

УДК 538.114.001

ДЕФОРМАЦИЯ ФОНОННОГО СПЕКТРА СОЕДИНЕНИЯ Mo_3Si ПРИ РАДИАЦИОННОЙ АМОРФИЗАЦИИ

Г. Ф. Сырых, В. Е. Архипов, Б. Н. Гоцицкий,
М. Г. Землянов, Н. А. Черноплеков

Методом нейтронной спектроскопии исследован характер изменения фононного спектра сверхпроводника Mo_3Si под действием облучения быстрыми нейтронами. Установлено увеличение плотности фононных состояний как в низкоэнергетической, так и в высокоэнергетической частях спектра.

К настоящему времени выполнен значительный объем исследований влияния облучения высокоэнергетическими частицами на физические свойства сверхпроводящих соединений со структурой А-15. Показано, что облучение соединений А-15 тяжелыми ионами приводит к аморфизации или переходу в другую кристаллическую структуру [1]. Облучение этих соединений быстрыми нейтронами вызывает, как правило, разупорядочение, а в случае соединений Mo_3Si и Mo_3Ge — аморфизацию [2]. В соединениях на основе Nb и V, обладающих в исходном состоянии относительно высокими температурами перехода в сверхпроводящее состояние ($T_c \sim 10\text{--}18\text{ K}$), как разупорядочение, так и аморфизация влекут за собой падение T_c ниже 4 К. В соединениях же Mo_3Si и Mo_3Ge разупорядочение и аморфизация, создаваемые как высокоскоростной закалкой [3], так и облучением быстрыми нейтронами вызывают рост T_c в 4—5 раз (от исходного уровня $T_c \sim 1.5\text{ K}$). Если в случае соединений с высокими T_c в исходном состоянии вопрос о причинах деградации при радиационном разупорядочении и аморфизации, по-видимому, ясен (падение $N(E_F)$ при размытии пика в $N(E)$ [4]), то ситуация является более сложной в случае соединения Mo_3Si . На основании измерений температурной зависимости теплоемкости и ЯМР [5, 6] было показано, что разупорядочение и аморфизация вызывают 20—50%-й рост плотности электронных состояний на уровне Ферми $N(E_F)$. Из данных по теплоемкости в то же время был сделан вывод, что значительную роль в росте T_c соединения Mo_3Si играют изменения в низкочастотной части фононного спектра [5]. Высказывалась также и противоположная точка зрения, а именно, рост T_c в соединении Mo_3Si при облучении связан только с размытием тонкой структуры электронного спектра и результирующим ростом $N(E_F)$ [7]. Поскольку прямые данные по изменению фононного спектра в облученном соединении Mo_3Si (как, впрочем, и в других облученных сверхпроводящих сплавах и соединениях) отсутствовали, выбор между двумя указанными предположениями был затруднен.

Настоящая работа предпринята с целью выяснения методом неупругого рассеяния нейтронов характера изменения фононного спектра соединения Mo_3Si при его радиационном переходе в аморфное состояние.

Измерения спектров неупругого рассеяния нейтронов проводились на времяпролетном спектрометре с источником холодных нейтронов на реакторе ИР-8 ИАЭ им. И. В. Курчатова [8]. Средняя энергия падающих нейтронов E_0 составляла $\sim 4.6\text{ мэВ}$, $\Delta E_0/E_0 \approx 10\%$. Спектры рассея-

ных на образце нейтронов регистрировались под углами 30, 45, 60, 75 и 90°. Температура образца составляла 300 К.

Исходный образец Mo_3Si получен сплавлением в печи с нерасходуемым электродом. Затем образец гомогенизирован при 1000 °С в течение 100 часов в динамическом вакууме не хуже 10^{-5} мм рт. ст. Согласно рентгено- и нейтронографическим данным, образец на 95 % состоял из фазы А-15 с $a_0 = 4.892 \text{ \AA}$ и степенью дальнего порядка $S = 0.86 \pm 0.02$. Измерения неупругого рассеяния нейтронов были проведены как на исходном образце, так и после облучения его быстрыми нейтронами ($E > 1 \text{ МэВ}$) флюенсом $3 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-2}$ при $T = 70 \text{ °С}$. В результате облучения образец практически полностью перешел в аморфное состояние — на рентгено- и нейтронограммах следов структурных рефлексов не наблюдалось. Методика приготовления, облучения и аттестации образцов детально описана в [1].

Как известно [8, 9], дважды дифференциальное сечение рассеяния нейтронов для немонаотомных решеток с базисом в некогерентном приближении¹ имеет вид

$$\begin{aligned} \frac{d^2\sigma}{d\Omega dE} &= \frac{K}{8\pi K_0} \frac{\kappa^2}{E} \frac{g(E)}{\exp(-E/kT) - 1} \sum_{\mu} c_{\mu} \exp(-2W_{\mu}) \frac{\sigma_{\mu}}{M_{\mu}} |e_{\mu}(E)|^2 = \\ &= \frac{K}{8\pi K_0} \frac{\kappa^2}{E} \frac{1}{\exp(-E/kT) - 1} \tilde{G}(E), \end{aligned} \quad (1)$$

где σ_{μ} и M_{μ} — сечения рассеяния и массы ядер элементов, входящих в состав образца; c_{μ} — их концентрация; μ — индекс подрешетки;

$$\tilde{G}(E) = \sum_{\mu} \left[\frac{\sigma_{\mu}}{M_{\mu}} F_{\mu}(E) \right] / \sum_{\mu} \frac{\sigma_{\mu}}{M_{\mu}}$$

— обобщенная функция распределения частот, $F_{\mu}(E)$ — фононная плотность состояний. Остальные символы имеют их обычный смысл.

При условии $\sigma_{\mu}/M_{\mu} = \text{const}$ с точностью до фактора Дебая—Валлера может быть восстановлена плотность фононных состояний образца. В нашем случае отношение весовых множителей $\frac{\sigma_{\text{Mo}}}{M_{\text{Mo}}} : \frac{\sigma_{\text{Si}}}{M_{\text{Si}}}$ составляет 1:1.4.

На основании этого можно предполагать, что функция $\tilde{G}(E)$ достаточно правильно отражает плотность колебательных состояний данного интерметаллида, не говоря уже о возможности сравнения результатов до и после облучения.

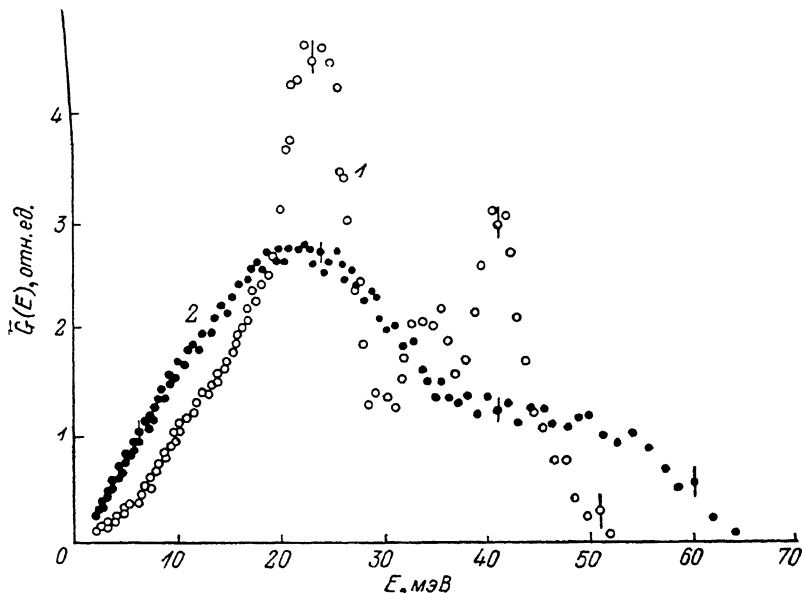
Обсуждение полученных результатов

На рисунке представлены обобщенные плотности фононных состояний $\tilde{G}(E)$ кристаллического образца Mo_3Si и образца, аморфизированного облучением быстрыми нейтронами.

Спектр $\tilde{G}(E)$ кристаллического образца Mo_3Si , так же как и спектры $\tilde{G}(E)$ других соединений A_3B (Nb_3Al , V_3Si) с легким элементом в позиции В [10], имеют четко выраженную акустическую и оптическую области. Отличие состоит лишь в том, что в оптической области функции $\tilde{G}(E)$ соединения Mo_3Si проявляются два пика. Такой характер оптической полосы согласуется с измерениями кривых дисперсии фононов соединения Mo_3Si , выполненными в [11], где можно выделить две группы оптических фононных ветвей.

¹ Отношение объема внутри сферы, описываемой вектором переданного импульса нейтронов κ к объему зоны Бриллюэна Mo_3Si , больше 100 для угла рассеяния 90°, что обеспечивает условия достаточно полного усреднения когерентных эффектов в поликристаллическом образце Mo_3Si . Экспериментальным подтверждением достаточного усреднения служат наблюдаемость подобия нейтронных спектров в диапазоне углов 30–90°.

Спектр $\bar{G}(E)$ образца, аморфизированного облучением, претерпел значительные изменения. Четкие особенности исходного спектра $\bar{G}(E)$ сгладились, что характерно для спектров $\bar{G}(E)$ аморфных металлических сплавов, полученных другими методами [12, 13]. Наблюдается значительное увеличение плотности фоновых состояний в низкоэнергетической области спектра. Такое поведение фоновый спектр соединения Mo_3Si после облучения отмечалось в [5] на основании данных по температурной зависимости теплоемкости. Структура в оптической области спектра исчезла и произошло существенное смещение граничной энергии в сторону увеличения (от ~ 50 до ~ 60 мэВ).



Обобщенная плотность состояний для кристаллического Mo_3Si (1) и $\text{Mo}_3\text{Si}[\text{Mo}_3\text{Si}_2]$, аморфизированного облучением (2).

В [5] был проведен анализ влияния деформации фоновый спектр на изменение T_c при использовании температурной зависимости теплоемкости.

Если теперь в рамках такого же подхода проанализировать влияние облучения на изменение T_c в этом соединении при использовании информации о фоновых спектрах, полученной из нейтронных данных (см. таблицу), то следует отметить, что роль фоновой подсистемы в увеличении T_c оказывается менее значительной. Связано это с тем, что величина $\omega^2 = \langle \omega \rangle / \langle \omega^{-1} \rangle$, фигурирующая в определении константы электрон-фонон-

Параметры электронной и фоновой подсистем соединения Mo_3Si в кристаллическом и аморфном состояниях по данным теплоемкости и рассеянию нейтронов

| Параметр | Кристаллический | | Аморфный | |
|--|----------------------|----------------------|----------------------|---------------------|
| | теплоемкость | нейтроны | теплоемкость | нейтроны |
| T_c , К | 1.56 | — | 7.15 | — |
| $\langle \omega^{-1} \rangle$, К | $3.49 \cdot 10^{-3}$ | $3.87 \cdot 10^{-3}$ | $4.38 \cdot 10^{-3}$ | $4.4 \cdot 10^{-3}$ |
| $\langle \omega \rangle$, К | 321 | 324 | 284 | 341 |
| ω_{\log} , К | 265 | 210 | 195 | 163 |
| $\langle \bar{\omega}^2 \rangle^{1/2}$, К | 303 | 289 | 255 | 278 |
| λ | 0.43 | 0.43 | 0.72 | 0.78 |

ного взаимодействия λ , из-за появления высокоэнергетических фононов в облученном образце меняется не так сильно, как следует из теплоемкостных данных.

Изложенное в настоящей статье позволяет сделать следующие выводы.

1) Впервые прямым методом получена информация об изменении плотности фононных состояний соединения Mo_3Si , облученного флюенсом быстрых нейтронов $\sim 3 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-2}$.

2) Характер деформации фононной подсистемы соединения Mo_3Si подобен наблюдаемому изменению фононного спектра другого соединения металл—металлоид Ni_2B [14] и полученному в аморфном состоянии методом быстрой закалки, т. е. плотность состояний низкоэнергетических колебаний значительно увеличивается, граница спектра существенно смещается в сторону больших значений.

3) Роль изменений в фононной подсистеме на увеличение T_c при радиационной аморфизации оказалась не такой существенной, как это следовало из работы [5].

Л и т е р а т у р а

- [1] Архипов В. Е., Воронин В. И., Гоцуцкий Б. Н., Сокурский Ю. Н., Шишов В. Н. ФММ, 1987, т. 63, № 4, с. 748—756.
- [2] Архипов В. Е., Карькин А. Е., Воронин В. И., Мирмельштейн А. В. ФММ, 1984, т. 57, № 5, с. 1021—1023.
- [3] Johnson W. L., Tsenei C. C., Raicher S. J., Laibovits R. B. J. Appl. Phys., 1979, vol. 50, N 6, p. 4240—4250.
- [4] Александров А. С., Елесин В. Ф., Казеко М. П. ФТТ, 1979, т. 21, № 7, с. 2062—2072.
- [5] Мирмельштейн А. В., Карькин А. Е., Архипов В. Е., Воронин В. И. ФММ, 1983, т. 55, № 1, с. 79—89.
- [6] Алексашин Б. А., Верховский С. В., Михалев К. Н., Степанов А. П., Архипов В. Е., Гоцуцкий Б. Н. ФММ, 1986, т. 62, № 2, с. 284—290.
- [7] Lehman M., Saeman-Jschenko G., Adrian H., Nolscher C. Physica, 1981, vol. 107B, p. 473—474.
- [8] Землянов М. Г., Головин А. Е., Миронов С. П., Сырых Г. Ф., Черноплеков Н. А., Шитиков Ю. Л. ПТЭ, 1973, № 5, с. 34—38.
- [9] Черноплеков Н. А., Землянов М. Г., Бровман Е. Г., Чечерин А. Г. ФТТ, 1963, т. 5, № 1, с. 112—117.
- [10] Schweiss B. R., Renker B., Schneider E. S., Reichardt W. Superconductivity in d- and f-Band Metals. Plenum Press, 1976, p. 189—192.
- [11] Nørlund A., Zebech B. Phonons in Mo_3Si . Risø—R—461, Physics Department Annual Progress Report, 1981.
- [12] Holden T. M., Dugdale J. S., Hallam G. C., Pavuna D. J. Phys. F: Metal Phys., 1981, vol. 11, p. 1737—1748.
- [13] Землянов М. Г., Сырых Г. Ф., Черноплеков Н. А. Письма в ЖЭТФ, 1985, т. 42, № 4, с. 176—179.
- [14] Lustig N., Lannin J. S. Phys. Rev. B, 1986, vol. 34, N 10, p. 2781—2793.

Поступило в Редакцию
26 октября 1987 г.