Физика низких температур, 1996, т. 22, № 1, с. 62–66 УДК 538.945

Зееман-эффект в ЯКР $YBa_2Cu_3O_{7-x}$

А. В. Бондарь, Ю. В. Федотов

Институт физики НАН Украины, Украина, 252650, г. Киев, пр. Науки, 46
E-mail:fedotov@labmag.ip.kiev.ua

Статья поступила в редакцию 3 июля 1995 г., после переработки 11 сентября 1995 г.

Методом ЯКР исследован зееман-эффект на ядрах ^{63}Cu2 в YBCO. В узком диапазоне магнитных полей обнаружены осцилляции огибающей сигнала спинового эха $A(\tau)$ ядер ^{63}Cu2. Основные особенности эксперимента для ядер ^{63}Cu2 удается описать на основе рассмотрения простой решетки абрикосовских вихрей. Обнаружена сильная зависимость диапазона магнитных полей, в которых наблюдаются осцилляции $A(\tau)$, от последовательности процедур охлаждения и приложения магнитного поля.

Методом ЯКР досліджено зееман-ефект на ядрах ^{63}Cu2 в YBCO. В вузькому діапазоні магнітних полів виявлено осциляції обвідної сигнала спінової луни $A(\tau)$ ядер ^{63}Cu2. Основні особливості експерименту для ядер ^{63}Cu2 можуть бути описані на основі розгляду простої гратки абрикосівських вихорів. Виявлено сильну залежність діапазону магнітних полів, в яких спостерігались осциляції $A(\tau)$, від послідовності процедур охолодження і прикладання магнітного поля.

1. Введение

Проведенные в последнее время теоретические [1–4] и экспериментальные [5,6] исследования указывают на возможность реализации в высокотемпературных сверхпроводниках (ВТСП) ряда специфических магнитных вихревых структур, обусловленных слоистым строением этих соединений. Актуальность этой проблемы связана, в частности, с исследованием возможных механизмов пиннинга магнитного потока в ВТСП. Изучение внутреннего магнитного поля в ВТСП методом ядерного квадрупольного резонанса (ЯКР) представляет особый интерес, поскольку этот метод позволяет исследовать локальные характеристики магнитного поля в тех точках кристаллической структуры, в которых находятся ядра, обладающие квадрупольным моментом, такие как Cu1 и Cu2 в $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ (YBCO) или ядра Cu и Bi в Bi (2212). Характерные осцилляции зависимости амплитуды A сигнала ЯКР спинового эха от интервала τ между возбуждающими импульсами при приложении внешнего магнитного поля наблюдались как в нормальном, так и в сверхпроводящем состоянии YBCO [7–9]. Однако интерпретация результатов этих работ осложнена необходимостью учета эффектов, обусловленных пиннингом. Так, в [8,9] измерения проводились в медленно изменяющемся магнитном поле, что должно приводить к возникновению критического состояния [10] с неравномерной плотностью вихревой решетки. Величина магнитного поля в ходе измерений [7] не изменялась, но оно прикладывалось и снималось после охлаждения образца в нулевом поле (ОНП), что, согласно модели критического состояния, также приводило к неравномерному распределению магнитного потока в образце. В настоящей работе проведены ЯКР исследования локальных магнитных полей на ядрах ^{63}Cu2 в YBCO в режиме охлаждения в приложенном поле (ОП). В этих условиях обеспечивается минимальное влияние эффектов, связанных с пиннингом, на структуру вихревой решетки, что позволило на основе простой модели вихревой структуры интерпретировать наши результаты на качественном уровне.

2. Эксперимент

Образцы YBCO с размером зерен ≤ 10 мкм (стехиометрический состав: Y-1; Ba-2,01; Cu-3,01; O-6,88; $T_c = 93$ K) были изготовлены в Институте монокристаллов НАН Украины. Исследования проводились методом ЯКР спинового эха при 4,2 K на ядрах ^{63}Cu2 в YBCO (частота ЯКР которых при 4,2 K равна 31,5 МГц [11]) в диапазоне магнитных полей 0–500 Э. Возбуждающие импульсы двухимпульсной последовательности с амплитудой радиочастотного поля $\simeq 50$ Э имели длительности 4–6 мкс (первый импульс) и 7–10 мкс (второй импульс). В приводимых ниже зависимостях $A(\tau)$ временной интервал τ отсчитывался от второго импульса. Радиочастотное и статическое магнитные поля были параллельными. Известно [12], что зависимость амплитуды A сигнала ЯКР спинового эха от интервала τ между возбуждающими импульсами при наложении внешнего магнитного поля приобретает осциллирующий характер. Период этих осцилляций обратно пропорционален приложенному полю, что позволяет оценивать его величину. Преимуществом такой методики является возможность исследовать эффект Зеемана в

© А. В. Бондарь, Ю. В. Федотов, 1996

сравнительно слабых магнитных полях (десятки эрстед), величина которых недостаточна для расщепления широких линий ЯКР. Это особенно существенно при исследовании ВТСП, ширины линий ЯКР в которых составляют сотни килогерц в YBCO и доходят до нескольких мегагерц в Bi (2212).

Исследования амплитуды сигнала эха в зависимости от величины приложенного поля $A(H)$ позволяют получить информацию о симметрии градиента электрического поля (ГЭП) в нормальном [8] и сверхпроводящем состояниях [9] YBCO. Однако при исследовании локальных магнитных полей интерпретация зависимости $A(H)$ может быть неоднозначной, поскольку изменение магнитного поля в ходе эксперимента может привести к изменению типа магнитной структуры (различные типы магнитных структур устойчивы при различных внешних условиях [1]). Кроме того, согласно модели критического состояния, распределение магнитного потока в образце в этом случае неоднородно. Поэтому в настоящей работе зависимость $A(\tau)$ исследовалась при фиксированных магнитных полях. Измерения проводились в магнитном поле, которое сохранялось после охлаждения образца в режиме ОП. Эксперименты по декорированию вихревых структур в YBCO [13] показали, что в этих условиях возникает высокосимметричная вихревая решетка, т.е. связанные с пиннингом эффекты в данном случае не оказывают существенного влияния на структуру вихревой решетки.

3. Результаты эксперимента

Зависимости $A(\tau)$ для сигналов ЯКР эха ядер Cu2, находящихся в сверхпроводящих плоскостях YBCO, были исследованы в диапазоне магнитных полей 0–500 Э. В подавляющей части этого диапазона зависимость $A(\tau)$ представляла собой плавно убывающую функцию вида $A(\tau) = A_0 \exp(-\tau/2T_{eff})$, где T_{eff} — эффективное время спин-спиновой релаксации. Однако был обнаружен диапазон магнитных полей, в котором такая аппроксимация невозможна и зависимость $A(\tau)$ имеет хорошо выраженный немонотонный характер (рис. 1) — типичное проявление зеемановского эффекта в методе ЯКР спинового эха [12]. На это однозначно указывает характер зависимости вида кривых $A(\tau)$ от приложенного магнитного поля, а именно, смещение максимума этих кривых в сторону малых τ с ростом поля. Такое поведение согласуется с зависимостью периода зеемановских осцилляций T_Z от величины магнитного поля $T_Z \sim 1/H_a$. Это позволяет говорить о том, что появление максимума в $A(\tau)$ после приложения магнитного поля обусловлено зеемановским расщеплением ядерных уровней. Следует отметить, что в отличие от результатов, полученных в [8], где для нормального состояния YBCO наблюдались хорошо выраженные осцилляции огибающей спинового эха, в наших экспериментах наблюдается лишь первый максимум этой зависимости, что, по-видимому, связано с неоднородностью внутреннего магнитного поля, обусловленной его вихревой структурой.

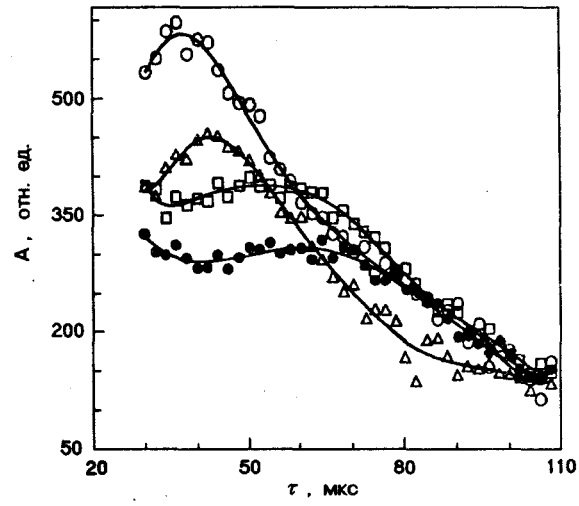

Рис. 1. Огибающие сигналов спинового эха $A(\tau)$ ядер ^{63}Cu2 в YBCO при $T = 4{,}2$ К для различных приложенных магнитных полей H_a, Э: 13,5 (○); 11,7 (△); 9,0 (□); 8,1 (■, ●). Сплошные кривые проведены для наглядности.

Область магнитных полей, в которой наблюдаются зеемановские осцилляции, достаточно узка. В настоящей работе такие осцилляции наблюдались только в диапазоне магнитных полей $H_a \simeq 10$–20 Э. Верхняя граница этого диапазона обусловлена тем, что при более высоких полях максимум $A(\tau)$, смещаясь в область малых τ, уходит в область нечувствительности нашей установки («мертвое время» спектрометра $\simeq 30$ мкс). Нижняя граница определяется тем, что в малых полях осцилляции с большим периодом не могут наблюдаться на фоне спада сигнала спинового эха по закону $A(\tau) = A_0 \exp(-\tau/2T_{eff})$, обусловленному спин-спиновым взаимодействием. Эффективное время спин-спиновой релаксации T_{eff} для ядер Cu2 в YBCO при 4,2 К составляет $\simeq 140$–160 мкс [14].

4. Анализ результатов эксперимента

При анализе экспериментальных результатов мы исходили из выражения, описывающего влияние магнитного поля на огибающую сигнала эха $A(\tau)$ [15]:

$$A(\tau) = 1 - 2\left(\frac{\sqrt{F_1^2 - 1} + \sqrt{F_2^2 - 1}}{F_1 F_2}\right)^2 \times$$

$$\times \sin^2\left(\tfrac{1}{2} a_1 F_1 \omega_0 \tau \cos\theta\right) \sin^2\left(\tfrac{1}{2} a_2 F_2 \omega_0 \tau \cos\theta\right), \quad (1)$$

где

$$F_m = \left(1 + \frac{b_m^2 + c_m^2 + 2 b_m c_m \cos^2\varphi}{a_m^2} \operatorname{tg}^2\theta\right)^{1/2};$$

$\omega_0 = \gamma H$ (γ — ядерный гиромагнитный фактор); a_m, b_m, c_m — коэффициенты, зависящие от параметра асимметрии тензора ГЭП η [16]; θ и φ — полярный и азимутальный углы вектора H относительно главных осей тензора ГЭП. В данной работе исследования проводились на порошковых образцах с неориентированными зернами. Поэтому при сопоставлении результатов расчета по выражению (1) с экспериментальными данными необходимо усреднить (1) по хаотическому распределению ориентаций магнитного поля относительно осей тензора ГЭП. Численные расчеты показали, что при усреднении (1) по сфере единичного радиуса, несмотря на значительное размытие общей картины, несколько первых осцилляций в зависимости $A(\tau)$ остаются, тогда как в экспериментах обнаружен только первый максимум $A(\tau)$. Это может свидетельствовать о том, что в подобных расчетах помимо учета хаотической ориентации осей тензора ГЭП по отношению к магнитному полю необходимо также учесть неоднородность внутреннего магнитного поля, связанную с его вихревой структурой. Мы попытались учесть эффекты, обусловленные проникновением магнитного поля в образец в виде решетки абрикосовских вихрей. Такие магнитные структуры неоднократно наблюдались в ВТСП методом декорирования [13,17,18].

Учет влияния других магнитных структур, связанных со слоистым строением ВТСП, нами не проводился, поскольку в настоящее время отсутствует надежная информация о параметрах таких структур. Даже при таком упрощенном рассмотрении остаются проблемы, связанные с анизотропией YBCO, что в принципе могло бы привести к возникновению сильно анизотропной вихревой решетки. Однако для образцов малых размеров энергия, связанная с взаимодействием вихрей через внешнее пространство, составляет значительную часть энергии межвихревого взаимодействия. Вследствие этого в таких образцах вихревая решетка в области малых полей может быть изотропной даже в случае сильно анизотропных ВТСП [19]. Поэтому в расчетах мы использовали треугольную изотропную абрикосовскую вихревую решетку, в которой зависимость межвихревого расстояния d от величины магнитного поля B имеет вид $d^2 = 2\Phi_0/(B\sqrt{3})$, где Φ_0 — квант магнитного потока. В лондоновском приближении локальное магнитное поле в такой вихревой решетке определяется выражением

$$B(r) = \frac{\Phi_0}{2\pi\lambda^2} \sum_i K_0[(r - r_i)/\lambda], \quad (2)$$

где K_0 — функция Макдональда; λ — глубина проникновения. Учет анизотропии λ приводит к значительному усложнению расчетов. Поэтому в качестве величины λ было использовано ее усредненное значение $\lambda_{\text{eff}} = (\lambda_{ab}^2 \lambda_c)^{1/3}$, причем величина λ_{eff} выбиралась из условия наилучшего совпадения результатов расчета с экспериментальными данными. Зависимости $A(\tau)$ для этого значения λ_{eff}, усредненные по θ, φ и распределению магнитного поля (2), приведены на рис. 2, они сопоставлены с экспериментальными данными для наибольшего и наименьшего значений магнитного поля, приведенных на рис. 1. Величина λ_{eff}, удовлетворяющая условию совпадения первых максимумов расчетных и экспериментальных кривых $A(\tau)$ при $H_a = 13{,}5$ Э, составляет 5 000 Å. Как видно из таблицы, в которой приведены экспериментальные и расчетные (для $\lambda_{\text{eff}} = 5\,000$ Å) положения экстремальных точек $A(\tau)$ для всех значений магнитного поля из рис. 1, несмотря на принятые упрощения, выбранное значение λ_{eff} обеспечивает удовлетворительное совпадение результатов наших модельных расчетов с экспериментальными данными.

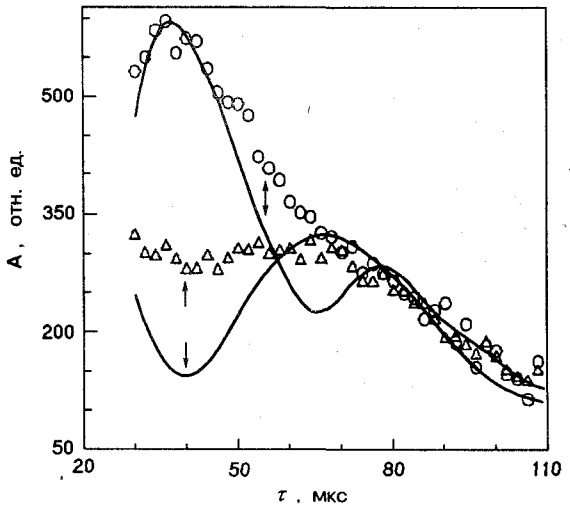

Рис. 2. Сопоставление экспериментальных данных для $A(\tau)$ ядер ^{63}Cu2 в YBCO при 4,2 K (точки) с результатами расчета (сплошные линии) при H_a, Э: 13,5 (○); 8,1 (△).

Таблица

Положения экстремальных точек кривых $A(\tau)$ в различных магнитных полях H_a

H_a, Э	τ_{max}, мкс		τ_{min}, мкс	
	Эксперимент	Расчет	Эксперимент	Расчет
13,5	37	37	—	—
11,7	43	44	—	—
9,9	52	56	—	—
9,0	56	60	36	35
8,1	63	67	42	40

5. Обсуждение

Приведенные в таблице данные показывают, что результаты расчетов огибающей $A(\tau)$, проведенных на основе простой модели, удовлетворительно согласуются с экспериментом по положению первых экстремумов $A(\tau)$. Однако принятая в наших расчетах величина $\lambda_{eff} = 5\ 000$ Å, обеспечивающая такое совпадение, заметно отличается от величины $\lambda_{av} = (\lambda_{ab}^2 \lambda_c)^{1/3}$, которая, согласно большинству литературных источников, не превосходит 2 000 Å. Одна из возможных причин такого расхождения связана с тем, что в наших расчетах анизотропия глубины проникновения не учитывалась. В настоящее время ведутся расчеты, позволяющие учесть этот фактор. Другой возможной причиной расхождения величин λ_{eff} и λ_{av} может быть сосуществование решетки абрикосовских вихрей с системой джозефсоновских вихрей, локализованных в промежутках между сверхпроводящими плоскостями [20,21]. Возможно, учет вклада в локальное магнитное поле джозефсоновских вихрей, глубина проникновения которых существенно превышает лондоновскую, позволит объяснить такое расхождение. Другим проявлением существования джозефсоновских вихревых структур, магнитное поле которых неоднородно даже в пределах элементарной ячейки, может быть значительное сглаживание экспериментальных кривых $A(\tau)$ по сравнению с расчетными (см. рис. 2).

Методика измерений, использованная в данной работе (охлаждение в приложенном поле и проведение измерений в том же поле), в принципе, должна свести к минимуму влияние эффектов, связанных с пиннингом, на формирование вихревой решетки. Действительно, исследование вихревых структур в YBCO методом декорирования в этом режиме позволило наблюдать возникновение высокосимметричной вихревой решетки, неискаженной эффектами пиннинга. Однако при других последовательностях процедур охлаждения и приложения магнитного поля эффекты пиннинга должны существенно сказываться на характере зависимости $A(\tau)$. В этом отношении показательно сопоставление результатов настоящей работы с данными, полученными в [7], где исследования $A(\tau)$ проводились в режиме захваченного потока. В то время как в данной работе осцилляции $A(\tau)$ наблюдались в полях ~ 10 Э, при исследовании в режиме захваченного потока [7] для наблюдения таких осцилляций необходимы поля ~ 100 Э. В последнем случае для интерпретации полученных результатов, согласно модели критического состояния [10], необходим учет не только неоднородностей внутреннего магнитного поля, обусловленного его вихревой структурой, но и его макроскопической неоднородности, связанной с градиентом плотности вихревой решетки. Такая неоднородность захваченного магнитного потока в значительной мере определяется силами, обусловливающими пиннинг вихревой структуры. Это дает основание полагать, что исследование особенностей $A(\tau)$ в различных вариантах последовательностей охлаждения и приложения магнитного поля может служить полезным источником информации о механизмах пиннинга в ВТСП. В настоящее время такие исследования ведутся. Представляется, что проведение подобных исследований на ориентированных порошковых образцах может существенно повысить информативность использованной в этой работе методики.

Авторы благодарны С. М. Рябченко за стимулирующие дискуссии.

1. L. N. Bulaevskii, M. Ledvij, and V. G. Kogan, *Phys. Rev.* B46, 366 (1992).
2. D. Feinberg and C. Villard, *Phys. Rev. Lett.* 65, 919 (1990).
3. T. Koyama, N. Takezawa, and M. Tachiki, *Physica* C172, 501 (1991).
4. B. I. Ivlev and N. B. Kopnin, *Phys. Rev.* B42,10052 (1990).
5. Y. Iye, I. Teroshima, and Y. Bando, *Physica* C177, 393 (1991).
6. D. E. Farrel, J. R. Rice, D. M. Ginsberg, and J. Z. Lin, *Phys. Rev. Lett.* 64, 1573 (1990).
7. А. В. Бондарь, С. М. Рябченко, Ю. В. Федотов, *ФНТ* 20, 95 (1994).
8. H. Schmiedel, G. Mayer, S. Grande, and B. Lippold, *Physica* C171, 51 (1990).
9. V. I. Matukhin, I. A. Safin, V. N. Anashkin, O. V. Zharikov, and Yu. A. Ossipyan, *Solid State Commun.* 79, 1063 (1991).
10. C. P. Bean, *Rev. Mod. Phys.* 36, 31 (1964).
11. K. Schwarz, C. Ambrosch, and P. Blaha, *Phys. Rev.* B42, 2051 (1990).
12. M. Bloom, E. L. Hahn, and B. Herzog, *Phys. Rev.* 97, 1699 (1955).
13. P. L. Gammel, D. J. Bishop, G. J. Dolan, J. R. Kwo, C. A. Murray, L. E. Schneemeyer, and J. V. Waszczak, *Phys. Rev. Lett.* 59, 2592 (1987).
14. А. В. Бондарь, С. М. Рябченко, Ю. Ф. Федотов, *Письма в ЖЭТФ* 50, 133 (1989).
15. N. E. Ajnbinder, V. S. Grechischkin, and A. N. Osipenko, *Fiz. Tverd. Tela* 10, 2026 (1968).
16. M. H. Cohen, *Phys. Rev.* 96, 1278 (1954).
17. G. J. Dolan, F. Holtzberg, C. Feild, and T. R. Dinger, *Phys. Rev. Lett.* 62, 2184 (1989).

18. P. L. Gammel, D. J. Bishop, J. P. Rice, and D. M. Ginsberg, *Phys. Rev. Lett.* 68, 3343 (1992).
19. A. Yu. Martynovich, *JETP* 78, 489 (1994).
20. R. Kleiner and P. Mueller, *Phys. Rev.* B49, 1327 (1994).
21. А. Ф. Волков, *СФХТ* 2, № 12, 15 (1989).

Zeeman-effect in NQR of $YBa_2Cu_3O_{7-x}$

A. V. Bondar and Yu. V. Fedotov

The Zeeman effect on $^{63}Cu2$ nuclei in YBCO was investigated by a NQR method. It is found that in a narrow range of magnetic fields the envelope of spin echo signal $A(\tau)$ of $^{63}Cu2$ nuclei exhibits an oscillators character. Most of the experimental results can be described in terms of the Abrikosov vortices lattice. It is found that the range of magnetic fields which gives birth to the oscillations of $A(\tau)$ depends on the sequence of cooling and magnetization procedures.