

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
ДУБНА

Б-438

Д14-88-11

А.В.Белушкин, Е.А.Горемычкин, В.Зайонц,
А.Р.Кадырбаев*, Б.П.Михайлов*, И.Натканец,
И.Л.Сашин

НЕЙТРОННЫЕ ИССЛЕДОВАНИЯ
ТЕМПЕРАТУРНОЙ ЗАВИСИМОСТИ ДИНАМИКИ
И СТРУКТУРЫ СВЕРХПРОВОДЯЩИХ КЕРАМИК

$\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_{4-y}$

Направлено в журнал "Письма в ЖЭТФ"

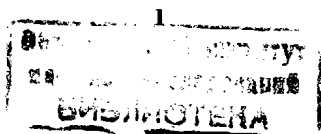
*Институт металлургии им.А.А.Байкова АН СССР,
Москва

1988

Первые нейтронные исследования динамики сверхпроводящих керамик появились почти сразу после их открытия ^{1/1}. В этих работах определены основные особенности плотности фононных состояний и приведено сравнение результатов, полученных для несверхпроводящего La_2CuO_4 и сверхпроводящего $La_{1,85}Sr_{0,15}CuO_4$. К настоящему времени на монокристалле La_2CuO_4 исследована также мягкая мода, ответственная за фазовый переход из тетрагональной в орторомбическую фазу при температуре около 500К ^{1/2}. 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 $La_{2-x}Sr_xCuO_{4-y}$ для двух значений x , в интервале температур от 290 до 10К. Измерения выполнены на спектрометре КДСОГ-М ^{1/3} установленном на высокопоточном импульсном реакторе ИБР-2 ^{1/4}. 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 La_2O_3 , $SrCO_3$ и CuO по известной методике (см., напр., ^{1/5}). Химический состав контролировался методом нейтронного активационного анализа ^{1/6}. Количество посторонних примесей не превышало 0,5 ат.%, а концентрация стронция в $La_{2-x}Sr_xCuO_{4-y}$ составила $x = 0,2 \pm 0,02$. Проверка структуры образцов при комнатной температуре проведена на рентгеновском дифрактометре ДРОН-3М. Структура La_2CuO_4 -y полностью согласуется с литературными данными ^{1/7} - образец был в орторомбической фазе ($Bmab$), что четко фиксировалось по расщеплению пиков (200) и (020). Образец $La_{1,8}Sr_{0,2}CuO_{4-y}$ имел тетрагональную структуру $I4/mmm$, параметры ячейки которой полностью согласуются с опубликованными данными ^{1/8}. Измерения температуры сверхпроводящего перехода в $La_{1,8}Sr_{0,2}CuO_{4-y}$ магнитным и резистивным методами показали, что переход начинается около 20К, что свидетельствует о дефиците кислорода в образце ^{1/9}.

Для проведения нейтронных измерений исследуемые образцы массой около 100 г псмешались 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° , нормировались на спектр падающих нейтронов. Спектры неупругого рассеяния измерялись для углов рассеяния $30^\circ, 50^\circ, 70^\circ$ и 90° 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 $T = 10\text{K}$ для орторомбической фазы La_2CuO_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).

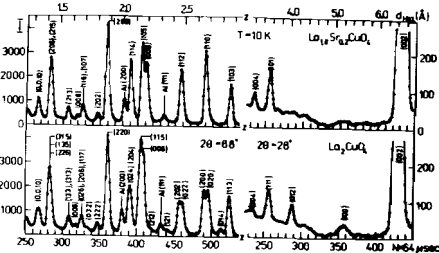


Рис.1. Спектры дифракции нейтронов при $T = 10\text{K}$ для тетрагональной фазы $\text{La}_{1.8}\text{Sr}_{0.2}\text{CuO}_4$ -y и орторомбической фазы La_2CuO_4 -y для углов рассеяния $2\Theta = 28^\circ$ и 88° . N - номер канала шириной 64 мкс.

Для $T = 77\text{K}$ картина дифракции практически не изменяется, а при 290K расщепление рефлексов (020), (200) и (022), (202) становится ненаблюдаемым из-за недостаточного разрешения спектрометра. Однако орторомбическая симметрия La_2CuO_4 -y и при комнатной температуре четко фиксируется по рефлексам (012) и (014).

При 77K в спектрах дифракции от La_2CuO_4 -y проявляется пик (100), интенсивность которого растет при понижении температуры до 10K (рис.1). Наличие этого рефлекса указывает на антиферромагнитное упорядочение /10/ и дефицит кислорода в образце /9/.

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 /11/. Понижение температуры от 290 до 10K приводит лишь к смещению положений пиков, свидетельствующем об изменении межслоистых расстояний не более чем на $0,006\text{A}$.

Спектры неупругого рассеяния нейтронов на La_2CuO_4 -y и $\text{La}_{1.8}\text{Sr}_{0.2}\text{CuO}_4$ -y для температур $10, 77$ и 290K показаны на рис.2а, б.

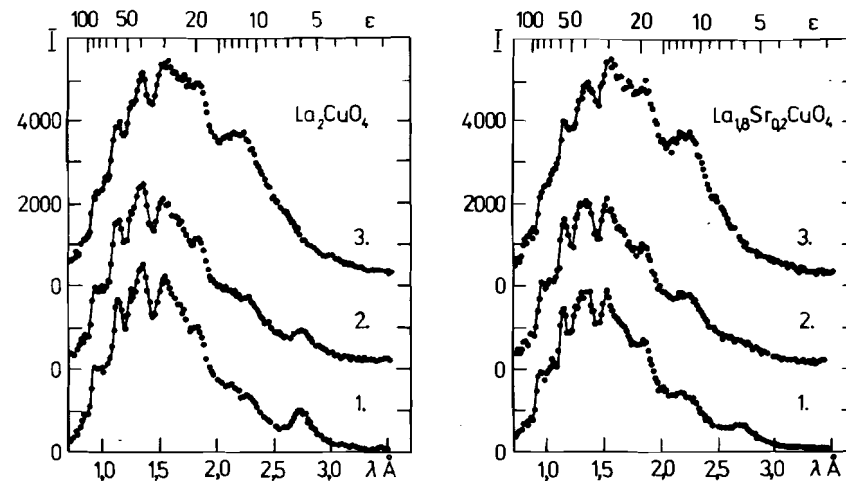


Рис.2а. Спектры НРН на La_2CuO_4 -y
1 - $T = 10\text{K}$, 2 - $T = 77\text{K}$,
3 - $T = 290\text{K}$. По вертикальной оси - интенсивность на 10^7 счета монитора, ϵ - переданная энергия в мэВ.

Рис.2б. Спектры НРН на $\text{La}_{1.8}\text{Sr}_{0.2}\text{CuO}_4$ -y
1 - $T = 10\text{K}$, 2 - $T = 77\text{K}$,
3 - $T = 290\text{K}$.

Положения особенностей в спектрах при 290K полностью согласуются с ранее опубликованными данными /1/. Однако при 77 и 10K 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 различных температурах. Эти результаты согласуются и с литературными данными /1/. 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 нефоновый 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.

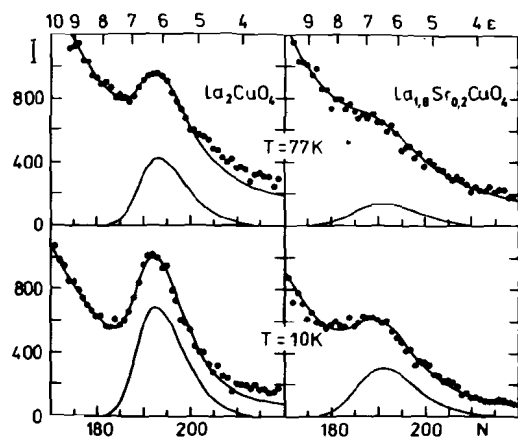


Рис.3. Результаты подгонки низкочастотной части спектра НРН по модели для температур 77 и 10К. Нижняя сплошная кривая - пик при 6 мэВ без дебаевской подложки. N - номер канала, шириной 128 мкс, ϵ - переданная энергия в мэВ.

Таблица. Параметры гауссиана, использованного при описании низкочастотной части экспериментального спектра

Образец	Температура, К	Положение пика, мэВ	Интегральная интенсивность пика, произв. ед.	Собственная ширина на полувысоте, мэВ
La_2CuO_{4-y}	77	$6,2 \pm 0,1$	11 ± 1	$0,9 \pm 0,1$
	10	$6,27 \pm 0,03$	$18,1 \pm 0,5$	$0,90 \pm 0,05$
$La_{1.8}Sr_{0.2}CuO_{4-y}$	77	$6,6 \pm 0,2$	5 ± 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 в виду это обстоятельство и принимая во внимание, что с увеличением угла рассеяния и соответственно переданного импульса интенсивность этой линии уменьшается, можно сделать вывод о том,

что соответствующее ей возбуждение имеет магнитную природу. Это весьма необычный факт для данных соединений. Номинально магнито-активными являются $3d^9$ электроны меди, орбитальный момент которых практически полностью заморожен кристаллическим полем. Если обнаруженное нами возбуждение обусловлено антиферромагнитными спиновыми волнами, то низкочастотная часть спектра магнитных возбуждений характеризуется наличием щели ~ 6 мэВ и отсутствием заметной дисперсии, т.к. положение пика не зависит от переданного импульса и 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 $54,4$ Тл. В такой интерпретации допирование стронцием, возможно, разрушает дальний магнитный порядок, но сохраняет ближний, что позволяет наблюдать это магнитное возбуждение в $La_{1.8}Sr_{0.2}CuO_{4-y}$ 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 $La-Sr-Cu-O$. 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.Красновободцеву, 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. et al. - Phys. Rev. B, 1987, 35, p. 8833.
2. Гоцицкий Б.Н. и др. - ФММ, 1987, 64, с. 188.

Renker B. et al. - Z. Phys. B, 1987, 67, p. 15.

Balakrishnan G. et al. - Nature, 1987, 327, p. 45.
3. Балука Г. и др. Сообщение ОИЯИ Р13-84-242, Дубна, 1984.
4. Ananiev V.D. et al. - In: The Neutron and its Applications 1982, Inst. Phys. Conf. Ser. 64, 1983, p. 497.
5. Decroix M. et al. - Europhys. Lett., 1987, 3, p. 1035.
6. Назаров В.М. и др. - В сб.: Краткие сообщения ОИЯИ, № 6-85, Дубна, ОИЯИ, 1985, с. 37.
7. Grande V.B. et al. - Z. Anorg. Allg. Chem., 1977, 428, p. 120.
8. Politis C. et al. - Z. Phys. B, 1987, 66, p. 141.
9. Johnston D.C. et al. - Phys. Rev. B, 1987, 36, p. 4007.

Gutsmiedl P., Wolff G., Andres K. - Phys. Rev. B, 1987, 36, p. 4043.
10. Vaknin D. et al. - Phys. Rev. Lett., 1987, 58, p. 2802.

Freltoft T. et al. - Phys. Rev. B, 1987, 36, p. 826.

Shirane G. et al. - Phys. Rev. Lett., 1987, 59, p. 1613.
11. Fleming R.M. et al. - Phys. Rev. B, 1987, 35, p. 7191.

Рукопись поступила в издательский отдел
7 января 1988 года.

Белушкин А.В. и др. D14-88-11
Нейтронные исследования температурной зависимости
динамики и структуры сверхпроводящих керамик
 $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_{4-y}$
На спектрометре КДСОГ-М на импульсном реакторе ИБР-2 одновременно 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, 77 и 10 К. В спектрах неупругого рассеяния при температурах 77 и 10 К обнаружена линия с энергией около 6 мэВ, температурная зависимость интенсивности которой указывает на магнитный характер соответствующего ей возбуждения. По результатам дифракции нейтронов исследуемые образцы во всем интервале температур имели орторомбическую и тетрагональную симметрию соответственно. Проявление рефлекса (100) в орторомбической фазе $\text{La}_2\text{CuO}_{4-y}$ свидетельствует о наличии антиферромагнитного упорядочения при низких температурах.

Работа выполнена в Лаборатории нейтронной физики ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1988

Перевод О.С. Виноградовой D14-88-11
Belushkin A.V. et al.
Neutron Studies of Temperature Dependence of Dynamics
and Structure of Superconducting Ceramics
 $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_{4-y}$
The inelastic neutron scattering and neutron diffraction spectra from $\text{La}_2\text{CuO}_{4-y}$ and $\text{La}_{1,8}\text{Sr}_{0,2}\text{CuO}_{4-y}$ at 290 K, 77 K and 10 K temperatures are investigated simultaneously with the KDSOG-M spectrometer on IBR-2 pulsed reactor. The new line at 6 meV has been observed in inelastic spectra at 77 K and 10 K. The temperature dependence of this line intensity points to magnetic nature of the corresponding excitation. According to diffraction data, the samples under investigation had orthorhombic and tetragonal symmetry, respectively over all the temperature range. The manifestation of (100) reflection for orthorhombic phase of $\text{La}_2\text{CuO}_{4-y}$ reveals the antiferromagnetic ordering at low temperatures.

The investigation has been performed at the Laboratory of Neutron Physics, JINR.

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1988