

УДК 74.72

©1994

**ОПТИЧЕСКИЕ ИССЛЕДОВАНИЯ
СПИНОВЫХ ВОЗБУЖДЕНИЙ
В РАДИАЦИОННО-РАЗУПОРЯДОЧЕННЫХ
КРИСТАЛЛАХ $YBa_2Cu_3O_{6+x}$**

Ю.С.Поносов, Л.В.Номерованная, А.А.Махнев, Г.А.Болотин

Измерены оптические спектры ($\hbar\omega = 0.5 \div 5.0$ eV) и спектры комбинационного рассеяния света монокристаллов $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ ($x = 0.2$ и 0.9), разупорядоченных облучением быстрыми нейтронами с флюенсом 10^{19} см⁻². Получены свидетельства наличия спиновых флуктуаций в составах, обладающих сверхпроводимостью.

Проблема существования магнитных корреляций в ВТСП по-прежнему привлекает большое внимание в связи с возможным вкладом спиновых возбуждений в механизм спаривания. В то время как интерпретация данных по нейтронному рассеянию [1] и ядерному магнитному резонансу [2] в $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ предполагает наличие спиновых флуктуаций в металлических фазах, в спектре комбинационного рассеяния света (КРС) таких кристаллов отсутствует полоса двухмагнного рассеяния в районе 2600 см⁻¹, характерная для антиферромагнитных составов. Предложено [3], что причиной отсутствия полосы в металлической фазе может быть либо значительное уменьшение числа промежуточных электронных состояний, дающих вклад в сечение резонансного двухмагнного рассеяния в области $2.5-2.7$ eV, либо усиление затухания магнитных возбуждений.

В данной работе мы сообщаем о результатах эллипсометрических измерений и спектрах КРС $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ кристаллов как антиферромагнитных ($x \simeq 0.2$), так и сверхпроводящих ($x \simeq 0.9$) составов до и после облучения быстрыми нейтронами. Целью исследования было выявление корреляций между изменениями в оптических спектрах (и, следовательно, в структуре электронных состояний), введенных облучением, и эволюцией двухмагнного рассеяния в спектрах КРС, а также наблюдение взаимодействия магнитных возбуждений с носителями.

Как известно, облучение быстрыми нейтронами дает уникальную возможность влиять на свойства электронной системы ВТСП без изменения химического состава и с малыми изменениями кристаллической структуры. При этом электронная система испытывает радикальную перестройку, включая переход металл-полупроводник и существенную деградацию температуры перехода в сверхпроводящее состояние T_c [4].

Исходные кристаллы $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$, выращенные в тиглях из ZrO_2 , имели линейные размеры 1–3 мм и толщину 50 μm . Кристаллы с $x = 0.9$ показывали сверхпроводящие переходы при 92 К с $\Delta T_c \approx 1$ К. Антиферромагнитные кристаллы с $T_N = 400$ К получали вакуумным нагревом сверхпроводящих образцов при 900 К с последующей закалкой [5]. После проведения оптических измерений образцы с $X = 0.2$ и 0.9 были подвергнуты при 80 К радиационному разупорядочению быстрыми нейтронами с флюенсом 10^{19}cm^{-2} .

Показатели преломления n и поглощения k измерялись от зеркальных ab -поверхностей при комнатной температуре на автоматическом эллипсометре, собранном на базе КСВУ-12, в области спектра 0.5–5.0 eV. Спектры КРС при 100 и 300 К получены с помощью аппаратуры, описанной в [6]. Измерение спектров КРС исходных и облученных образцов показало отсутствие заметных смещений частоты колебаний атомов вершинного кислорода ($\sim 500 \text{cm}^{-1}$), что свидетельствует о неизменности содержания кислорода в процессе облучения и последующих измерений.

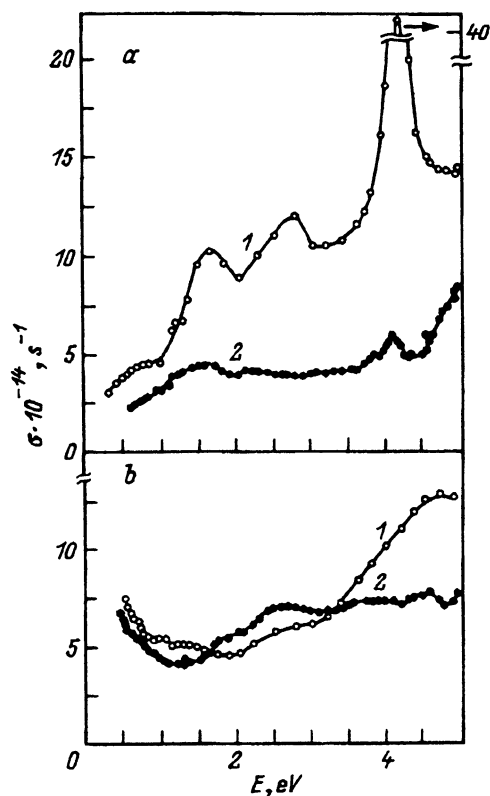


Рис. 1. Оптическая проводимость $\sigma(\omega)$ $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.2}$ (а) и $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.9}$ (б) исходных (1) и разупорядоченных флюенсом $\Phi = 1 \cdot 10^{19} \text{cm}^{-2}$ (2) монокристаллов.

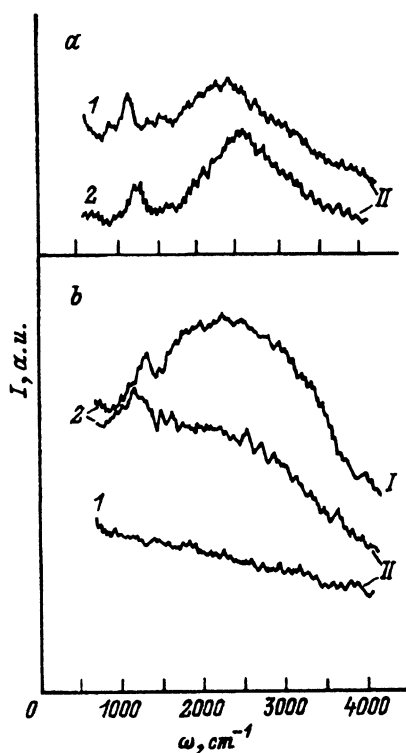


Рис. 2. Спектры КРС $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.2}$ (а) и $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.9}$ (б) монокристаллов исходных (1) и разупорядоченных флюенсом $\Phi = 1 \cdot 10^{19} \text{cm}^{-2}$ (2) при температурах 100 (I) и 300 К (II).

Длина волны возбуждающего света 4880 Å.

На рис. 1, *a, b* представлены кривые оптической проводимости $\sigma(\omega) = nk\omega/2\pi$ исходных и разупорядоченных образцов. Спектральный профиль $\sigma(\omega)$ необлученных кристаллов повторяет как наши (см. [7] и ссылки там), так и литературные данные. В спектре $\sigma(\omega)$ кислородно-дефицитного образца (рис. 1, *a*) наблюдаются три структуры. Подъем поглощения при 1.7 eV соответствует фундаментальному краю, формируемому переходами с переносом заряда между Cu(2) *d*-состояниями и O(2.3) *p*-состояниями в CuO₂ плоскостях. Полоса поглощения с максимумом при 2.8 eV связана с этими же переходами.

Интенсивный пик при 4.1 eV, как показано зонными расчетами [8], обусловлен в основном переходами между *d*- и *p*-состояниями цепочечной меди Cu(1), образующими зоны с высокой степенью параллельности. После облучения образца с $x = 0.2$ структуры в спектре $\sigma(\omega)$ размываются и существенно уменьшаются по интенсивности. Ситуация для полос поглощения с максимумами при 1.7 и 2.8 eV подобна влиянию температуры, увеличение которой выше T_N приводит к аналогичным эффектам [9]. Особенно резкое уменьшение интенсивности пика при энергии 4.1 eV можно связать с нарушением параллельности зон при радиационном разупорядочении.

Рис. 2, *a* показывает эволюцию спектра двухмагнного рассеяния в кристалле с $x = 0.2$. Облучение весьма незначительно влияет на интенсивность, энергию и ширину двухмагнного пика. Это позволяет сделать вывод о слабом влиянии облучения на спиновую динамику в CuO₂-плоскостях по крайней мере на взаимодействия ближнего порядка, зондируемые КРС. Можно утверждать и о сохранении структуры электронных состояний, являющихся промежуточными при двухмагнном рассеянии.

Радикальное изменение и в оптике, и в КРС обнаружено при облучении сверхпроводящего кристалла с $x = 0.9$. Характер поведения $\sigma(\omega)$ облученного YBa₂Cu₃O_{6+x} (рис. 1, *b*) резко отличается от случая полупроводникового образца. Во-первых, имеет место перераспределение интенсивности поглощения с ее заметным увеличением в области 1.6–3.2 eV. Во-вторых, спектр облученного образца имеет относительно слабые, но те же особенности при 1.7 и 2.8 eV, что и спектр необлученного образца антиферромагнитного состава. В КРС спектре этого кристалла (рис. 2, *b*) появляется широкая полоса в области $\sim 2500 \text{ cm}^{-1}$ преимущественно B_{1g} -симметрии, интенсивность которой значительно возрастает при понижении температуры. Увеличение в полтора раза ширины двухмагнного пика по сравнению со случаем полупроводникового состава свидетельствует о вкладах дополнительных взаимодействий, связанных, очевидно, с присутствием носителей.

В облученных кристаллах носители локализованы, как показано, при изучении транспортных свойств [4]. При делокализации носителей следует ожидать еще большего затухания и, естественно, уменьшения интенсивности двухмагнного рассеяния вплоть до его исчезновения. Действительно, мы не наблюдали этого рассеяния в облученных меньшими дозами сверхпроводящих кристаллах. Двухмагнное рассеяние также исчезало после отжига образцов при 200 °C, в течение нескольких минут приводящего к восстановлению T_c на уровне 15 К.

Представленные данные несколько противоречивы в том смысле, что для кристалла с $x = 0.9$ появление двухмагнного пика после облучения коррелирует с появлением полос в оптическом поглощении,

характерных для антиферромагнитного кристалла, но нет корреляции между интенсивностью двухмагнного рассеяния и интенсивностью этих полос. Можно предположить, что увеличение длины магнитных корреляций при уменьшении области локализации носителей и возрастании кулоновского отталкивания в этих областях с увеличением дозы облучения приводят к формированию элементов зонной структуры, характерной для магнитного состояния с установлением ближнего порядка. Это в свою очередь дает увеличение числа промежуточных состояний, обеспечивающих резонанс в области 2.6 eV для облученного кристалла с $x = 0.9$. В сверхпроводящих кристаллах размер областей магнитного порядка может быть недостаточным для формирования резонансных промежуточных состояний и двухмагнное рассеяние отсутствует. Как только структура резонансных состояний при 2.6–2.7 eV сформирована либо по мере локализации носителей, либо по мере уменьшения их количества при понижении x , наблюдение двухмагнного рассеяния снова становится возможным.

Авторы благодарны Н.М.Чеботаеву за предоставленные монокристаллы и А.Е.Карькину за облучение и исследование транспортных свойств.

Список литературы

- [1] Rossat-Mignod J., Regnault L.P., Vettier C. et al. // *Physica B*. 1990. V. 163. N 13. P. 4–8.
- [2] Imai T., Shimizu T., Yasuoka H. et al. // *J. Phys. Soc. Jpn.* 1988. V. 57. N 5. P. 1771–1779.
- [3] Cooper S.L., Reznik D., Kotz A. et al. // *Phys. Rev. B*. 1993. V. 47. N 13. P. 8233–8248.
- [4] Davydov S.A., Goshchitshkii B.N., Karkin A.E. et al. // *Physica C*. 1989. V. 161. N 4. P. 549–554.
- [5] Самохвалов А.А., Чеботаев Н.М., Костылев В.А. и др. // *ФММ*. 1989. Т. 67. В. 4. С. 741–746.
- [6] Ponomov Yu.S., Bolotin G.A., Chebotaev N.M. // *Phys. Lett. A*. 1990. V. 146. N 9. P. 551–555.
- [7] Махнев А.А., Номерованная Л.В., Кириллова М.М. и др. // *СФХТ*. 1991. Т. 4. № 4. С. 700–707.
- [8] Kircher J., Alouani M., Garriga M. et al. // *Phys. Rev. B*. 1989. V. 40. N 10. P. 7368–7371.
- [9] Humlíček J., Garriga M., Gardona M. // *Solid State Commun.* 1988. V. 67. N 6. P. 589–593.

Институт физики металлов УрО РАН
Екатеринбург

Поступило в Редакцию
19 апреля 1994 г.