

АННИГИЛЯЦИЯ ПОЗИТРОНОВ В ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНОМ СВЕРХПРОВОДНИКЕ

$YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$

Я.Ваврышчук, Т.Говорек¹, А.И.Иванов², М.Левандовски,
П.Мазурек¹, В.Н.Рыбаков, И.Ф.Учеваткин², И.А.Ютландов

Изучена аннигиляция позитронов в образцах высокотемпературной сверхпроводящей керамики $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$. Показано, что изменение характера аннигиляции при переходе в сверхпроводящее состояние относительно невелико. Изменения времен жизни позитронов τ_1 и τ_2 , а также интенсивности компоненты J_2 и доплеровского уширения аннигиляционной γ -линии (параметра S) позволяют предполагать, что переход в сверхпроводящее состояние сопровождается некоторым уменьшением электронной плотности и уменьшением числа или увеличением размеров дефектов кристаллической решетки.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных проблем ОИЯИ.

Positron Annihilation in a High-Temperature Superconductor $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$

Ya. Vavryshchuk et al.

Positron annihilation as a function of temperature in high-temperature superconductors $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ has been investigated. It is shown that a change in the annihilation capacity at the transition into superconducting state is relatively small. The change of τ_1 and τ_2 positron lifetimes as well as of the intensity of the component with $\tau_2 - J_2$ and Doppler broadening S parameter allows one to assume that transition into superconducting state is accompanied with a certain decrease in electron density and with decreasing number of defects or increasing size of crystalline net.

The investigation has been performed at the Laboratory of Nuclear Problems, JINR.

¹ Институт физики Университета М.Кюри-Склодовской, Люблин.

² Всесоюзный научно-исследовательский институт метрологии им. Д.И. Менделеева, Ленинград.

ВВЕДЕНИЕ

Сверхпроводники типа La-Ba-Cu-O / 1 / в настоящее время интенсивно изучаются всеми доступными методами. Не является исключением и метод аннигиляции позитронов, особенно чувствительный к структуре вещества. Параметры, описывающие процесс аннигиляции (время жизни позитрона, ширина импульсного распределения электронов среды / 2 /), обычно существенно изменяются в точке фазового перехода. Несмотря на разочаровывающие результаты, полученные в пятидесятых годах при использовании обычных металлических сверхпроводников / 3-5 /, представляется целесообразным проследить за поведением параметров аннигиляции в области перехода (T_c) высокотемпературных сверхпроводников. В первой такой работе / 6 / использовалась техника измерения доплеровского уширения аннигиляционной γ -линии 511 кэВ на образцах La-Sr-Cu-O и Y-Ba-Cu-O . В последующих экспериментах / 7,8 / для образцов Y-Ba-Cu-O кроме доплеровского уширения измерялись также времена жизни позитронов. Неоднозначность, а подчас противоречивость результатов этих работ делает настоятельно необходимым продолжение подобных исследований.

В настоящей работе представлены результаты измерения времен жизни позитронов в образцах $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ и доплеровского уширения аннигиляционной γ -линии в интервале температур 80-130 К.

МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Измерения времен жизни позитронов проводились с помощью временного спектрометра $\gamma\gamma$ -совпадений с двумя кристаллами BaF_2 размером $\varnothing 38 \times 25$ мм. Энергетическое разрешение обоих сцинтилляторов с фотоумножителями XR2020Q на линии 1333 кэВ ^{60}Co составляло 7%. Для устранения искажений формы временного спектра при больших нагрузках в цепи отбора совпадений были включены блоки, отбрасывающие импульсы наложений. В условиях эксперимента (при выборе γ -квантов 1274 и 511 кэВ) временное разрешение спектрометра составляло $2\tau_0 = 220$ пс. Форма кривой мгновенных совпадений, полученной с ^{60}Co , соответствовала одному гауссовскому распределению вплоть до 0,001 доли полной ее высоты. Калибровка временной шкалы составляла 22,0 (1) пс/канал.

Доплеровское уширение аннигиляционной γ -линии 511 кэВ (параметр формы S) измерялось рентгеновским Ge(Li) -детектором с объемом 1 см^3 и энергетическим разрешением 1,02 кэВ на линии 512 кэВ ^{106}Ru . Энергетическая цена

канала составляла 0,080 кэВ. Нестабильность положения линии 511 кэВ от измерения к измерению не превышала одного канала.

Для температурных измерений образцы $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ помещались в вакуумный криостат ($p \approx 10^{-3}$ Торр) цилиндрической формы ($\varnothing = 18$ мм), охлаждаемый жидким азотом. Изменение температуры осуществлялось путем подогрева промежуточного полого медного цилиндра током, протекающим через намотанную на него бифилярным способом обмотку. В этот цилиндр вставлялся малый медный цилиндр, в прорези которого плотно размещался образец. Температура образца измерялась относительно температуры жидкого азота с помощью медь-константановой термопары. Напряжение, снимаемое с термопары, служило одновременно для стабилизации температуры (коррекции тока обмотки). Разработанная нами система стабилизации позволяла поддерживать постоянную температуру образца с точностью лучше 0,3 К в интервале 79-200 К.

Источник позитронов активностью ~ 30 мкК был приготовлен из водного раствора $^{22}NaCl$ путем испарения на никелевой фольге толщиной 1,2 мкм, покрытой слоем золота толщиной 50 Å. Площадь источника составляла ~ 8 мм².

Обработка временных спектров проводилась по программе POSITRONFIT¹⁹ на микроЭВМ типа IBM XT, входящей в состав измерительной аппаратуры. Поправка на аннигиляцию позитронов в никелевой подложке ($\sim 8\%$) не учитывалась. При этом подгонным параметром считалось также временное разрешение спектрометра $2\tau_0$. Значения $2\tau_0$, получаемые из подгонки, находились в пределах 222-225 пс. В каждом временном спектре зарегистрировано $\geq 1,2 \cdot 10^6$ совпадений.

Для наблюдения изменений формы аннигиляционной γ -линии с температурой образца вычислялся параметр S: отношение числа отсчетов в 14 каналах центральной части пика 511 кэВ к сумме отсчетов в двух окнах (по 18 каналов каждое), расположенных на его левом и правом склонах.

ОБРАЗЦЫ $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$

Исследуемые образцы были приготовлены путем спекания смеси окислов Y_2O_3 , BaO_2 , CuO в Лаборатории ядерных проблем ОИЯИ (образец № 1) и Y_2O_3 , $BaCO_3$, CuO — в Институте физики Университета М.Кюри-Склодовской в Люблине (образцы № 2 и № 3). Температура спекания $950^\circ C$, температуры сверхпроводящего перехода T_c — 96, 86 и 95 К соответственно. Характер зависимости $R(T)$ позволял предположить, что все три образца не были однофазными.

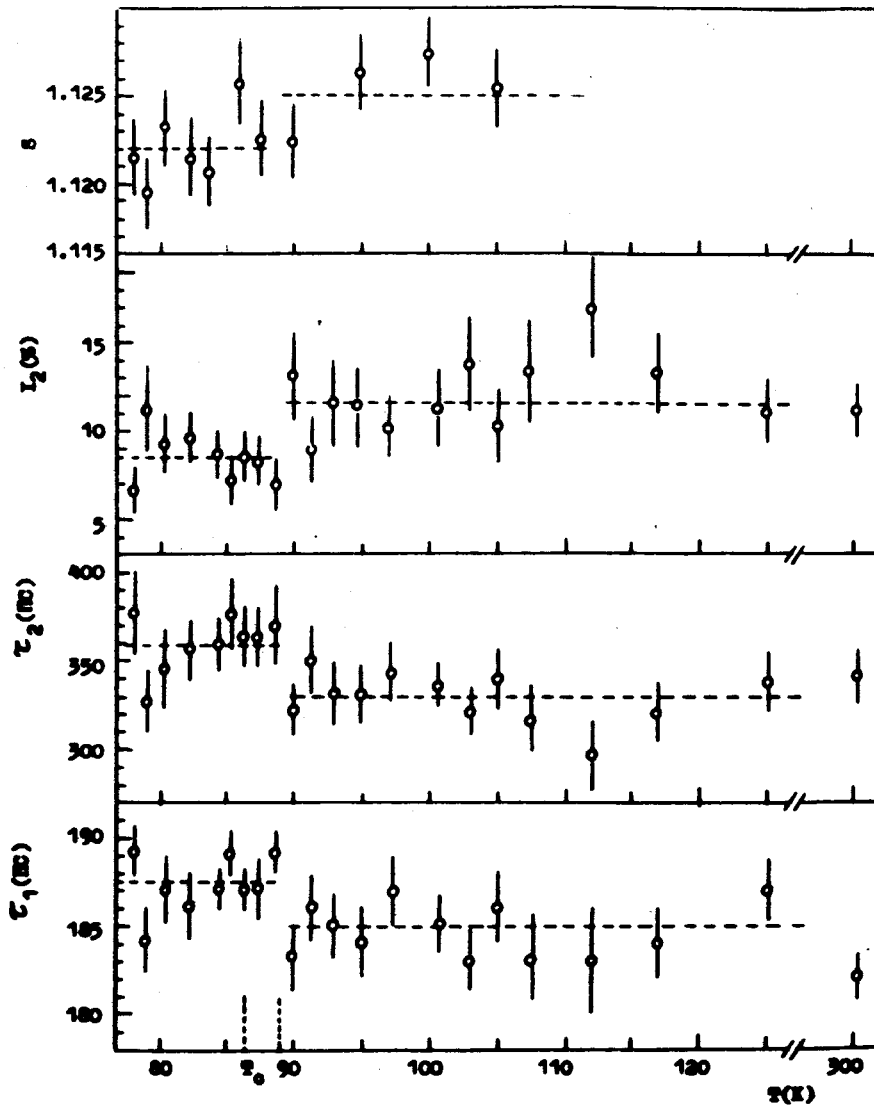
РЕЗУЛЬТАТЫ ИЗМЕРЕНИЙ И ОБСУЖДЕНИЕ

В спектрах времен жизни позитронов в исследуемых образцах можно выделить три компоненты с $\tau_1 \approx 180$ пс, $\tau_2 \approx 350$ пс и $\tau_3 \approx 1,9$ нс. При этом интенсивность самой долгоживущей компоненты J_3 не превышала 0,55%, а J_2 изменялась от образца к образцу в пределах от 8 до 17%. Попытки выделения только двух компонент приводили к существенному ухудшению приведенного χ^2 (с $\sim 1,1$ при трех компонентах до $\sim 1,3$ при двух) и значениям $\tau_1 = 190$ пс и $\tau_2 = 480$ пс. Так как в исследуемом диапазоне температур не было обнаружено изменений времени τ_3 , окончательная обработка всех временных спектров проводилась при фиксированном усредненном значении этого параметра.

Проведенные нами измерения в диапазоне температур 80-130 К и при комнатной температуре показали, что изменение характера аннигиляции позитронов в наших образцах при их переходе в сверхпроводящее состояние относительно небольшое. Наиболее четко оно проявилось на образце № 2 (см. рисунок). Видно, что переход в сверхпроводящее состояние приводит к увеличению τ_1 и τ_2 , уменьшению интенсивности J_2 и параметра S .

Если считать, что компонента с $\tau_1 \approx 180$ пс связана со свободной аннигиляцией позитронов в междуузельном пространстве, наблюдаемое небольшое увеличение τ_1 при переходе образца в сверхпроводящее состояние может свидетельствовать о некоторой перестройке электронной структуры, приводящей к уменьшению электронной плотности. Компоненту с временем $\tau_2 \approx 350$ пс, типичным для аннигиляции позитронов, захваченных дефектами кристаллической решетки, следует, по всей видимости, связать с кислородными вакансиями. Уменьшение интенсивности J_2 и параметра S при $T < T_c$ позволяет предположить, что количество этих дефектов в сверхпроводящем состоянии уменьшается. Увеличение τ_2 можно связать с уменьшением электронной плотности или увеличением размеров дефектов. Слабая компонента с временем $\tau_3 \approx 1,9$ нс объясняется, по всей вероятности, образованием позитрония в пористой структуре металлооксидной керамики.

В работе^{/7/} утверждается, что время жизни τ_1 (139 ± 7 пс) не зависит от температуры образца; время жизни τ_2 (~ 210 пс) при переходе образца в сверхпроводящее состояние заметно уменьшается, а J_2 ($\sim 30\%$) увеличивается. При этом странно, что параметр S в сверхпроводящем состоянии уменьшается, как и в наших экспериментах. Возможной причиной расхождения результатов работы^{/7/} с нашими является различие состава образцов.



Температурная зависимость параметров τ_1 , τ_2 , J_2 и S . Пунктирной линией обозначены средние значения параметров для областей выше и ниже T_c .

В экспериментах^{/6/} исследовалось только доплеровское уширение аннигиляционной линии. Результаты по образцу Y-Ba-Cu-O не противоречат нашим данным.

В работе^{/8/} наблюдалось anomальное поведение величин τ_1 , τ_2 и J_2 в районе температуры T_c . Времена τ_1 и τ_2 показывают резкий максимум с полушириной ~ 1 К, а J_2 — глубокий минимум. При этом значения τ_1 и τ_2 выше и ниже T_c согласуются с нашими результатами в случае разложения временного

спектра на 2 компоненты. Кроме того, в работе^{/8/} наблюдалось необычное увеличение времени термализации позитрона t_0 (на ~ 130 пс) при температуре T_c . Такое аномальное поведение аннигиляции не обнаружено ни в нашей работе, ни в работе^{/7/}. Тем не менее нами был поставлен дополнительный эксперимент, имеющий целью детально проследить за изменением t_0 в зависимости от температуры образца № 2. Для этого регистрировалось число совпадений в окне, установленном на левом склоне временной кривой, при непрерывном изменении температуры образца со скоростью 1° в 4 минуты. Полученный результат позволяет утверждать, что с точностью 20 пс t_0 в районе T_c остается постоянным.

Сравнение изложенных результатов позволяет сказать, что: а) переход образцов типа Y-Ba-Cu-O в сверхпроводящее состояние отражается на характере процесса аннигиляции позитронов; б) по всей вероятности, процесс аннигиляции позитронов чрезвычайно чувствителен к деталям внутренней структуры образцов и технологии их приготовления. Это подтверждается противоположной температурной зависимостью τ_2 , J_2 в данной работе и в^{/7/}, а также их различными абсолютными значениями.

Таким образом, есть надежда, что систематическое изучение аннигиляции позитронов в металлооксидных керамиках может помочь понять некоторые особенности механизма высокотемпературной сверхпроводимости и совершенствовать технологию изготовления сверхпроводников.

В заключение авторы выражают благодарность профессорам К.Я.Громову и Ц.Вылову за постоянный интерес и стимулирование настоящей работы, Э.Скожинскому, А.К.Качалкину и А.И.Акатову за техническую помощь в постановке эксперимента.

Авторы также благодарят руководителя программы СРВР 01.09. ПНР за содействие в выполнении настоящего исследования.

ЛИТЕРАТУРА

1. Bednorz J.C., Müller K.A. – *Z.Phys.B*, 1986, v.64, p.189.
2. *Positrons in solids*, Ed. P.Hautojärve. Springer-Verlag, 1979, Chapter 1.
3. Stump R., Tally H.E. – *Phys. Rev.*, 1954, v.96, p.904.
4. Green B., Modansky L. – *Phys.Rev.*, 1956, v.102, p.1014.
5. Shafroth S.M., Marcus J.A. – *Phys.Rev.*, 1956, v.103, p.585.
6. Ishibashi S. et al. – *Jap. J.Appl. Phys.*, 1987, v.26, p.L688.
7. Jean Y.C. et al. – *Phys. Rev. B*, 1987, v.36, p.3994.
8. Teng M.-K. et al. – *Phys. Lett. A*, 1987, v.124, p.363.
9. Kirkegaard P. et al. – *Comput.Phys. Commun.*, 1981, v.23, p.307.

Рукопись поступила 28 декабря 1987 года.