

**НЕЙТРОННЫЕ ИССЛЕДОВАНИЯ ТЕМПЕРАТУРНОЙ ЗАВИСИМОСТИ  
ДИНАМИКИ И СТРУКТУРЫ СВЕРХПРОВОДЯЩИХ КЕРАМИК  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_{4-y}$**

*А.В.Белушкин, Е.А.Горемычкин, В.Зайонц, А.Р.Кадырбаев <sup>1)</sup>,  
Б.П.Михайлов <sup>1)</sup>, И.Натканец, И.Л.Сашин.*

Исследованы спектры неупругого рассеяния и дифракции нейтронов в соединениях  $\text{La}_2\text{CuO}_{4-y}$  и  $\text{La}_{1,8}\text{Sr}_{0,2}\text{CuO}_{4-y}$  при температурах 290 К, 77 К и 10 К. В спектрах неупругого рассеяния при температурах 77 К и 10 К обнаружена линия с энергией около 6 мэВ, температурная зависимость интенсивности которой указывает на магнитный характер соответствующего ей возбуждения.

Первые нейтронные работы по исследованию динамики сверхпроводящих керамик появились почти сразу после их открытия <sup>1)</sup>. В этих работах определены основные особеннос-

---

<sup>1)</sup> Институт металлургии им. А.А.Байкова АН СССР.

ти плотности фононных состояний и приведено сравнение результатов, полученных для не-сверхпроводящего  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  и сверхпроводящего  $\text{La}_{1,85}\text{Sr}_{0,15}\text{CuO}_4$ . К настоящему времени на монокристалле  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  исследована также мягкая мода, ответственная за фазо-вый переход из тетрагональной в орторомбическую фазу при температуре около 500 К<sup>2</sup>. Однако, до сих пор не было детальных исследований поведения низкочастотной части спектра при низких температурах. Нами были проведены эксперименты по рассеянию нейтронов на семействе соединений  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_{4-y}$  (для двух значений  $x$ , в интервале темпера-тур от 290 К до 10 К. Измерения выполнены на спектрометре КДСОГ-М<sup>3</sup>, установленном на высокопоточном импульсном реакторе ИБР-2<sup>4</sup>. Основные преимущества спектрометра состоят в возможности одновременного измерения дифракции нейтронов (ДН) и неупругого рассеяния нейтронов (НРН), причем НРН измеряется в режиме со сбросом энергии нейтронов, что позволяет исследовать динамику решетки при низких температурах.

Исследованные образцы были приготовлены из  $\text{La}_2\text{O}_3$ ,  $\text{SrCO}_3$  и  $\text{CuO}$  по известной мето-дике (см., напр.,<sup>5</sup>). Химический состав контролировался методом нейтронного активаци-онного анализа<sup>6</sup>. Количество посторонних примесей не превышало 0,5 ат.%, а концентрация стронция в  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_{4-y}$  составила  $x = 0,2 \pm 0,02$ . Проверка структуры образцов при комнатной температуре проведена на рентгеновском дифрактометре ДРОН-3М. Структура  $\text{La}_2\text{CuO}_{4-y}$  полностью согласуется с литературными данными<sup>7</sup> — образец был в орто-ромбической фазе (*Bmab*), что четко фиксировалось по расщеплению пиков (200) и (020). Образец  $\text{La}_{1,8}\text{Sr}_{0,2}\text{CuO}_{4-y}$  имел тетрагональную структуру *I4/mmm*, параметры ячейки которой полностью согласуются с опубликованными данными<sup>8</sup>. Измерения температуры сверхпроводящего перехода в  $\text{La}_{1,8}\text{Sr}_{0,2}\text{CuO}_{4-y}$  магнитным и резистивным методами по-казали, что переход начинается около 20 К, что свидетельствует о дефиците кислорода в об-разце<sup>9</sup>.

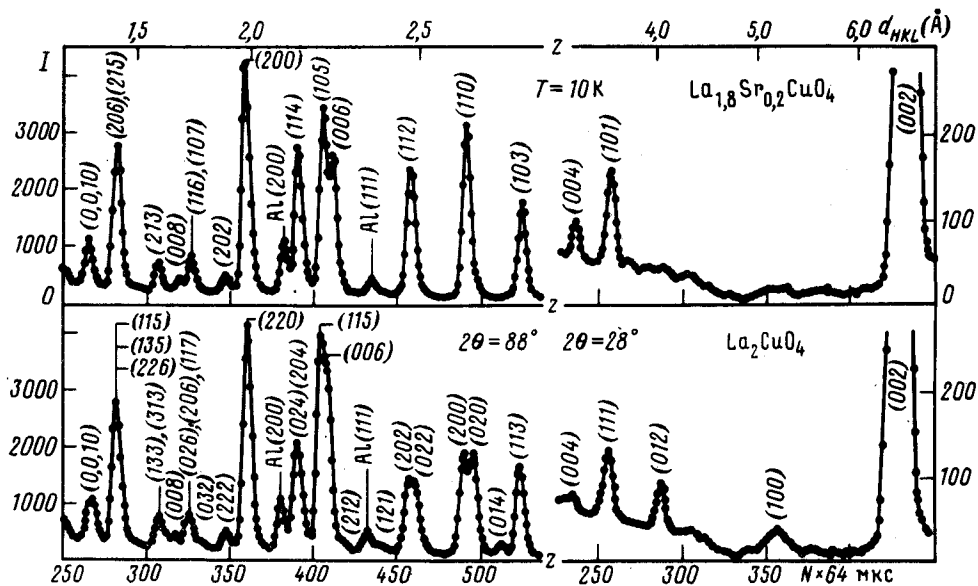


Рис. 1. Спектры дифракции нейтронов при  $T = 10$  К для тетрагональной фазы  $\text{La}_{1,8}\text{Sr}_{0,2}\text{CuO}_{4-y}$  и орторомбической фазы  $\text{La}_2\text{CuO}_{4-y}$  для углов рассеяния  $2\theta = 28^\circ$  и  $88^\circ$ ,  $N$  — номер канала шириной 64 мкс

Для проведения нейтронных измерений исследуемые образцы весом около 100 г помеща-лись в гелиевый криостат. Одновременно снимались спектры ДН и НРН. Экспериментальные данные были нормированы на счет монитора. Спектры дифракции, измеренные для углов рассеяния  $2\theta = 28^\circ, 48^\circ, 68^\circ$  и  $88^\circ$  нормировались на спектр падающих нейтронов. Спек-

тры неупругого рассеяния измерялись для углов рассеяния  $30^\circ$ ,  $50^\circ$ ,  $70^\circ$  и  $90^\circ$  в геометрии на пропускание и  $80^\circ$ ,  $100^\circ$ ,  $120^\circ$ ,  $140^\circ$  в геометрии на отражение. Вычитался фон криостата без образца и проводилось суммирование по углам рассеяния. Среднее время измерений составило одни сутки на спектр.

Спектры дифракции нейтронов при  $T = 10$  К для орторомбической фазы  $\text{La}_2\text{CuO}_{4-y}$ , как видно из рис. 1, отличаются от спектров тетрагональной фазы  $\text{La}_{1,8}\text{Sr}_{0,2}\text{CuO}_{4-y}$  наличием рефлексов (012) и (014), которые запрещены в тетрагональной фазе, и расщеплением рефлексов (020), (200) и (022), (202).

Для  $T = 77$  К картина дифракции практически не изменяется, а при 290 К расщепление рефлексов (020), (200) и (022), (202) становится ненаблюдаемым из-за недостаточного разрешения спектрометра. Однако орторомбическая симметрия  $\text{La}_2\text{CuO}_{4-y}$  и при комнатной температуре четко фиксируется по рефлексам (012) и (014).

При 77 К в спектрах дифракции от  $\text{La}_2\text{CuO}_{4-y}$  проявляется пик (100), интенсивность которого растет при понижении температуры до 10 К (рис. 1). Наличие этого рефлекса указывает на антиферромагнитное упорядочение<sup>10</sup> и дефицит кислорода в образце<sup>9</sup>.

Образец  $\text{La}_{1,8}\text{Sr}_{0,2}\text{CuO}_{4-y}$  при всех исследованных температурах находился в тетрагональной фазе, что согласуется с опубликованными данными<sup>11</sup>. Понижение температуры от 290 К до 10 К приводит лишь к смещению положений пиков, свидетельствующем об изменении межплоскостных расстояний не более чем на  $0,006 \text{ \AA}$ .

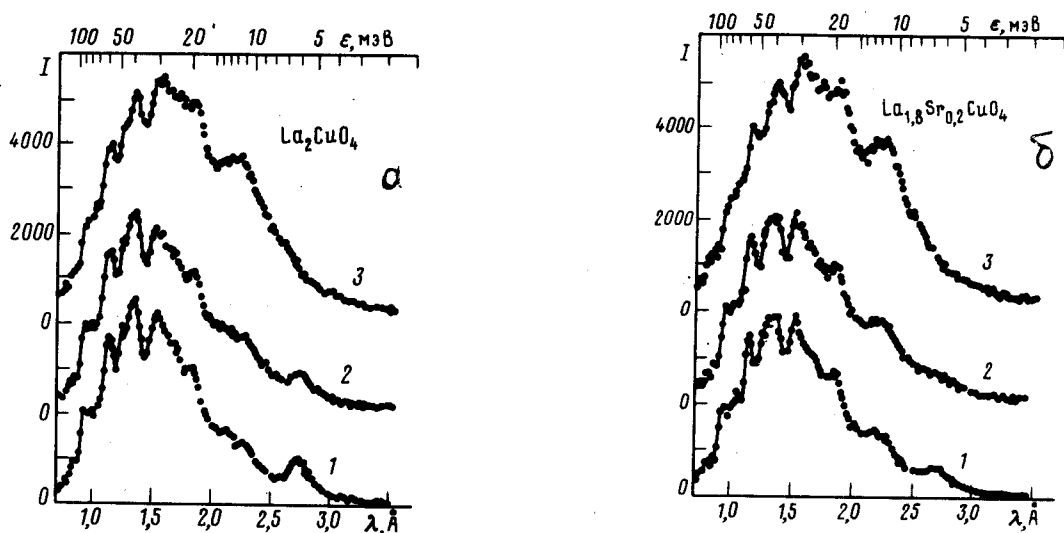


Рис. 2. а – Спектры НРН на  $\text{La}_2\text{CuO}_{4-y}$ . 1 –  $T = 10$  К, 2 –  $T = 77$  К, 3 –  $T = 290$  К. По вертикальной оси – интенсивность на  $10^7$  счета монитора,  $\epsilon$  – переданная энергия в мэВ; б – спектры НРН на  $\text{La}_{1,8}\text{Sr}_{0,2}\text{CuO}_{4-y}$ . 1 –  $T = 10$  К, 2 –  $T = 77$  К, 3 –  $T = 290$  К

Спектры неупругого рассеяния нейтронов на  $\text{La}_2\text{CuO}_{4-y}$  и  $\text{La}_{1,8}\text{Sr}_{0,2}\text{CuO}_{4-y}$  для температур 10 К, 77 К и 290 К показаны на рис. 2 а, б. Положения особенностей в спектрах при 290 К полностью согласуются с ранее опубликованными данными<sup>1</sup>. Однако при 77 К и 10 К наблюдается неупругая линия в районе передач энергии 6 мэВ, которая ранее не была обнаружена. Видно, что интенсивность этой линии растет при понижении температуры. Трансформация экспериментальных данных в функцию обобщенного спектра частот по формуле однофононного рассеяния дает хорошее совпадение результатов, полученных при различ-

ных температурах. Эти результаты согласуются и с литературными данными <sup>1</sup>. Исключение составляет указанная особенность при 6 мэВ. При трансформации ее интенсивность резко возрастает при понижении температуры. Этот факт, а также угловая зависимость интенсивности этой особенности однозначно указывает на ее нефононный характер.

Для количественного анализа особенности при 6 мэВ была применена простая модель, по которой закон рассеяния выбирался в виде гауссиана на дебаевском распределении ( $\sim \omega^2$ ) и проводилась свертка с функцией разрешения спектрометра. Результаты аппроксимации экспериментальных спектров по методу наименьших квадратов показаны на рис. 3, а значения параметров гауссиана приведены в таблице.

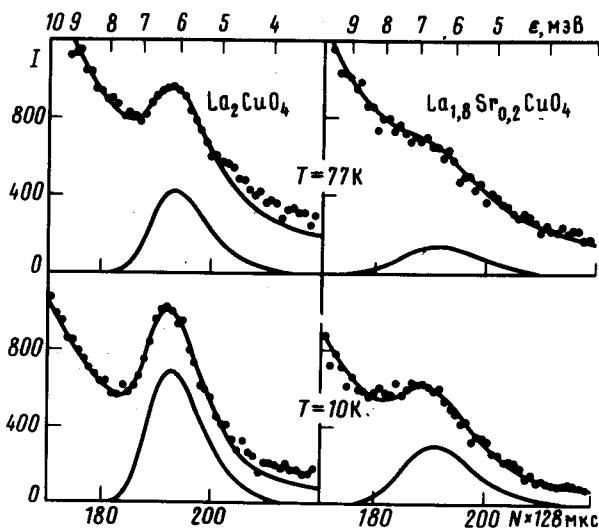


Рис. 3. Результаты подгонки низкочастотной части спектра НРН по модели для температур 77 К и 10 К. Нижняя сплошная кривая — пик при 6 мэВ без дебаевской подложки.  $N$  — номер канала, шириной 128 мкс,  $\epsilon$  — переданная энергия в мэВ

Параметры гауссиана, использованного при описании низкочастотной части экспериментального спектра

Образец	Температура К	Положение пика, мэВ	Интегральная интенсивность пика, отн. ед.	Собственная ширина на полувысоте, мэВ
$\text{La}_2\text{CuO}_{4-y}$	77	$6,2 \pm 0,1$	$11 \pm 1$	$0,9 \pm 0,1$
	10	$6,27 \pm 0,03$	$18,1 \pm 0,5$	$0,90 \pm 0,05$
$\text{La}_{1,8}\text{Sr}_{0,2}\text{CuO}_{4-y}$	77	$6,6 \pm 0,2$	$5 \pm 2$	$1,5 \pm 0,5$
	10	$6,57 \pm 0,05$	$9,8 \pm 0,5$	$1,5 \pm 0,1$

Видно, что для обоих исследованных образцов интенсивность пика при 6 мэВ растет с понижением температуры, а его ширина практически не изменяется. Имея ввиду это обстоятельство и принимая во внимание, что с увеличением угла рассеяния и соответственно переданного импульса интенсивность этой линии уменьшается, можно сделать вывод, что соответствующее ей возбуждение имеет магнитную природу. Это весьма необычный факт для данных соединений. Номинально магнитоактивными являются  $3d^9$ -электроны меди, орбитальный мо-

мент которых практически полностью заморожен кристаллическим полем. Если обнаруженное нами возбуждение обусловлено антиферромагнитными спиновыми волнами, то низкочастотная часть спектра магнитных возбуждений характеризуется наличием щели  $\sim 6$  мэВ и отсутствием заметной дисперсии, т. к. положение пика не зависит от переданного импульса и пик имеет малую ширину. Щель может быть обусловлена анизотропным обменным взаимодействием. Соответствующая величина внутреннего молекулярного поля, действующего на  $s = 1/2$  состояние  $3d$ -электронов меди, будет составлять ( $g = 2$ ,  $\Delta E = 6,2$  мэВ) около  $54,4$  Т. В такой интерпретации допирование стронцием возможно разрушает дальний магнитный порядок, но сохраняет ближний, что позволяет наблюдать это магнитное возбуждение в  $\text{La}_{1,8}\text{Sr}_{0,2}\text{CuO}_4$  - у с меньшей интенсивностью и большей шириной.

Предлагаемый вариант обсуждения полученных результатов является предварительным. Пока трудно дать однозначный ответ о физической природе наблюдаемой особенности и ее связи со сверхпроводящими свойствами. Однако интересно отметить, что энергия возбуждения по порядку величины соответствует температуре сверхпроводящего перехода в системе  $\text{La-Sr-Cu-O}$ . В этой связи мы планируем продолжить изучение свойств этих систем в зависимости от концентрации стронция как в образцах с дефицитом кислорода, так и в образцах, отожженных в атмосфере кислорода, с хорошими сверхпроводящими свойствами.

В заключение авторы выражают благодарность В.В.Сиколенко, С.В.Красносвободцеву, С.Ф.Гундориной и В.П.Чинаевой за помощь в тестировании образцов, С.И.Брагину, Е.Браньковскому, и В.Иваньскому за техническую помощь при подготовке измерений, В.Л.Аксенову и Ю.М.Останевичу за обсуждение результатов.

#### Литература

1. Ramirez A.P., Batlogg B., Aeppli G. et al. Phys. Rev. B, 1987, 35, 8833.
2. Гошицкий Б.Н., Давыдов С.А., Землянов М.Г. и др. ФММ, 1987, 64, 188; Renker B., Gompf F., Gering E., et al. Z. Phys. B, 1987, 67, 15; Balakrishnan G., Bernhoeft N.R., Bowden Z.A., et al. Nature, 1987, 327, 45.
3. Балука Г., Белушкин А.В., Брагин С.И. и др. ОИЯИ, P13-84-242, Дубна, 1984.
4. Ananiev V.D., Arkhipov V.A., Bunin B.N. et al. The Neutron and its Applications 1982. Inst. Phys. Conf. Ser. 64, 1983, p. 497.
5. Decroux M., Jinod A., Bezinge A., et al. Europhys. Lett., 1987, 3, 1035.
6. Назаров В.М., Павлов С.С., Переседов В.Ф., Фронтасьева М.В. Кр. сообщения ОИЯИ, № 6-85, 1985, с.37.
7. Grande V.B., Müller-Baschbaum Hk., Schweizer M. Z. Anorg. Allg. Chem., 1977, 428, 120.
8. Politis C., Geerk J., Dietrich M., Obst B. Z. Phys. B, 1987, 66, 141.
9. Johnston D.C., Stokes J.P., Goshorn D.P., Lewandowski J.T. Phys. Rev. B, 1987, 36, 4007; Gutschiedl P., Wolff G., Andres K. Phys. Rev. B, 1987, 36, 4043.
10. Vaknin D., Sinha S.K., Monkton D.E., et al. Phys. Rev. Lett., 1987, 58, 2802; Freltoft T., Fischer J.E., Shirane G., et al. Phys. Rev. B, 1987, 36, 826; Shirane G., Endoh Y., Birgeneau R.J. et al. Phys. Rev. Lett., 1987, 59, 1613.
11. Fleming R.M., Batlogg B., Cava R.J., Rietman E.A. Phys. Rev. B, 1987, 35, 7191.