

УДК 527.312.62 · 538.945

© 1991

АКУСТИЧЕСКИЕ ИССЛЕДОВАНИЯ ДВИЖЕНИЯ ГРАНИЦ УПРУГИХ ДОМЕНОВ В $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_{4-y}$

*В. В. Зонинашвили, В. И. Сердобинцев, И. А. Наскидашвили,
Л. М. Колесникова, Н. М. Ястребова*

Методом низкочастотной ($\sim 10^3$ Гц) акустики исследованы температурные спектры поглощения звука и динамического модуля упругости соединений $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_{4-y}$ ($0.00 \leq x \leq 0.10$) в интервале температур 100–450 К. В образцах с температурой перехода T_0 из тетрагональной (T) в орторомбическую (O) фазу существенно выше комнатной ($x=0.00$, $T_0 \sim 500$ К и $x=0.05$, $T_0 \sim 400$ К) в низкотемпературной O -фазе при $T \sim 300$ К обнаружен релаксационный процесс, степень релаксации Δ которого растет с увеличением степени орторомбичности соединения $\delta = (b-a)/(b+a)$, определенной в области температур протекания процесса. Значительная степень релаксации обнаруженного процесса (для $x=0.00$ $\Delta \geq 30\%$), его отсутствие в тетрагональной T -фазе и зависимость Δ от δ позволяют заключить, что обнаруженный процесс обусловлен движением границ упругих двойников, возникающих при структурном $T-O$ превращении.

Как известно, характерной особенностью высокотемпературных сверхпроводников (ВТСП) является наличие развитой структуры упругих доменов, что существенно сказывается на многих структурно-чувствительных физических свойствах указанных соединений. Границы двойниковых доменов могут, например, влиять на температуру сверхпроводящего перехода ВТСП [1, 2], на подвижность магнитных вихревых нитей, усиливая их пиннинг [3, 4], и т. д. Как и другие несовершенства кристаллической решетки, эти двумерные дефекты должны вносить существенный вклад и в неупругие свойства ВТСП, приводить, например, к неупругим релаксационным процессам, как это обычно бывает в соединениях с развитой доменной структурой [5–9]. Однако сведения о наличии таких неупругих процессов в ВТСП, в частности в соединениях типа La-Ba-Cu-O , до сих пор отсутствуют.

В настоящей работе представлены результаты низкочастотных ($\sim 10^3$ Гц) измерений поглощения звука и динамического модуля упругости соединений $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_{4-y}$ ($0.00 \leq x \leq 0.10$) в диапазоне температур 100–450 К. В работе были использованы керамические образцы $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_{4-y}$ трех составов ($x=0.00$, 0.05 и 0.10). Исследуемые образцы имели форму пластинок размерами $20 \times 3 \times 0.5$ мм, представляя собой четвертьволновый вибратор на изгибной моде. Собственная частота акустического вибратора с указанной геометрией находилась в пределах $\sim 10^3$ Гц. Для возбуждения и детектирования изгибных колебаний служил электрод, расположенный у свободного конца вибратора; зазор между образцом и электродом составлял ~ 0.05 мм. Электрод подключался к электронной схеме, представляющей собой регенеративный спектрометр неупругой релаксации [10], с помощью которого проводились измерения дисперсии модуля упругости и поглощения энергии акустических колебаний. Мерой динамического модуля упругости служит квадрат резонансной частоты образца F^2 , а мерой поглощения звука — обратная добротность вибратора Q^{-1} , которая определялась либо по декременту свободных колебаний вибратора при

выключенной обратной связи (для $Q^{-1} \leq 5 \cdot 10^{-3}$), либо по величине переменного возбуждающего напряжения при постоянной амплитуде вынужденных колебаний (для $Q^{-1} \geq 5 \cdot 10^{-3}$). В отдельных случаях поглощение звука (для $Q^{-1} \geq 10^{-2}$) определялось по полуширине резонансной кривой вибратора. Во всех случаях погрешность измерений F^2 не превышала $\pm 10^{-1} \%$, а Q^{-1} — $\pm 5 \%$. Измерения температурных спектров поглощения звука и модуля упругости осуществлялись при нагреве или охлаждении образцов со скоростью ~ 1 К/мин. Амплитуда деформации образца составляла $\sim 10^{-6}$.

На рис. 1 представлены температурные спектры поглощения звука и динамического модуля упругости, полученные в образцах $\text{La}_2\text{CuO}_{4-y}$ в интервале температур 100—420 К. Как видно из этого рисунка, в не-

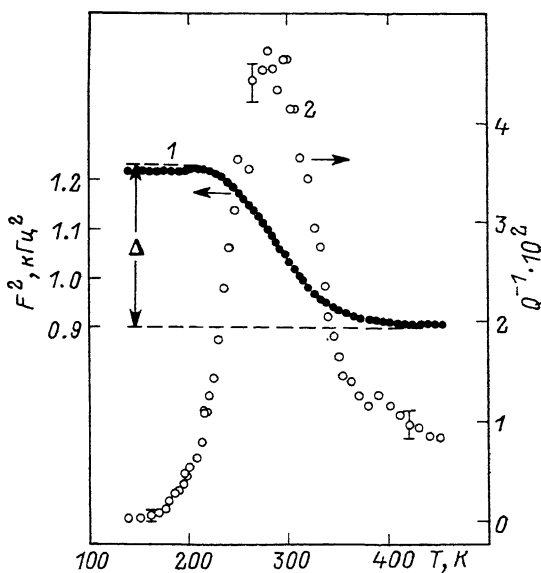


Рис. 1. Зависимость модуля упругости (1) и поглощения звука (2) от температуры в $\text{La}_2\text{CuO}_{4-y}$.

допированных стронцием образцах при $T \sim 300$ К на зависимости $Q^{-1}(T)$ наблюдается высокий максимум Q^{-1} , сопровождающийся характерным для неупругого релаксационного процесса поведением модуля упругости. Степень релаксации Δ обнаруженного процесса в $\text{La}_2\text{CuO}_{4-y}$ весьма значительна ($\sim 30 \%$), причем сопоставление Δ с величиной максимума Q^{-1} говорит о том, что процесс не монорелаксационный. Аналогичные аномалии F^2 и Q^{-1} имеют место в той же области температур и в $\text{La}_{1.95}\text{Sr}_{0.05}\text{CuO}_{4-y}$ (рис. 2), только со значительно меньшим ($\sim 4 \%$) значением Δ . Из этого рисунка также видно, что при понижении температуры в образцах с $x \sim 0.05$ вблизи $T \sim 400$ К наблюдается ярко выраженное смягчение модуля упругости, сопровождающееся весьма резким увеличением поглощения звука и последующим его изломом при $T \sim 395$ К.

Что касается образцов с $x=0.1$, то в них в области температур 200—450 К никаких аномалий F^2 или Q^{-1} , характерных для релаксационных процессов, не наблюдается (рис. 3). Как видно из этого рисунка, в образцах $\text{La}_{1.9}\text{Sr}_{0.1}\text{CuO}_{4-y}$ имеют место только такие аномалии F^2 и Q^{-1} (вблизи температур ~ 280 К), которые для состава с $x=0.05$ наблюдались при $T \sim 400$ К. Следует отметить, что похожие аномалии F^2 и Q^{-1} , т. е. сильное смягчение F^2 с понижением температуры и соответствующий рост Q^{-1} , наблюдались нами также и в недопированных стронцием образцах $\text{La}_2\text{CuO}_{4-y}$ при $T \sim 500$ К [11] (на рис. 1 эта область температур не представлена). Отметим также, что ранее [12-20] аналогичные аномалии упругих

свойств $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_{4-y}$ наблюдались при температурах ≤ 200 К в образцах с большими ($\sim 0.15 \div 0.20$) значениями x .

Таким образом, температурные спектры поглощения звука и динамического модуля упругости соединения $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_{4-y}$ для $0.00 \leq x \leq 0.20$ свидетельствуют о том, что в интервале температур 100–500 К имеют место по крайней мере два типа аномалий упругих свойств. Это, во-первых, характерное для фазовых переходов сильное смягчение модуля упругости с соответствующим ростом поглощения звука, которое наблюдается во всех исследованных составах при соответствующих температурах T_0 , зависящих от содержания стронция x , и, во-вторых, характерное для неупругого релаксационного процесса поведение F^2 и Q^{-1} вблизи темпера-

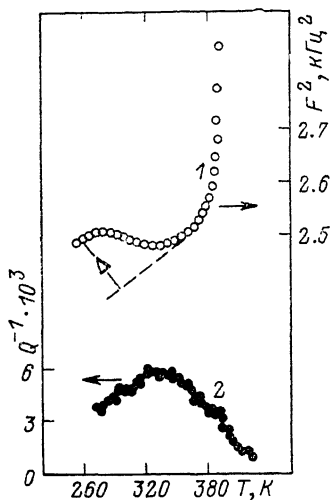


Рис. 2. Температурные спектры модуля упругости (1) и поглощения звука (2) в $\text{La}_{1.95}\text{Sr}_{0.05}\text{CuO}_{4-y}$.

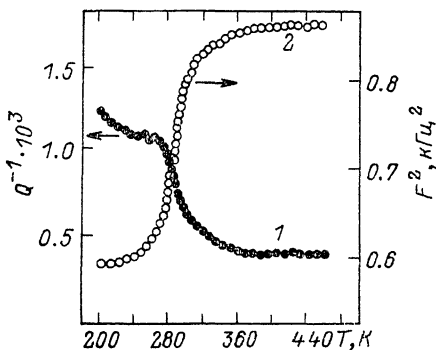


Рис. 3. Температурные зависимости поглощения звука (1) и модуля упругости (2) в $\text{La}_{1.9}\text{Sr}_{0.1}\text{CuO}_{4-y}$.

тур ~ 300 К, которое наблюдается только для тех составов $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_{4-y}$ ($x=0.05$ и 0), для которых $T_0 > 300$ К.

Что касается аномалий упругих свойств $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_{4-y}$, имеющих место при $T \sim T_0$, то они подробно рассматривались ранее [11, 20] и поэтому обсуждаться в настоящей работе не будут. Отметим только, что, согласно тем представлениям, которые сложились к настоящему времени, эти аномалии связаны с фазовым превращением $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_{4-y}$ из тетрагональной (T) в орторомбическую (O) фазу, который ранее был подробно изучен в рентгено- и нейтронографических исследованиях (см., например, обзор [21]).

Исходя из сказанного, можно утверждать, что исследуемые в настоящей работе образцы претерпевают $T-O$ переход в области температур ~ 500 К ($x=0$), ~ 400 К ($x=0.05$) и ~ 280 К ($x=0.10$).

Как уже отмечалось ранее, в исследованных нами образцах $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_{4-y}$ для $x=0$ и 0.05 при $T \sim 300$ К обнаружены аномалии F^2 и Q^{-1} , характерные для релаксационного процесса. Обращает на себя внимание то обстоятельство, что эти аномалии имеют место только в O -фазе исследуемого соединения (для состава с $x=0.1$, в котором обсуждаемые аномалии отсутствуют, температура ~ 300 К, при которой на частотах $\sim 10^3$ Гц наблюдается релаксационный процесс, приходится [11, 20] на T -фазу). Обращает на себя внимание также то, что как величина максимума Q^{-1} , так и степень релаксации процесса Δ (рис. 1, 2) зависят от x , причем с ростом x и Q^{-1} , и Δ падают. Это указывает не только на то, что обнаруженный процесс имеет место в O -фазе исследуемого соединения, но и на то, что степень релаксации процесса определяется степенью орторомбичности δ

соединения $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_{4-y}$, которая при температурах ~ 300 К, т. е. при температурах протекания процесса на частотах $\sim 10^3$ Гц, также уменьшается с ростом x (см. таблицу): $\delta = (b-a)/(a+b)$, где a и b — параметры решетки в базисной плоскости.

Как уже отмечалось выше, характерной структурной особенностью O -фазы соединения $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_{4-y}$ является наличие двойниковых границ. Это связано с тем [21], что возникающий в $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_{4-y}$ при $T = T_0$ переход из T - в O -фазу обусловлен неустойчивостью мягкой оптической моды, которая в T -фазе является двукратно вырожденной и, следовательно, конденсируется в низкотемпературной O -фазе с образованием упругих доменов. Возникновение таких доменов, разделенных двойниковыми границами, в O -фазе $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_{4-y}$ наблюдалось, например, в рентгеноструктурных исследованиях [22]. Данные работ [11, 20], в которых подробно исследовалось поведение упругих свойств $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_{4-y}$ при $T \rightarrow O$ пере-

Степень релаксации Δ ,
значение поглощения звука в точке максимума Q_{max}^{-1}
и степень орторомбичности δ в соединении $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_{4-y}$
для различных x

| x | $\Delta, \%$ | Q_{max}^{-1} | a | b | $\delta = \frac{(b-a)}{(a+b)}$ |
|------|--------------|-----------------------|-------|-------|--------------------------------|
| 0.00 | 30 | $5 \cdot 10^{-2}$ | 5.352 | 5.416 | $6.0 \cdot 10^{-3}$ |
| 0.05 | 4 | $6 \cdot 10^{-3}$ | 5.349 | 5.383 | $3.1 \cdot 10^{-3}$ |
| 0.10 | 0 | 0 | 5.345 | | 0 |

ходе, также свидетельствуют об образовании в O -фазе этих соединений упругих двойников. Если учесть все вышеизложенное, а также то обстоятельство, что наличие двойниковых границ может приводить к неупругим релаксационным процессам со значительной степенью релаксации, как это имеет место, например, в упорядочивающихся сплавах In-Tl , Mn-Cu или гидридах ОЦК-металлов [5-9], то вполне естественно связать обнаруженный при $T \sim 300$ К релаксационный процесс с движением двойниковых границ. Существенное увеличение степени релаксации процесса с повышением степени орторомбичности соединения свидетельствует о росте числа двойниковых границ по мере увеличения δ , что также представляется вполне естественным.

Поскольку смещение границ двойников под действием приложенной знакопеременной нагрузки связано с переориентацией октаэдров CuO_6 , определение энергии активации обнаруженного процесса может дать сведения об энергетических параметрах, определяющих указанный процесс переориентации. К сожалению, температурные спектры F^2 и Q^{-1} , полученные только на частотах $\sim 10^3$ Гц без дополнительных исследований в более широкой области частот, не позволяют этого сделать. Дело в том, что, как уже отмечалось выше, процесс оказался немонорелаксационным, и, следовательно, определение энергии активации при наличии данных, полученных только на одной частоте, не представляется возможным.

Таким образом, результаты настоящей работы свидетельствуют о том, что в соединении $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_{4-y}$ обнаружен неупругий релаксационный процесс, который на частотах $\sim 10^3$ Гц имеет место вблизи комнатных температур. Значительная степень релаксации процесса, зависимость ее от степени орторомбичности соединения, а также отсутствие процесса в T -фазе $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_{4-y}$ позволяют заключить, что обнаруженный процесс обусловлен движением двойниковых границ.

В заключение авторы считают своим приятным долгом выразить глубокую признательность Г. А. Харадзе за стимулирующие работу дискуссии и ряд ценных замечаний. Авторы выражают глубокую благодар-

ность В. Р. Карасики (Физический институт АН СССР) за любезно предоставленные для исследований образцы $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_{4-y}$ всех трех составов, а также В. А. Кочерову за изготовление из них акустических вибраторов.

Список литературы

- [1] Хлюстикова И. Н., Буздин А. И. // УФН. 1988. Т. 155. № 1. С. 47—88.
- [2] Бобров К. Н., Лебедин В. И. // Письма в ЖЭТФ. 1988. Т. 47. № 12. С. 618—621.
- [3] Swartzendruber L. J., Roitburd A., Kaiser D. L., Gayle F. W., Bennett L. H. // Phys. Rev. Lett. 1990. V. 64. N 4. P. 483—486.
- [4] Kwok W. K., Welp U., Crabtree G. W., Vandervoort K. G., Hulshar R., Liu J. Z. // Phys. Rev. Lett. 1990. V. 64. N 8. P. 966—969.
- [5] Worrell F. T. // J. Appl. Phys. 1948. V. 19. N 10. P. 929—933.
- [6] Aojagi T., Sumino K. // Phys. Stat. Sol. 1969. V. 33. N 1. P. 317—326.
- [7] Amano M., Sasaki Y. // Trans. Nat. Res. Inst. Metals. Tokyo, 1977. V. 19. N 4. P. 155—163.
- [8] Сердобинцев В. И., Наскидашвили И. А., Мелик-Шахназаров В. А., Савин В. И. // ФТТ. 1981. Т. 23. № 10. С. 3005—3008.
- [9] Melik-Shakhnazarov V. A., Naskidashvili I. A., Serdobintsev V. I., Savin V. I. // Phys. Stat. Sol. (a). 1982. V. 74. N 2. P. 593—602.
- [10] Мелик-Шахназаров В. А., Наскидашвили И. А. // ПТЭ. 1987. № 1. С. 181—184.
- [11] Зонинашвили В. В., Сердобинцев В. И., Наскидашвили И. А., Колесникова Л. М., Ястребова Н. М. // Препринт Ин-та физики АН СССР, ФТТ-2. Тбилиси, 1990. 13 с.
- [12] Bishop D. J., Gammel P. L., Ramirez A. P., Cava R. J., Batlogg B., Rietman E. A. // Phys. Rev. B. 1987. V. 35. N 16. P. 8788—8791.
- [13] Fossheim K., Laegreid T., Sandvold E., Vassenden F. // Sol. State Comm. 1987. V. 63. N 6. P. 531—533.
- [14] Horie Y., Fukami T., Mase S. // Sol. State Comm. 1987. V. 63. N 7. P. 653—656.
- [15] Laegreid T., Fossheim K., Vassenden F. // Physica C. 1988. V. 153—155. Part II. P. 1096—1099.
- [16] Bhattasharya S., Higgins M. J., Johnston D. C., Jacobson A. J., Stokes J. P., Lewandowski J. T., Goshorn D. P. // Phys. Rev. B. 1988. V. 37. N 10. P. 5901—5904.
- [17] Bourne L. C., Zettl A., Chang K. J., Cohen M. L., Stacy A. M., Ham W. K. // Phys. Rev. B. 1987. V. 35. N 16. P. 8785—8788.
- [18] Esquinazi P., Luzuriaga J., Duran C., Esparza D. A., D'Ovidio C. // Phys. Rev. B. 1987. V. 36. N 4. P. 2316—2318.
- [19] Xiang X.-D., Brill J. W., DeLong L. E., Bourne L. C., Zettl A., Jones J. C., Rice L. A. // Sol. State Comm. 1988. V. 65. N 10. P. 1073—1078.
- [20] Lee W.-K., Lew M., Nowick A. S. // Phys. Rev. B. 1990. V. 41. N 1. P. 149—154.
- [21] Birgenaw R. G., Shirane G. // Phys. Properties of High-Temperature Superconductors. World Scientific Publishing, 1989. P. 223—283.
- [22] Ossipyan Yu. A., Shekhtman V. Sh., Shmit'ko I. M. // Physica C. 1988. V. 153—155. Part I. P. 970—971.

Институт физики АН СССР
Тбилиси

Поступило в Редакцию
12 ноября 1990 г.