Физика низких температур, 1995, т. 21, № 11, с. 1157–1168 УДК 537.6

Проявление скрытого ферромагнетизма при намагничивании антиферромагнитных тонких пленок $YBa_2Cu_3O_{6+x}$

С. Л. Гнатченко

Физико-технический институт низких температур им. Б. И. Веркина НАН Украины, Украина, 310164, г. Харьков, пр. Ленина, 47
E-mail:gnatchenko@ilt.kharkov.ua

М. Баран, Р. Шимчак, Г. Шимчак

Institute of Physics, Polish Academy of Sciences, 02-668 Warsaw, Poland

Статья поступила в редакцию 30 июня 1995 г.

Исследовано намагничивание тонких пленок $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ ($0{,}2 \lesssim x \lesssim 0{,}4$) в температурной области $4{,}2\ \text{K} < T < 300\ \text{K}$ в полях $\mathbf{H} \parallel c$ и $\mathbf{H} \perp c$ напряженностью до 50 кЭ и изучено влияние света на их магнитные свойства. Обнаружены следующие особенности магнитного поведения $YBa_2Cu_3O_{6+x}$: 1) необратимость температурных зависимостей намагниченности m_{ZFC} и m_{FC}, наблюдаемая обычно в спиновых стеклах; 2) нелинейность полевых зависимостей $m(H)$; 3) гистерезис полевых зависимостей намагниченности; 4) существование остаточного магнитного момента при $H = 0$. Сделан вывод о наличии в антиферромагнитно упорядоченном $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ ферромагнитных кластеров. Световое облучение вызывало рост объема ферромагнитной фазы при уменьшении объема антиферромагнитной. Полученные экспериментальные результаты хорошо укладываются в рамки модели фазового разделения, предполагающей существование ферронов (магнитных поляронов) в купратах, принадлежащих семейству высокотемпературных сверхпроводников.

Досліджено намагнічування тонких плівок $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ ($0{,}2 \lesssim x \lesssim 0{,}4$) в температурній області $4{,}2\ \text{K} < T < 300\ \text{K}$ в полях $\mathbf{H} \parallel c$ і $\mathbf{H} \perp c$, напруженість яких досягала 50 кЕ, і вивчено вплив світла на їх магнітні властивості. Виявлено такі особливості магнітної поведінки $YBa_2Cu_3O_{6+x}$: 1) необоротність температурних залежностей намагніченостей m_{ZFC} і m_{FC}, яка спостерігається звичайно у спінових стеклах; 2) нелінійність польових залежностей $m(H)$; 3) гістерезис польових залежностей намагніченості; 4) існування залишкового магнітного моменту при $H = 0$. Зроблено висновок про існування в антиферомагнітно упорядкованому $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ феромагнітних кластерів. Опромінювання плівки світлом приводило до зростання об'єму феромагнітної фази при зменшуванні об'єму антиферомагнітної. Здобуті експериментальні результати узгоджуються з моделлю фазового розділення, яка передбачає існування феронів (магнітних поляронів) в купратах, що належать до високотемпературних надпровідників.

Введение

При изучении магнитных свойств тетрагональных антиферромагнитных (АФМ) образцов $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ ($x \lesssim 0{,}4$) уже в первых работах был выявлен ряд особенностей, которые связывались с существованием в этом антиферромагнетике областей с отличным от нуля магнитным моментом. К таким особенностям относятся второй магнитный переход при температуре $T_{N2} \approx 40$ K [1,2], большой парамагнитный вклад [3–5] в области температур ниже точки Нееля T_{N1}, описываемый законом Кюри—Вейсса с температурой Кюри, соответствующей ферромагнитному (ФМ) взаимодействию, нелинейная зависимость намагниченности от напряженности магнитного поля в области низких температур [6–8]. Эти результаты находят объяснение в рамках модели, предполагающей существование в АФМ упорядоченном кристалле ФМ кластеров. Авторы работ [1–4] объяснили появление второго перехода при температуре T_{N2} и рост магнитной восприимчивости при низких температурах образованием магнитных фрустраций. В соответствии с этой моделью, появление ионов Cu^{2+} в кислород-дефицитных плоскостях CuO_x при увеличении концентрации кислорода приводит к измененению обменного взаимодействия между ионами меди из соседних плоскостей CuO_2 с антиферромагнитного на ферромагнитное. При этом в АФМ матрице образуются области с отличным от нуля магнитным моментом, включающие в себя ионы Cu^{2+} из плоскости CuO_x и двух соседних плоскостей CuO_2.

© С. Л. Гнатченко, М. Баран, Р. Шимчак, Г. Шимчак, 1995

Согласно теории [9,10], ФМ фрустрации должны также возникать в плоскостях CuO_2 вследствие появления при увеличении концентрации кислорода дырок в этих плоскостях, изменяющих косвенное обменное взаимодействие между ионами меди с ферромагнитного на антиферромагнитное [11,12]. Другой возможностью существования ФМ кластеров в $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ и других соединениях, относящихся к высокотемпературным сверхпроводникам, является возникновение ферронов или магнитных поляронов. В работах [13–16] для объяснения высокотемпературной сверхпроводимости в слоистых купратах предложена ферронная модель, в соответствии с которой в этих соединениях должно наблюдаться электронное фазовое разделение на области, обогащенные и обедненные носителями заряда. Автолокализация носителей заряда внутри микрообластей связана с изменением магнитного упорядочения в этих участках кристалла с антиферромагнитного на ферромагнитное [13] или слабоферромагнитное [15], в то время как обедненные носителями области остаются антиферромагнитными. Переход из полупроводникового в металлическое состояние происходит, согласно этой модели, при достижении перколяционного предела по мере увеличения концентрации высокопроводящей фазы. Подобное фазовое разделение наблюдалось ранее в АФМ полупроводниках [17,18]. Имеются экспериментальные данные о существовании электронного фазового разделения в $La_{2-x}Sr_xCuO_{4+\delta}$ [19,20] и $ErBa_2Cu_3O_{6+x}$ [21]. Недавно были получены экспериментальные результаты, свидетельствующие о возможности существования фазового разделения в $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ [22].

В настоящей работе проведены экспериментальные исследования магнитных свойств тонких пленок $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ в АФМ состоянии при $0{,}2 \lesssim x \lesssim 0{,}4$, а также впервые изучено влияние света на магнитные свойства $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ в магнитоупорядоченном состоянии. При изучении намагничивания тонких пленок $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ ярко проявились особенности, обусловленные существованием в этом антиферромагнетике скрытого ферромагнетизма. Полученные экспериментальные результаты позволяют сделать вывод о существовании в $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ наряду с АФМ состоянием кластеров с отличным от нуля магнитным моментом.

Образцы

Исследуемые образцы $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ представляли собой тонкие пленки, нанесенные методом импульсного лазерного распыления на подложки $SrTiO_3$. Выбор таких образцов в качестве объекта для исследований был продиктован возможностью легко изменять содержание кислорода x путем отжига образцов в вакууме и изучать влияние светового облучения на магнитные свойства $YBa_2Cu_3O_{6+x}$. Пленки имели толщину около 150 нм и были прозрачны для видимого света. Толщина подложки составляла $\approx 0{,}3$ мм.

В экспериментах по изучению магнитных свойств $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ использовались два образца (пленки 1 и 2). Площади пленок составляли $S_1 \approx$ $\approx 0{,}07$ см^2 и $S_2 \approx 0{,}15$ см^2 (соответственно объемы пленок $V_1 \approx 1 \cdot 10^{-6}$ см^3 и $V_2 \approx 2 \cdot 10^{-6}$ см^3). Массы подложек для этих двух пленок, определенные взвешиванием, равнялись $m_1 \approx 18{,}9 \cdot 10^{-3}$ г и $m_2 \approx 28{,}8 \cdot 10^{-3}$ г. В исходном состоянии пленки $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ были сверхпроводящими и имели температуру перехода $T_c = 88$–90 K при ширине перехода $\Delta T_c \approx 1$ K. По данным рентгеновских исследований постоянная решетки c для пленок в исходном состоянии была равна 11,70 Å. Такому значению постоянной решетки c соответствует $x \approx 0{,}9$–1 [23,24].

Для получения образцов с нужным содержанием кислорода пленки отжигались в вакууме $p \sim 10^{-2}$ мм рт.ст. при постоянной откачке. Температура отжига составляла 300–330 °C. Предварительно из одной пленки площадью 0,5–1 см^2 вырезались два образца, на один из которых наносились серебряные контакты. Оба образца отжигались одновременно. На свободном от контактов образце (образцы 1 или 2) проводились исследования магнитных свойств, а образец с нанесенными на поверхность серебряными контактами (образцы 1а или 2а) использовался в качестве контрольного для измерений электрического сопротивления четырехконтактным методом. Рентгеновским методом определялась постоянная решетки c отожженных пленок. Эти данные совместно с данными измерения электросопротивления на контрольных образцах позволяли определить содержание кислорода x в отожженных пленках, используя результаты работ [23,24].

Отметим, что применявшийся метод отжига позволял получить достаточно однородные по содержанию кислорода образцы в случае тонких ≈ 150 нм пленок $YBa_2Cu_3O_{6+x}$. Такой метод отжига пленок толщиной ≈ 400 нм приводил к возникновению неоднородного распределения кислорода в образце, что выражалось в сосуществовании полупроводниковой и сверхпроводящей фаз при концентрации кислорода, близкой к переходу металл—диэлектрик, и проявлялось при проведении

магнитных исследований и измерений электросопротивления. Такие образцы показывали полупроводниковый ход температурной зависимости электросопротивления, но проявляли свойства сверхпроводника при измерении полевых зависимостей намагниченности.

Экспериментальные результаты

Измерялись температурные $m(T)$ и полевые $m(H)$ зависимости намагниченности пленок $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ с различным содержанием кислорода. Значение x варьировалось в пределах $0{,}2 \lesssim x \lesssim 0{,}4$. Измерения намагниченности проводились с помощью СКВИД-магнетометра (MPMS-5 Quantum Design) в магнитных полях до 50 кЭ в области температур $4{,}2\ \text{K} < T < 300\ \text{K}$. Эксперименты выполнены для двух ориентаций магнитного поля: $\mathbf{H} \parallel c$ (поле перпендикулярно поверхности пленки) и $\mathbf{H} \perp c$ (поле в плоскости пленки).

Поскольку пленки $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ нанесены на подложки $SrTiO_3$, измерялся суммарный магнитный момент пленки и подложки. При определении магнитного момента пленки из измеренного суммарного момента вычитался диамагнитный вклад подложки. Для этого предварительно была измерена намагниченность подложки без пленки и определена магнитная восприимчивость $SrTiO_3$ $\chi = -1{,}13 \cdot 10^{-7}$ emu/(Э·г).

1. Намагниченность $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ при $x \approx 0{,}4$

Зависимости $m(T)$ в постоянном магнитном поле и $m(H)$ при постоянной температуре измерялись для двух образцов. Первый образец (пленка 1) предварительно отжигался в вакууме при температуре 320 °C в течение 1 ч. Как показали измерения, проведенные на имеющем серебряные контакты контрольном образце 1а, отжигавшемся одновременно с основным, температурная зависимость электросопротивления пленки 1 после отжига имела полупроводниковый характер. Отношение электросопротивлений при гелиевой и комнатной температурах составляло $R_{4,2}/R_{300} \approx 21$. Сопротивление контрольного образца при комнатной температуре изменялось в результате отжига с $R_\alpha = 5{,}9$ Ом до $R_\beta = 94$ Ом ($R_\beta/R_\alpha \approx 16$). Постоянная решетки пленки 1 после отжига по данным рентгеновских измерений, проведенных на образце, не имеющем серебряных контактов, составляла $c = 11{,}81$ Å.

Второй образец (пленка 2) предварительно также отжигался в вакууме при температуре 320 °C в течение 1 ч. Измерения на контрольном образце 2а показали, что, в отличие от пленки 1, температурная зависимость электросопротивления пленки 2 после отжига имела металлический характер, хотя переход в сверхпроводящее состояние не наблюдался при охлаждении вплоть до температуры жидкого гелия. С уменьшением температуры от 300 до 30 K сопротивление контрольного образца понижалось с 50 до 20 Ом, а при охлаждении до 4,2 K — до 10 Ом. Сопротивление этого образца при комнатной температуре изменялось в результате отжига с $R_\alpha = 5{,}9$ Ом до $R_\beta = 50$ Ом ($R_\beta/R_\alpha \approx 9$). Отметим, что при температуре жидкого гелия и более низкой в малых полях для пленки 2 наблюдался заметный диамагнитный вклад в намагниченность, что свидетельствует о присутствии в этом образце сверхпроводящей фазы.

Сопоставляя полученные результаты измерения электросопротивления пленок 1 и 2 с данными, приведенными в [23], можно считать содержание кислорода в отожженных пленках близким к $x = 0{,}4$. Найденное из рентгеновских измерений значение параметра решетки $c \approx 11{,}81$ Å для пленки 1 также соответствует $x \approx 0{,}4$ [23,24]. По данным измерений температурных зависимостей электросопротивления обе пленки после отжига не являлись сверхпроводящими при $T > 4{,}2$ K. Однако, учитывая, что зависимость $R(T)$ для пленки 2 носит металлический характер, можно считать содержание кислорода в этой пленке очень близким к концентрации, соответствующей переходу металл—диэлектрик, т.е. $x = 0{,}41$–$0{,}42$. Содержание же кислорода в пленке 1, имеющей полупроводниковый характер зависимости $R(T)$, несколько ниже, т.е. $x = 0{,}39$–$0{,}4$.

1.1. Температурные зависимости намагниченности в постоянном поле

Температурные зависимости намагниченности $m(T)$ отожженых пленок $YBa_2Cu_3O_{6,4}$ измерялись в постоянном поле для двух его направлений $\mathbf{H} \parallel c$ и $\mathbf{H} \perp c$. Измерения проводились при охлаждении образца в поле (зависимости $m_{FC}(T)$) и при нагреве образца, предварительно охлажденного до температуры жидкого гелия в отсутствие магнитного поля (зависимости $m_{ZFC}(T)$). На рис. 1 приведены зависимости $m_{ZFC}(T)$ и $m_{FC}(T)$ для пленок 1 и 2, измеренные в поле 200 Э при $\mathbf{H} \parallel c$ и $\mathbf{H} \perp c$. Особенностью температурного поведения намагниченности исследуемых пленок является хорошо выраженное различие зависимостей $m_{ZFC}(T)$ и $m_{FC}(T)$, характерное обычно для спиновых стекол. При охлаждении пленки в магнитном поле ее намагниченность достаточно резко возрастает в интервале температур 40 K $\lesssim T \lesssim$ 50 K, а затем продолжает более плавно увеличиваться при дальнейшем понижении температуры, стремясь к насыщению. В слу-

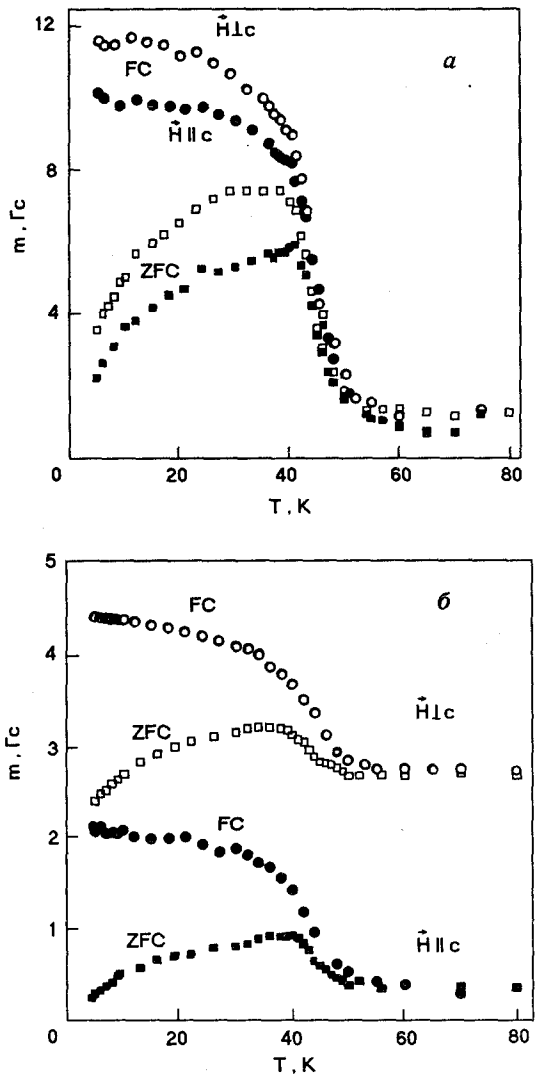

Рис. 1. Температурные зависимости намагниченности m_{ZFC} и m_{FC} пленок $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ с $x \approx 0{,}39$ (*а*) и $\approx 0{,}41$ (*б*) в поле $H = 200$ Э: m_{ZFC}, $\mathbf{H} \parallel c$ (■); m_{ZFC}, $\mathbf{H} \perp c$ (□); m_{FC}, $\mathbf{H} \parallel c$ (●); m_{FC}, $\mathbf{H} \perp c$ (○).

чае же нагрева в магнитном поле пленки, которая была предварительно охлаждена при $H = 0$, наблюдается увеличение ее намагниченности с ростом температуры вплоть до $T \approx 40$ К. Только в области $T \gtrsim 40$ К намагниченность m_{ZFC} уменьшается. При низких температурах значения m_{ZFC} и m_{FC} существенно различаются. Величина $(m_{FC} - m_{ZFC})$ уменьшается с ростом температуры, и в области $T \gtrsim 50$ К кривые $m_{ZFC}(T)$ и $m_{FC}(T)$ практически совпадают.

Зависимости $m_{ZFC}(T)$ и $m_{FC}(T)$ различаются в температурной области $T \lesssim 50$ К для обеих пленок как при $\mathbf{H} \parallel c$, так и при $\mathbf{H} \perp c$. В случае $\mathbf{H} \parallel c$ полученные для обеих пленок температурные зависимости $m_{ZFC}(T)$ и $m_{FC}(T)$ качественно мало отличаются. В случае же $\mathbf{H} \perp c$ для пленки 2 наблюдается дополнительный вклад в намагниченность, который мало изменяется с температурой и не зависит от термической предыстории образца. Величина намагниченности пленки 2 в несколько раз меньше, чем пленки 1, что свидетельствует о быстром уменьшении магнитной восприимчивости $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ с ростом x в окрестности $x = 0{,}4$.

Сопоставление зависимостей $m(T)$, измеренных при $\mathbf{H} \parallel c$ и $\mathbf{H} \perp c$ для пленки 1 (рис. 1,*а*), показывает, что магнитная анизотропия, наблюдаемая для этой пленки, невелика. Величина намагниченности в случае $\mathbf{H} \perp c$ несколько больше, чем в случае $\mathbf{H} \parallel c$. При сопоставлении значений m в этих двух случаях необходимо учесть, что вследствие влияния полей размагничивания внутреннее поле $H_i = H - 4\pi N m$, где N — размагничивающий фактор, меньше при $\mathbf{H} \parallel c$ ($N \approx 1$), чем при $\mathbf{H} \perp c$ ($N \approx 0$). Для пленки 2 значения m (m_{ZFC} или m_{FC}), взятые для одинаковых температур при $\mathbf{H} \parallel c$ и $\mathbf{H} \perp c$ (рис. 1,*б*), отличаются более чем в два раза. При этом изменение намагниченности в области температур $T \lesssim 50$ К происходит примерно одинаково для обеих ориентаций магнитного поля. Но в случае $\mathbf{H} \perp c$ намагниченность больше в результате существования слабо изменяющегося с температурой и не зависящего от термической предыстории образца вклада величиной около 3 Гс.

С ростом магнитного поля отношение $(m_{FC} - m_{ZFC})/m_{FC}$ уменьшалось. В полях $H \gtrsim 8$ кЭ обе кривые $m_{ZFC}(T)$ и $m_{FC}(T)$ совпадали. Для обеих пленок были также измерены зависимости $m(T)$ в полях $\mathbf{H} \parallel c$ и $\mathbf{H} \perp c$ напряженностью 40 кЭ в температурной области $4{,}2\ \text{К} < T < 300$ К. Намагниченность пленок мало изменялась в интервале $100\ \text{К} \lesssim T \lesssim 300$ К, но при $T \lesssim 100$ К наблюдался заметный ее рост по мере понижения температуры, что согласуется с результатами измерений, приведенными в работах [3–5].

1.2. Полевые зависимости намагниченности

Полевые зависимости намагниченности $m(H)$ пленок $YBa_2Cu_3O_{6,4}$ измерялись также для двух ориентаций магнитного поля $\mathbf{H} \parallel c$ и $\mathbf{H} \perp c$. Измерения зависимости $m(H)$ проводились после охлаждения пленки до нужной температуры в отсутствие магнитного поля. Предварительно перед измерениями каждой зависимости $m(H)$ образец подогревался до температуры $T = 100$ К. Кривые $m(H)$ измерялись при увеличении поля до 50 кЭ, а затем при его уменьшении до нуля. На рис. 2 приведены зависимости $m(H)$ для нескольких температур, из-

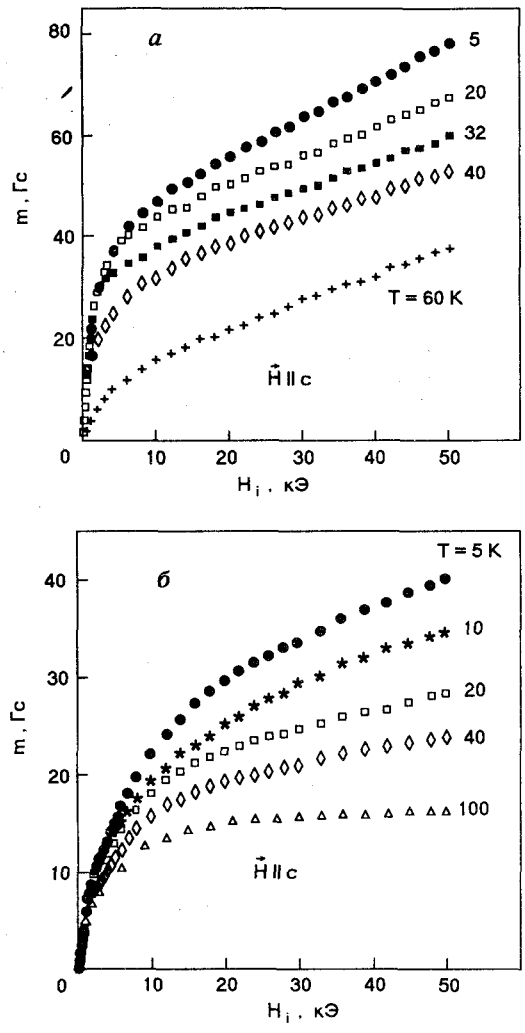

Рис. 2. Полевые зависимости намагниченности пленок $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ с $x \approx 0{,}39$ (*а*) и $\approx 0{,}41$ (*б*) в поле $\mathbf{H} \parallel c$ при различных температурах T, К: 5 (●), 10 (*), 20 (□), 32 (■), 40 (◇), 60 (+), 100 (△).

меренные для пленок 1 и 2 в поле $\mathbf{H} \parallel c$. На зависимостях $m(H)$ показаны только точки, полученные при увеличении напряженности магнитного поля. Поскольку в случае $\mathbf{H} \parallel c$ полями размагничивания нельзя пренебречь, кривые $m(H)$ перестроены в зависимости от внутреннего поля H_i.

На полученных зависимостях $m(H)$ (рис. 2) можно выделить два участка. В малых полях намагниченность пленки быстро увеличивается с ростом H, а затем в полях $H > 10$–15 кЭ наблюдается более плавный рост m с полем. В больших полях зависимости $m(H)$ близки к линейным. Это хорошо видно на полевых зависимостях намагниченности, измеренных для пленки 1 (рис. 2,*а*). Подобные зависимости $m(H)$ были получены для этого образца и в случае $\mathbf{H} \perp c$. Линейные участки в больших полях можно выделить и на зависимостях $m(H)$, полученных для пленки 2. При $\mathbf{H} \perp c$ для этой пленки зависимости $m(H)$ близки к линейным в полях $H \geq 15$ кЭ. В случае же $\mathbf{H} \parallel c$ при $T \leq 10$ К в этом интервале полей трудно выделить линейный участок на зависимостях $m(H)$ (рис. 2,*б*). Наличие двух участков на кривой $m(H)$ свидетельствует о существовании двух вкладов в намагниченность исследуемых пленок $YBa_2Cu_3O_{6+x}$, один из которых быстро возрастает (начальная восприимчивость $\chi^{(1)}$) и стремится к насыщению в малых полях, а второй дает более медленное (восприимчивость $\chi^{(2)}$) линейное с полем изменение намагниченности.

Магнитная восприимчивость $\chi = dm/dH$ максимальна в области малых полей. Выделяя участок кривой $m(H)$ вблизи $H = 0$, на котором эта зависимость близка к линейной, из наклона dm/dH можно найти $\chi_{\parallel}^{(1)}$ для $\mathbf{H} \parallel c$ и $\chi_{\perp}^{(1)}$ для $\mathbf{H} \perp c$. Для пленки 1 при температуре $T = 5$ К для обеих ориентаций поля при $H < 500$ Э значения магнитной восприимчивости $\chi_{\parallel}^{(1)}$ и $\chi_{\perp}^{(1)}$ в пределах ошибки измерения имеют одинаковую величину $\chi_{\parallel}^{(1)} \approx \chi_{\perp}^{(1)} \approx 2{,}8 \cdot 10^{-2}$. Но для пленки 2 в малых полях наблюдается заметная анизотропия магнитной восприимчивости. Значения $\chi_{\parallel}^{(1)} \approx 0{,}7 \cdot 10^{-2}$ и $\chi_{\perp}^{(1)} \approx 1{,}8 \cdot 10^{-2}$, найденные из наклонов линейных участков зависимостей $m(H)$ при $H < 1$ кЭ для $T = 5$ К, отличаются в 2,5 раза. Эти значения меньше $\chi_{\parallel}^{(1)}$ и $\chi_{\perp}^{(1)}$, полученных для пленки 1. С ростом температуры при $T < 50$ К магнитная восприимчивость $\chi^{(1)}$, определяемая в области малых полей, несколько возрастает. Для пленки 1 при $T \geq 50$ К восприимчивость в малых полях резко уменьшается и зависимость $m(H)$ приближается к линейной начиная с малых полей. В отличие от пленки 1, быстро растущий в малых полях вклад в намагниченность в пленке 2 имеет большую величину и при $T > 50$ К (рис. 2,*б*) мало изменяется с температурой и наблюдается даже при комнатной температуре.

В полях $H > 10$–15 кЭ восприимчивость $\chi^{(2)} = dm/dH$, соответствующая линейным участкам зависимостей $m(H)$, для пленки 1 (рис. 2,*а*) мало изменяется с температурой. В интервале $5\ \text{К} \leq T \leq 60$ К она изменяется от $\approx 7 \cdot 10^{-4}$ до $\approx 5 \cdot 10^{-4}$. Анизотропия магнитной восприимчивости $\chi^{(2)}$ в сильных полях невелика. В пределах ошибок измерений значения $\chi^{(2)}$ при $\mathbf{H} \parallel c$ и $\mathbf{H} \perp c$ совпадают при одинаковых температурах. Для пленки 2 с ростом температуры наблюдается заметное уменьшение восприимчивости $\chi^{(2)}$ в полях $H > 10$–15 кЭ. При ориентации поля $\mathbf{H} \parallel c$ значение $\chi^{(2)}$ изменяется от $3 \cdot 10^{-4}$ при $T = 5$ К до $0{,}3 \cdot 10^{-4}$ при $T = 100$ К.

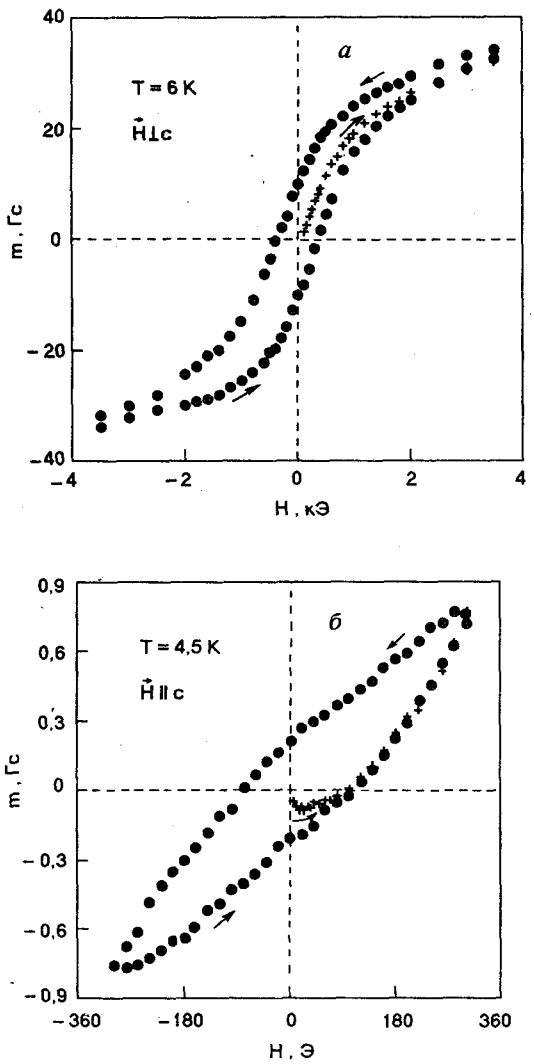

Рис. 3. Гистерезис намагниченности пленок $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ с $x \approx 0{,}39$ (*а*) и $\approx 0{,}41$ (*б*):

Как и для пленки 1, значения $\chi_{\parallel}^{(1)}$ и $\chi_{\perp}^{(1)}$ в случае пленки 2 совпадают при одинаковых температурах в пределах экспериментальных ошибок. Магнитная восприимчивость $\chi^{(2)}$ для пленки 2 меньше, чем для пленки 1.

Выше описаны результаты исследований зависимостей $m(H)$, которые получены при увеличении напряженности магнитного поля. Сопоставление кривых $m(H)$, измеренных при увеличении и уменьшении H, показало, что в полях $H \geq 8$ кЭ они совпадают с точностью до ошибок измерений, а в меньших полях наблюдается гистерезис. На рис. 3,*а* показан гистерезис намагниченности пленки 1 при $T = 6$ K в поле $\mathbf{H} \perp c$. Максимальное значение поля, которое достигалось в процессе измерений, равнялось 10 кЭ. Как видно из этого рисунка, значение m предварительно намагниченной пленки $YBa_2Cu_3O_{6,4}$ не обращается в нуль при выключении магнитного поля. Имеется остаточная намагниченность m_r. Для размагничивания образца необходимо приложить поле обратного направления величиной в несколько сот эрстед. При низких температурах остаточная намагниченность m_r сохраняется длительное время.

Гистерезис намагниченности пленки 2 в малых полях при $T = 4{,}5$ K показан на рис. 3,*б*. Наряду с возникновением остаточной намагниченности рис. 3,*б* демонстрирует существование в пленке 2 областей сверхпроводящей фазы, с которой связано появление диамагнитного вклада в полях $H \lesssim 100$ Э при первом намагничивании после охлаждения пленки в отсутствие поля.

2. Намагниченность $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ при $0{,}2 \lesssim x \lesssim 0{,}4$

Проведены исследования влияния содержания кислорода на магнитные свойства $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ в магнитоупорядоченном состоянии. Изучались зависимости $m(T)$ и $m(H)$ при изменении x в интервале $0{,}2 \lesssim x \lesssim 0{,}4$. Для этого был проведен дальнейший отжиг в вакууме пленки 1. Она отжигалась несколько раз и после каждого отжига проводились измерения ее намагниченности. Ниже приведены результаы измерений зависимостей $m(T)$ и $m(H)$, полученные после отжига пленки при температуре 320 °C в течение 4 ч и последующего отжига при температуре 330 °C в течение 5 ч.

Содержание кислорода в пленке после отжига определялось путем рентгеновских измерений постоянной решетки c. Отжиг пленки 1 в течение 4 ч привел к увеличению постоянной решетки до величины $c \approx 11{,}83$ Å. Такому значению c соответствует $x \approx 0{,}3$ [23,24]. После отжига еще в течение 5 ч при температуре $T = 330$ °C постоянная решетки c стала равной $\approx 11{,}84$ Å. Содержание кислорода при таком значении c близко к $x \approx 0{,}2$.

На рис. 4 приведены температурные зависимости намагниченности $m_{FC}(T)$, измеренные в поле $\mathbf{H} \perp c$ напряженностью $H = 200$ Э при различном содержании кислорода $x \approx 0{,}39$, $\approx 0{,}3$ и $\approx 0{,}2$ в пленке 1. Для сравнения на рис. 4 показана также зависимость $m_{FC}(T)$, измеренная в том же поле для пленки 2, имеющей $x \approx 0{,}41$. Были проведены также измерения температурных зависимостей намагниченности для пленки 1 с $x \approx 0{,}39$, $\approx 0{,}3$ и $\approx 0{,}2$ в поле $H = 40$ кЭ. На рис. 5 приведены полученные в результате этих измерений температурные зависимости магнитной восприимчивости χ. Значения χ определялись из соотношения $\chi = m/H$.

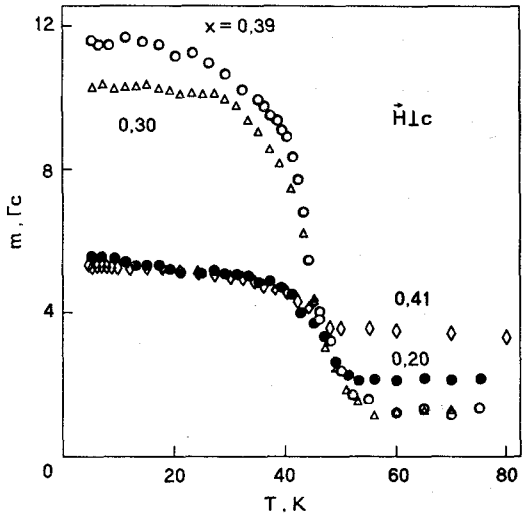

Рис. 4. Температурные зависимости намагниченности m_{FC} пленок $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ с $x \approx$ 0,2 (●), ≈ 0,3 (△), ≈ 0,39 (○) и ≈ 0,41 (◇) в поле $\mathbf{H} \perp c$ напряженностью 200 Э.

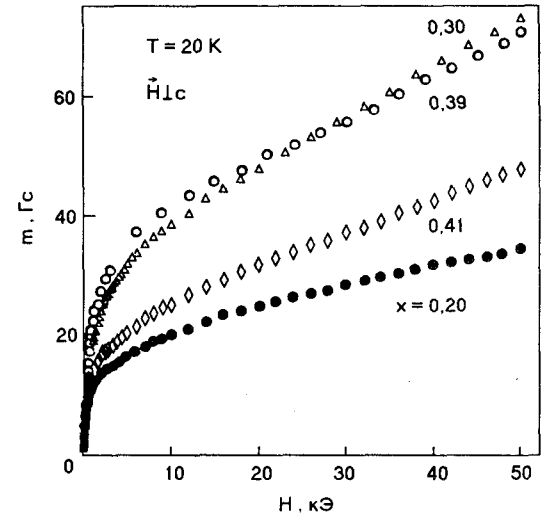

Рис. 6. Полевые зависимости намагниченности пленок $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ с $x \approx$ 0,2 (●), ≈ 0,3 (△), ≈ 0,39 (○) и 0,41 (◇) в поле $\mathbf{H} \perp c$ при температуре T = 20 K.

Отметим, что для пленки 1 при температурах $T > 60$ K полевые зависимости намагниченности близки к линейной.

При уменьшении x от ≈ 0,4 до ≈ 0,3 намагниченность в поле H = 200 Э уменьшается, но незначительно (рис. 4), а намагниченность в поле H = 40 кЭ даже несколько возрастает (рис. 5). Последний результат согласуется с результатами работы [3], в которой приведены температурные зависимости магнитной восприимчивости $YBa_2Cu_3O_{6+x}$, измеренные для различных x в поле H = 20 кЭ.

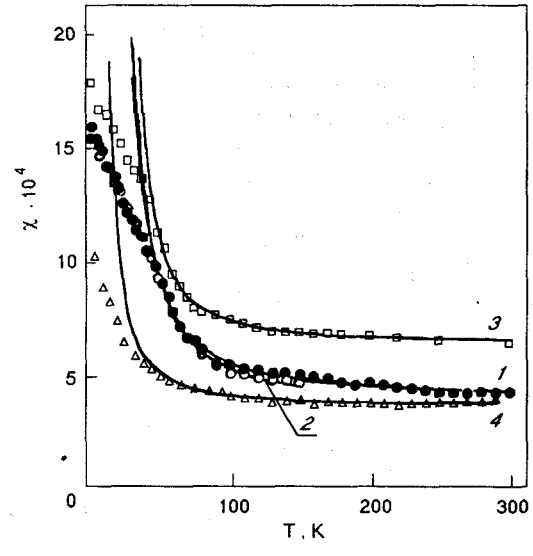

Рис. 5. Температурные зависимости магнитной восприимчивости, измеренные в поле 40 кЭ для пленки 1: $\mathbf{H} \parallel c$ (*1*); $\mathbf{H} \perp c$ (*2–4*); $x \approx 0{,}39$ (*1,2*); ≈ 0,3 (*3*); ≈ 0,2 (*4*). Линия — расчет по формуле (2) с параметрами: $\chi_0 = 3{,}6 \cdot 10^{-4}$ (*1*), $3{,}3 \cdot 10^{-4}$ (*2*), $6 \cdot 10^{-4}$ (*3*), $3{,}4 \cdot 10^{-4}$ (*4*); $C = 1{,}5 \cdot 10^{-2}$ (*1,2*), $1 \cdot 10^{-2}$ (*3*), $0{,}6 \cdot 10^{-2}$ (*4*) K; θ = 25 (*1*), 26 (*2*), 32 (*3*), 14 (*4*) K.

При уменьшении x до ≈ 0,2 величина намагниченности в поле H = 200 Э уменьшается уже более чем в два раза. Наблюдается также заметное уменьшение намагниченности, измеренной в поле H = 40 кЭ, в области температур $T \lesssim 100$ K (рис. 5). Зависимость $m_{FC}(T)$ для пленки 2 практически совпадает с зависимостью $m_{FC}(T)$ для пленки 1 с $x \approx 0{,}2$ при $T \lesssim 50$ K (такое совпадение случайно). Из сопоставления кривых, приведенных на рис. 4, видно, что в поле H = 200 Э при $T \lesssim 50$ K намагниченность максимальна при $x \approx 0{,}39$ и уменьшается как при уменьшении, так и при увеличении концентрации кислорода. Особенно быстро уменьшение намагниченности происходит с ростом x. При $T \gtrsim 50$ K намагниченность максимальна для $x \approx 0{,}41$.

На рис. 6 показаны полевые зависимости намагниченности, измеренные при температуре T = 20 K в поле $\mathbf{H} \perp c$ для пленки 1 при тех же значениях x, а также для пленки 2. Как видно из этого рисунка, зависимости $m(H)$ мало отличаются при $x \approx 0{,}39$ и ≈ 0,3. Понижение содержания кислорода до ≈ 0,2 вызывает существенное изменение зависимости $m(H)$. Намагниченность в больших полях уменьшается так же, как и в малых, больше чем в два раза. Магнитная восприимчивость $\chi_\perp^{(1)}$ в слабых полях, определяемая из наклона линейного участка $m(H)$ при $H < 1$ кЭ, уменьшается с $\chi_\perp^{(1)} \approx 2{,}8 \cdot 10^{-2}$ при $x \approx 0{,}39$ до $\chi_\perp^{(1)} \approx 1{,}4 \cdot 10^{-2}$ при $x \approx 0{,}2$. Опре-

деляемая из наклона линейного участка зависимости $m(H)$ в полях $H > 10$–15 кЭ магнитная восприимчивость $\chi_{\perp}^{(2)}$ также уменьшается с $\chi_{\perp}^{(2)} \approx 6 \cdot 10^{-4}$ при $x \approx 0{,}39$ до $\chi_{\perp}^{(2)} \approx 3 \cdot 10^{-4}$ при $x \approx 0{,}2$. Из зависимости $m(H)$, измеренной для пленки 2 и соответствующей $x \approx 0{,}41$, видно, что для такой концентрации кислорода при $T = 20$ К намагниченность в больших полях заметно меньше намагниченности при концентрации кислорода $x \approx 0{,}39$, а восприимчивость $\chi_{\perp}^{(2)}$ уменьшается до значения $\approx 4{,}5 \cdot 10^{-4}$.

3. Влияние света на магнитные свойства $YBa_2Cu_3O_{6+x}$

Эксперименты по изучению влияния светового облучения на магнитные свойства пленок $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ были проведены на образцах с содержанием кислорода близким к концентрации, соответствующей переходу металл—диэлектрик. При таких значениях x наблюдаются максимальные изменения электропроводности пленок $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ при воздействии на них света [23] и можно ожидать проявления фотоиндуцированных изменений состояния пленки в изменении ее магнитных свойств. Исследования проводились на пленках 1 и 2 после их первого отжига, когда значение кислородного индекса x было равно $\approx 0{,}39$ для пленки 1 и $\approx 0{,}41$ для пленки 2.

Образец облучался светом He–Ne лазера с длиной волны $\lambda \approx 6328$ Å. Мощность лазерного излучения равнялась 40 мВт. Для однородного освещения пленки пучок света расширялся. Плотность потока светового излучения, падающего на образец, составляла около 0,1 Вт/см^2. Исследуемые пленки были относительно прозрачными для света с $\lambda \approx 6328$ Å, что позволяло индуцировать светом изменение состояния пленки достаточно однородно по толщине. Время облучения образца варьировалось от 1 до 6 ч. При этом доза облучения изменялась от $\approx 1 \cdot 10^{21}$ до $\approx 6 \cdot 10^{21}$ фотонов/см^2 соответственно. Отметим, что основные изменения магнитных свойств пленок, описанные ниже, происходили во время первого часа облучения. При дальнейшем облучении магнитные свойства пленок мало изменялись.

Облучение пленок $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ светом мы могли проводить только при комнатной температуре. После окончания облучения образец помещался в СКВИД-магнетометр и охлаждался до температуры $T = 100$ К. Эта операция занимала 15–20 мин. Отметим, что релаксация фотоиндуцированных изменений электропроводности при $T = 293$ К протекает в течение десятков часов [23].

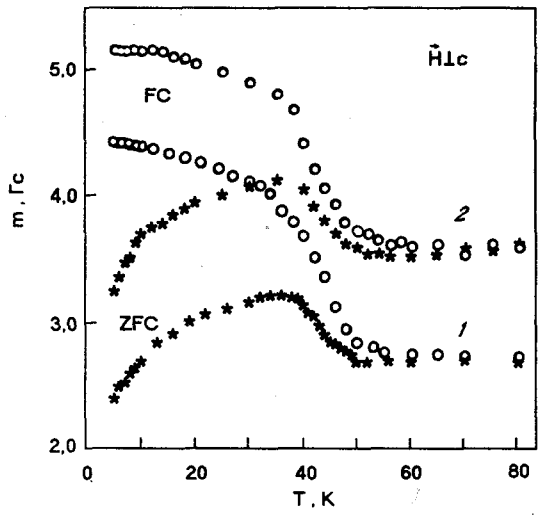

Рис. 7. Влияние света на температурные зависимости намагниченности m_{ZFC} (*) и m_{FC} (○) пленки $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ с $x \approx$ $\approx 0{,}41$ в поле $H \perp c$ напряженностью 200 Э; до облучения (*1*), после облучения в течение 6 ч (*2*).

Облучение светом пленки 1 не влияло на зависимости $m_{ZFC}(T)$ и $m_{FC}(T)$, измеренные в поле $H =$ $= 200$ Э. Нам не удалось заметить изменений этих зависимостей после облучения пленки 1 в течение 6 ч. Фотоиндуцированные изменения зависимостей $m_{ZFC}(T)$ и $m_{FC}(T)$, измерявшихся в поле $H =$ $= 200$ Э, были обнаружены для пленки 2. На рис. 7 приведены эти зависимости, измеренные для $H \perp c$ до и после облучения пленки в течение 6 ч. Наиболее четко выраженным изменением зависимостей $m_{ZFC}(T)$ и $m_{FC}(T)$ после облучения является заметное увеличение слабо изменяющегося с температурой и не зависящего от термической предыстории образца вклада в намагниченность. Отметим, что после светового облучения пленки этот вклад становился заметным в поле $H = 200$ Э и для ориентации $H \parallel c$.

Фотоиндуцированные изменения зависимостей $m(H)$ наблюдались как для пленки 2, так и для пленки 1. На рис. 8 представлены зависимости $m(H)$, измеренные при $T = 20$ К в случае $H \parallel c$ для пленок 1 и 2 до и после их облучения светом в течение 6 ч. Как видно из рисунка, для пленки 1 кривые $m(H)$, полученные для необлученной и облученной пленки, практически совпадают в полях $H \lesssim$ $\lesssim 5$ кЭ. В больших полях намагниченность после облучения пленки меньше, чем до облучения. Разность величин намагниченностей необлученной и облученной пленки увеличивается с ростом напряженности магнитного поля. Магнитная восприимчивость $\chi_{\parallel}^{(2)}$, определяемая из наклона зависимости $m(H)$ в полях $H \gtrsim 10$ кЭ, изменяет свое значение

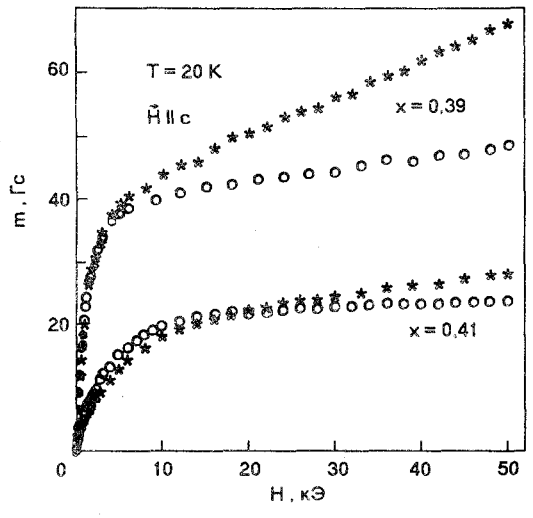

Рис. 8. Влияние света на полевые зависимости намагниченности пленок $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ с $x \approx 0{,}39$ и $\approx 0{,}41$ при $\mathbf{H} \parallel c$ и $T =$ $= 20$ K; до облучения (*), после облучения в течение 6 ч (○).

с $\chi_{\parallel}^{(2)} \approx 6 \cdot 10^{-4}$ для необлученной пленки 1 до $\chi_{\parallel}^{(2)} \approx 2 \cdot 10^{-4}$ для той же пленки после облучения.

Для пленки 2 фотоиндуцированные изменения зависимости $m(H)$ наблюдаются уже при малых полях. В области малых полей намагниченность облученной пленки больше, чем ее намагниченность до облучения, а начиная с поля $H \approx 17$ кЭ, как и для пленки 1, она становится меньше, чем до облучения. Магнитная восприимчивость $\chi_{\parallel}^{(2)}$ в больших полях уменьшается с $\chi_{\parallel}^{(2)} \approx 2 \cdot 10^{-4}$ для необлученной пленки 2 до $\chi_{\parallel}^{(2)} \approx 5 \cdot 10^{-5}$ для пленки 2 после облучения.

Обсуждение результатов

Полученные экспериментальные результаты можно объяснить, если учесть возможность существования в АФМ упорядоченном $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ кластеров с отличным от нуля магнитным моментом. Появление ФМ кластеров в купратах, принадлежащих семейству высокотемпературных сверхпроводников, возможно при образовании дырок (вследствие кислородного допирования) в плоскостях CuO_2, которые приводят к смене косвенного обменного взаимодействия между ионами меди с антиферромагнитного на ферромагнитное. Согласно теории, появление дырок может вызвать образование в плоскостях CuO_2 спин-поляризованных кластеров (ферронов) и фазовое разделение кристалла [13–16]. Подобные представления о существовании в плоскостях CuO_2 кластеров, имеющих ненулевой магнитный момент, развиты в теории магнитных фрустраций [9,10]. В соответствии с теорией фазового разделения ФМ кластеры имеют низкую подвижность, тогда как дырки внутри кластера могут передвигаться свободно. При больших концентрациях дырок вследствие диффузии кластеры начинают объединяться. При этом возникают большие фракталы или перколяционные кластеры и формируется фазовое разделение, а при определенной концентрации кислорода образуется перколяционная сетка. Выше порога перколяции происходит разрушение АФМ упорядочения и появляется металлическая проводимость, а также сверхпроводимость при температурах ниже критической.

Полученные нами экспериментальные результаты по намагничиванию тонких пленок $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ и влиянию на этот процесс светового облучения согласуются с моделью фазового разделения. В рамках этой модели можно объяснить необратимость температурных зависимостей m_{ZFC} и m_{FC}, наблюдавшуюся в малых полях для пленок всех исследовавшихся кислородных концентраций $0{,}2 \lesssim x \lesssim 0{,}4$ (рис. 1 и 4). В отсутствие магнитного поля при охлаждении в образце с равной вероятностью образуются спин-поляризованные кластеры с противоположными направлениями магнитных моментов. Намагниченность образца при этом равна нулю. Включение магнитного поля вызывает спиновую переориентацию в кластерах с невыгодной при заданном направлении H ориентацией магнитных моментов. При этом намагниченность растет при увеличении температуры (кривые $m_{ZFC}(T)$). При охлаждении пленок в магнитном поле преимущественно образуются кластеры с выгодной при выбранном направлении H ориентацией магнитных моментов и намагниченность увеличивается по мере понижения температуры (кривые $m_{FC}(T)$). С увеличением напряженности внешнего поля различие зависимостей $m_{ZFC}(T)$ и $m_{FC}(T)$ уменьшается. Поле $H \gtrsim 8$ кЭ достаточно для перемагничивания невыгодных кластеров при $T = 4{,}2$ K.

Температура, ниже которой начинается рост намагниченности и возникает различие кривых $m_{ZFC}(T)$ и $m_{FC}(T)$ в полях $H \lesssim 8$ кЭ (рис. 1 и 4), имеет такой же физический смысл, как температура блокировки для суперпарамагнитных частиц. Выше этой температуры направление магнитного момента малого ФМ кластера флуктуирует, изменяясь время от времени на противоположное. При этом вклад ферромагнитных (суперпарамагнитных) кластеров в намагниченность кристалла резко уменьшается.

Быстрый рост намагниченности в малых полях на зависимостях $m(H)$ (рис. 2 и 6) также связан с изменением ориентации магнитных моментов, не-

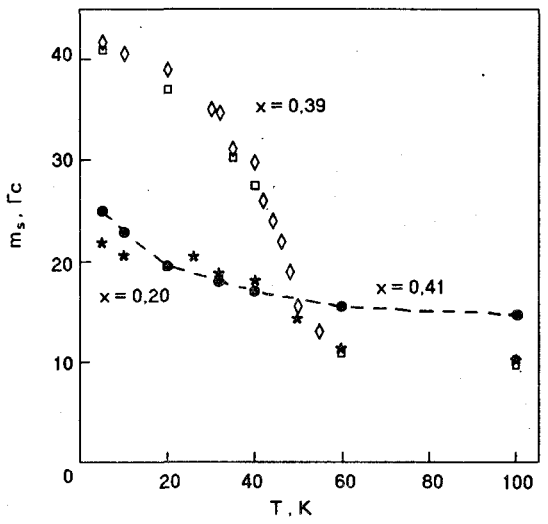

Рис. 9. Температурные зависимости намагниченности m_s, полученной экстраполяцией к $H = 0$ линейного участка $m(H)$ для пленок $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ с $x \approx 0{,}2$ (*), $\approx 0{,}39$ (◇) — $\mathbf{H} \parallel c$, (□) — $\mathbf{H} \perp c$) и $\approx 0{,}41$ (●). Точки, полученные для $x \approx 0{,}41$, соединены пунктиром.

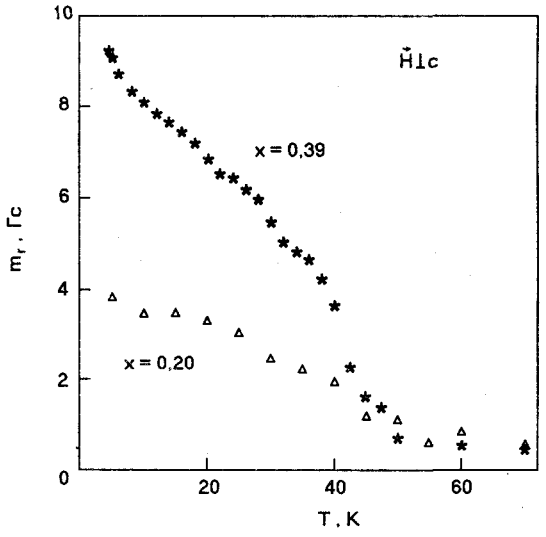

Рис. 10. Температурные зависимости остаточной намагниченности пленок $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ с $x \approx 0{,}2$ (△) и $\approx 0{,}39$ (*).

выгодных при заданном направлении H ФМ кластеров. Линейное с полем изменение намагниченности в полях $H > 10$–15 кЭ обусловлено намагничиванием антиферромагнетика. Экстраполируя линейный участок зависимости $m(H)$, можно определить вклад в намагниченность $m_s(T)$ ФМ кластеров. На рис. 9 приведены температурные зависимости $m_s(T)$ для пленок с концентрациями кислорода $x \approx 0{,}2$; $\approx 0{,}39$ и $\approx 0{,}41$. Следует отметить, что вследствие существования наряду с ФМ и АФМ вкладами в намагниченность еще и парамагнитного вклада, например от ионов Cu^{2+} в плоскостях CuO_x, значение m_s определено с некоторой ошибкой. О наличии парамагнитного вклада в намагниченность свидетельствует и наблюдаемое на зависимостях $m(H)$ (особенно для пленки с $x \approx \approx 0{,}41$ при низких температурах (рис. 2,*б*)) отклонение от линейного хода в больших полях.

Наличие гистерезиса на зависимостях $m(H)$ в полях $H \lesssim 8$ кЭ обусловлено частичным замораживанием при низких температурах созданного полем магнитного состояния. Часть ФМ кластеров, в которых поле индуцировало переориентацию спинов, остается в этом состоянии при выключении поля, что приводит к возникновению отличного от нуля магнитного момента при $H = 0$. Такой вывод подтверждается приведенными на рис. 10 температурными зависимостями остаточного магнитного момента m_r, измеренного в пленках с концентрацией кислорода $x \approx 0{,}2$ и $\approx 0{,}39$. Зависимости $m_r(H)$ измерялись в отсутствие поля после охлаждения пленок до температуры $T = 4{,}2$ K при $H = = 200$ Э. Величина остаточной намагниченности уменьшается при нагреве пленок и становится в 5 (для пленки с $x \approx 0{,}2$) и в 20 (для пленки с $x \approx \approx 0{,}39$) раз меньше в области температур, превышающих температуру блокировки $T \approx 50$ K.

При понижении концентрации кислорода и соответственно числа дырок в плоскостях CuO_2 уменьшается количество ФМ кластеров. Этим объясняется заметное уменьшение намагниченности в малых полях (рис. 4 и 6), а также величин m_s и m_r (рис. 9 и 10) для пленки с $x \approx 0{,}2$. Резкое уменьшение этих величин наблюдается также при увеличении концентрации кислорода от $x \approx 0{,}39$ до $\approx 0{,}41$. Такое резкое уменьшение намагниченности при небольших изменениях x в окрестности 0,4 может быть обусловлено тем, что вблизи перехода из полупроводникового в металлическое состояние происходит быстрый рост числа дырок в плоскостях CuO_2. Следствием этого должен быть рост перколяционных кластеров. Согласно теории [25], при определенной концентрации дырок и росте размера кластеров их ФМ упорядочение становится неустойчивым. В результате формируются многодырочные кластеры, намагниченность которых уменьшается. Остающиеся при этом ФМ кластеры малого размера дают вклад в намагниченность, но этот вклад существенно уменьшается (рис. 4 и 6). Уменьшается также и величина m_s (рис. 9). Отметим, что наблюдаемое в эксперименте для пленки с $x \approx 0{,}41$ увеличение намагниченности в малых полях при температурах $T > 50$ K (рис. 4) может быть связано с большими многодырочными кластерами, так как температура блокировки повышается с ростом размера суперпарамагнитной час-

тицы. Появлением квазиодномерных фракталов может быть обусловлена анизотропия в малых полях, наблюдаемая для пленки с $x \approx 0{,}41$ при намагничивании ее в полях $H \parallel c$ и $H \perp c$ (рис. 1,*б*). Образование в пленке с $x \approx 0{,}41$ перколяционных металлических кластеров подтверждается измерениями температурной зависимости электросопротивления. Зависимость $R(T)$ для этой пленки, как отмечалось выше, имеет металлический характер, хотя переход в сверхпроводящее состояние в ней не наблюдался вплоть до температуры жидкого гелия. Отметим также, что, судя по быстрому падению магнитной восприимчивости $\chi^{(2)}$ для пленки с $x \approx 0{,}41$ при $T > 40$ K, АФМ порядок в этом образце сильно разрушен и температура Нееля находится, по-видимому, в области 40–50 K.

Используя полученные экспериментальные параметры, оценим средний магнитный момент ФМ кластера μ_c, число кластеров в 1 см^3 n и средний объем кластера v_c. Для оценки значения μ_c воспользуемся выражением [26]

$$\mu_c = \frac{2kT_b \ln (2tf_0)}{H_c}, \qquad (1)$$

которое связывает величину магнитного момента суперпарамагнитной частицы с температурой блокировки T_b. В выражении (1) k — постоянная Больцмана; t — время наблюдения; f_0 — слабо зависящий от температуры частотный фактор и H_c — критическое поле перемагничивания частицы. Взяв из эксперимента значение $T_b \approx 50$ K и $H_c \approx$ ≈ 8 кЭ, полагая $t = 1$ мин и оценивая $f_0 \sim 10^{14}$ с$^{-1}$, находим средний магнитный момент ФМ кластера $\mu_c \approx 6 \cdot 10^{-17}$ Гс·см^3 $\approx 7 \cdot 10^3 \mu_B$, где μ_B — магнетон Бора.

При оценке числа ФМ кластеров n воспользуемся результатами измерений магнитной восприимчивости $\chi(T)$ (рис. 5). Полученные экспериментальные зависимости $\chi(T)$ в области температур $T > 50$ K описываются выражением [3–5]

$$\chi = \chi_0 + C/(T - \theta), \qquad (2)$$

где χ_0 — не зависящая от температуры восприимчивость, а $C/(T - \theta)$ — парамагнитный вклад, описываемый законом Кюри—Вейсса с ферромагнитной температурой Кюри θ. Наилучшее согласие расчетных и экспериментальных зависимостей $\chi(T)$ (рис. 5) наблюдается при следующих значениях температур и постоянных Кюри: $\theta \approx 26$ K и $C \approx 1{,}5 \cdot 10^{-2}$ K для $x \approx 0{,}39$; $\theta \approx 32$ K и $C \approx$ $\approx 1 \cdot 10^{-2}$ K для $x \approx 0{,}3$; $\theta \approx 14$ K и $C \approx 0{,}6 \cdot 10^{-2}$ K для $x \approx 0{,}2$. Взяв полученные значения постоянных Кюри C и используя формулу

$$C = n\mu_c/3k, \qquad (3)$$

оцениваем число ФМ кластеров n. Получаем следующие значения: $n \approx 0{,}6 \cdot 10^{15}$ см^3 для $x \approx 0{,}2$; $n \approx 1 \cdot 10^{15}$ см^3 для $x \approx 0{,}3$ и $n \approx 1{,}5 \cdot 10^{15}$ см^3 для $x \approx 0{,}39$.

Для оценки числа ФМ кластеров можно также использовать экспериментальное значение m_s и соотношение

$$m_s = n\mu_c. \qquad (4)$$

Взяв максимальные значения m_s при низких температурах (рис. 9) ($m_s \approx 21$ Гс, ≈ 42 Гс и ≈ 25 Гс для $x \approx 0{,}2$; 0,39 и 0,41 соответственно), находим $n \approx 3 \cdot 10^{17}$ см^3 для $x \approx 0{,}2$, $n \approx 6 \cdot 10^{17}$ см^3 для $x \approx 0{,}39$ и $n \approx 4 \cdot 10^{17}$ см^3 для $x \approx 0{,}41$. Из сопоставления значений, оцененных с использованием экспериментальных значений C и m_s, следует, что число ФМ кластеров увеличивается при понижении температуры. Однако следует отметить также возможность возрастания намагниченности ФМ фазы и объема кластеров (и соответственно магнитного момента μ_c) при понижении температуры, что не учитывается при проведении простых оценок, выполненных выше. Уменьшение n для $x \approx$ $\approx 0{,}41$ связано, как отмечалось выше, с возникновением при такой концентрации кислорода больших перколяционных кластеров.

Для оценки среднего объема ФМ кластеров необходимо знать намагниченность ФМ фазы. Если допустить, что все магнитные моменты ионов Cu^{2+} в кластере ориентированы параллельно, то для объема ФМ кластера, имеющего $\mu_c \approx 7 \cdot 10^3 \mu_B$, получаем значение $v_c \approx 3 \cdot 10^{-19}$ см^3. Для сферического кластера такому объему соответствует радиус кластера $r_c \approx 4 \cdot 10^{-7}$ см ≈ 40 Å.

Допуская, что все магнитные моменты ионов Cu^{2+} в ФМ кластере ориентированы параллельно, и используя приведенные выше значения m_s, можно оценить также объем ФМ фазы в образце. Получаем значения $\approx 0{,}1$ для $x \approx 0{,}2$ и $\approx 0{,}2$ для $x \approx 0{,}39$ от объема образца. Отметим, что найденные значения объема являются заниженными из-за использования при оценке максимально возможной намагниченности ФМ фазы. В связи с этим мы не проводим оценку объема ФМ фазы для пленки с кислородным содержанием $x \approx 0{,}41$, для которой в эксперименте наблюдается заметное уменьшение намагниченности.

При облучении пленок светом наблюдалось уменьшение количества АФМ фазы, о чем свидетельствует уменьшение магнитной восприимчивости $\chi^{(2)}$ для пленок с $x \approx 0{,}39$ и $x \approx 0{,}41$ в сильных

полях (рис. 8). Отметим, что облучение приводит к таким же изменениям зависимости $m(H)$ в сильных полях, как и допирование кислородом вблизи $x = 0{,}4$. При изменении от $x \approx 0{,}39$ до $\approx 0{,}41$ наблюдается уменьшение восприимчивости $\chi^{(2)}$ (рис. 6). Вывод о разрушении АФМ упорядочения в $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ под воздействием светового облучения согласуется с наблюдением фотоиндуцированного ослабления интенсивности полосы двухмагнонного рассеяния в спектрах комбинационного рассеяния света [27].

Для пленки с $x \approx 0{,}41$ после облучения светом наблюдалось увеличение намагниченности в малых полях (рис. 7 и 8), что можно объяснить ростом объема ФМ фазы. Отсутствие изменений намагниченности в малых полях после облучения пленки с $x \approx 0{,}39$ (рис. 8) связано, по-видимому, с протеканием при облучении этой пленки двух процессов. Вызываемое облучением увеличение числа дырок в плоскостях CuO_2 приводит к росту размера кластеров. При увеличении же размера кластеров уменьшается их намагниченность. Эти два процесса компенсируют друг друга, что затрудняет наблюдение изменений намагниченности в малых полях при облучении.

Таким образом, полученные в работе экспериментальные результаты по исследованию намагничивания тонких пленок $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ и влияния на этот процесс облучения светом позволяют сделать вывод о существовании в этом соединении при $0{,}2 \lesssim x \lesssim 0{,}4$ скрытого ферромагнетизма. Эти экспериментальные результаты находят вполне удовлетворительное объяснение в рамках модели фазового разделения, предполагающей существование в купратах, принадлежащих к семейству высокотемпературных сверхпроводников, ферромагнитно упорядоченных областей.

Авторы выражают благодарность В. В. Еременко и Н. Ф. Харченко за поддержку работы и ценные замечания, М. М. Богдану и А. С. Ковалеву за полезные обсуждения результатов и И. Горецкой за проведение рентгеновских исследований образцов.

1. H. Kadowaki, M. Nishi, Y. Yamada, H. Takei, S. M. Shapiro, and G. Shirane, *Phys. Rev.* **B37**, 7932 (1988).
2. J. M. Tranquada, G. Shirane, B. Keimer, S. Shamoto, and M. Sato, *Phys. Rev.* **B40**, 4503 (1989).
3. W. E. Farneth, R. S. McLean, E. M. McCarron, F. Zuo, Y. Lu, B. R. Patton, and A. J. Epstein, *Phys. Rev.* **B39**, 6594 (1989).
4. Y. Yamaguchi, S. Waki, and M. Tokumoto, *Solid State Commun.* 69, 1153 (1989).
5. H. Theuss and H. Kronmuller, *Physica* **C178**, 37 (1991).
6. X. Obradors, J. Tejada, J. Rodriguez, F. Peres, M. Vallet, J. Gonzalez-Calbet, and M. Medarde, *J. Magn. Magn. Mater.* 83, 517 (1990).
7. T. Ishii, T. Yamada, K. Sugiyama, H. Fuke, and M. Date, *Physica* **C165**, 139 (1990).
8. F. Zuo, A. J. Epstein, E. M. McCarron, and W. E. Farneth, *Physica* **C167**, 567 (1990).
9. М. М. Богдан, А. С. Ковалев, *ФНТ* **16**, 1576 (1990).
10. А. С. Ковалев, М. М. Богдан, *ФТТ* **35**, 1773 (1993).
11. V. J. Emery, *Phys. Rev. Lett.* **58**, 2794 (1987).
12. A. Aharony, R. J. Birgeneau, A. Caniglio, M. A. Kastner, and H. E. Stanley, *Phys. Rev. Lett.* **60**, 1330 (1988).
13. V. Hizhnyakov and E. Sigmund, *Physica* **C156**, 655 (1988).
14. V. J. Emery, S. A. Kivelson, and H. Q. Lin, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 475 (1990).
15. Э. Л. Нагаев, *ЖЭТФ* **103**, 252 (1993).
16. Э. Л. Нагаев, *УФН* **165**, 528 (1995).
17. N. F. Oliveira, S. Foner, Y. Shapira, and T. B. Reed, *Phys. Rev.* **B5**, 2634 (1972).
18. Y. Shapira, S. Foner, N. F. Oliveira, and T. B. Reed, *Phys. Rev.* **B10**, 4765 (1974).
19. R. K. Kremer, E. Sigmund, V. Hizhnyakov, F. Hentsch, A. Simon, K. A. Muller, and M. Mehring, *Z. Phys.* **B86**, 319 (1992).
20. R. K. Kremer, V. Hizhnyakov, E. Sigmund, A. Simon, and K. A. Muller, *Z. Phys.* **B91**, 169 (1993).
21. J. Mesot, P. Allenspach, U. Staub, F. Furrer, and H. Mutka, *Phys. Rev. Lett.* 70, 865 (1993).
22. Ch. Niedermayer, C. Bernhard, and J. I. Budnik, *J. Magn. Magn. Mater.* **140–144**, 1287 (1995).
23. V. I. Kudinov, I. L. Chaplygin, A. I. Kirilyuk, N. M. Kreines, R. Laiho, E. Lahderanta, and C. Ayache, *Phys. Rev.* **B47**, 9017 (1993).
24. R. J. Cava, B. Batlog. K. M. Rabe, E. A. Rietman, P. K. Gallagher, and L. W. Rupp, *Physica* **C156**, 523 (1988).
25. V. Hizhnyakov, E. Sigmund, and G. Seibold, in: *Phase Separation in Cuprate Superconductors*, E. Sigmund and K. A. Muller (eds.), Springer-Verlag, Berlin (1994), p. 50.
26. С. В. Вонсовский, *Магнетизм*, Наука, Москва (1971).
27. В. В. Еременко, В. П. Гнездилов, В. И. Фомин, А. И. Усоскин, И. Н. Чуканова, *Письма в ЖЭТФ* **54**, 241 (1991).

Manifestation of latent ferromagnetism during magnetization in $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ thin films

S. L. Gnatchenko, M. Baran, R. Szymczak, and H. Szymczak

Magnetization of $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ thin films ($0{,}2 \lesssim x \lesssim 0{,}4$) has been studied in the temperature range 4,2 K < T < 300 K, in magnetic fields up to 50 kOe, both for $\mathbf{H} \parallel c$ and $\mathbf{H} \perp c$. The influence of illumination on magnetic properties was also investigated. The following peculiarities of the magnetic behaviour of $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ was found: 1) irreversibility of temperature dependences m_{ZFC} and m_{FC}, similar to those of spin-glasses; 2) nonlinearity of field dependences $m(H)$; 3) existence of a hysteresis in $m(H)$ dependences; 4) existence of remanent magnetic moment. There is evidence of the existence of ferromagnetic clusters in antiferromagnetically ordered $YBa_2Cu_3O_{6+x}$. Illumination by visible light resulted in increase of the ferromagnetic phase volume and decrease of the antiferromagnetic phase volume. The experimental results obtained can be explained in terms of the phase separation model, assuming existence of ferrons (magnetic polarons) in high-T_c cuprates.