

## Исследование сверхпроводящей системы $Mg_{1-x}Al_xB_2$ методами туннельной и микроконтактной (андреевской) спектроскопии

Я. Г. Пономарев, С. А. Кузьмичев, Н. М. Кадомцева, М. Г. Михеев, М. В. Судакова, С. Н. Чесноков, Е. Г. Максимов<sup>+</sup>, С. И. Красносвободцев<sup>+</sup>, Л. Г. Севастьянова\*, К. П. Бурдина\*, Б. М. Булычев\*

Физический факультет МГУ им. М. В. Ломоносова, 119899 Москва, Россия

<sup>+</sup> Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН, 117924 Москва, Россия

\* Химический факультет МГУ им. М. В. Ломоносова, 119899 Москва, Россия

Поступила в редакцию 7 апреля 2004 г.

Проведены детальные исследования многозонной сверхпроводимости в системе  $Mg_{1-x}Al_xB_2$  методами туннельной и андреевской спектроскопии. Изучены температурные зависимости сверхпроводящих щелей, а также их изменения при возрастании неупорядоченности и концентрации Al. Показано, что экспериментально наблюдаемые зависимости не могут быть детально объяснены в рамках существующих к настоящему времени микроскопических теорий.

PACS: 74.20.Fg, 74.62.-c, 74.70.Dd

Открытая несколько лет назад [1] сверхпроводимость в  $MgB_2$  с относительно высоким значением критической температуры  $T_c = 40$  К продолжает привлекать внимание исследователей. Интерес к  $MgB_2$  вызван тем обстоятельством, что в нем были обнаружены, как минимум, две сверхпроводящие щели, возникающие на двух различных участках поверхности Ферми. Свойства таких многозонных сверхпроводников изучались во многих теоретических работах в середине прошлого века после появления пионерских работ [2, 3]. Наиболее интересное предсказание было сделано Леггеттом [4] в 1966 г. Он показал, что в многозонных сверхпроводниках могут существовать специфические коллективные возбуждения, связанные с флуктуациями относительной фазы параметров порядка различных сверхпроводящих конденсатов.

Явление многозонной сверхпроводимости в какой-то мере родственно явлению анизотропии, существующей практически в любом сверхпроводнике. Хорошо известно, что анизотропия сверхпроводящей щели достаточно легко разрушается при введении примесей. Уже из первых работ [3, 4] было ясно, что многозонность сверхпроводящих щелей также должна исчезать в “грязном” пределе. Удивительным свойством многозонной сверхпроводимости в системе  $MgB_2$  является то обстоятельство, что она не исчезает, как это будет показано в данной работе, при увеличении остаточного сопротивления на два порядка и более. Возможная причина этого явления была указана в работе [5], и она связана со спецификой электронного зонного спектра  $MgB_2$ .

Расчеты электронной структуры  $MgB_2$  из первых принципов [6–8] показали, что поверхность Ферми в дибориде магния содержит две вложенные друг в друга слабо гофрированные цилиндрические поверхности, относящиеся к двум 2D  $\sigma$ -зонам, и две сложные трубчатые конструкции, порожденные двумя 3D  $\pi$ -зонами. Двумерные (2D) носители заряда – локализованные в плоскостях бора дырки, соответствуют  $\sigma$ -зонам. Трехмерные (3D) электроны и дырки, делокализованные по всему кристаллу, соответствуют  $\pi$ -зонам. Причиной стабильности многозонной сверхпроводимости в  $MgB_2$  является малость потенциалов рассеяния между  $\sigma$ - и  $\pi$ -зонами [5]. Отметим, что реальный четырехзонный спектр  $MgB_2$  [8] обычно заменяют модельным двухзонным [5–7], а число сверхпроводящих щелей сводят к двум:  $\Delta_\sigma$  ( $\sigma$ -зона, большая щель) и  $\Delta_\pi$  ( $\pi$ -зона, малая щель). Значения щелей  $\Delta_\sigma$  и  $\Delta_\pi$  у  $MgB_2$  при  $T \rightarrow 0$ , а также их температурные зависимости  $\Delta_\sigma(T)$  и  $\Delta_\pi(T)$  определены в большом числе работ [9–15] с помощью туннельной и микроконтактной спектроскопии (см. также обзоры [16, 17]).

Ранее нами были выполнены исследования двухзонного поведения поликристаллических образцов  $MgB_2$  с разной степенью дефектности [18]. Было показано, что температурные зависимости большой щели  $\Delta_\sigma(T)$  близки к БКШ-типу. В то же время зависимости  $\Delta_\pi(T)$  обнаруживают отклонения от стандартной БКШ-функции. Критические температуры у исследованных в [18] образцов существенно отличались друг от друга из-за технологических особенностей их приготовления и находились в интервале

$25 \text{ K} \leq T_c \leq 40.5 \text{ K}$ . Величина  $\Delta_\sigma$  для разных образцов линейно уменьшалась с уменьшением  $T_c$ , малая же щель  $\Delta_\pi$  во всем интервале значений  $T_c$  имела практически одно и то же значение  $\Delta_\pi \approx 2 \text{ мэВ}$ .

Целью настоящей работы было систематическое исследование системы  $\text{Mg}_{1-x}\text{Al}_x\text{B}_2$ . По данным работ [19–21] критическая температура  $T_c$  системы  $\text{Mg}_{1-x}\text{Al}_x\text{B}_2$  уменьшается с ростом концентрации алюминия  $x$  и обращается в нуль при  $x \approx 0.5$ . Существует только одна экспериментальная работа [22], в которой на ограниченном числе образцов  $\text{Mg}_{1-x}\text{Al}_x\text{B}_2$  проведено определение зависимостей  $\Delta_\sigma(x)$  и  $\Delta_\pi(x)$ .

Нами были изучены поликристаллические образцы  $\text{Mg}_{1-x}\text{Al}_x\text{B}_2$  с концентрациями  $0.32 \leq x \leq 0.45$  и, соответственно, с критическими температурами  $21.5 \text{ K} \geq T_c \geq 6.5 \text{ K}$ . В качестве экспериментальных методов использованы микроконтактная (андреевская) и туннельная спектроскопии. Оба эти метода реализованы с помощью контактов на микротрещине (break junction). Высокое качество поверхности криогенного скола позволяет получать хорошо воспроизводимые результаты, что выгодно отличает контакты на микротрещине от туннельных структур других конструкций. Уникальным достоинством контакта на микротрещине является возможность его регулировки в процессе эксперимента при низких температурах, что позволяет сравнительно легко переводить контакт из туннельного режима (туннельная спектроскопия, SIS-контакты) в микроконтактный режим (андреевская спектроскопия, SnS-контакты, где  $n$ -нормальный металл).

В настоящей работе (так же, как в работе [18]) щелевая структура на  $dI/dV$ -характеристиках контактов в туннельном режиме при  $T = 4.2 \text{ K}$  (пики дифференциальной проводимости при щелевых смещениях  $V_{\sigma,\pi} = 2\Delta_{\sigma,\pi}/e$ ) сравнивалась с субгармонической щелевой структурой для тех же контактов в микроконтактном режиме (две серии провалов дифференциальной проводимости при смещениях  $V_{n,\sigma,\pi} = 2\Delta_{\sigma,\pi}/ne$ , где  $n$  – целое число). Достоверность определения величин сверхпроводящих щелей существенно повышается в случае совпадения значений  $\Delta_{\sigma,\pi}$ , полученных двумя вышеуказанными методами.

Следует отметить, что измерение температурных зависимостей щелей  $\Delta_\sigma(T)$  и  $\Delta_\pi(T)$  более предпочтительно с помощью андреевской спектроскопии, так как достаточно резкая субгармоническая щелевая структура наблюдается практически вплоть до критической температуры  $T_c$ . Последнее позволяет оценить локальную критическую температуру в

области микроконтакта. Отметим, что в последующем изложении под критической температурой всегда подразумевается локальная  $T_c$ . Хорошее совпадение локальной  $T_c$  и критической температуры, полученной из резистивного перехода всего образца (до создания микротрещины), наблюдается только в наиболее чистых образцах  $\text{MgB}_2$ .

На рис.1 приведена субгармоническая щелевая структура на  $dI/dV$ -характеристиках SnS-контакта при разных температурах для образца  $\text{MgB}_2$  с  $T_c = 39 \text{ K}$ .

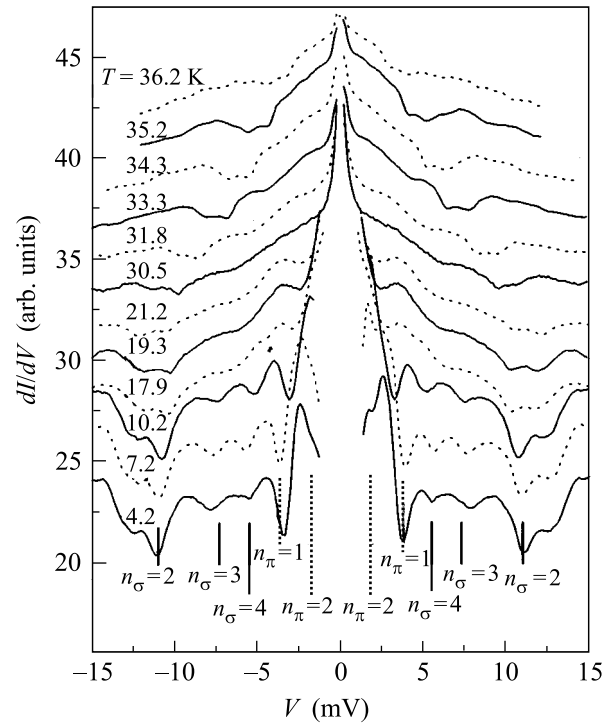


Рис.1. Субгармоническая щелевая структура на  $dI/dV$ -характеристиках SnS-контакта при разных температурах для поликристаллического образца  $\text{MgB}_2$  с  $T_c = 39 \text{ K}$ . На рисунке штрихами отмечены смещения  $V$ , соответствующие провалам динамической проводимости с номерами  $n_\sigma$  ( $\sigma$ -зона, сплошные линии) и  $n_\pi$  ( $\pi$ -зона, пунктирные линии) при  $T = 4.2 \text{ K}$

На рис.2 показано влияние температуры на субгармоническую щелевую структуру на  $dI/dV$ -характеристике андреевского контакта для образца  $\text{Mg}_{1-x}\text{Al}_x\text{B}_2$  с  $T_c = 21.5 \text{ K}$ . На рисунках хорошо видны особенности при смещениях  $V$ , соответствующих двум щелям ( $\Delta_\sigma$  и  $\Delta_\pi$ ). Обращает на себя внимание дублетный характер субгармонической щелевой структуры, особенно хорошо заметный на рис.2. Не исключено, что дублеты, часто наблюдаемые нами на характеристиках хорошего качества, являются

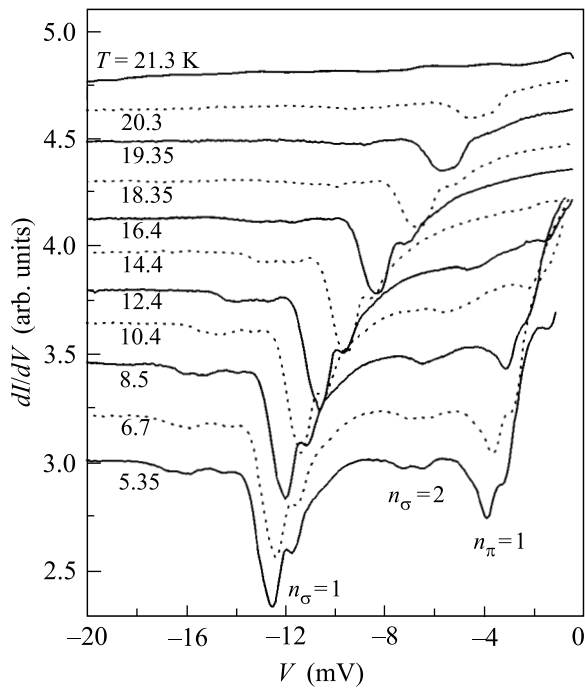


Рис.2. Влияние температуры на субгармоническую щелевую структуру на  $dI/dV$ - характеристике андреевского контакта для поликристаллического образца  $Mg_{1-x}Al_xB_2$  с  $T_c = 21.5$  К. На рисунке отмечены провалы динамической проводимости с номерами  $n_{\sigma}$  ( $\sigma$ -зона) и  $n_{\pi}$  ( $\pi$ -зона)

следствием существования в дибориде магния двух близких по величине  $\Delta_{\sigma}$ -щелей и двух  $\Delta_{\pi}$ -щелей, что предсказывалось в теоретической работе Чоя и Коэна с соавторами [8].

На рис.3 приведены температурные зависимости щелей для двух вышеуказанных образцов, а также для двух других образцов, один из которых не содержит примеси Al и имеет критическую температуру  $T_c = 34.5$  К. Из рис.3 видно, что температурные зависимости щелей  $\Delta_{\sigma}(T)$  и  $\Delta_{\pi}(T)$  у системы  $Mg_{1-x}Al_xB_2$  отличаются качественным образом. Температурные зависимости  $\Delta_{\sigma}(T)$  близки к БКШ-типу (сплошные символы на рис.3). В то же время щель  $\Delta_{\pi}(T)$  ведет себя совершенно иначе. Появление “хвоста” у зависимости  $\Delta_{\pi}(T)$  указывает на влияние  $\sigma$ -конденсата на  $\pi$ -конденсат в результате внутреннего эффекта близости. Зависимости на рис.3 в большой степени напоминают соответствующие графики для стандартного эффекта близости между двумя сверхпроводниками с существенно отличающимися значениями  $T_c$  и малой связью между ними. Последнее позволяет предположить, что в  $MgB_2$   $\pi$ -зона обладает собственной сверхпроводимостью с  $T_c \approx 13$  К, а константа межзонной связи  $\lambda_{\sigma\pi}$  гораздо меньше, чем величина 0.23, полученная в расчетах [7, 23]. В

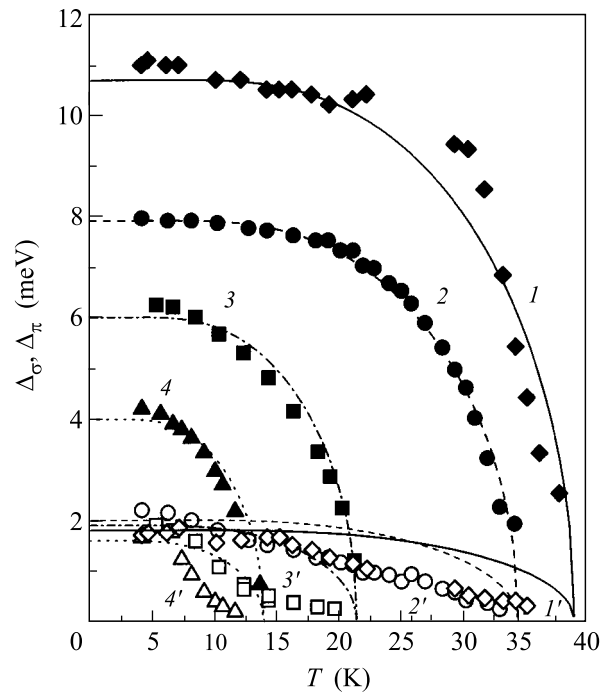


Рис.3. Температурные зависимости большой  $\Delta_{\sigma}$  (1-4, сплошные символы) и малой  $\Delta_{\pi}$  (1'-4', открытые символы) щелей у поликристаллических образцов: 1,1' –  $MgB_2$  с  $T_c = 39$  К, 2, 2' – дефектного  $MgB_2$  с  $T_c = 34.5$  К, 3, 3' –  $Mg_{1-x}Al_xB_2$  с  $T_c = 21.5$  К, 4, 4' –  $Mg_{1-x}Al_xB_2$  с  $T_c = 14$  К. Сплошные, штриховые, штрих-пунктирные и пунктирные линии на рисунке соответствуют модели БКШ

этом легко убедиться, сравнивая зависимости  $\Delta_{\pi}(T)$ , полученные нами (рис.3), с аналогичной зависимостью из работы [23], практически не отличающейся от БКШ-типа.

На рис.4 показаны зависимости щелей  $\Delta_{\sigma}$  и  $\Delta_{\pi}$  при  $T \rightarrow 0$  от критической температуры  $T_c$ . Кружками обозначены результаты, полученные на образцах  $MgB_2$  с различной степенью дефектности, а квадратами – результаты, полученные на образцах  $Mg_{1-x}Al_xB_2$ . Из рис.4 следует, что межзонная связь существенно не возрастает ни при увеличении разупорядочения в  $MgB_2$ , ни с ростом концентрации Al.

В литературе указывалось несколько причин возможного уменьшения  $T_c$  и соответственно щели  $\Delta_{\sigma}$  при замещении Mg на Al. Это, во-первых, заполнение дырочной  $\sigma$ -зоны дополнительными электронами от алюминия, приводящее к существенному уменьшению плотности электронных состояний и к полному ее исчезновению при  $x > 0.5$  [21, 24]. Во-вторых, это возрастание межзонного рассеяния за счет увеличения концентрации примесей. Как хорошо известно, анизотропия сверхпроводящей щели в обычных однозонных сверхпроводниках подавляется рассеянием

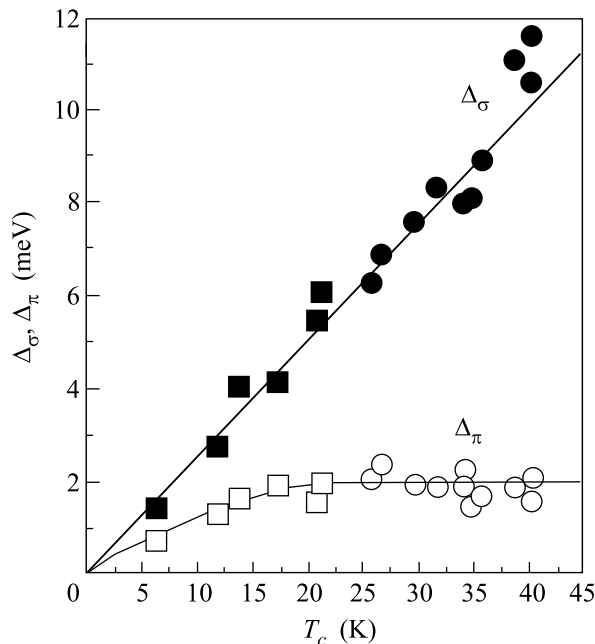


Рис.4. Зависимости щелей  $\Delta_\sigma$  (сплошные символы) и  $\Delta_\pi$  (открытые символы) при  $T \rightarrow 0$  от критической температуры  $T_c$ . Кружками обозначены результаты, полученные на образцах  $\text{MgB}_2$  с различной степенью дефектности, а квадратами – результаты, полученные на образцах  $\text{Mg}_{1-x}\text{Al}_x\text{B}_2$ . Сплошные линии проведены для удобства рассмотрения

на немагнитных примесях [25]. При этом соответственно уменьшается и  $T_c$  данного сверхпроводника. Как было показано Голубовым и Мазиним [26], аналогичное явление должно наблюдаться и в многозонных сверхпроводниках. Расчеты, проведенные в работах [27–29] с использованием обеих этих идей, существенно противоречат полученным нами результатам. Мы не наблюдаем предсказанного в этих работах возрастания малой  $\Delta_\pi$ -щели с падением  $T_c$ . Кроме того, мы не наблюдаем вплоть до значений  $T_c \approx 6$  К перехода в “грязный” однощелевой предел, где должны совпадать значения обеих щелей  $\Delta_\sigma$  и  $\Delta_\pi$ .

Нам хотелось бы также обратить внимание на тот факт, что уменьшение  $\Delta_\sigma$  при разупорядочении и при добавлении Al происходит при очень малом изменении отношения  $2\Delta_\sigma/kT_c$ . Более того, как видно из рис.5, это отношение существенно превосходит значение, характерное для БКШ-предела. Оно также превышает значение  $2\Delta_\sigma/kT_c = 4.1$ , полученное в расчетах [5–7, 23]. Следует отметить, что и в целом ряде других экспериментальных работ для  $\text{MgB}_2$  также были получены значения  $2\Delta_\sigma/kT_c$ , существенно превышающие 3.52 [30–32]. В то же время, отношение  $2\Delta_\pi/kT_c$  при  $T_c \rightarrow 0$  стремится к 3.52 (рис.5). Последнее указывает на то, что “собственная” сверхпроводимость  $\pi$ -зон соответствует БКШ-пределу.

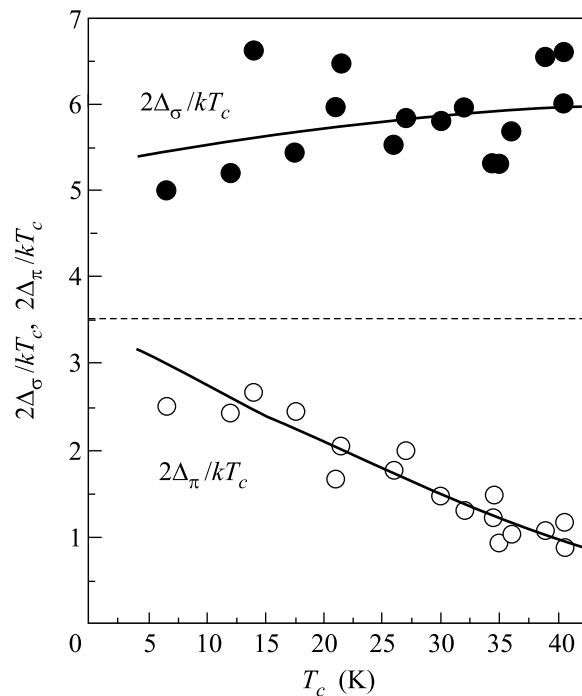


Рис. 5. Зависимости отношений  $2\Delta_\sigma/kT_c$  (сплошные кружки) и  $2\Delta_\pi/kT_c$  (открытые кружки) от критической температуры  $T_c$  у исследованных поликристаллических образцов  $\text{MgB}_2$  с разной степенью дефектности и у образцов системы  $\text{Mg}_{1-x}\text{Al}_x\text{B}_2$ . Сплошные линии проведены для удобства рассмотрения, пунктирная линия соответствует БКШ-пределу

У нас не вызывает сомнения, что основным механизмом, ответственным за достаточно высокие значения  $T_c$  в  $\text{MgB}_2$ , является сильное электрон-фононное взаимодействие. К сожалению, существующие расчеты [5–8, 23] не могут описать детально результаты, полученные в данной работе. Экспериментальная величина  $2\Delta_\sigma/kT_c$  оказывается существенно выше теоретической. Кроме того, полученные нами данные указывают на завышение в работах [5–8, 33] значений констант межзонного электрон-фононного взаимодействия. Последнее обстоятельство мы уже отмечали в предыдущей нашей работе [18], где в  $\text{MgB}_2$  были обнаружены коллективные возбуждения плазменного типа (моды Леггетта). Там было указано, что при учете значений межзонных констант, полученных в теоретических работах, подобные моды в  $\text{MgB}_2$  были бы не наблюдаемы.

Авторы пользуются случаем выразить искреннюю признательность В. Ф. Гантмахеру, Л. М. Фишеру и М. Р. Трунину за полезные обсуждения. Авторы благодарны за финансовую поддержку Российскому фонду фундаментальных исследований (гранты # 02-02-16658, # 02-02-17915 и # 02-02-17353), INTAS-2001-0617, а также научным программам РАН

и Министерства Промышленности, Науки и Технологий.

1. J. Nagamatsu, N. Nakagawa, T. Muranaka et al., *Nature* **410**, 63 (2001).
2. H. Suhl, B. T. Matthias, and L. R. Walker, *Phys. Rev. Lett.* **3**, 552 (1959).
3. В. А. Москаленко, *ФММ* **4**, 503 (1959).
4. A. J. Leggett, *Prog. Theor. Phys.* **36**, 901 (1966).
5. I. I. Mazin, O. K. Andersen, O. Jepsen et al., *Phys. Rev. Lett.* **89**, 107002 (2002)
6. A. Y. Liu, I. I. Mazin, and J. Kortus, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 087005 (2001).
7. Y. Kong, O. V. Dolgov, O. Jepsen, and O. K. Andersen, *Phys. Rev.* **B64**, 020501(R) (2001).
8. H. J. Choi, D. Roundy, H. Sun et al., *Nature* **418**, 758 (2002).
9. F. Giubileo, D. Roditchev, W. Sacks et al., arXiv:cond-mat/0105592 v2 1 Jun 2001.
10. H. Schmidt, J. F. Zasadzinski, K. E. Gray et al., *Physica C* **385**, 221 (2003).
11. P. Martinez-Samper, J. G. Rodrigo, G. Rubio-Bollinger et al., arXiv:cond-mat/ 0209387 17 Sep 2002.
12. P. Szabó, P. Samuely, J. Kačmarčík et al., arXiv:cond-mat/0105598 v3 20 Aug 2001.
13. M. Iavarone, G. Karapetrov, A. E. Koshelev et al., *Phys. Rev. Lett.* **89**, 187002-1 (2002).
14. R. S. Gonnelli, D. Daghero, G. A. Ummarino et al., arXiv:cond-mat/0208060 v1 3 Aug 2002.
15. Y. Bugoslavsky, Y. Miyoshi, G. K. Perkins et al., *Supercond. Sci. Technol.* **15**, 526 (2002).
16. I. K. Yanson and Yu. G. Naidyuk, arXiv:cond-mat/0402095 v1 6 Feb 2004.
17. C. Buzea and T. Yamashita, *Supercond. Sci. Technol.* **14**, R115 (2001).
18. Ya. G. Ponomarev, S. A. Kuzmichev, M. G. Mikheev et al., *Solid State Comm.* **129**, 85 (2004).
19. J. S. Slusky, N. Rogato, K. A. Began et al., *Nature* **410**, 343 (2001).
20. A. Bianconi, S. Agrestini, D. Di Castro et al., *Phys. Rev.* **B65**, 174515 (2002).
21. D. Di Castro, S. Agrestini, G. Campi et al., *Europhys. Lett.* **58**, 278 (2002)
22. M. Putti, E. Galleani, I. Pallecchi et al., arXiv:cond-mat/0306137 Jun 2003.
23. A. A. Golubov, J. Kortus, O. V. Dolgov et al., *J. Phys.: Condens. Mat.* **14**, 1353 (2002).
24. O. de la Pena, A. Aguayo, and R. de Coss, *Phys. Rev.* **B66**, 012511 (2002).
25. D. Markowitz and L. P. Kadanov, *Phys. Rev.* **131**, 563 (1963).
26. A. A. Golubov and I. I. Mazin, *Phys. Rev.* **B55**, 15146 (1997).
27. A. Bussman-Holder and A. Bianconi, *Phys. Rev.* **B67**, 132509 (2003).
28. G. A. Ummarino, R. S. Gonnelli, S. Massida et al., arXiv: cond-mat/0310284 (2003).
29. K. Watanabe and T. Kite, arXiv: cond-mat/0401410 (2004).
30. T. Takasaki, T. Ekino, T. Muranaka et al., *Physica C* **378-381**, 229 (2002).
31. Z.-Z. Li, H.-J. Tao, Y. Xuan et al., *Phys. Rev.* **B66**, 064513 (2002).
32. H. Kotegawa, K. Ishida, Y. Kitaoka et al., arXiv: cond-mat/0201578 (2002).
33. A. Brinkman, A. A. Golubov, H. Rogalla et al., *Phys. Rev.* **B66**, 180517(R) (2002).