



## Doctoral Thesis

# Inelastic and small angle neutron scattering study of the $\text{La}_2\text{-xSr}_x\text{CuO}_4$ high- $T_c$ superconductor in a magnetic field

**Author(s):**

Gilardi, Raffaele

**Publication Date:**

2004

**Permanent Link:**

<https://doi.org/10.3929/ethz-a-004844003> →

**Rights / License:**

[In Copyright - Non-Commercial Use Permitted](#) →

This page was generated automatically upon download from the [ETH Zurich Research Collection](#). For more information please consult the [Terms of use](#).

DISS. ETH NO. 15780

INELASTIC AND SMALL ANGLE NEUTRON SCATTERING  
STUDY OF THE  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  HIGH- $T_c$  SUPERCONDUCTOR  
IN A MAGNETIC FIELD

A dissertation submitted to the  
SWISS FEDERAL INSTITUTE OF TECHNOLOGY ZURICH

for the degree of  
Doctor of Sciences

presented by

RAFFAELE GILARDI  
Dipl. Phys. ETH  
born 25.01.1977  
citizen of Lugano (TI)

accepted on the recommendation of  
Prof. Dr. A. Furrer, examiner  
Prof. Dr. B. Batlogg, co-examiner  
Dr. J. Mesot, co-examiner

2004

# Abstract

High-temperature cuprate superconductors (HTSC) have been discovered 18 years ago and immediately attracted the interest of thousands of scientists, both experimentalists and theoreticians. An incredible number of experiments performed with different techniques revealed that all HTSC materials share a common phase diagram. Starting from an antiferromagnetic insulator, these compounds become superconducting upon the introduction of charge carriers (holes or electrons) by means of chemical doping. However, a consensus about the microscopic origin of superconductivity is still missing. In particular, the role played by antiferromagnetic correlations for the mechanism of high-temperature superconductivity is still highly debated. Since the magnetic excitations are strongly modified through the critical transition temperature  $T_c$ , it is natural to postulate that there exists a tight link between superconductivity and magnetism in the cuprates. However, it is not yet clear whether the magnetic excitations play an active role for superconductivity or not.

Since the theoretical approaches differ in the way the antiferromagnetic state is related to the superconducting state, the study of HTSC in external magnetic fields provides a possibility to discern between them. However, the properties of HTSC in the presence of a magnetic field are modified in a non-trivial way. From the mesoscopic point of view, HTSC are type II superconductors with strong anisotropy, giving rise to a complicated magnetic phase diagram, where the external magnetic field penetrates the HTSC in the form of quantized flux-lines (magnetic vortices). These vortices might eventually form a vortex lattice, which is susceptible to disorder and thermal fluctuations. A detailed knowledge of the magnetic phase diagram is essential for the understanding of the subtle interplay between magnetic excitations and magnetic vortices.

This thesis is devoted to the investigation of the hole-doped  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  HTSC by means of different experimental techniques. Superconducting single crystals with different doping levels have been studied in magnetic fields up to 15 Tesla. The topics of this work are:

1. The investigation of (static and dynamic) antiferromagnetic correlations in the superconducting state as a function of doping and magnetic field
2. The investigation of the magnetic phase diagram and of the dynamics of magnetic vortices
3. The investigation of the possible connections between magnetic excitations and magnetic vortices

The magnetic phase diagram has been first studied from a macroscopic point of view by means of magnetization measurements (*Chapter 2*), and turned out to be strongly doping dependent. In a second step, we investigated the vortex lattice by means of small angle neutron scattering and muon spin rotation experiments (*Chapter 3*). In the overdoped regime, we observed a field-induced change in the symmetry of the vortex lattice (from hexagonal to square) and a temperature-induced sublimation transition to a vortex gas. In the underdoped regime, we discovered a transition to a disordered vortex glass with increasing magnetic field.

The magnetic excitations have been investigated by means of inelastic neutron scattering (*Chapter 4*). In the overdoped regime, the application of a modest magnetic field strongly affects the copper spin dynamics. In particular, we have some evidence that the spin gap (indirectly related superconducting gap) vanishes in the vortex gas phase, where the sample is still superconducting. In the underdoped regime, we observed no spin gap in the superconducting state due to the presence of low-energy excitations. We suggest that these excitations arise from a spin glass phase that masks the presence of a strongly reduced spin gap. We also investigated the static magnetic correlations in the vicinity of the special doping concentration  $x=1/8$ , where a decrease of  $T_c$  is accompanied by an enhancement of the spin glass phase. The magnetic correlations are strongly increased by an external magnetic field, and it has been suggested that the field-induced signal arises from antiferromagnetic regions nucleated by the vortices.

Finally, we also investigated the magnetic phase diagram of the electron-doped  $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$  by means of macroscopic, muon spin relaxation and small angle neutron scattering experiments (*Appendix*). For the first time, a vortex lattice could be directly observed in an electron-doped HTSC. Surprisingly, the symmetry of the vortex lattice remains square down to unusually low magnetic fields. Moreover, a field-induced crossover to a more disordered vortex glass is observed. These results are discussed in relation to those obtained in  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  and other HTSC.

Many of the results presented in this thesis have been already published in a number of articles (see *Curriculum Vitae*). It should be noted that these publications are a result of international collaborations (see *Acknowledgments*).

# Riassunto

I superconduttori ad alta temperatura critica (ossidi di rame o cuprati) sono stati scoperti 18 anni fa e hanno immediatamente attratto l'interesse di migliaia di ricercatori, sia sperimentali che teorici. Un numero impressionante di esperimenti, effettuati con differenti tecniche, hanno rivelato che tutti i cuprati posseggono un diagramma di fase comune. A partire da un isolatore antiferromagnetico, questi materiali diventano superconduttori quando dei portatori di carica vengono introdotti tramite drogaggio chimico (*doping*). Tuttavia, a tutt'oggi, i meccanismi microscopici che portano alla formazione dello stato superconduttore nei cuprati non sono ancora chiaramente individuati. In particolare, il ruolo svolto dalle correlazioni antiferromagnetiche è altamente dibattuto. Poiché le eccitazioni magnetiche sono fortemente modificate attraverso la temperatura critica  $T_c$ , è naturale postulare l'esistenza di uno stretto legame fra superconduttività e magnetismo. Tuttavia, non è ancora chiaro se le eccitazioni magnetiche svolgono un ruolo attivo in favore della superconduttività.

Poiché le varie teorie differiscono nel modo in cui l'antiferromagnetismo è collegato con la superconduttività, lo studio dei cuprati in presenza di campi magnetici esterni fornisce una possibilità per discernere fra loro. Tuttavia, le proprietà dei cuprati in presenza di un campo magnetico sono modificate in modo non banale. Dal punto di vista mesoscopico, i cuprati sono superconduttori di tipo II caratterizzati da una forte anisotropia, dando vita ad un diagramma di fase magnetico molto complicato. Il campo magnetico esterno penetra sotto forma di linee di campo magnetico quantizzate (chiamate anche vortici). Questi vortici possono formare un reticolo periodico e ordinato, che è però suscettibile a disordine e a fluttuazioni termiche. Una conoscenza dettagliata del diagramma di fase magnetico è essenziale per la comprensione dell'interazione fra le eccitazioni magnetiche ed i vortici.

Questa tesi è dedicata all'indagine del superconduttore ad alta temperatura  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  tramite diverse tecniche sperimentali. Cristalli con differenti livelli di drogaggio (dove le cariche aggiuntive sono buchi lasciati liberi dopo che alcuni elettroni sono stati rimossi) sono stati studiati in campi magnetici fino ad un massimo di 15 Tesla. I temi di questo lavoro sono:

1. Lo studio delle correlazioni magnetiche (statiche e dinamiche) nello stato superconduttore in funzione del livello di drogaggio e del campo magnetico
2. Lo studio del diagramma di fase magnetico
3. L'indagine sui possibili collegamenti fra le eccitazioni magnetiche e la dinamica dei vortici

In primo luogo il diagramma di fase magnetico è stato studiato da un punto di vista macroscopico per mezzo di misure di magnetizzazione (*Capitolo 2*), risultando fortemente dipendente dal livello di drogaggio. In seguito, abbiamo studiato il reticolo di vortici per mezzo di diffrazione di neutroni a piccoli angoli (*small angle neutron scattering*) e di esperimenti di rotazione di spin del muone (*muon spin rotation*) (*Capitolo 3*). Nel regime sopradrogato abbiamo osservato un cambiamento nella simmetria del reticolo di vortici (da triangolare a quadrata) indotto dal crescente campo magnetico, e una transizione di sublimazione verso un gas di vortici indotta dalla crescente temperatura. Nel regime sottodrogato, abbiamo scoperto una transizione verso un reticolo disordinato di vortici con l'aumento del campo magnetico.

Le eccitazioni magnetiche sono state studiate per mezzo di diffusione anelastica dei neutroni (*inelastic neutron scattering*) (*Capitolo 4*). Nel regime sopradrogato, l'applicazione di un modesto campo magnetico influenza fortemente la dinamica degli spin degli atomi di rame. In particolare, abbiamo scoperto che il *gap* di energia degli spin (*spin gap*) scompare nella fase gassosa dei vortici. Nel regime sottodrogato, non abbiamo osservato alcuno *spin gap* nella fase superconduttrice, a causa della presenza di eccitazioni a bassa energia. È possibile che queste eccitazioni siano dovute a una fase in cui gli spin sono disordinati (*spin glass*), mascherando quindi la presenza di uno *spin gap*. Inoltre abbiamo studiato le correlazioni magnetiche statiche nelle vicinanze della particolare concentrazione di drogaggio  $x=1/8$ , dove una diminuzione della temperatura critica  $T_c$  è accompagnata da un aumento delle correlazioni magnetiche. L'applicazione di un campo magnetico esterno aumenta in modo sensibile le correlazioni magnetiche, ed è stato proposto che il segnale indotto dal campo magnetico sia dovuto a regioni antiferromagnetiche createsi attorno ai vortici.

Inoltre abbiamo studiato il diagramma di fase magnetico del superconduttore  $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$  tramite esperimenti di *small angle neutron scattering*, di rilassamento di spin del muone (*muon spin relaxation*) e misure di magnetizzazione (vedi *Appendice*). A differenza di  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ , in questo cuprato i portatori di carica sono elettroni e non buchi. Per la prima volta, un reticolo di vortici ha potuto essere osservato in un cuprato drogato con elettroni. Sorprendentemente, la simmetria del reticolo rimane quadrata anche a campi magnetici insolitamente bassi. Inoltre, a campi magnetici più elevati il reticolo di vortici diventa più disordinato. Questi risultati sono discussi in relazione a quelli ottenuti in  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  e in altri cuprati.

Molti dei risultati presentati in questa tesi sono già stati pubblicati in numerosi articoli scientifici, frutto di collaborazioni internazionali (vedi *Curriculum Vitae e Ringraziamenti*).