

05.4;12

Исследование сверхпроводящих кристаллов методами рассеяния нейтронов и ядерного микроанализа

© Г.А. Евмененко, В.М. Лебедев, В.Т. Лебедев,
А.И. Сибилев, С.А. Чуринов

Петербургский институт ядерной физики им. Б.П. Константинова РАН,
Гатчина

Поступило в Редакцию 1 июля 1997 г.

Сочетание методов ядерного микроанализа (ионного рентгеноспектрального, резерфордского обратного рассеяния и ядерных реакций) с малоугловой дифракцией нейтронов в объеме керамического стержня $Y-Ba-Cu-O$, рекристаллизованного методом зонной плавки, позволило определить элементный и фазовый состав в областях исходной керамики, кристалле и на переходных участках и степень локальной однородности среды на масштабах $\sim 10^1-10^2$ nm.

Проблема технологии высокотемпературных сверхпроводников — получение длинномерных кристаллов с большим критическим током. Из $YBa_2Cu_3O_x$ — керамики по порошковой технологии изготавливается стержень нужной длины и сечения (рис. 1). Плавление и кристаллизация заготовки ведутся в вертикальной печи. Плавление керамик идет с разложением их на твердую (Y_2BaCuO_5) и жидкую ($\mathcal{L}: BaCuO_2$ и CuO) компоненты. Рост кристаллов идет через перитектическую реакцию $Y_2BaCuO_5 + \mathcal{L} = YBa_2Cu_3O_x$ в температурном поле с градиентом $20-50^\circ C \cdot cm^{-1}$ при $1010-1005^\circ$; скорость движения стержня в печи $1 \cdot 10 mm \cdot h^{-1}$. В ИФМ РАН получены кристаллы $YBa_2Cu_3O_x$ длиной несколько сантиметров и плотностью критического тока $j_c(B = 0 T, T = 77 K) = 10^4 - 10^5 A \cdot cm^{-2}$ [1]. Однако при кристаллизации более холодная верхняя часть заготовки покрывается слоем $BaCuO_2$ со следами CuO , что ведет к ее усадке, нарушению стехиометрии и прекращению роста кристалла. Нижняя часть обогащается фазой Y_2BaCuO_5 . Следовательно, требуется контроль элементного состава и микросвойств частей заготовки в процессе выращивания кристалла.

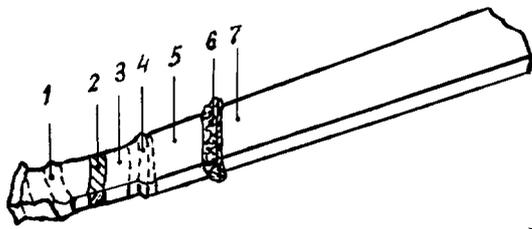


Рис. 1. Образец. Контрольные позиции: 1, 3, 4, 5 — соответствуют "жидкой" компоненте; 2 — кристалл; 6 — переходная область; 7 — исходная керамика.

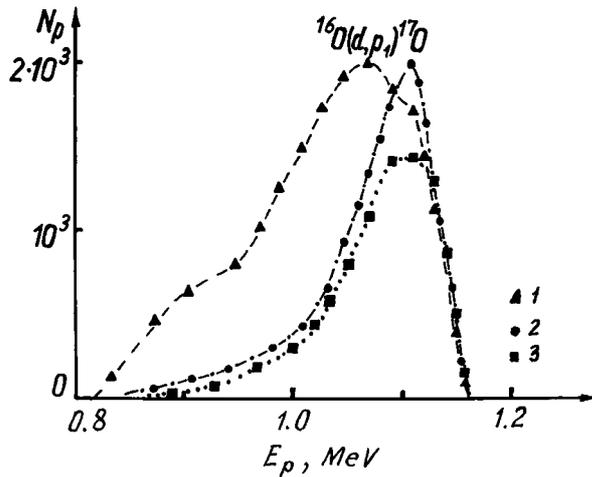


Рис. 2. Спектр протонов по реакции $^{16}\text{O}(d,p)^{17}\text{O}$ при случайном (1) и ориентированном (2 — поз. 2 на рис. 1, 3 — миш. 2) падении дейтронов на кристаллическую мишень.

Для определения элементного состава мишени мы применяли неразрушающие методы ядерного микроанализа. Работа проводилась на электростатическом ускорителе ЭСУ-2 ПИЯФ. Элементный состав по иттрию, барью и меди определен методами Резерфордского обратного рассеяния и рентгеноспектрального с возбуждением флуоресценции протонами (отн. точность $\sim 1\%$). Содержание кислорода в образцах

Элементный и фазовый состав исследованных образцов

Позиция	Содержание элементов в атомных частях				Фазы
	Y	Ba	Cu	O	
1	0.034	1	1.13	2.20 ± 0.02	$(\text{BaCuO}_2) + 0.036(\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.98})$
2, крист.	0.90	2	2.91	6.71 ± 0.07	$(\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.98}) + 0.23(\text{BaCuO}_2)$
3	0.056	1	1.07	2.10 ± 0.02	$(\text{BaCuO}_2) + 0.063(\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.98})$
4	—	1	1.04	2.05 ± 0.02	$(\text{BaCuO}_2) + 0.04(\text{CuO})$
5	—	1	1.04	2.08 ± 0.02	$(\text{BaCuO}_2) + 0.04(\text{CuO})$
6	0.134	2	3.05	5.30 ± 0.06	$(\text{BaCuO}_2) + 0.54(\text{CuO})$ $+ 0.034(\text{Y}_2\text{BaCuO}_5)$
7, исх.	1.01	2	2.94	6.89 ± 0.07	$(\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.97}) + 0.018(\text{Y}_2\text{BaCuO}_5)$
Миш. 2, крист.	1.31	2	2.77	7.05 ± 0.07	$(\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.96}) + 0.19(\text{BaCuO}_2)$ $+ 0.35(\text{Y}_2\text{BaCuO}_5)$

определено с помощью ядерной реакции $^{16}\text{O}(d, p)^{17}\text{O}$ по отношению к стандартному образцу [2]. Энергии ускоренных протонов $E_p \sim 1 \text{ MeV}$, дейтронов — 0.9 MeV при $\Delta E/E \sim 10^{-4}$. Результаты по элементному и фазовому составу приведены в таблице. Для полноты картины был исследован другой кристалл, вырезанный из аналогичного стержня (миш. 2). Для этих методов толщина исследуемого в образцах поверхностного слоя составляет $\sim 20 \mu\text{m}$.

В кристалле (позиция 2) наблюдается обогащение фазой BaCuO_2 , а в миш. 2 — Y_2BaCuO_5 и BaCuO_2 . Поверхностный слой в позициях 3, 4 и 5 состоит в основном из BaCuO_2 , что отвечает данным работы [3].

В позиции 2 стержня и для миш. 2 при некоторых положениях мишени относительно направления пучка дейтронов от ускорителя в спектре протонов (продуктов ядерной реакции дейтронов с кислородом ^{16}O) в области малых энергий наблюдается провал в интенсивности — каналирование дейтронов (рис. 2), что свидетельствует о наличии кристалличности в образцах (позиция 2 стержня и миш. 2).

Для определения микрогетерогенностей в образце применялся метод малоугловой дифракции нейтронов с длиной волны $\lambda \approx 0.3 \text{ nm}$ ($\Delta\lambda/\lambda \approx 30\%$). Рассеяние нейтронов для переданных импульсов $\mathbf{q} = 0.05 - 0.8 \text{ nm}^{-1}$ измерено в нескольких позициях образца (рис. 3) и

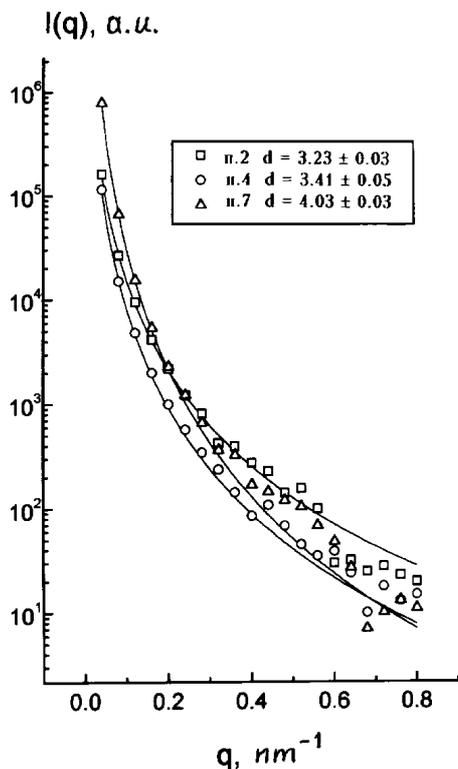


Рис. 3. Исследование микрогетерогенностей методом дифракции нейтронов в контрольных позициях 2, 4 и 7. Показаны аппроксимирующие функции и параметры d , характеризующие фрактальную размерность объекта на масштабах $10^1 - 10^2$ nm.

для миш. 2. Там же приведены результаты аппроксимации зависимости интенсивности рассеянных нейтронов (I) от переданного импульса (q): $I(q) \sim q^{-d}$, где показатель d характеризует фрактальную размерность объекта на масштабах $10^1 - 10^2$ nm; для исходной керамики (поз. 7) $d = 4.03 \pm 0.03$, для промежуточной области (поз. 4) $d = 3.41 \pm 0.05$, для кристалла (поз. 2) $d = 3.23 \pm 0.03$. Для миш. 2 получено близкое к трем значение $d = 3.19 \pm 0.04$.

Таким образом, керамическая часть образца имеет хорошо развитую гранульную поверхность с размерностью $6 - d \approx 2$, что дает закон рассеяния Порода $I(\mathbf{q}) \sim \mathbf{q}^{-4}$. Показатель $d \approx 3$ свидетельствует о плотной среде (поликристалл). Переходная область имеет промежуточную размерность d . Эти результаты согласуются с данными по элементному и фазовому составу и объясняют наблюдаемый эффект каналирования дейтронов (рис. 2).

Проведенные исследования показывают эффективность сочетания малоуглового рассеяния нейтронов и неразрушающих поверхностно чувствительных методов ядерного микроанализа (резерфордовского обратного рассеяния, ядерных реакций, ионного рентгеноспектрального, каналирования) для контроля роста высокотемпературных сверхпроводящих кристаллов и оптимизации технологии их получения, для исследования других подобных объектов.

Работа выполнена в рамках Федеральной программы "Высокотемпературная сверхпроводимость" (гранты 96021 и 95032) и поддержана ГНТП "Нейтронные исследования вещества".

Список литературы

- [1] Волошин И.Ф., Фишер Л.М., Дрозов Ю.В., Чурин С.А. // Тез. докл. XXX Сессии по физике низких температур. 6–8 сентября 1994 г. 1994. Ч. 1. С. 70.
- [2] Капитанова О.И., Лебедев В.М., Смолин В.А. // Тез. докл. 4 Всерос. конф. по модификации свойств конструкционных материалов пучками заряженных частиц. 13-17 мая 1996 г. Томск, 1996. С. 487–489.
- [3] Чурин С.А. // Письма в ЖТФ. 1995. Т. 21. В. 10. С. 53–56.