

ЗАВИСИМОСТЬ T_c ОТ ПЛОТНОСТИ СОСТОЯНИЙ В $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ ПО ДАННЫМ ЭПР

*В.Е.Катаев, Ю.С.Грезнев, Е.Ф.Куковицкий, Г.Б.Тейтельбаум,
М.Бройер*¹⁾, Н.Кнауф*¹⁾*

*Казанский физико-технический институт научного центра РАН,
420029, Казань, Россия*

**Кельнский университет,
5000, Кельн 41, ФРГ*

Поступила в редакцию 17 сентября 1992 г.

На основе анализа спектров ЭПР ионов Ga^{3+} , внедренных в качестве спиновых зондов в лантан-стронциевый металлооксид с различными концентрациями Sr найдено эмпирическое соотношение между T_c и плотностью состояний носителей тока на уровне Ферми $N(E_F)$.

Известно, что экспериментальные исследования взаимосвязи критических характеристик сверхпроводника и его электронных свойств в нормальном состоянии позволяют на основе полученных эмпирических соотношений делать определенные выводы о механизме сверхпроводимости в исследуемом веществе. Особый интерес подобного рода эксперименты приобретают при исследовании высокотемпературных (ВТСП) сверхпроводников, где проблема верификации различных теоретических моделей сверхпроводимости особенно актуальна. К таким экспериментам, в частности, можно отнести определение зависимости температуры сверхпроводящего (СП) перехода T_c от концентрации носителей тока n и плотности электронных состояний на поверхности Ферми $N(E_F)$.

Зависимость T_c от n для большинства ВТСП соединений к настоящему времени определена достаточно надежно, хотя вопрос о соотношении критической температуры и плотности состояний в ряду соединений с различными концентрациями носителей остается открытым. Для ответа на него могут оказаться полезными измерения ЭПР локализованных магнитных моментов, внедренных в исследуемую систему. Зависящий от температуры вклад в ширину их линии поглощения определяется именно плотностью электронных состояний. Так проведенные в работе ¹ ЭПР исследования релаксации примесных ионов Cd^{3+} , внедренных в лантан-стронциевую керамику, позволили проследить за изменением плотности состояний $N(E_F)$ при переходе в сверхпроводящее состояние и оценить параметры СП щели.

Целью настоящей работы явилось экспериментальное исследование методом ЭПР на примесных ионах гадолиния зависимости плотности электронных состояний в нормальной фазе от концентрации носителей тока в поликристаллическом соединении $\text{La}_{2-x-y}\text{Gd}_y\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ и установление соответствия между $N(E_F)$ и температурой перехода в СП состояние T_c .

Было синтезировано (в независимых условиях) две группы образцов по общепринятой схеме твердофазного синтеза. Концентрация стронция x менялась от 0 до 0,15, концентрация гадолиния y оставалась неизменной и равной 0,01. Содержание кислорода соответствовало кислородному индексу 4. Переход

¹⁾Brener M., Knauf N.

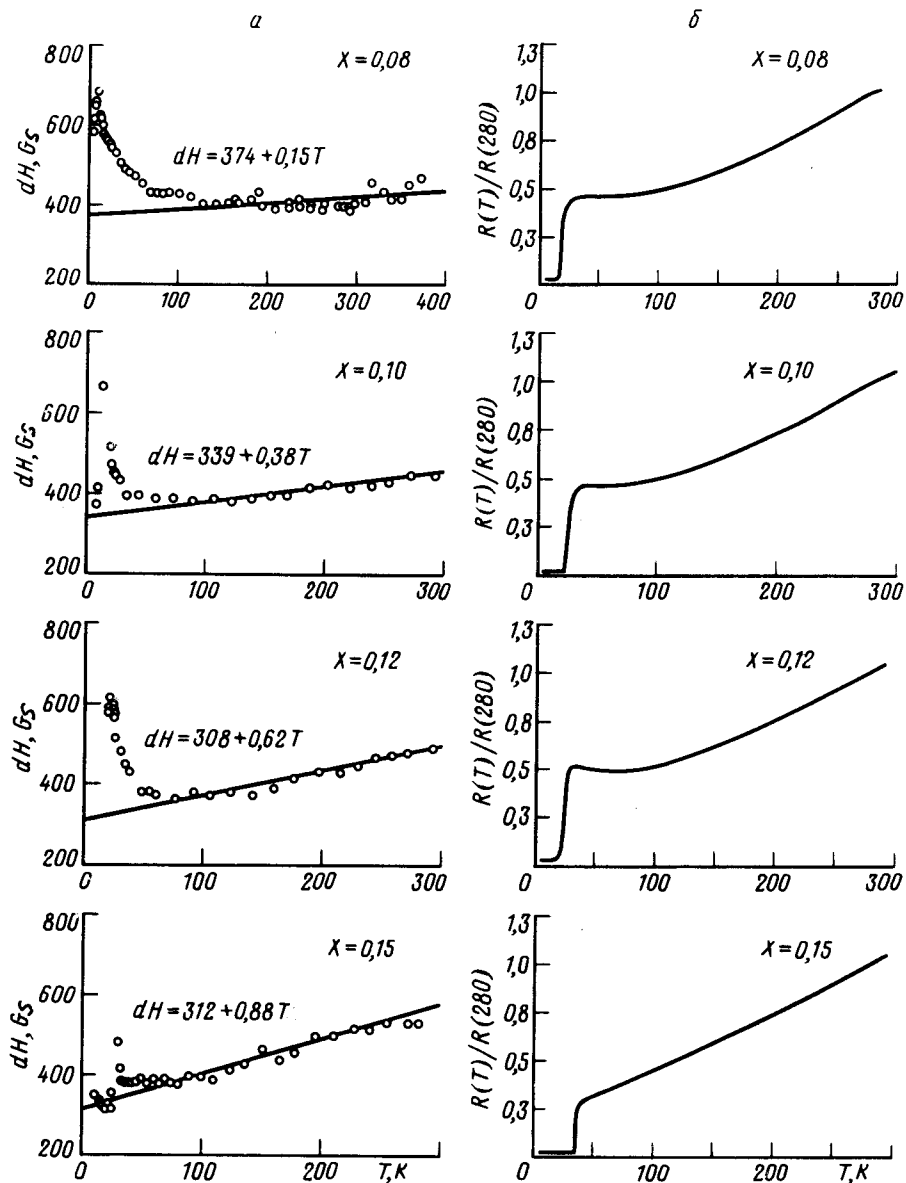


Рис.1. Температурные зависимости: *a* – ширины линии одной из компонент тонкой структуры спектра ЭПР Gd^{3+} (левая сторона рис.); *b* – электросопротивления (правая сторона рис.) образцов $La_{1-x}Gd_xSr_xCuO_4$ ($x = 0,08; 0,10; 0,12; 0,15$)

образцов в СП состояние фиксировался по измерениям электросопротивления, восприимчивости на переменном токе и микроволнового поглощения в малых магнитных полях. Для измерений ЭПР использовался тонко размолотый порошок (5–10 мкм), смешанный с парафином. Регистрация сигналов ЭПР и микроволнового поглощения осуществлялась на спектрометре Bruker-418s, работающем на частоте 9300 МГц.

Спектр ЭПР всех исследованных образцов состоял из набора частично перекрывающихся линий поглощения, расположенных в диапазоне магнитных полей 0–7 кГс. Ширины индивидуальных компонент спектра зависели как от концентрации стронция x , так и от температуры. На рис.1а представлены температурные зависимости ширины линии dH наиболее разрешенной компоненты спектра со значением резонансного поля $H_{res} \approx 3000$ Гс для четырех образцов с $x = 0,08, 0,10, 0,12$ и $0,15$. Сплошные линии на рис.1а есть результат линейной аппроксимации $dH = a + bT$ высокотемпературных участков кривых $dH(T)$. На рис.1б представлены соответствующие зависимости электросопротивления R от температуры.

Структура наблюдаемого спектра весьма характерна для ЭПР иона Gd^{3+} и обусловлена тонким расщеплением его основного энергетического состояния во внутрикристаллическом электрическом поле ². Основные качественные особенности экспериментального спектра (положение линий, их относительные интенсивности) удается воспроизвести при его компьютерном моделировании на основе простого феноменологического гамильтониана аксиальной симметрии

$$\mathcal{H} = D[S_z^2 + 1/3S(S+1)] + g\mu_B H S, \quad (1)$$

где $S = 7/2$ и $g = 2$ для иона Gd^{3+} , с единственным подгоночным параметром $D = 0,28 \text{ см}^{-1} (\pm 10\%)$. Компьютерное моделирование включало в себя численную диагонализацию матрицы энергии при каждом значении магнитного поля, вычисление на основе полученных уровней энергии иона Gd^{3+} резонансных полей и интенсивностей резонансных переходов, а также усреднение спектра по всем ориентациям кристаллитов порошка относительно направления магнитного поля H . Моделирование температурной эволюции спектра осуществлялось подбором коэффициентов линейной зависимости ширины индивидуальных компонент. Из рис.1а видно, что в наблюдаемых зависимостях ширины линии ЭПР от температуры можно выделить два участка. Высокотемпературный, где она линейна, и низкотемпературный, где dH подчиняется более сложному закону. Интересно, что отклонение зависимости $dH(T)$ от линейной при понижении температуры, как это видно из сравнения рис.1а и 1б, коррелирует с характерным минимумом (или полкой) зависимости $R(T)$.

Известно, что в металлах релаксация локализованных спинов определяется так называемым механизмом Корринги, обуславливающим линейную от температуры зависимость ширины линии ЭПР. Для спектра тонкой структуры иона Gd^{3+} зависящий от температуры член в выражении для ширины линии отдельной компоненты $dH = a + bT$ определяется следующим соотношением ³.

$$b = M^2 [N(E_F) J_{s,f}]^2 T. \quad (2)$$

Здесь M – матричный элемент, связывающий состояния иона Gd^{3+} с различными проекциями спина S_x (M^2 определяет также интегральную интенсивность соответствующей линии поглощения), $J_{s,f}$ – интеграл обменного взаимодей-

ствия локализованного спина с носителями тока (для Gd^{3+} в $La_{2-x}Sr_xCuO_4$ $J_{sf} \approx 2,5$ мэВ⁴).

Одновременное нарушение линейности зависимостей $dH(T)$ и $R(T)$ позволяют предположить, что оно может быть обусловлено единой причиной. Известно (см., например, ⁵), что подобная особенность в поведении электросопротивления наблюдается для допированных различными примесями лантан-стронциевых ВТСП соединений и в качестве возможных причин обсуждаются возникновение полупроводниковой щели, прыжковая проводимость, эффекты Кондо или локализации. Поскольку наблюдаемые нами кривые $R(T)$ не удалось аппроксимировать зависимостью $R \sim \exp(1/T^\alpha)$, где $\alpha = 1, 0,5, 0,25$, то, по-видимому, два первых механизма могут быть исключены из рассмотрения. В то же самое время эти кривые значительно лучше описываются зависимостью, предложенной в работе ⁵, которая содержит логарифмический член

$$R(T) = A + BT - C \ln(T). \quad (3)$$

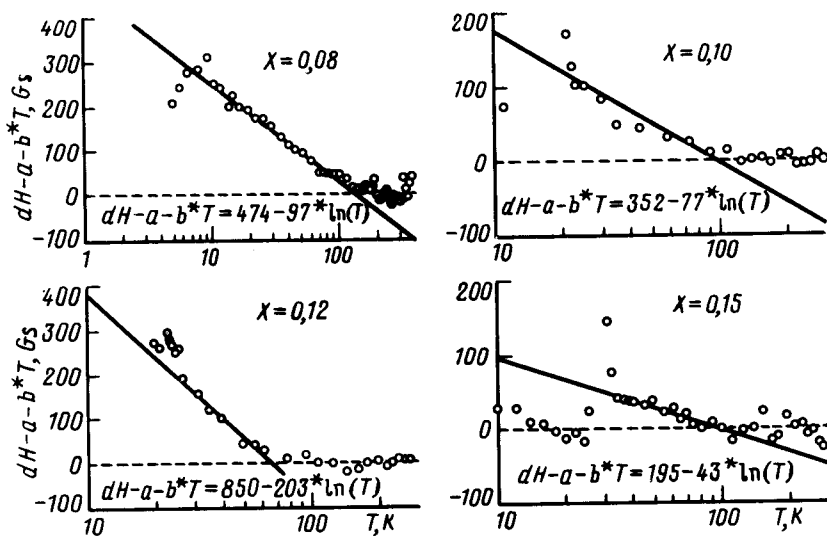


Рис.2. Зависимости нелинейной части ширины линии $dH(T) - a - b \cdot T$ от $\ln(T)$ для образцов $La_{1,99-x-y}Gd_{0,01}Sr_xCuO_4$ ($x = 0,08; 0,10; 0,12; 0,15$)

Это свидетельствует в пользу эффекта Кондо или слабой локализации. Сопровождающее эти эффекты изменение плотности состояний носителей может изменить коэффициент b зависящей от температуры части dH (2). Отклонение от линейной зависимости ширины линии ЭПР Gd^{3+} , при температурах порядка 100 К и ниже довольно неплохо может быть описано добавлением к закону $dH(T) = a + bT$ логарифмического члена $-c \ln(T)$ (см. рис.2). Это наблюдение может служить аргументом в пользу локализации, поскольку эффективный рост плотности состояний $N(E_F)$ при слабой локализации носителей тока

должен приводить к ускорению релаксации ионов Gd^{3+} при понижении температуры. Конечно аналогичный логарифмический член в зависимости $dH(T)$ возникает и в случае, если ЭПР наблюдается на кондо-ионе³, однако ион Gd^{3+} с его сферически симметричной глубоколежащей f -оболочкой является весьма маловероятным кандидатом на эту роль.

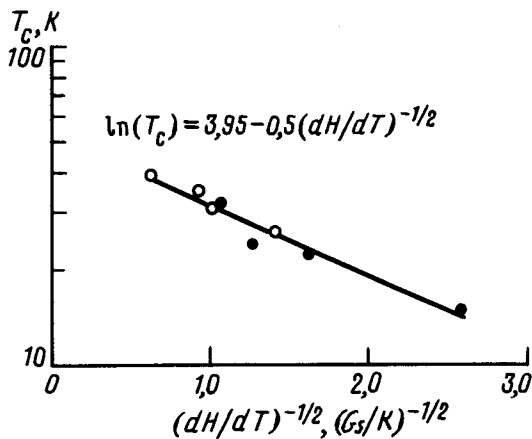


Рис.3. Температура сверхпроводящего перехода как функция квадратного корня из обратного наклона температурной зависимости ширины линии ЭПР Gd^{3+} . Белые и черные круги соответствуют образцам разных серий

Проведенный выше анализ показывает, что для извлечения однозначной информации о плотности состояний в нормальной фазе необходимо пользоваться именно высокотемпературными участками зависимостей ширины линии ЭПР (рис.1а). Представляется естественным связать наблюдаемое увеличение корринговского наклона $b = dH/dT$ (2) по мере увеличения содержания стронция x в образцах с увеличением плотности состояний носителей тока на поверхности Ферми, так как исходя из (2), $N(E_F) \sim \sqrt{b}$. Поскольку, как показали измерения электросопротивления восприимчивости и микроволнового поглощения, в исследуемых образцах с ростом x изменяется также и критическая температура T_c , то появляется возможность связать между собой две экспериментально измеряемые величины — T_c и dH/dT . Результат представлен на рис.3, где по оси абсцисс отложена критическая температура в логарифмическом масштабе, а по оси ординат — $b^{-1/2}$. Квадраты соответствуют образцам серии 1, результаты измерений которых предварительно обсуждались в работе⁴, ромбы — образцам независимо приготовленной серии 2, для которой экспериментальные данные были представлены на рис.1. Из рис.3 видно, что все отложенные точки хорошо аппроксимируются формулой

$$T_c = \alpha \exp(-\beta b^{-1/2}), \quad (4)$$

где α и β — подгоночные параметры. Учитывая связь между b и $N(E_F)$, можно утверждать, что в исследованном соединении выполняется универсальное соотношение, связывающее критическую температуру и плотность состояний вида $d(\ln(T_c))/d(1/N(E_F)) = \text{const}$. Эта константа может служить характеристикой связи квазичастиц, а предэкспоненциальный фактор в (4) задает энергетический масштаб.

В качестве одного из возможных примеров использования полученного нами соотношения для оценки микроскопических параметров можно обратиться,

например, к формуле типа БКШ $T_c = \alpha \exp(-1/L_{eff})$. Тогда из наших данных (см. рис. 3) следует $\alpha = 52 \text{ K}$ и эффективная константа связи $\lambda_{eff} = 0,78 - 1,88$ для образцов серии 2 с концентрацией стронция x от 0,08 до 0,15. Заметим, однако, что правдоподобность полученных оценок нельзя рассматривать как решающий аргумент в пользу фононной модели, так как аналогичные по структуре формулы для T_c имеют место и в ряде других теорий ВТСП.

Таким образом, в результате измерений ЭПР ионов Gd^{3+} , внедренных в образцы соединения $La_{2-x}Sr_xCuO_4$, с различной степенью допирования стронцием, установлено соотношение вида $d(\ln(T_c))/d(1/N(E_F)) = \text{const}$, связывающее температуру сверхпроводящего перехода и плотность состояний на поверхности Ферми. Простая структура $La_{2-x}Sr_xCuO_4$ позволяет надеяться, что обнаруженная закономерность характерна именно для плоскостей CuO_2 . Наличие таких плоскостей в других сверхпроводящих металлооксидах дает возможность предположить, что это соотношение выполняется и для них, так как основные отличия между ними (если не считать взаимодействие между плоскостями) состоят лишь в характере допирования и проявляются в разной плотности состояний. К сожалению, исследование лишь одного соединения не дает ответа на вопрос, выполняется ли полученное соотношение во всем диапазоне достигнутых критических температур или же оно является низкотемпературной асимптотикой более сложного закона. Другая проблема, которая представляется нам не менее интересной, состоит в исследовании поведения плотности электронных состояний как функции концентрации носителей в передопированных стронцием образцах лантанного металлооксида, в которых наблюдается увеличение проводимости при одновременном падении T_c . Предварительные эксперименты по ЭПР на двух образцах $La_{1,99-x-y}Gd_{0,01}Sr_xCuO_4$ ($x = 0,2, 0,25$) (см. также ⁴) показали, что T_c и $N(E_F)$ связаны в них тем же эмпирическим соотношением.

Мы признательны Г.Г.Халиуллину за ценные советы, а один из авторов (Г.Б.Т.) пользуется возможностью поблагодарить за полезное обсуждение Пирса Колемана (Piers Coleman).

Работа поддерживается Научным Советом по высокотемпературной сверхпроводимости и выполнена в рамках проекта N91151.

1. В.Е.Катаев, Е.Ф.Куковицкий, Ю.И.Таланов, Г.Б.Тейтельбаум, Письма в ЖЭТФ **48**, 433 (1988).
2. А.Абрагам, Б.Блини, Электронный парамагнитный резонанс переходных ионов, М.: Мир, 1972.
3. S.E.Barnes, Adv. Phys. **30**, 801 (1981).
4. G.B.Teitel'baum, Yu.S.Greznev, V.E.Kataev, and E.F.Kukovitsky, Physica C **184-189**, 1209 (1991).
5. Gang Xiao, M.Z.Cieplak, C.L.Chien, Phys. Rev. B **40**, 4538 (1989).