Письма в ЖЭТФ, том 109, вып. 8, с. 535 – 539

Тонкие эффекты температурного хода теплопроводности Y-123 в "слабом" псевдощелевом состоянии

В. И. Соколенко[1]), *В. А. Фролов*

Национальный Научный Центр "Харьковский Физико-технический институт" НАН Украины, 61108 Харьков, Украина

Поступила в редакцию 19 января 2019 г.
После переработки 19 февраля 2019 г.
Принята к публикации 5 марта 2019 г.

Впервые обнаружены квазирегулярные аномалии теплопроводности (k) дырочного высокотемпературного сверхпроводника $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ в псевдощелевом состоянии, а также "гигантская" аномалия вблизи T_C. Определены температурные аномалии плотности (n^h) носителей заряда $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ и установлена их корреляция с k-аномалиями. Показано, что $n^h(k)$-аномалии псевдощелевого состояния обусловлены поэтапным спариванием носителей заряда в положительно заряженные бозоны. Установлена корреляция $n^h(k)$-аномалий вблизи T_C с конверсионным топологическим превращением части поверхности Ферми, с одной стороны, и структурной аномалией – с другой.

DOI: 10.1134/S0370274X19080083

Введение. В интервале температур $\sim 1\ldots300$ K теплопроводность (k) дырочных (h) медно-оксидных высокотемпературных сверхпроводников (ВТСП) определяется в основном фононами: $k = k^{ph} + k^{e}$, где $k^{ph} \sim 0.9k$ и k^{e} – фононная и электронная компоненты [1–4]. Видимо, поэтому, особенности температурного поведения коэффициента k купратов Y-123 в интервале $\sim 90\ldots250$ K [3, 4] связывались ранее либо со структурным фазовым переходом II-рода ($\sim 160{-}170$ K) [5, 6], либо с образованием несоизмеримой кристаллической структуры ($\sim 100{-}110$ K) [7, 6], т.е. в обоих случаях с решеточными изменениями. Результаты ряда экспериментальных работ ставят, однако, под сомнение исключительность этой точки зрения, допуская в качестве возможной причины термических аномалий перестройку электронной структуры плоскостей CuO_2 в псевдощелевом состоянии (ПЩС) [8–17]. Так, в купратах Y-123, находящихся в ПЩС, наблюдалась [18] неидентифицированная сверхструктура орбитальных магнитных моментов, направленных под углом $45° \pm 20°$ к плоскостям CuO_2, интенсивность которых немонотонно изменялась с температурой. Не исключено, что такое поведение магнитной сверхрешетки могло обуславливать возникновение особенностей в теплопереносе. Прямое доказательство влияния ПЩС на теплопроводность получено в [19], где наблюдены квазирегулярные аномалии зависимости $k(T)$ другого дырочного ВТСП-купрата, Bi-2223. Было к тому же показано, что эти аномалии связаны не с изменениями параметров кристаллической решетки (ПКР), а с поэтапным спариванием в реальном пространстве (*real-space pairing*) дырочных носителей заряда плоскостей CuO_2 в положительно заряженные бозоны (локальные пары) [8, 9].

Считается, что вопрос о природе ПЩС настолько важен, что его решение является ключом для понимания микроскопического механизма сверхпроводящего спаривания. Тем не менее, несмотря на большое число работ, посвященных проблеме ПЩС (см., например, [20]), до сих пор нет консенсуса в том, какое из конкурирующих описаний соответствует действительности: то ли ПЩС обусловлено фазовыми флуктуациями сверхпроводящего параметра порядка, т.е. флуктуационными куперовскими парами (КП), то ли ПЩС – антагонист сверхпроводимости.

Учитывая, что теплопроводность ВТСП в ПЩС содержит информацию о взаимодействии квазичастиц, в настоящей работе стояла задача установления общности явления квазирегулярности аномалий теплопроводности купратных ВТСП в ПЩС. Исследовался поликристаллический $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ ($\sim 1.5 \times 3.6 \times 21$ мм^3, плотность ~ 6.4 г/см^3, температура сверхпроводящего перехода $T_C \approx 92$ K), изготовленный аналогично образцу, исследованному в [3], с которым сравниваются теплофизические результаты.

Эксперимент и анализ результатов. Как и в [19], мы ограничились определением значений температур и знака возможных k-аномалий. Это позволило отказаться от сравнительно сложного классического метода измерения k [21], базирующегося

[1]) e-mail: vsokol@kipt.kharkov.ua

на регистрации разности температур $\delta T = T_1 - T_2$ между концами идеально теплоизолированного образца, устанавливающейся вследствие подведения к одному из них контролируемого теплового потока Q: $\delta T \propto \mathrm{Q}/k$. В более простом в экспериментальном отношении случае, когда термическая изоляция образца отсутствует, для произвольной T_j справедливо выражение $\delta T_\mathrm{j} \propto (1/k) \times \mathrm{Q_j} \times \Xi_\mathrm{j}$, в котором коэффициент Ξ_j учитывает особенности теплосъема с поверхности образца при $T = T_\mathrm{j}$. Если, далее, рассматривать T_j как аргумент, изменяющийся в интервале $T \ldots T_0$, тогда

$$[\delta T(T_\mathrm{j})/\delta T_0] = [k_0/k(T_\mathrm{j})] \times [\mathrm{Q}(T_\mathrm{j})/\mathrm{Q}_0] \times [\Xi(T_\mathrm{j})/\Xi_0]. \quad (1)$$

Из (1) следует, что если в интервале $T \ldots T_0$ функции $\Xi(T_\mathrm{j})$ и $\mathrm{Q}(T_\mathrm{j})$ монотонны, возможные аномалии разности δT_j следует отнести к аномалиям $k(T)$.

Изложенная "идеология" обнаружения предполагаемых k-аномалий экспериментально реализована следующим образом. Горизонтально ориентированный образец, к одному из концов которого подводился тепловой поток Q от электронагревателя (H), питаемого постоянным током строго неизменной величины, рис. 1a, помещался в термическое поле столба паров N_2 в сосуде Дьюара с небольшим количеством жидкого хладагента. В каждом из статических j-положений при пошаговом ($\Delta T \sim 3 \div 5$ K) приближении к поверхности хладагента образец термализовался ≈ 5 мин, после чего проводились измерения T_j при $\mathrm{Q} = 0$ и δT_j после подведения Q. Точность измерений T_j с помощью термопары Cu-Const составляла $\sim 5 \cdot 10^{-1}$ K. Значение δT_j измерялось с чувствительностью $\sim 10^{-2}$ K дифференциальной термопарой, спаи которой были разнесены на ~ 16 мм. Нестабильности T_j и δT_j в термализованных состояниях не превышали 10^{-2} K. В [19] показано, что в условиях подобного эксперимента зависимости $\Xi(T)$ и $\mathrm{Q}(T)$ монотонны.

Рисунок 1a демонстрирует наличие у зависимости $[\delta T_0/\delta T(T_\mathrm{j})] \propto [k(T_\mathrm{j})/k_0]$ квазирегулярных аномалий вдали T_C, начальные температуры которых, T_an, в режиме охлаждения составляют ~ 233.5, ~ 205.5, ~ 178.5, ~ 148 K (# 1–4), а также "гигантскую" аномалию в интервале $\sim 99 \ldots 96$ K (# 5). Гладкая кривая, проведенная через локальные максимумы # 1–5, выявляет знак эффекта – во всех аномалиях k уменьшается, что указывает на открытие дополнительных каналов рассеяния носителей тепла. Нормировка данных рис. 1a на полученные классической методикой данные измерений k на образце, подобном нашему [3], (рис. 1b), позволила оценить реальную величину эффекта: ~ 0.025 Вт/м $\cdot$ K (~ 1 %) в интервале $\sim 230 \ldots 150$ K и ~ 0.6 Вт/м $\cdot$ K (~ 15 %) в интервале $\sim 99 \ldots 93$ K.

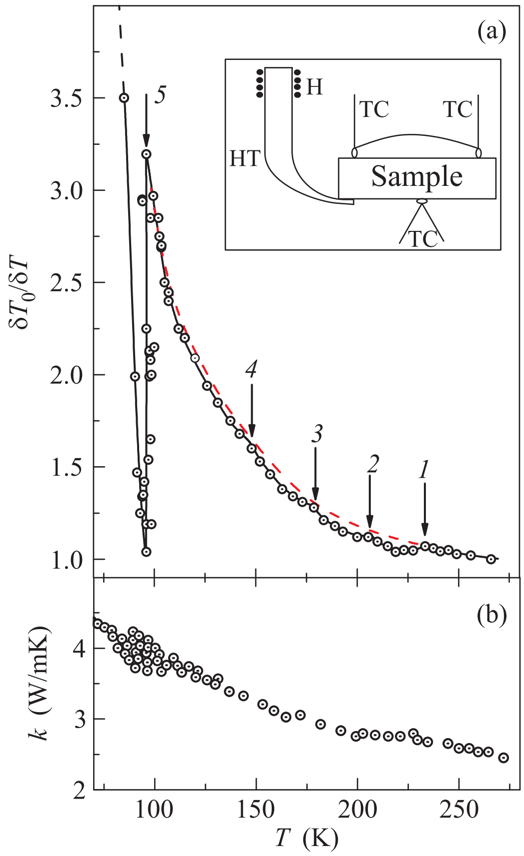

Рис. 1. (Цветной онлайн) (a) – Сплошная кривая – экспериментальная зависимость $[\delta T_0/\delta T(T_\mathrm{j})] \propto [k(T_\mathrm{j})/k_0]$ для образца $YBa_2Cu_3O_{7-x}$, штриховая кривая (красная) – та же зависимость в предположении отсутствия аномалий ($T_0 = 266$ K); на вставке: H – электрический нагреватель; HT – теплопровод; TC – термопары. (b) – Зависимость $k(T)$ из [3]

Поскольку 3 из 4-х значений T_an соответствуют участкам постоянства ПКР b и c, рис. 1a и рис. 2b, для выяснения физической природы термофизических аномалий имело смысл установить температурные аномалии такой характеристики электронной подсистемы, как плотность носителей заряда, $n^\mathrm{h}(T)$. Для этого в настоящей работе, подобно [22–24], проанализирована температурная зависимость сопротивления r_if интерфейса, сформировавшегося в приповерхностном слое изучаемого ВТСП в результате контакта с нормальным металлом Me. Такой интерфейс является полупроводником [25, 26], в силу чего r_if имеет бóльшую температурную чувствительность, чем омическое сопротивление массива, R_bulk. Не менее важно и то, что зависимость $r_\mathrm{if}(T)$

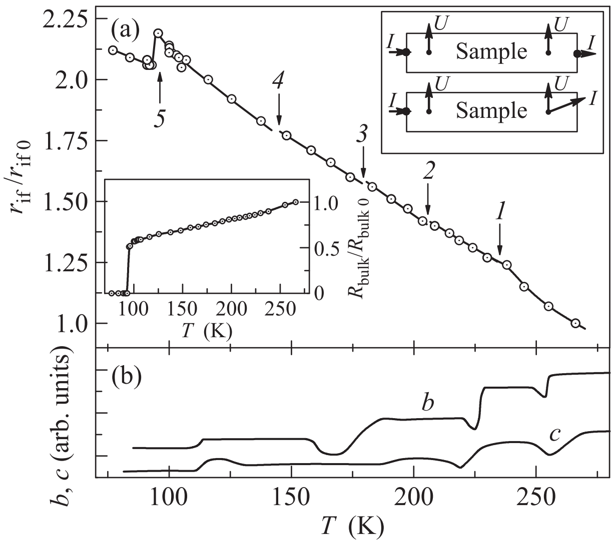

Рис. 2. (a) – Температурная зависимость нормированного сопротивления $r_{\rm if}(T)/r_{\rm if0}$ интерфейса в контакте $\rm YBa_2Cu_3O_{7-x}$/In (стрелками показаны аномалии); верхняя вставка – расположение токовых и потенциальных подводов при 4-х и 3-х точечных схемах измерений; нижняя вставка – зависимость $R_{\rm bulk}/R_{\rm bulk0}$; $T_0 = 266$ K, $R_{\rm bulk0} \approx 35\cdot10^{-2}$ Ом, $r_{\rm if0} \approx 73\cdot10^{-2}$ Ом. (b) – Температурное поведение ПКР b и c [5]

имеет аномалии, коррелирующие со всеми $n^{\rm h}(T)$-аномалиями, как по температуре, так и по знаку: $\mathrm{sgn}(\delta r_{\rm if}) = \mathrm{sgn}(\delta n^{\rm h})$ (физическая модель явления, экспериментальные подробности в [22–24]).

На рисунке 2a представлены зависимости $R_{\rm bulk}(T)$, ($T_{\rm C} \approx 92$ K), и $r_{\rm if}(T)$, нормированные на соответствующие значения при $T_0 = 266$ K, Me = In. Первая зависимость (нижняя вставка) измерена по 4-х точечной схеме (верхняя часть правой вставки в рис. 2a), вторая представляет собой разность между $R_{\rm bulk}(T)$ и измеренной по 3-х точечной схеме (нижняя часть правой вставки в рис. 2a) суммой $R_\Sigma(T) = R_{\rm bulk}(T) + r_{\rm if}(T)$. Обращаем внимание на линейность зависимости $R_{\rm bulk}(T)$ в интервале $\sim 250\ldots110$ K, что является необходимым атрибутом маргинальности ферми-жидкости, иначе говоря, "слабости" ПЩС [11].

Можно видеть, рис. 2a, что кривая $r_{\rm if}(T)/r_{\rm if0}$ имеет четыре аномалии вдали $T_{\rm C}$ (# 1–4), температуры которых совпадают с $T_{\rm an}$ зависимости $\delta T_0/\delta T$, рис. 1a. Имеется также аномалия # 5, коррелирующая с "гигантской" k-аномалией. Из графика зависимости $r_{\rm if}(T)/r_{\rm if0}$ можно, кроме того, видеть, что при всех $T_{\rm an}$ выполняется соотношение $\mathrm{sgn}(\delta r_{\rm if}) = \mathrm{minus}$ (при понижении T), что, согласно [24], соответствует $\mathrm{sgn}(\delta n^{\rm h}) = \mathrm{minus}$. Иначе говоря, в процессе понижения T плотность носителей аномально уменьшается по достижению каждой из $T_{\rm an}$. Наличие электронных аномалий указанного знака, с одной стороны, подтверждает нахождение образца в ПЩС, а с другой – позволяет выстроить логическую цепочку в отношении поведения носителей заряда. В ее начале – то обстоятельство, что во всех резистивных аномалиях ПЩС объем элементарной ячейки, $\mathrm{V}_0 = a\times b\times c$, во всяком случае, не возрастает, рис. 2b. Определяя плотность носителей заряда соотношением $n^{\rm h} \equiv \mathrm{N^h}/\mathrm{V}_0$, где $\mathrm{N^h}$ – число дырочных носителей с зарядом "+e" в объеме V_0, видим, что выполняющиеся в аномалиях (при понижении T) условия $\mathrm{sgn}(\delta n^{\rm h}) = \mathrm{sgn}(\delta r_{\rm if}) = \mathrm{minus}$ и $d\mathrm{V}_0/dT \le 0$ совместимы в единственном случае, а именно, при уменьшении $\mathrm{N^h}$. Рассматривая возможные сценарии поведения носителей, приходим к выводу, что уменьшение $\mathrm{N^h}$ может быть реализовано лишь одним из следующих механизмов: 1 – *локализация части носителей в результате перехода в связанные состояния*; 2 – *конверсия некоторого числа носителей в электроны*; 3 – *объединение части носителей в положительно заряженные кластеры*. При этом ввиду квазидвумерности купратных ВТСП вдали $T_{\rm C}$, речь идет о дырочных носителях плоскостей $\rm CuO_2$ [19].

Отсутствие на кривой $R_{\rm bulk}(T)$, рис. 2a, участков, демонстрирующих тенденцию диэлектризации, и рост коэффициента Холла купратов Y-123 с понижением T (см., например, [27]), отвергающий предположение о дырочно-электронной конверсии, является основанием для исключения вариантов 1 и 2. Отсюда следует, что механизмом уменьшения $\mathrm{N^h}$ в $r_{\rm if}$-аномалиях # 1–4 является спаривание (как наиболее вероятный процесс ассоциации) части дырочных носителей плоскостей $\rm CuO_2$ в бозоны с зарядом "+2e".

Перебрасывая отсюда "мостик" к теплофизическим аномалиям, рис. 1a, заключаем, что дополнительным каналом рассеяния теплоносителей, по-видимому, является их взаимодействие с орбитальными магнитными моментами образовавшихся бозонов, имеющих заряд "+2e". Любопытно отметить, что знак "−" теплофизических аномалий независимым образом подтверждает знак заряда бозонов, определенный в результате анализа электронных аномалий. В самом деле, хорошо известно, что k купратных ВТСП резко возрастает ниже $T_{\rm C}$ [1–4]. Следовательно, если бы в ПЩС появлялись нескоррелированные флуктуационные КП, то знак k-аномалий был бы "+", что противоречит теплофизическим данным, рис. 1a. В этой связи отметим результат теоретической работы [28], где показано, что образование в ПЩС так называемых биполяронов (заряд "+2e"), должно приводить в значительному снижению электронной компоненты теплопроводности.

Возвращаясь к аномалиям $r_{\mathrm{if}}(T)$ и $k(T)$ вблизи T_{C} (# 5) и пользуясь аргументацией [19] в отношении подобных аномалий в Bi-2223, заключаем, что "резистивная" аномалия обусловлена уменьшением диэлектризации интерфейса в контакте $\mathrm{YBa_2Cu_3O_{7-x}}$/In вследствие конверсии части дырочных носителей $\mathrm{YBa_2Cu_3O_{7-x}}$ в электроны, что является разновидностью топологического перехода Лифшица [29]. В отличие от более высокотемпературных $r_{\mathrm{if}}(T)$-аномалий, в этом случае имеет место корреляция со структурной аномалией [7]. В ходе последней значения ПКР проходят через минимумы с отклонениями параметров a и $c \sim 0.2\,\%$, $b \sim 0.1\,\%$ [7]. Это позволяет заключить, что "гигантская" k-аномалия определенно обусловлена структурной аномалией.

И, наконец, о поэтапности температурной эволюции псевдощели (Δ_{PG}) $\mathrm{YBa_2Cu_3O_{7-x}}$, что следует из наших термических и резистивных данных. Подобное поведение Δ_{PG} в ВТСП-купратах наблюдалось, кроме [19], и в других работах (например, [18, 30, 31]). Наиболее впечатляющий, с нашей точки зрения, результат получен в [18], где методом дифракции поляризованных нейтронов была впервые обнаружена упорядоченная сверхструктура орбитальных магнитных моментов, возникавшая в $\mathrm{YBa_2Cu_3O_{7-x}}$ при $T_{\mathrm{mag}} \sim 2T_{\mathrm{C}}$, и вплоть до T_{C} (где исчезала) демонстрировавшая поэтапность своей температурной эволюции. Существенной деталью, как подчеркивается в [18], являлась слабая интенсивность сверхструктурных магнитных рефлексов, указывающая на то, что в изучавшихся процессах принимала участие небольшая часть электронной подсистемы. В свете наших результатов: "тонкость" $k(n^{\mathrm{h}})$ аномалий; знак "$-$" k- и n^{h}-аномалий; совпадение температуры открытия "слабой" ПЩ в нашем образце ($T \approx 235$ К) с T_{mag} одного из образцов [18] – практически нет сомнений в том, что сверхструктура [18] обусловлена спаренными носителями плоскостей $\mathrm{CuO_2}$. Учитывая ее исчезновение при $T = T_{\mathrm{C}}$, что есть прямое указание на конкуренцию со сверхпроводящим упорядочением, приведенные аргументы позволяют сделать выбор между альтернативными точками зрения на природу ПЩ – образованием при $T \sim (2 \div 3)T_{\mathrm{C}}$ нескоррелированных флуктуационных КП и возникновением сверхструктурной магнитной фазы вследствие спаривания дырочных носителей заряда плоскостей $\mathrm{CuO_2}$ в положительно заряженные бозоны. Проведенный анализ свидетельствует в пользу справедливости второй концепции.

Выводы.

1. В интервале $\sim 250\ldots130$ К впервые обнаружены имеющие отрицательный знак квазирегулярные ($\sim 1\,\%$) аномалии теплопроводности купрата $\mathrm{YBa_2Cu_3O_{7-x}}$, свидетельствующие о температурной дифференциации канала рассеяния теплоносителей. Наиболее высокотемпературная из этих аномалий коррелирует с открытием "слабой" ПЩ на ПФ в результате спаривания в реальном пространстве части дырочных носителей заряда плоскостей $\mathrm{CuO_2}$ в положительно заряженные бозоны. Тем самым исключается гипотеза об обусловленности ПЩС флуктуационными КП. Остальные k-аномалии в указанном температурном интервале имеют ту же природу. Можно предположить, что протекающая в несколько этапов температурная эволюция ПЩС купрата $\mathrm{YBa_2Cu_3O_{7-x}}$ связана с трансформацией отдельных участков ПФ без изменения знака соответствующих носителей.

2. Обнаружена "гигантская" ($\sim 15\,\%$) k-аномалия $\mathrm{YBa_2Cu_3O_{7-x}}$ вблизи T_{C} и продемонстрирована ее корреляция с конверсионным топологическим превращением части ПФ, взаимосвязанным со структурной аномалией.

Выражаем благодарность проф. А. Л. Соловьеву за плодотворные дискуссии.

1. G. Sparn, W. Schiebeling, M. Lang, R. Held, U. Gottwik, F. Steglich, and H. Rietschel, Physica C **153–155**, 1010 (1988).
2. A. Bernasconi, E. Felder, F. Hulliger, H. R. Ott, Z. Fisk, F. Greuter, and C. Schueller, Physica C **153–155**, 1034 (1988).
3. B. A. Merisov, G. Ya. Khadzhai, A. P. Voronov, D. A. Gavrenko, and A. V. Sologubenko, ФНТ **16**(5), 647 (1990).
4. А. В. Бондаренко, О. А. Гавренко, Б. А. Мерисов, М. А. Оболенский, А. В. Сологубенко, Г. Я. Хаджай, ФНТ **17**(3), 318 (1991).
5. Y. Wang, H. Shen, J. Zhu, Z. Xu, M. Gu, Z. Niu, and Z. Zang, J. Phys. C: Sol. St. Phys. **26**, L665 (1987).
6. О. В. Александров, О. М. Иваненко, В. Р. Карасик, К. В. Киселева, К. В. Мицен, О. Е. Омельяновский, ФТТ **30**(7), 2052 (1988).
7. А. И. Головашкин, О. М. Иваненко, Г. И. Лейтус, К. В. Мицен, О. Г. Карпинский, В. Ф. Шамрай, Письма в ЖЭТФ **46**(8), 325 (1987).
8. P. W. Anderson, Science **235**, 1196 (1987).
9. P. W. Anderson, G. Baskaran, Z. Zou, and T. Hsu, Phys. Rev. Lett. **58**, 2790 (1987).
10. C. M. Varma, Phys. Rev. B **55**, 14554 (1997).
11. C. M. Varma, Phys. Rev. Lett. **83**, 3538 (1999).

12. T. Timusk and B. Statt, Rep. Prog. Phys. **62**, 61 (1999).
13. М. В. Садовский, УФН **171**, 539 (2001).
14. P. W. Anderson, J. Phys. Chem. Solids **63**, 2145 (2002).
15. M. E. Simon and C. M. Varma, Phys. Rev. Lett. **89**, 247003 (2002).
16. J. K. Srivastava, arXiv: cond-mat. 0503711 v4 (2005).
17. C. M. Varma, Phys. Rev. B **73**, 155113 (2006).
18. B. Faugué, Y. Sildis, V. Hinkov, S. Pailhés, C. T. Lin, X. Chaud, and P. Bourges, Phys. Rev. Lett. **96**, 197001 (2006).
19. В. А. Фролов, В. И. Соколенко, Письма в ЖЭТФ **107**(7), 440 (2018).
20. P. A. Lee, N. Nagaosa, and X.-G. Wen, Rev. Mod. Phys. **78**, 17 (2006).
21. М. М. Попов, *Термометрия и калориметрия*, Изд. Московского ун-та (1954).
22. В. И. Соколенко, В. А. Фролов, Письма в ЖЭТФ **105**(10), 621 (2017).
23. В. И. Соколенко, В. А. Фролов, ФНТ **39**(2), 134 (2013).
24. В. А. Фролов, ВАНТ, сер. “Вакуум, Чистые материалы, Сверхпроводники” **1**, 176 (2016).
25. О. П. Леденев, В. А. Фролов, ВАНТ, сер. “Ядерно-физические исследования (Теория и эксперимент)” **7**(7), 15 (1989).
26. Y. C. Hui, P. M. Hui, T. C. Lemberger, and J. C. Garland, J. Appl. Phys. **65**, 3968 (1989).
27. А. Л. Соловьев, ФНТ **24**, 215 (1998).
28. A. S. Alexandrov and N. F. Mott, Phys. Rev. Lett. **71**, 1075 (1993).
29. И. М. Лифшиц, ЖЭТФ **11**, 1130 (1960).
30. K. K. Gomes, A. N. Pasupathy, A. Pushp, S. Ono, Y. Ando, and A. Yazdani, Nature **447**, 569 (2007).
31. T. Kondo, A. D. Palczewski, Y. Hamaya, T. Takeuchi, J. S. Wen, G. Gu, and A. Kaminski, Phys. Rev. Lett. **111**, 157003 (2013).