

## МАГНИТОТРАНСПОРТНЫЕ СВОЙСТВА ОДНООСНО СЖАТОГО 2D-ЭЛЕКТРОННОГО ГАЗА НА ГРАНИЦЕ ЗЕРЕН БИКРИСТАЛЛОВ $\text{Hg}_{1-x}\text{Cd}_x\text{Te}$ ( $x = 0, 23$ )

Н.Б.Бутко, В.Краак\*<sup>1)</sup>, С.Краузе\*, Н.Я.Минина, А.М.Савин

*Физический факультет Московского государственного университета  
им.М.В.Ломоносова  
119899 Москва, Россия*

\* *Physical Institute of Humboldt University  
D-10115 Berlin, FRG*

Поступила в редакцию 26 апреля 1994 г.

Исследованы квантовые осцилляции магнитосопротивления 2D-электронов в инверсионном слое на границе бикристаллов  $p\text{-Hg}_{1-x}\text{Cd}_x\text{Te}$  ( $x = 0, 23$ ) при всестороннем сжатии до  $P = 8$  кбар и одноосном сжатии  $\sigma_{yy} = 1,5$  кбар в направлении, перпендикулярном 2D-слою. Обнаружено возрастание частоты осцилляций  $F_i$  и, соответственно, концентрации 2D-электронов  $n_i$  в каждой из трех наблюдаемых энергетических подзон в квантовой яме при одноосном сжатии. Такое изменение противоположно наблюдаемому при всестороннем сжатии, при котором  $n_i$  во всех подзонах сильно падает с давлением, так что при  $P > 10$  кбар инверсионный слой исчезает.

Двумерные (2D) инверсионные слои носителей заряда на границе зерен полупроводниковых бикристаллов – например, в  $p\text{-InSb}$  [1],  $p\text{-Hg}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$  [2],  $n\text{-Ge}$  [3],  $p\text{-HgCdTe}$  [4] – достаточно интенсивно и успешно исследуются в последнее время. Эти естественно возникающие в процессе роста кристалла 2D-системы, в отличие от искусственно созданных на поверхности полупроводников гетероструктур, находятся в толще образца и являются идеальным объектом для исследования роли энергетического спектра и кристаллической структуры массивного материала в формировании потенциальной ямы и свойств двумерных носителей заряда. С этой точки зрения чрезвычайно перспективным является изучение магнитотранспортных свойств 2D-электронных инверсионных слоев на границе зерен бикристаллов при деформации кристаллической решетки, изменяющей зонную структуру и параметры энергетического спектра прилежащего к двумерному слою массивного кристалла.

В настоящей работе исследованы эффект Шубникова–де Гааза, сопротивление и эффект Холла в квантовой яме на границе зерен бикристалла узкощелевого полупроводника  $p\text{-Hg}_{1-x}\text{Cd}_x\text{Te}$  ( $x = 0, 23$ ) с прямой щелью  $E_g = 90$  мэВ и концентрацией нескомпенсированных акцепторов  $N_A - N_D = 10^{15} \text{ см}^{-3}$  при одноосном сжатии до нагрузок 1,5 кбар. Влияние всестороннего сжатия на свойства электронов в инверсионном слое у таких образцов изучено в [5]: увеличение давления  $P$  вызывает сильное уменьшение заселенности  $n_i$  во всех трех наблюдаемых подзонах, что при  $P > 10$  кбар приводит к полному исчезновению инверсионного слоя.

Одноосное сжатие образцов размерами  $1 \times 0,5 \times 3$  мм до нагрузок 1,5 кбар осуществлялось по методике, описанной в [6] в направлении, перпендикулярном границе зерен. Направление сжимающего усилия  $\vec{\sigma}$  составляет угол  $\approx 30^\circ$  с направлением [110],  $51^\circ$  с направлением [111] и  $14^\circ$  с направлением [100].

<sup>1)</sup> W.Kraak, S.Krause.

Расположение токовых, потенциальных и холловских контактов на границе зерен бикристалла приведено на вставке к рис.1а. Потенциальные и холловские контакты подваривались в границу зерен золотой проволокой диаметром 25 мкм электронискровым методом или с помощью капелек сплава  $\text{In}+3\%\text{Au}$  площадью  $\sim 1 \div 2 \cdot 10^{-2} \text{ мм}^2$ . Токвые контакты подпаивались в виде распределенной вдоль границы зерен тонкой полоски сплава  $\text{InAu}$ . При гелиевых температурах сопротивление массивной части кристалла в несколько десятков раз превышает сопротивление на границе зерен, что исключает возможность шунтирования сигнала объемом образца.

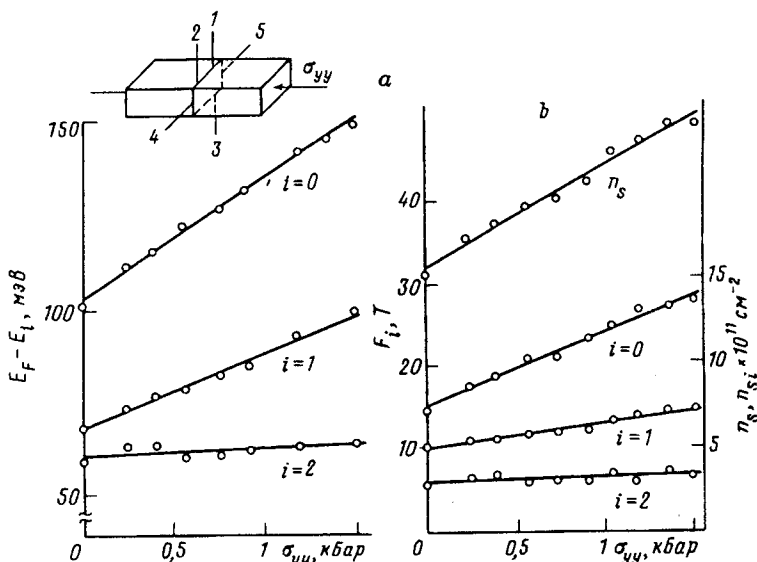


Рис.1. Деформационные зависимости характерных энергий  $\Delta E_i = E_F - E_i$  (а), частоты осцилляций ШдГ  $F_i$  (левая шкала) и концентрации носителей  $n_{s,i}$  (правая шкала) (б) в каждой из подзон в инверсионном слое на границе зерен бикристалла  $p\text{-Hg}_{1-x}\text{Cd}_x\text{Te}$ ,  $n_s$  - суммарная концентрация носителей. На вставке - расположение контактов на образце: 1, 2 - потенциальные; 1, 3 - холловские; 4, 5 - токовые

Двумерные свойства инверсионного слоя на границе зерен проявлялись прежде всего в наличии ярко выраженных квантовых осцилляций магнитосопротивления, частота  $F$  которых следовала характерной для  $2D$ -электронов угловой зависимости  $F(\varphi) = F_0 \cdot \cos \varphi$ , где  $\varphi$  - угол между магнитным полем  $H$  и нормалью к границе зерен. В трехмерном кристалле  $p\text{-Hg}_{1-x}\text{Cd}_x\text{Te}$  исследуемого состава ( $E_g \geq 90$  мэВ) магнитосопротивление, естественно, является монотонной функцией.

При приложении одноосной нагрузки  $\vec{\sigma}$  обнаружено сильное возрастание частот шубниковских осцилляций  $F_i$ , соответствующих двум нижним подзонам в квантовой яме на границе зерен  $p\text{-Hg}_{1-x}\text{Cd}_x\text{Te}$  (рис.1) ( $\Delta F_0/F_0 \approx 100\%$  при  $\sigma_{yy} = 1,5$  кбар); для наиболее высокой подзоны изменение частоты  $F_2$  не превышает точности ее определения  $\Delta F_2/F_2 \approx 2\%$ . Рассчитаны концентрации носителей в подзонах  $n_{s,i} = e/(\pi h \Delta_i (1/B)) \text{ см}^{-2}$ , где  $\Delta_i (1/B)$  - соответствующий период квантовых осцилляций (рис.1б), а также характеристические энергии

подзон  $\Delta E_i = E_F - E_i$  (рис.1а). Расчет  $\Delta E_i$  проводился в модели Кейна с эффективными массами, соответствующими объемной части образца. Суммарная концентрация  $2D$ -носителей в инверсионном слое  $n_s = \Sigma n_{s,i}$ ; сильно возрастает с ростом  $\bar{\sigma}$ , так же, как и величина  $\Delta E_i$  в двух нижних подзонах (рис.1). Это качественно противоположно эффекту, наблюдаемому при гидростатическом сжатию [5]. Рост  $n_s$  согласуется с наблюдаемым при одноосном сжатию падением сопротивления  $R$  (на 30% при  $\sigma_{yy} = 1,2$  кбар) и коэффициента Холла  $R_H$  (на 20% при  $\sigma_{yy} = 1,2$  кбар).

Данные контрольных измерений деформационных зависимостей  $R$ ,  $R_H$  и  $R(T)$  у массивных образцов  $p\text{-Hg}_{1-x}\text{Cd}_x\text{Te}$ , вырезанных из участков слитка вблизи исследуемой границы зерен бикристаллов, приведены на рис.2. Принципиальное отличие эффекта анизотропной (одноосной) деформации от действия всестороннего сжатия на энергетический спектр объемных кристаллов  $p\text{-Hg}_{1-x}\text{Cd}_x\text{Te}$  заключается в изменении симметрии кристаллической решетки и снятии обусловленного симметрией вырождения валентной зоны в  $\Gamma_8$ , расщепление которой на зоны тяжелых и легких дырок быстро увеличивается с деформацией, достигая 12 мэВ при  $\sigma \approx 1$  кбар [7]. Величина прямой энергетической щели  $E_g$ , согласно температурным зависимостям сопротивления, возрастает, однако с существенно меньшей, чем при всестороннем сжатию, скоростью:  $\partial E_g / \partial \sigma \approx 4,3$  мэВ/кбар (данные настоящей работы);  $\partial E_g / \partial \sigma = 5$  мэВ/кбар [8].

Энергия активации  $\epsilon_A$  акцепторного уровня вблизи потолка валентной зоны, которая, по-видимому, не меняется при гидростатическом давлении [9], в случае одноосного сжатия уменьшается:  $\partial \epsilon_A / \partial \sigma = 1,6$  мэВ/кбар (рис.2а);  $\partial \epsilon_A / \partial \sigma = 2,2$  мэВ/кбар [7]. Уменьшение сопротивления  $R(\sigma)$  и пик на деформационной зависимости коэффициента Холла  $R_H(\sigma)$  (рис.2б) (аналогичный пик наблюдался ранее в [7,8] на температурных кривых  $R_H(T)$ ), свидетельствуют о том, что при 4,2 К в объеме образцов  $p\text{-Hg}_{1-x}\text{Cd}_x\text{Te}$  в процессе одноосного сжатия ( $\sigma \approx 0,7$  кбар) происходит смена механизма проводимости: от проводимости по примесной акцепторной зоне к проводимости свободными дырками в верхнем из расщепившихся экстремумов валентной зоны. Последнее обстоятельство может сказаться на перераспределении зарядов вблизи потенциального барьера на границе зерен бикристаллов.

Качественный и количественный анализы зарядовых состояний на границе зерен, приводящих к появлению потенциального барьера, выполнены в [10] для бикристаллов  $p\text{-InSb}$ . В силу идентичности кристаллической и зонной структуры  $p\text{-InSb}$  и  $p\text{-Hg}_{1-x}\text{Cd}_x\text{Te}$  с  $x > 0,16$  и  $E_g > 0$  результаты [10] и развитый в этой работе подход к интерпретации наблюдаемых явлений вполне пригодны для  $p\text{-Hg}_{1-x}\text{Cd}_x\text{Te}$  исследуемого состава. Существенно, что рассматриваются три типа состояний, локализованных вблизи границы зерен и распределенных в достаточно широком интервале энергий (1, 2, 3 на рис.3), а концентрация дырок  $p(z)$  в окрестности существования потенциального барьера  $V(z)$  полагается равной нулю. Положительно заряженные состояния 1 связаны, согласно [10], с образованием оборванных связей и других дислокаций на границе зерен, тогда как отрицательно заряженные состояния 3 отнесены к сегрегированным на границе акцепторным примесям. Самосогласованный расчет  $V(z)$ , выполненный в [10] на основе решения уравнения Пуассона с соблюдением условия электронейтральности, показывает, что в принятой модели распределения зарядов всестороннее сжатие не приводит к дальнейшему искривлению зонных границ (неизменность потенциального барьера  $V(z)$  с давлением). Уменьшение

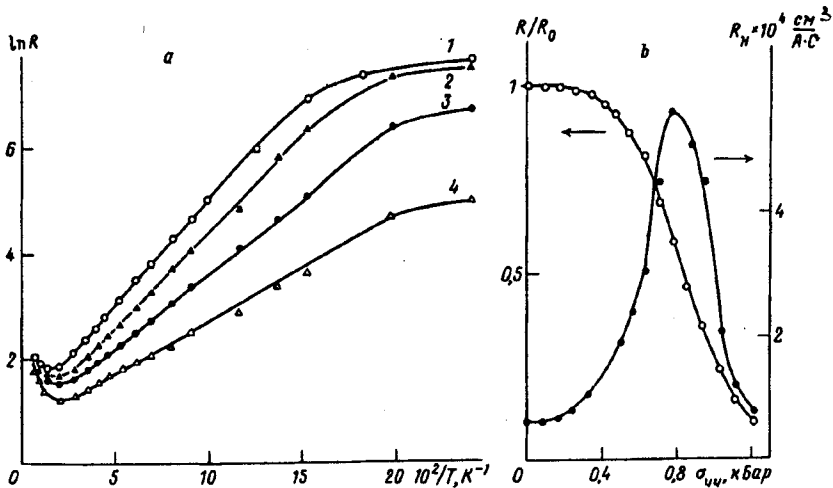


Рис.2. Температурные зависимости сопротивления при различных значениях деформации (а); деформационная зависимость коэффициента Холла (правая шкала) и относительной величины электросопротивления (левая шкала) (б). Кривые 1 -  $\sigma_{yy} = 0$  кбар,  $\epsilon_A = 3,5$  мЭВ; 2 -  $\sigma_{yy} = 0,5$  кбар,  $\epsilon_A = 2,9$  мЭВ; 3 -  $\sigma_{yy} = 0,9$  кбар,  $\epsilon_A = 2,4$  мЭВ; 4 -  $\sigma_{yy} = 1,2$  кбар,  $\epsilon_A = 1,7$  мЭВ;

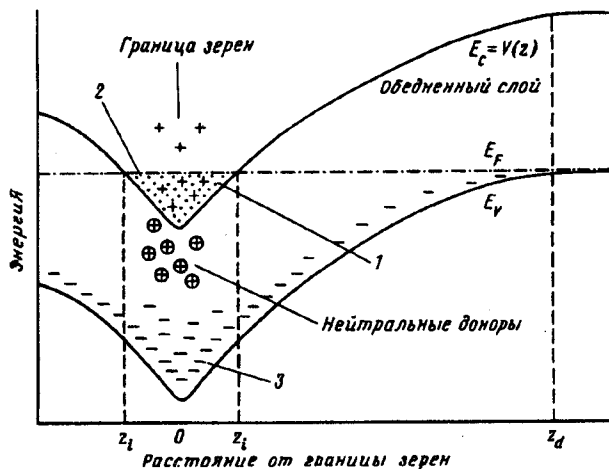


Рис.3. Распределение зарядов в окрестности границы зерен бикристаллов полупроводника р-типа при наличии на границе ( $z = 0$ ) инверсионного слоя: 1 - заряженные донорные состояния, 2 - электроны в инверсионном слое, 3 - заряженные акцепторные состояния

концентрации двумерных электронов связано исключительно с ростом энергетической щели в трехмерной части образца со скоростью  $\partial E_g / \partial P = 15$  мЭВ/кбар [11], что приводит к смещению дна ямы относительно уровня Ферми с приблизительно такой же скоростью  $\partial V / \partial P = 15,5$  мЭВ/кбар [6].

Увеличение числа свободных дырок в объеме образца при одноосном сжатии может привести к нарушению существующего при  $\sigma_{yy} = 0$  вблизи границы зерен равновесия зарядов и к появлению дополнительного отрицательного заряда вблизи границы бикристалла. Такой заряд может возникнуть, в рамках

представленной на рис.3 схемы, в случае понижения дна потенциальной ямы относительно уровня Ферми (рис.1а) и соответствующего увеличения концентрации электронов  $n_s$  в инверсионном слое (см. рис.1б). При наблюдаемом небольшом росте с увеличением одноосной деформации ширины запрещенной зоны  $E_g$  такая картина предполагает увеличение высоты потенциального барьера на границе зерен и требует специального расчета. При этом, возможно, придется учитывать также вероятность пьезоэлектрических эффектов в кристаллах со структурой цинковой обманки из-за отсутствия у них центра симметрии. Однако уже на данном этапе очевидна определяющая роль зонной структуры и кристаллической решетки объемного образца в формировании инверсионного слоя  $2D$ -носителей заряда, а также возможность управлять свойствами такого слоя с помощью внешних напряжений.

Настоящая работа была частично поддержана грантом Фонда Сороса, предоставленным Американским Физическим Обществом.

- 
1. R.Herrmann, W.Kraak, G.Nachtwei, and G.Worm, *Solid State Commun.* **52**, 843 (1984).
  2. G.Grabecki, T.Dietl, P.Sobkowicz et al., *Appl. Phys. Lett.* **45**, 1214 (1984).
  3. В.М.Вул and Е.У.Заваритская, *ЖЭТФ* **76**, 1089 (1979).
  4. W.Kraak, J.Kaldasch, P.Gille et al., *Phys. Stat. Sol. (b)* **161**, 613 (1990).
  5. W.Kraak, J.Kaldasch, P.Gille et al., *Superlattices and Microstructures* **9**, 471 (1991).
  6. Н.Б.Брандт, В.С.Егоров, М.Ю.Лавренюк и др., *ЖЭТФ* **89**, 2257 (1985).
  7. А.В.Германенко, Г.М.Миньков, Е.Л.Румянцев и др., *ФТП* **29**, 796 (1989).
  8. С.Г.Гасан Заде, В.А.Ромака, Е.А.Сальков, Г.А.Шепельский, *ФТП* **21**, 2066 (1987).
  9. Л.А.Бовина, Н.Б.Брандт, С.В.Долбанов и др., *ЖЭТФ* **84**, 1453 (1983).
  10. G.Gobsch, Th.Schurig, W.Kraak et al., *J. Phys. France* **50**, 283 (1989).
  11. R.Herrmann, W.Kraak, G.Nachtwei, and Th.Schurig, *Phys. Stat. Sol. (b)* **135**, 423 (1986).

## PARAMAGNETISM OF SUPERCONDUCTING CERAMICS

S.V.Panyukov, A.D. Zaikin

I.E. Tamm Department of Theoretical Physics, P.N. Lebedev Physics Institute  
Moscow 117924, Russia

Submitted 26 April, 1994

Interaction between spontaneous current loops (orbital magnetic moments) induced by weak links with negative coupling energies ( $\pi$ -junctions) can cause paramagnetism of granular high-temperature superconductors. We show that at certain concentration of  $\pi$ -junctions the system consists of infinite percolating superconducting cluster and normal regions with frozen-in magnetic field and ordered orbital magnetic moments.

It was found experimentally [1] (see also Ref. [2] for further references and review) that magnetization of certain high-temperature superconducting ceramic samples can crucially depend on whether these samples are cooled below the critical temperature  $T_c$  in zero or nonzero external magnetic field  $H_e$ . Whereas zero-field cooled samples showed a usual diamagnetic Meissner response, field cooled samples were found to be *paramagnetic* for  $H_e \lesssim 1$  Oe. Below we will call this effect Wohleben effect (WE) [2]. The experimental data [1] for the magnetic susceptibility of the WE samples  $\chi$  are well described by the expression

$$\chi = \chi_0 + M_0/(H_e + H_0), \quad (1)$$

where  $\chi_0 = -b_1/4\pi$  ( $b_1 \simeq 0.1 \div 0.2$ ) is a diamagnetic part of the sample susceptibility,  $H_0 \sim 0.1$  Oe and  $M_0 = b_2/4\pi$  G ( $b_2 \simeq 0.01 \div 0.1$ ) is a constant magnetic moment. It was shown in Ref. [1] that the paramagnetic behavior (1) cannot be ascribed to the effect of isolated magnetic impurities or small ferromagnetic clusters inside the sample. An interpretation of WE suggested in Refs. [1, 3, 2] is based on the model of a random network of Josephson junctions with positive (usual junctions) and negative (so called  $\pi$ -junctions [4]) Josephson coupling energies. There are various microscopic mechanisms which might cause the presence of  $\pi$ -junctions in our system (e.g. tunneling via magnetic impurities, unconventional pairing etc. - see Ref. [2] for further discussion). Irrespectively to a particular physical mechanism one can show [4] that in the presence of  $\pi$ -junctions spontaneous current loops can occur in the ground state of a superconducting system. In the external magnetic field orbital magnetic moments associated with such loops become ordered in the direction of this field and the sample acquires nonzero total magnetization. According to Refs. [1, 3, 2] this may result in a paramagnetic contribution to  $\chi$  (1).

Sharing the basic idea of this scenario we believe that it is by no means sufficient to understand the nature of WE. Indeed for  $H_e < H_{c1} \sim 10 \div 100$  Oe the system is in the Meissner state and therefore orbital magnetic moments inside a massive 3d superconducting sample cannot be ordered by an external magnetic field. Furthermore, as the critical temperature  $T_c$  for the whole granular array is always smaller than that for individual grains local spontaneous current loops may appear already above  $T_c$  resulting in some paramagnetic effect for  $T > T_c$ . No indication for this effect has been detected in [1]. At last, a simple estimate for

the loop magnetic moment  $\mu \sim I_c a^2$  (the typical loop size is of order of the grain size  $a$  and  $I_c = 2eE_J$  is the intergrain Josephson critical current) shows that for typical experimental parameters  $a \sim 1 \div 5 \mu\text{m}$  and  $E_J \sim 10 \text{ K}$  at  $T \sim 100 \text{ K}$  orbital magnetic moments can be ordered only by the magnetic field  $H_e \gtrsim T/\mu \sim 1 \div 30 \text{ Oe}$ , whereas WE persists down to much lower fields  $H_e \sim 0.03 \text{ Oe}$  [1].

In this Letter we propose an explanation for WE which does not face with the above problems. We first illustrate the main idea of our explanation with the aid of phenomenological Ginzburg-Landau (GL) functional for a superconductor with a fluctuating in space critical temperature. Then we derive this GL functional for a rigorous model of a network which contains both usual Josephson junctions and  $\pi$ -junctions.

Let us consider a 3d superconducting system and make two assumptions. First, following [1, 3, 2] we assume that  $\pi$ -junctions induce spontaneous current loops (orbital magnetic moments) in the ground state of our system. Second, we assume that the presence of such orbital magnetic moments leads to a local suppression of a superconducting order parameter which can be described by the fluctuating in space critical temperature  $\delta T_c(\mathbf{r})/T_c = t(\mathbf{r})$ . Then close to a superconducting phase transition one can describe the system by the phenomenological GL functional [5, 6]

$$F[\psi]/T = \int \frac{d\mathbf{r}}{a^3} \left[ (\tau + t(\mathbf{r})) |\psi|^2 + \frac{ca^2}{2} \left| \left( \nabla_{\mathbf{r}} - \frac{2\pi i}{\phi_0} \mathbf{A} \right) \psi \right|^2 + \frac{\gamma}{2} |\psi|^4 \right], \quad (2)$$

where we define  $\tau = T/T_c - 1$  and  $\langle t(\mathbf{r})t(\mathbf{r}') \rangle = g\delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}')$ . Here  $T_c$  is the mean field critical temperature,  $c \sim 0.1 \div 1$  depending on the lattice type,  $\mathbf{A}$  is the vector potential and  $\phi_0$  is the flux quantum. The parameters  $\gamma$  and  $g$  depend on the details of the model and will be fixed later.

Thermodynamic fluctuations of a superconducting order parameter  $\psi$  around its mean field value  $\langle \psi \rangle = \sqrt{|\tau|/\gamma}$  for  $T < T_c$  can be treated in a standard way. With the aid of (2) we get  $\langle (\delta\psi)^2 \rangle = \kappa |\tau|^{1/2}/c^{3/2}$ , where  $\kappa \sim 1$ . Thermodynamic fluctuations are small provided  $|\tau| \gg \tau_G$ , where the Ginzburg parameter  $\tau_G \sim (\kappa\gamma)^2/c^3$ . According to the results of Ref. [6] statistical fluctuations of  $\psi$  due to disorder lead to a small renormalization of the critical temperature  $T_c^{ren} = T_c(1 + \eta)$ ,  $\eta \ll 1$  and to the dispersion

$$\langle (\delta\psi)^2 \rangle / \langle \psi \rangle^2 = (\tau_D / |\tau|)^{1/2}, \quad \tau_D = g^2 / (8\pi^4 c^3). \quad (3)$$

For  $\tau_D \ll \tau_G$  such statistical fluctuations are not important and a usual second order superconducting phase transition takes place at  $T = T_c^{ren}$ . In this case the system shows a usual diamagnetic Meissner response and no WE occurs.

For  $\tau_D > b\tau_G$ , ( $b \simeq 2.5$ ) the physical picture becomes more complicated. It was shown in Refs. [5, 6] that due to space fluctuations of  $T_c$  already above  $T_c^{ren}$  there appear superconducting domains with an average size  $\xi \sim a(c/\tau)^{1/2}$  and concentration  $\rho(\tau)$

$$\rho(\tau) \approx \xi^{-3} S \exp(-S), \quad S(\tau) = A(\tau/\tau_D)^{1/2} \gg 1, \quad A \simeq 37.8. \quad (4)$$

If one lowers the temperature both concentration of domains and their size become larger and at  $\rho\xi^3 = w_c \simeq 0.15$  (see e.g. [7]) they form an infinite percolating cluster. This condition is roughly equivalent to  $S(\tau_p) \approx 3$  and yields

$\tau_p \approx (3/A)^2 \tau_D \sim 10^{-5} g^2 / c^3$ . Thus for  $\tau_D > b\tau_G$  global superconductivity appears at  $T = T_p = T_c^{ren}(1 + \tau_p)$  due to a percolation phase transition. At  $T$  slightly below  $T_p$  the superconducting state is essentially inhomogeneous: it consists of normal regions surrounded by infinite superconducting cluster. The volume of superconducting phase increases with decreasing temperature and eventually normal regions disappear.

If one applies a small magnetic field  $H_e$  above  $T_p$  and then cools the system this field becomes *trapped* in N-regions below  $T_p$  due to the Meissner effect in superconducting surroundings. For small enough  $H_e < T_p/\mu$  magnetic moments inside N-regions are disordered due to thermal fluctuations. Therefore at  $T$  just slightly below  $T_p$  no paramagnetism occurs and the superconducting sample shows a diamagnetic response. However as the temperature is lowered the volume of N-regions shrinks and due to the magnetic flux conservation the frozen-in field  $H(T)$  grows until the value  $\mu H(T^*) \sim T^*$  is reached at a certain temperature  $T^* < T_p$ . Below  $T^*$  magnetic moments are ordered, the magnetization  $M$  of the sample is saturated ( $M = M_0$ ) and its response becomes paramagnetic for not very large  $H_e$  (1). A rough estimate for  $M_0 \sim \mu/a^3$  yields  $M_0 \sim 0.01/4\pi$  G. Further shrinking of the N-regions volume with decreasing  $T$  is energetically forbidden (the magnetic energy  $\mu H(T)$  exceeds the superconducting condensation energy) and the susceptibility  $\chi$  (1) remains temperature independent at  $T \lesssim T^*$ . Exactly the same behavior (diamagnetic response very close to  $T_c$  turning to paramagnetic at lower  $T$ ) has been detected in Ref. [1]. Large magnetic fields  $H_e > H_c$  destroy superconducting domains already at  $T > T_p$  and WE does not take place. A rigorous analysis based on the method developed in Ref. [5] yields a physically transparent estimate  $H_c(\tau) \sim \phi_0/\xi^2$ . At  $\tau \approx \tau_p$  for the parameters of Ref.[1] we estimate  $\xi(\tau_p)$  to be of order several  $\mu\text{m}$  and get  $H_c \sim 10$  Oe in a good agreement with experimental results [1].

Now let us derive the GL functional (2) for a granular superconductor described by the Hamiltonian

$$\hat{H} = - \sum_{(\mathbf{r}, \mathbf{r}')} E_J(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \cos(\varphi(\mathbf{r}) - \varphi(\mathbf{r}')), \quad (5)$$

where the sum is taken over Josephson junctions between all neighboring superconducting grains with coordinates  $\mathbf{r}$  and  $\mathbf{r}'$  and superconducting phases  $\varphi(\mathbf{r})$  and  $\varphi(\mathbf{r}')$ . We shall consider the Josephson coupling energies  $E_J(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$  as independent stochastic variables equal to  $E_J = E_0 > 0$  with the probability  $1 - p$  and to  $E_J = -E_\pi < 0$  with the probability  $p$ . For  $E_\pi = 0$  this model has been considered in details in Ref.[10] with the aid of the replica method, the generalization for the case  $E_\pi > 0$  is straightforward. Near the critical temperature  $T_c$  it is sufficient to introduce only two order parameters  $\psi_\alpha = \langle \exp(i\varphi^\alpha) \rangle$  and  $Q_{\alpha\beta} = \langle \exp i(\varphi^\alpha - \varphi^\beta) \rangle$ ,  $\alpha, \beta = 1, \dots, m$  are replica indices. The  $\psi$ -field represents a standard superconducting order parameter for a granular superconductor (see e.g. [8]) and the Edwards-Anderson order parameter  $Q_{\alpha\beta}$  [9] describes the ground state of a granular array with frozen-in spontaneous currents. Proceeding in much the same way as in Ref.[10] the configurationally averaged free energy of the system  $F$  can be represented in terms of the path integral over replica fields  $\psi_\alpha$  and  $Q_{\alpha\beta}$

$$F = -T dF_m/dm |_{m=0}, \quad \exp(-F_m/T) = \int D\psi(\mathbf{r}) DQ(\mathbf{r}) \exp[-(H_0 + H_{int})/T], \quad (6)$$



where

$$H_0\{\psi\} = \int \frac{d\mathbf{r}}{a^3} \sum_{\alpha=1}^m \left\{ \psi_{\alpha} \left[ \tau - \frac{ca^2}{2} \left( \nabla_{\mathbf{r}} - \frac{2\pi i}{\phi_0} \mathbf{A} \right)^2 \right] \psi_{\alpha}^* + \frac{1}{4} |\psi_{\alpha}|^4 \right\}, \quad (7)$$

$$H_{int}\{\psi, Q\} = \int \frac{d\mathbf{r}}{a^3} \left[ -\frac{1}{3} \sum_{\alpha, \beta} Q_{\alpha\beta} \psi_{\alpha}^* \psi_{\beta} + \frac{\tau_q}{2} Sp Q^2 + \frac{ca^2}{2} Sp (\nabla_{\mathbf{r}} Q)^2 \right]. \quad (8)$$

As before the parameter  $\tau$  is equal to  $\tau = T/T_c - 1$ , where for our particular model the mean field superconducting critical temperature is  $T_c = z[(1-p)E_0 - pE_{\pi}]$  [11]. Due to the presence of  $\pi$ -junctions it turns out to be smaller than the standard mean field result  $T_c = zE_0$  [8]. The parameter  $\tau_q$  is defined by the expressions

$$\tau_q = (T/T_q)^2 - 1, \quad T_q = \sqrt{zp(1-p)/2}(E_0 + E_{\pi}). \quad (9)$$

In this paper we restrict our attention to the replica-symmetric case  $Q_{\alpha\beta} = Q$  described by the unique ground state for each disorder configuration. Calculating the Gaussian integral over  $Q$  in (6)-(8) we get

$$H_{int}\{\psi\} = \frac{g}{2} \int \frac{d\mathbf{r}}{a^3} \left[ \sum_{\alpha=1}^m |\psi_{\alpha}|^4 - \left( \sum_{\alpha=1}^m |\psi_{\alpha}|^2 \right)^2 \right], \quad g = \frac{1}{9\tau_q}. \quad (10)$$

It is easy to see that after an identification  $\psi = \psi_{\alpha}$  and averaging over the stochastic variable  $t(\mathbf{r})$  the GL functional (2) coincides with  $H_0\{\psi\} + H_{int}\{\psi\}$  (7), (10). Comparing the expressions obtained by these two methods we find  $\gamma = g + 1/2$ . Note that the replica-symmetric solution of our problem is valid only for  $T_c > T_q$  or, equivalently, for  $p < p_c \simeq (E_0 - \sqrt{E_0 E_{\pi}/2z})/(E_0 + E_{\pi})$ . For larger values of  $p > p_c$  at  $T < T_q$  the symmetry between replicas is broken and the phase diagram of the system is more complicated. In this case it consists of normal and superconducting spin-glass-like phases with nonzero average value of the order parameter  $Q_{\alpha\beta}$ . The physical properties of these phases will be studied in details elsewhere [11].

Let us summarize the results of our analysis. For  $\tau_D < b\tau_G$  or, equivalently, for  $p < p_c - \varepsilon$ ,  $\varepsilon \sim 10^{-2}/c$  and a sufficiently high temperature  $T > T_c^{ren}$  there is no global phase coherence in our system and the array is in the normal state. Spontaneous current loops [4] can occur already in this state provided individual grains are superconducting. Due to the lack of global superconductivity these loops - if present - are confined to the scale of order  $a$  and are completely uncorrelated in different parts of the sample. For  $p < p_c - \varepsilon$  effect of disorder is not important and at  $T = T_c^{ren}$  the system suffers a usual second order phase transition into a global superconducting state with  $\psi \neq 0$ , correlated spontaneous current loops of the typical scale  $\sim \lambda_L \gg a$  and standard Meissner properties in relatively small magnetic fields. No WE occurs in this state.

For larger values of  $p > p_c - \varepsilon$  effect of disorder is strong and interaction between current loops becomes crucially important. In this case superconducting domains with an average size  $\xi$  and concentration  $\rho$  (4) appear already above  $T_c^{ren}$ . At  $T = T_p$  these domains form an infinite percolating cluster and the system becomes globally superconducting. For  $T < T_p$  the system consists of an infinite superconducting cluster and normal regions with frozen-in magnetic field

and ordered orbital magnetic moments. This physical picture allows to explain all main features of WE in superconducting ceramics [1]. We believe that similar arguments based on the GL free energy (1) also describe WE in single crystal samples [12].

We would like to thank C.Bruder and D.Khomskii for useful discussions. This work was supported by the Russian Foundation for Fundamental Research under Grant No. 93-02-14052.

- 
1. W.Braunisch *et al.*, Phys. Rev. Lett. **68**, 1908 (1992); Phys. Rev. B **48**, 4030 (1993).
  2. D.Khomskii, J. Low Temp. Phys. (1994), to be published.
  3. F.V.Kusmartsev, Phys. Rev. Lett. **69**, 2268 (1992).
  4. L.N.Bulaevskii, V.V.Kuzii and A.A.Sobyanin, Pis'ma Eksp. Teor. Fiz. **25**, 314 (1977) [JETP Lett. **25**, 290 (1977)]; Solid St. Commun. **25**, 1053 (1978).
  5. L.B.Ioffe and A.I.Larkin, Zh. Eksp. Teor. Fiz. **81**, 707 (1981) [Sov. Phys. JETP **54**, 378 (1981)].
  6. L.N.Bulaevskii, S.V.Panyukov and M.V.Sadovskii, Zh. Eksp. Teor. Fiz. **92**, 672 (1987) [Sov. Phys. JETP **65**, 380 (1987)].
  7. J.M.Ziman, *Models of Disorder* (Cambridge University Press, 1979).
  8. S.Doniach, Phys.Rev. B **24**, 5063 (1981); S.V.Panyukov and A.D.Zaikin, J. Low Temp. Phys. **75** 361 (1989).
  9. S.F.Edwards and P.W.Anderson, J. Phys. F **7** 695 (1975).
  10. S. John and T.C.Lubensky, Phys. Rev. Lett. **55**, 1014 (1985); Phys. Rev. B **34**, 3815 (1986).
  11. S.V.Panyukov and A.D.Zaikin, preprint (1994).
  12. S.Riedling *et al.*, preprint (1993).