , из (4) можно определить ядерную поляризацию f_N .

Прямое использование выражения (4) осложнено тем, что сечение σ_{ss} в соответствии с формулой Брайта-Вигнера в пределах резонанса существенно зависит от энергии нейтронов. При этом необходимо учитывать доплеровское уширение резонанса, функцию энергетического разрешения спектрометра и другие факторы. Поэтому для обработки экспериментальных данных более удобным является метод площадей, когда эффект пропускания выражается через площадь провала A в энергетической зависимости кривой пропускания $T(E) = \exp(-n\sigma(E))$, схе-

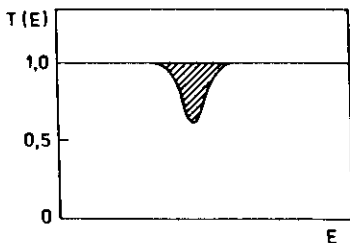


Рис. 1. Определение площади резонансного провала — заштрихованная область в кривой пропускания.

матически изображенной на рис.1. Площадь провала

$$A = \int (1 - T(E))dE \quad (6)$$

уже не зависит от энергии нейтронов и функции разрешения, и определяется нейтронной Γ_n и полной Γ шириной резонанса, его доплеровской шириной Δ и фактором $(1 \pm \rho f_N)$, где параметр $\rho = -1$ для $J = I - 1/2$ и $\rho = 1/(I + 1/2)$ для $J = I + 1/2$. (Подробнее о расчете A можно найти, например, в^[3]). Тогда эффект пропускания для площади резонанса ϵ_A можно представить в виде

$$\epsilon_A = \frac{A[\Gamma_n, \Gamma, \Delta, n(1 + \rho f_N)] - A[\Gamma_n, \Gamma, \Delta, n(1 - \rho f_N)]}{A[\Gamma_n, \Gamma, D, n(1 + \rho f_N)] + A[\Gamma_n, \Gamma, \Delta, n(1 - \rho f_N)]} \quad (7)$$

и сопоставлять его с экспериментальным эффектом

$$\epsilon_A^{\text{exp}} = \frac{\sum_i (N_{ai} - N_{pi})}{\sum_i [2N_{oi} - (N_{ai} + N_{pi})]} \quad (8)$$

где N_{pi} и N_{ai} — число отсчетов в i -м временном канале (при измерении энергетического спектра по времени пролета нейтронов) при параллельной и антипараллельной ориентации спинов соответственно, N_{oi} — число отсчетов при отсутствии в образце ядер, которым принадлежит исследуемый резонанс.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ УСТАНОВКА И ИЗМЕРЕНИЯ

Измерения ядерной поляризации были выполнены на пучке поляризованных резонансных нейтронов на импульсном бустере ИБР-30 + ЛУЭ-40. Общая схема установки приведена на рис.2, а ее подробное опи-

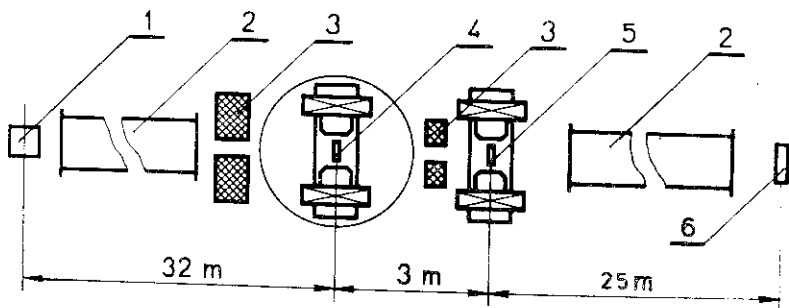


Рис. 2. Схема экспериментальной установки: 1 — активная зона бустера ИБР-30 + ЛУЭ-40; 2 — вакуумные нейтронотводы; 3 — коллиматоры пучка нейтронов; 4 — поляризованная протонная мишень; 5 — образец; 6 — детектор нейтронов.

сание содержится в работах^{2,4}. Длительность нейтронного импульса составляла 4 мкс, что обеспечивало достаточно хорошее разрешение по времени пролета для базы 60 м и энергий резонансов < 100 эВ. Поляризация нейтронов достигалась пропусканием пучка через поляризованную протонную мишень и удерживалась на уровне $f_n = 0,55 \pm 0,03$.

Для поляризации ядер исследуемой мишени использовался рефрижератор с растворением ^3He в ^4He , обеспечивающий охлаждение образцов до температуры $0,03 - 0,04$ К, и магнит с полем до 1,4 Тл.

Измерялась поляризация ядер гольмия-165 и тербия-159 в образцах металлического гольмия, окиси тербия Tb_2O_3 , поликристаллических парамагнитных солях $\text{Ho}_2\text{Mg}_3(\text{NO}_3)_{12}24\text{H}_2\text{O}$ и $\text{Tb}_2\text{Mg}_3(\text{NO}_3)_{12}24\text{H}_2\text{O}$, а также в высокотемпературных сверхпроводниках $\text{HoBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$, $\text{Tb}_{0,2}\text{Y}_{0,8}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-y}$. Масса образцов составляла 100-200 г.

Образцы сверхпроводников были изготовлены в виде порошков по обычной керамической технологии, и при температуре жидкого азота они обладали выраженным эффектом Мейснера. Рентгеновские дифракционные спектры сверхпроводящих образцов, приведенные на рис. 3 и рис. 4, показывают, что содержание фазы 1—2—3 в гольмиевом образце составляет 80% с примесью "зеленой" фазы $\text{Ho}_2\text{BaCuO}_5$, CuO и BaCO_3 . В тербиевом образце содержание фазы 1—2—3 составляет 90% и присутствует примесь "зеленой" фазы.

Результаты обработки нейтронограммы тербиевого сверхпроводника, полученной на дифрактометре ДН-2 на импульсном реакторе ИБР-2, дают содержание кислорода в фазе 1—2—3, равное $6,76 \pm 0,02$. К сожалению, из-за близости амплитуд рассеяния тербия и иттрия нейтронографические данные не позволяют измерить содержание тербия в сверх-

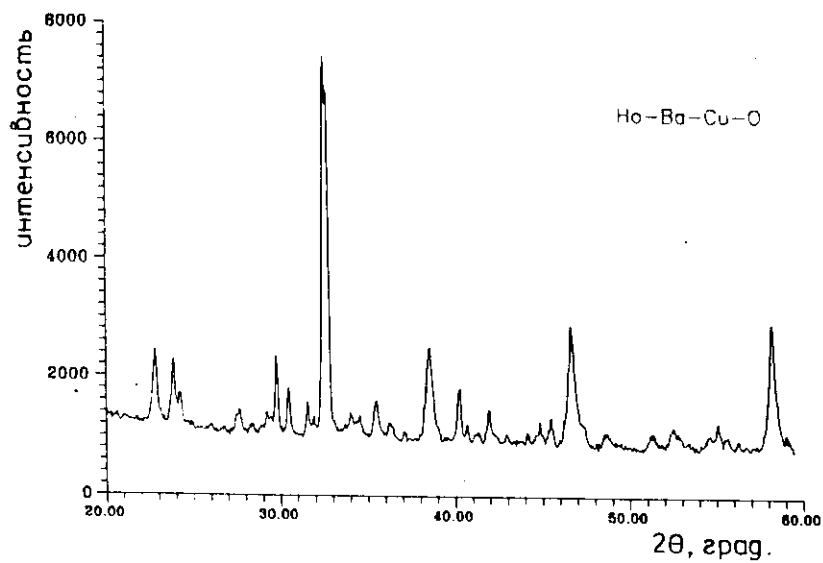


Рис. 3. Рентгенограмма образца $\text{HoBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$.

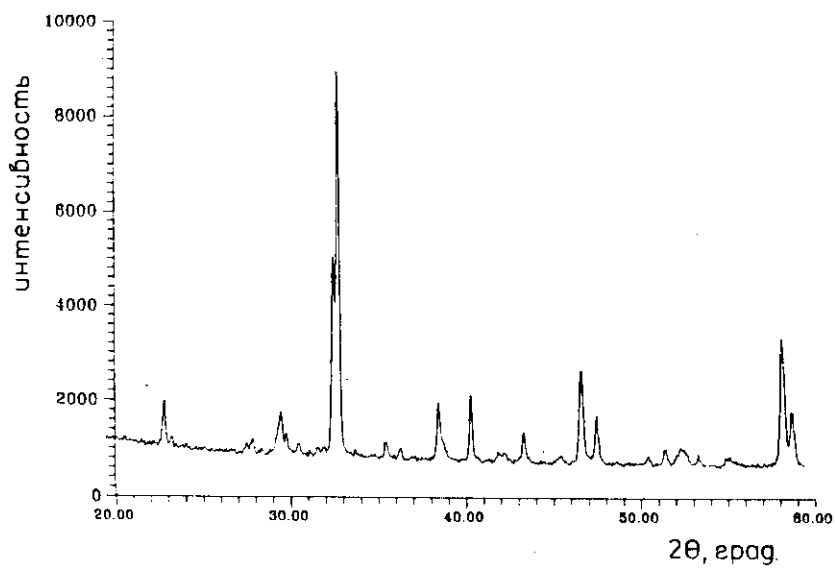


Рис. 4. Рентгенограмма образца $\text{Tb}_{0,2}\text{Y}_{0,8}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$.

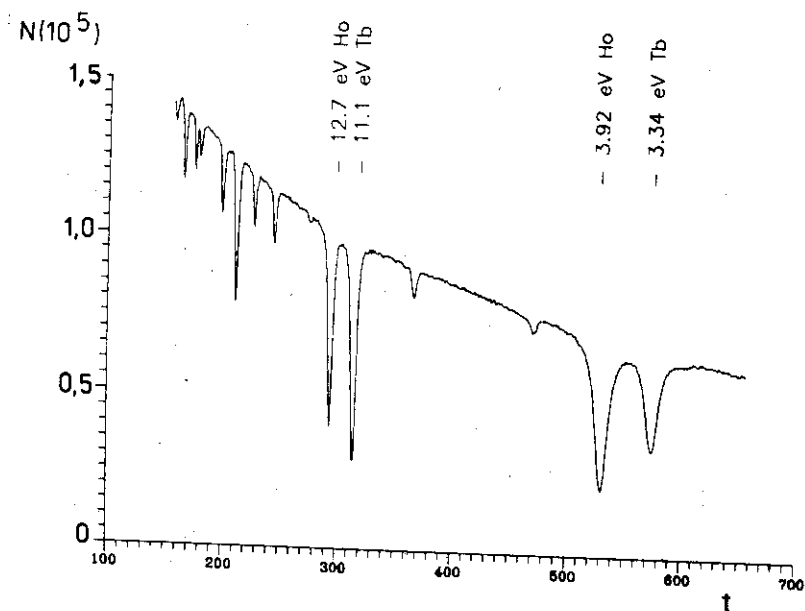
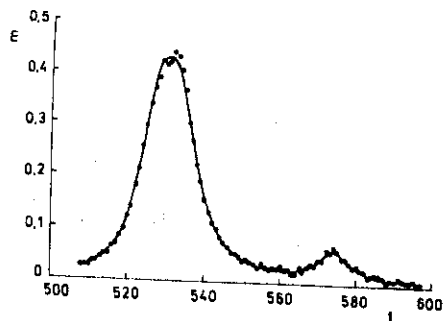


Рис. 5. Экспериментальный спектр пропускания через последовательно расположенные образцы металлического гольмия и $Tb_{0,2}Y_{0,8}Ba_2Cu_3O_{7-x}$. По оси абсцисс — время пролета в каналах по 4 мкс.

Рис. 6. Эффект пропускания в области резонансов 3,92 эВ (металлический гольмий) и 3,34 эВ (тербий в $Tb_{0,2}Y_{0,8}Ba_2Cu_3O_{7-x}$). ● — экспериментальные точки при $H = 1,35$ Тл, $T = 0,035$ К; сплошная кривая — расчет при ядерных поляризациях $f_N^{Ho} = 0,8$ и $f_N^{Tb} = 0,25$.



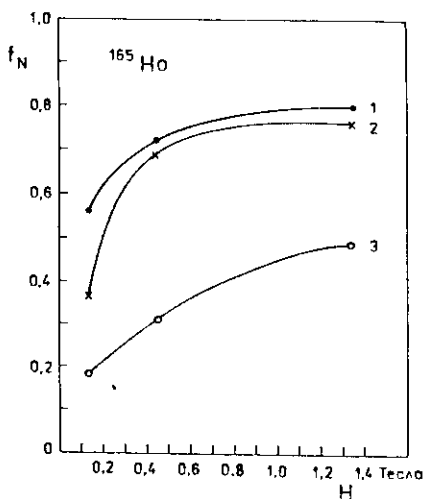
проводящей фазе, хотя они и не противоречат исходному соотношению тербия и иттрия.

Поскольку низколежащие резонансы гольмия и тербия практически не перекрываются, для экономии времени измерения в каждом эксперименте в нейтронный пучок устанавливались друг за другом два образца: один гольмиевый и один тербиевый. На рис. 5 приведен типичный спектр пропускания, а на рис. 6 — эффект пропускания ϵ в области резонансов

3,92 эВ (металлический Ho) и 3,34 эВ (Tb в ВТСП). Большая величина эффекта в окрестности 530-го канала соответствует высокой ядерной поляризации гольмия ($f_N = 0,8$) в ферромагнитном металле. Эффект для ядер тербия в сверхпроводящем образце в районе 574-го канала значительно меньше, однако вполне заметен.

ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

На рис. 7 и рис. 8 приведены результаты измерений ядерной поляризации в различных соединениях, соответственно, гольмия (по резонансу 3,92 эВ) и тербия (по резонансу 3,34 эВ) при температуре $T = 0,035$ К и в полях $H = 0,135, 0,45$ и $1,35$ Тл. Поскольку в излагаемых экспери-



ментах основное внимание было направлено на проверку методики, более детальная зависимость ядерной поляризации в сверхпроводниках от величины внешнего поля и температуры не измерялась

Рис. 7. Зависимость ядерной поляризации гольмия от внешнего магнитного поля при температуре 0,035 К.

- 1 — металлический гольмий;
- 2 — $\text{Ho}_2\text{Mg}_3(\text{NO}_3)_{12} \cdot 24\text{H}_2\text{O}$;
- 3 — $\text{HoBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$;

сплошные кривые — аппроксимация функциями Бриллюена.

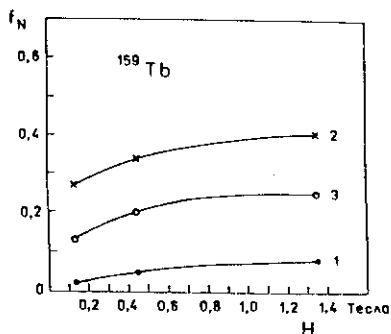


Рис. 8. Зависимость ядерной поляризации тербия от внешнего магнитного поля при температуре 0,035 К.

- 1 — Tb_2O_3 ;
- 2 — $\text{Tb}_{0,2}\text{Y}_{0,8}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$;
- 3 — $\text{Tb}_2\text{Mg}_3(\text{NO}_3)_{12} \cdot 24\text{H}_2\text{O}$;

сплошные кривые — аппроксимация функциями Бриллюена.

и значительная часть времени была потрачена на контрольные эксперименты (измерения с неполяризованным нейтронным пучком, фоновых условий, эффективности спинового ротатора и т.д.). Тем не менее ряд заключений о магнитной структуре редкоземельных ВТСП при низких температурах может быть сделан и из уже полученных данных.

1. Ядерная поляризация в $\text{HoBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ в полях до 1,4 Тл заметно ниже, чем в ферромагнитном металлическом гольмии и парамагнитном гольмий-магниево-нитрате. При значениях восприимчивости $\text{HoBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$, рассчитанных в¹⁵ из измерений внутрикристаллических электрических полей, и для величины эффективного атомного магнитного момента гольмия порядка 8 магнетонов Бора^{16,17} ядерная поляризация Ho в парамагнитном состоянии должна была быть в наших условиях близкой к единице. Наблюдаемая нами повышенная магнитная жесткость гольмиевого ВТСП может быть связана с антиферромагнитным упорядочением, в согласии с работой¹⁸, где методом дифракции нейтронов (в нулевом поле) обнаружено удвоение периода решетки по оси *a* с температурой фазового перехода 0,14 К.

2. Еще более низкую поляризацию во всех исследованных образцах имеют ионы тербия. Для окиси тербия это безусловно связано с антиферромагнетизмом, появляющемся уже при температуре жидкого азота¹⁹. По-видимому, антиферромагнитное упорядочение по одному из кристаллографических направлений имеет место и для $\text{Tb}_{0,2}\text{Y}_{0,8}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$, несмотря на определенную магнитную разбавленность тербиевой подрешетки.

Неоднородность внутреннего поля в образце, например, из-за его поликристалличности и анизотропности или из-за вихревой структуры в сверхпроводящем состоянии, может приводить к частичной деполяризации нейтронов с временем деполяризации (в приближении малых внешних полей)

$$T_d = 1/\gamma^2 (\Delta \bar{H})^2 \tau, \quad (9)$$

где $\gamma = 1,9 \cdot 10^4 \text{ c}^{-1} \text{ Гс}^{-1}$ — гиромагнитное отношение нейтрона, $(\Delta \bar{H})^2$ — средний квадрат флуктуаций внутреннего поля в образце, τ — характерное время корреляции при прохождении нейтрона через образец, которое можно положить равным времени пролета нейтроном расстояния *d* между соседними неоднородностями. Тогда фактор деполяризации ϕ_d будет равен

$$\phi_d = \exp(-T/T_d) = \exp(-\gamma^2 m_n D d (\Delta \bar{H})^2 / 2E), \quad (10)$$

где *T* — время прохождения нейтронов через образец толщиной *D*, m_n —

масса нейтрона. Измеряя энергетическую зависимость степени деполяризации прошедшего через образец нейтронного пучка, можно получить информацию о степени однородности внутренних полей, аналогичную результатам μ SR-метода.

Предварительная обработка результатов измерений для вышележащих резонансов гольмия и тербия показывает, что в проведенных экспериментах фактор деполяризации нейтронов близок к единице (т.е. нет заметной деполяризации), хотя для некоторых образцов может уменьшаться до величины $\phi_d \cong 0,9$.

Более детальные исследования магнитной структуры ВТСП с помощью поляризованных резонансных нейтронов планируются нами после модернизации и повышения светосилы используемой установки.

Авторы выражают признательность С.Б.Борзакову, С.И.Неговелову, Б.А.Родионову и П.К.Утробину за помощь в проведении измерений.

Работа поддерживается Научным советом по проблеме ВТСП и выполнена в рамках проекта № 421 Государственной программы "Высокотемпературная сверхпроводимость".

ЛИТЕРАТУРА

1. Alfimenkov V.P. et al. — Nucl.Phys., 1982, A376, p.229.
2. Алфименков В.П. и др. — ЭЧАЯ, 1980, т.11, вып.2, с.411.
3. Ефимов В.Н., Шелонцев И.И. — Сообщение ОИЯИ Р-641, Дубна, 1961.
4. Алфименков В.П. и др. — ЯФ, 1977, т.251, вып.5, с.930.
5. Furrer A. et al. — Phys.Rev., 1988, B38, p.4616.
6. Fischer P. et al. — Physica C, 1988, 152, p.145.
7. Hirami S. et al. — Jpn. J.Appl.Phys., 1987, 26, p.L347.
8. Roeland L.W. et al. — Physica C, 1988, 152, p.72.
9. Белов Л.П. и др. — Редкоземельные ферро- и антиферромагнетики. М.: Наука, 1965.

Рукопись поступила в издательский отдел
26 января 1990 года.