

ТЕМПЕРАТУРНАЯ ЗАВИСИМОСТЬ ВЕРХНЕГО КРИТИЧЕСКОГО ПОЛЯ В $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4-y}$ КАК ИНДИКАТОР БОЗОННОЙ СВЕРХПРОВОДИМОСТИ

В.Ф.Гантмахер¹⁾, Г.А.Емельченко, И.Г.Науменко, Г.Э.Цыдынжапов

Институт физики твердого тела РАН, 142432 Черноголовка, Московская обл., Россия

Поступила в редакцию 1 июня 2000 г.

По смещению резистивного перехода $\Delta T(B)$ в монокристаллах $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4-y}$ с уровнем допирования, близким к оптимальному, определена температурная зависимость верхнего критического поля B_{c2} . В слабых полях, в пределах точности эксперимента, полученные данные описываются степенной функцией $B_{c2} \propto (\Delta T)^{3/2}$. Этот результат сравнивается с данными по теплоемкости и анализируется с точки зрения возможного проявления бозонных эффектов в сверхпроводимости. Зависимость B_{c2} от T сохраняется вплоть до самых низких температур, но ниже 1 К численные значения B_{c2} разнятся на разных образцах.

PACS: 74.20.Mn, 74.25.Dw, 74.72.-h

Есть основания полагать, что высокотемпературная сверхпроводимость (ВТСП) не описывается теорией БКШ. Одним из них является соотношение между плотностью сверхпроводящих пар n и длиной когерентности ξ (размером пары). В купратных ВТСП сверхпроводимость обусловлена носителями в плоскостях CuO_2 . Как в любой 2D системе, плотность состояний на ферми-уровне g_F в плоскостях CuO_2 в нормальном состоянии не зависит от концентрации носителей и, согласно измерениям, равна $g_F = 2.5 \cdot 10^{-4} K^{-1}$ на один структурный элемент CuO_2 (приблизительно одна и та же величина во всех купратных семействах – см., например, [1], гл. 13). Полагая для оценки, что сверхпроводящая щель Δ порядка температуры перехода T_c , получим, что среднее расстояние между парами в CuO_2 -плоскости $r = n^{-1/2} \approx (g_F \Delta)^{-1/2}$ порядка 25 Å при $T_c \approx 100$ К и 75 Å при $T_c \approx 10$ К. Эти значения r следует сравнивать с типичной длиной когерентности $\xi \approx 20$ Å в плоскостях ab [1], так что в ВТСП $r \gtrsim \xi$. Поскольку теория БКШ вводит куперовские пары для описания основного состояния ферми-жидкости как целого, ее пригодность для описания ВТСП не очевидна. Этим обусловлен интерес к бозонным моделям сверхпроводимости, рассматривающим предел $r \gg \xi$ и отталкивающимся от бозе-эйнштейновской конденсации (БЭК) в системе заряженных бозонов [2–4]. Сейчас происходит накопление экспериментальных свидетельств бозонных эффектов в ВТСП.

Одно из таких свидетельств можно надеяться получить из измерений температурной зависимости магнитного поля B_{c2} , разрушающего сверхпроводимость. В теории БКШ функция $B_{c2}(T/T_c)/B_{c2}(0)$ линейна вблизи $T/T_c = 1$, монотонно увеличивается, выходит на насыщение вблизи нуля и уже при $T/T_c = 0.2$ почти не отличается от предельного значения [5]. Однако ВТСП в большинстве случаев ведут себя иначе, демонстрируя положительную вторую производную $\partial^2 B_{c2}/\partial T^2$ во всем температурном интервале.

Измерения $B_{c2}(T)$ в основном базируются на анализе резистивного перехода. Известны два типа поведения резистивного перехода ВТСП в магнитном поле. Для одного резистивный переход в магнитном поле сильно расширяется и поэтому из него

¹⁾ e-mail: gantm@issp.ac.ru

трудно, практически невозможно, извлечь информацию о зависимости $B_{c2}(T)$. Для другого переход под влиянием поля смещается в область более низких температур либо вообще не деформируясь, как в обычных сверхпроводниках, либо деформируясь незначительно. Обычно это происходит в тех представителях семейств ВТСП, у которых $T_c \lesssim 20$ К. Для них естественно интерпретировать смещение перехода как результат разрушения сверхпроводимости полем – перестройка спектра и появление сверхпроводящего спаривания непременно должны отразиться на сопротивлении $R(T)$ независимо от механизма диссипативных процессов в сверхпроводящем состоянии. Принятие этого тезиса позволяет легко построить функцию $B_{c2}(T)$.

Практически во всех купратных ВТСП – в семействах на базе Тl [6] и Bi [7], в семействах LaSrCuO [8] и Nd(Sm)CeCuO [9–11], а также в YBaCuO, как в допированном Zn [12], так и при недостатке кислорода [13] – измеренная по сдвигу резистивного перехода функция $B_{c2}(T)$ имела положительную вторую производную во всем диапазоне температур $0 < T/T_c < 1$ и демонстрировала тенденцию к расходимости при малых T/T_c . Большинство дискуссий вокруг кривых $B_{c2}(T)$ концентрировалось именно на этой расходимости, как на наиболее ярком отклонении от теории БКШ. Вместе с тем, поведение функции $B_{c2}(T)$ вблизи T_c тоже весьма информативно. Вопреки ожиданиям, практически во всех случаях, когда в купратных ВТСП наблюдается параллельный сдвиг резистивного перехода с полем, экспериментальные данные указывают на нулевую производную $\partial B_{c2}/\partial T$ в точке T_c [6–13].

Производная от критического поля $\partial B_c/\partial T$ в точке T_c связана известной формулой Рутгерса с поведением свободной энергии F и теплоемкости C в этой точке:

$$\frac{1}{4\pi} \left(\frac{\partial B_c}{\partial T} \right)_{T_c}^2 = \frac{\partial^2}{\partial T^2} (F_s - F_n) = \frac{C_s - C_n}{T_c}. \quad (1)$$

Термодинамическое критическое поле B_c отлично от верхнего критического поля B_{c2} , поэтому (1) можно использовать лишь при качественном рассмотрении. Однако, будучи основано на термодинамике, это соотношение очень полезно.

В обычных сверхпроводниках $F_s - F_n \propto (T_c - T)^2$, теплоемкость испытывает скачок и поэтому B_c линейно по $(T_c - T)$. В случае БЭК $F_s - F_n \propto (T_c - T)^3$ и теплоемкость непрерывна на переходе [14]. Отсюда сразу следует $\partial B_c/\partial T = 0$ и

$$B_c \propto (T_c - T)^{3/2}. \quad (2)$$

Конечно, трудно себе представить, что газ фермионов при низких температурах вдруг превращается полностью в газ бозонов. В [4] предполагалось, что бозоны возникают в малых карманах k -пространства вблизи ферми-уровня. В изотропной модели речь может идти лишь о спаривании фермионов с достаточно большой энергией, как в теории БКШ. Тем не менее, соотношение (2) заслуживает серьезной экспериментальной проверки. Такова мотивация нашей работы – измерения и анализа смещения с полем резистивного перехода в монокристаллах $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4-y}$. Мы отдельно обсудим поведение поля B_{c2} вблизи T_c и при низких температурах.

Эксперимент. Монокристаллы $(NdCe)_2CuO_4$ выращивали в тиглях из диоксида циркония, стабилизированного иттрием, из шихты с соотношением компонентов (в молях) $Nd_2O_3 : CeO_2 : CuO = 1 : 0.05 : 11$. Был применен модифицированный режим роста, значительно сокращающий время взаимодействия расплава с тиглем при высокой температуре. Время гомогенизации раствора-расплава не превышало 1 ч при температуре около 1150 °С за счет использования ускоренно-замедленного вращения тигля, обеспечивающего интенсивное перемешивание расплава. Рост проводили при

медленном охлаждении (6 К/ч) в условиях морфологической устойчивости фронта кристаллизации ($dT/dx \geq 10$ К/см) в течение нескольких часов, затем тигель декантировали и охлаждали со скоростью 30–50 К/ч до комнатной температуры. Кристаллы имели форму пластинок толщиной около 20–40 мкм. Их состав был определен методом локального рентгеноспектрального анализа: $\text{Nd}_{1.82}\text{Ce}_{0.18}\text{CuO}_x$. Анализ обнаружил в кристаллах следы Zr на уровне 0.1 вес %. Исходно кристаллы не обнаруживали сверхпроводящего перехода до 4.2 К. Сверхпроводящий переход с $T_c \approx 20^\circ\text{C}$ появлялся после 15-часового отжига при 900°C в атмосфере аргона.

Измерения были сделаны на двух пластинках размерами примерно 1×2 мм. Контакты из серебряной пасты были вожжены на воздухе при температуре $\sim 350^\circ\text{C}$. На образце 1 четыре контакта располагались в ряд на одной стороне пластинки на расстоянии ~ 0.5 мм друг от друга. На образце 2 потенциальные контакты находились на противоположной стороне пластины под токовыми, что позволяло направлять измерительный ток как вдоль, так и поперек плоскостей ab . На результатах это не сказывалось. Сопротивление измерялось стандартным способом с помощью lock-in-нановольтметра на частоте 13 Гц. Измерительный ток был достаточно мал, чтобы обеспечить линейный режим и отсутствие признаков перегрева до самых низких температур. Магнитное поле было направлено по нормали к пластине, вдоль оси c . Измерения были сделаны в интервале температур²⁾ от 25 К до 25 мК. У обоих образцов сверхпроводящий переход в нулевом поле начинался примерно при 20.5 К.

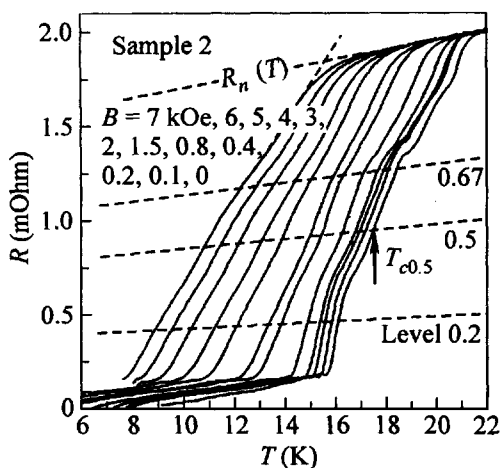


Рис.1. Кривые $R(T)$ на образце 2 в полях (справа налево) от 0 до 7 кЭ. Штриховыми линиями показаны прямая $R_n(T)$ и прямые на уровнях 0.67, 0.5 и 0.2 от $R_n(T)$. Показаны также способ определения начала перехода и полей T_{ci} , от которых отсчитываются смещения

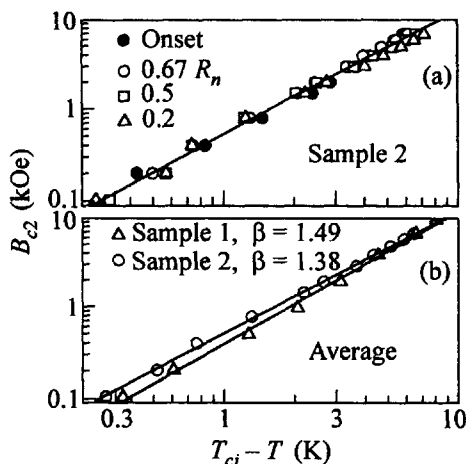


Рис.2. (а) Графики поля от величин смещений на разных уровнях в этом поле; (б) то же для усредненных смещений для двух образцов

Измерения на обоих образцах дали идентичные результаты. Рис.1 демонстрирует серию кривых $R(T)$ в области малых полей на образце 2. При высоких температурах все кривые выше перехода выходят на одну асимптоту $R_n(T)$ и можно считать, что при $T > 10$ –12 К функция R_n не зависит от B . Переход в нулевом поле имеет неко-

²⁾ Низкотемпературные измерения в сильных магнитных полях были выполнены в NHMFL (Таллахасси, Флорида, США).

торую структуру, которая, однако, сглаживается уже в поле 100–200 Э. В основном влияние поля сводится к сдвигу перехода в область более низких температур. То, в какой мере этот сдвиг параллельный, можно проверить, сравнивая смещение начала перехода и смещения функции $R(T)$ на разных уровнях: $0.2R_n$, $0.5R_n$, $0.67R_n$ (см. построения на рис.1). При параллельном сдвиге из всех построений должна получаться одна и та же функция $B_{c2}(\Delta T)$, где $\Delta T = T_{ci} - T$, а T_{ci} – температура, при которой реализуется соответствующий уровень на исходной кривой $R(T, B = 0)$. На рис. 2а, на графике в двойном логарифмическом масштабе разными символами нанесены смещения на всех четырех уровнях. Систематическое отклонение каких-либо определенных символов от прямой

$$B_{c2} = (\Delta T)^\beta, \quad (3)$$

построенной по результатам усреднения всех точек, невелико. Это означает, что искажения формы перехода по сравнению с его сдвигом незначительны. Разброс точек в малых полях обусловлен в первую очередь мелкой структурой на кривой $R(T, B = 0)$, которая является опорной при определении смещения ΔT . Коэффициент β определялся по наклону прямой, проведенной через усредненные значения смещений ΔT (рис.2 б). Обработка кривых с рис.1 дает $\beta \approx 1.4$, а аналогичных кривых для другого образца – $\beta \approx 1.5$.

Падение сопротивления в сравнительно узком температурном интервале происходило на обоих кристаллах не до нуля; на рис.1 видно, что с уровня ~ 0.1 начинается пологий хвост. На другом образце такой же хвост начинался с более высокого уровня, ~ 0.2 . В данной работе мы анализируем только верхнюю часть перехода, полагая, что перестройка электронного спектра в форму, характерную для сверхпроводящего состояния, происходит именно там.

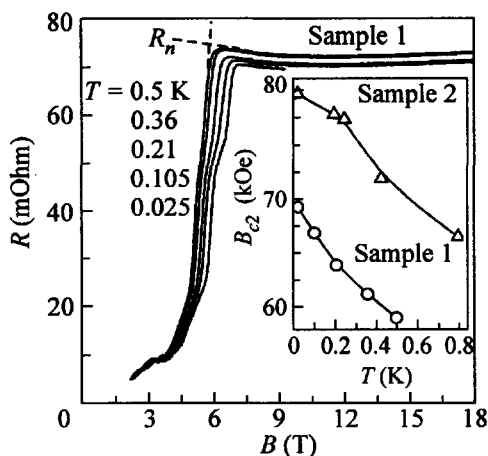


Рис.3. Кривые $R(B)$ на образце 1 при температурах (слева направо) от 0.5 К до 25 мК. На вставке: поле начала перехода при низких температурах на обоих образцах

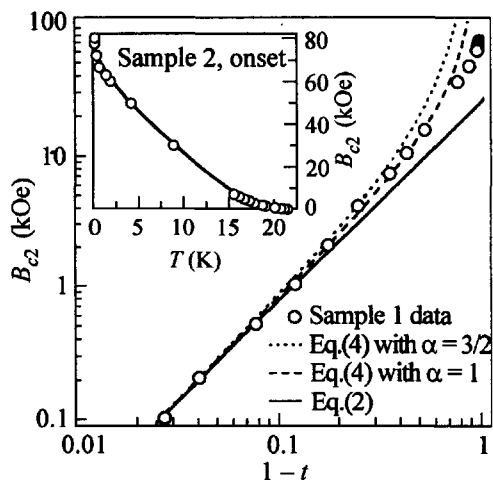


Рис.4. Сравнение экспериментальных значений B_{c2} для обр.1 с формулами (2) и (4). На вставке: обзорный график функции $B_{c2}(T)$ для обр. 2

На рис.3 представлены зависимости $R(B)$ при очень низких температурах, $T/T_c < 0.05$. В этой области нормальное сопротивление уже зависит от магнитного поля, но эта зависимость слабая и начало перехода хорошо выражено, а его смещение

легко фиксируется даже при изменении температуры ниже $T/T_c = 0.005$. При рассмотрении зависимостей $B_{c2}(T)$ в этой области (см. вставку на рис.3) обращают на себя внимание два обстоятельства. Во-первых, нет тенденции к расходимости B_{c2} вблизи нулевой температуры: ниже 0.5 К зависимость $B_{c2}(T)$, хотя и имеет большую производную, в пределах точности эксперимента линейна и экстраполируется к конечному значению $B_{c2}(0)$ (аналогичный результат был получен ранее на таллиевых кристаллах [6]). Во-вторых, значения критического поля при низкой температуре – 69 и 80 кЭ для образцов 1 и 2, соответственно, – различаются более чем на 10%, несмотря на то, что кристаллы были изготовлены в одной партии и их T_c совпадают.

Обзорный график $B_{c2}(T)$ во всем температурном интервале представлен на вставке рис.4; как и в других купратных ВТСП, вторая производная $\partial^2 B_{c2}/\partial T^2 \geq 0$ при всех температурах (ср., например, с [6, 7]).

Обсуждение. Как следует из предыдущего раздела, наши данные для окрестности T_c согласуются, в пределах имеющейся точности, с формулой (2). Было бы интересно сопоставить их с данными по теплоемкости, но, к сожалению, в работах, где измерялась теплоемкость $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-y}$ [15], вклад критических флуктуаций вблизи T_c не выделялся. Однако известно, что измерения теплоемкости ВТСП показывают сильное отличие от обычных сверхпроводников [16], хотя и не позволяют сделать выбор между моделями БКШ и БЭК. Возникающие проблемы можно проиллюстрировать сравнением результатов измерений сопротивления и теплоемкости, сделанных на таллиевом ВТСП. Явного скачка в теплоемкости там нет даже в нулевом поле, хотя наличие вклада от критических флуктуаций в температурном интервале 16–10 К несомненно [17]; в поле 0.4 Тл этот вклад уменьшается раза в 2, но практически не сдвигается вдоль температурной шкалы. Вместе с тем, согласно резистивным измерениям, сделанным той же экспериментальной группой [6], поле 0.4 Тл сдвигает переход на 25%, с 16 до 12 К.

Любопытное замечание в связи с этим противоречием имеется в работе [18], где численно рассчитана теплоемкость идеального заряженного бозе-газа в слабом магнитном поле. Известно, что в однородном магнитном поле в идеальном заряженном бозе-газе БЭК не происходит [19] из-за наличия расходимости в плотности состояний на нижнем уровне Ландау спектра заряженных бозонов. Это означает, что переход реализуется лишь в изолированной точке на плоскости (T, B) . Масштаб магнитного поля в этой плоскости задается сравнением циклотронной энергии $\hbar e B/mc$ с T_c . Взяв в качестве e и m заряд и массу свободного электрона, получим при $T_c = 16$ К характерное поле 8 Тл. В этом масштабе поле 0.4 Тл, о котором говорилось выше, равно всего 0.05. Пока поле мало, при изменении T мы по-прежнему проходим окрестность точки перехода на (T, B) -плоскости, но по мере роста поля “прицельное расстояние” фазовой траектории растет, а вклад критических флуктуаций уменьшается. Однако температурный интервал, в котором траектория приближается к переходу, не меняется. И если переход является БЭК в слабо неидеальном заряженном бозе-газе, то при более низкой температуре, когда он реализуется в поле, этого вклада уже не видно. Тогда, как это ни парадоксально, из резистивных измерений получается более надежная информация о положении перехода, чем из измерений теплоемкости.

В свете результатов в непосредственной окрестности T_c поведение функции $B_{c2}(T)$ следует сравнить с предсказаниями моделей сверхпроводимости в неидеальном бозе-газе. При слабой неидеальности из-за рассеяния бозонов на примесях или

из-за их взаимодействия между собой критическое поле ведет себя как [20]

$$B_{c2} \propto t^{-\alpha}(1 - t^{3/2})^{3/2}, \quad t = T/T_c, \quad (4)$$

где степень α , в зависимости от конкретной модели, равна 1 или 3/2 [20, 21]. При $t \rightarrow 1$ зависимость (4) выходит на асимптотику (2). Как видно из рис.4, экспериментальные точки отклоняются от асимптоты в правильную сторону и в целом неплохо соответствуют (4). Более детальное сравнение вряд ли уместно, поскольку теории [20, 21] не учитывают разрушение пар на фермионы в магнитном поле.

Заключение. В монокристаллах $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-y}$ при введении поля искажение формы резистивного сверхпроводящего перехода существенно меньше его смещения. Это позволяет измерить зависимость $B_{c2}(T)$. При приближении к T_{c0} поле B_{c2} ведет себя как степенная функция $B_{c2} \propto (\Delta T)^\beta$ с $\beta \approx 1.5$ и, соответственно, с горизонтальной касательной $\partial B_{c2}/\partial T = 0$. Это должно означать отсутствие скачка теплоемкости при фазовом переходе в нулевом поле. Именно такое поведение теплоемкости и критического поля ожидается при БЭК заряженного бозе-газа. Поэтому один из возможных выводов из подобного поведения $B_{c2}(T)$ вблизи T_c заключается в том, что описание сверхпроводимости в ВТСП должно включать элементы БЭК, то есть предполагать у фермионов вблизи ферми-уровня тенденцию к образованию бозонов при температурах выше T_c . Зависимость B_{c2} от T сохраняется вплоть до самых низких температур, однако, возможно, что там значения B_{c2} зависят от структурных дефектов.

Авторы благодарны А.А.Абрикосову, Л.П.Горькову и В.П.Минееву за полезные дискуссии. Эксперименты в NHMFL проводились в рамках программы кооперации между NHMFL и учеными из СНГ. Работа выполнена при поддержке грантов РФФИ (# 99-02-16117), РФФИ-PICS (# 98-02-22037), госконтракта 107-2(00)-П и программы "Статфизика" Министерства науки России.

1. J.R.Waldram, *Superconductivity of Metals and Cuprates*, Institute of Physics Publishing, 1996.
2. V.Emery and S.Kivelson, *Nature* **374**, 434 (1995).
3. L.V.Ioffe and A.J.Millis, *Phys. Rev.* **B54**, 3645 (1996).
4. V.B.Geshkenbein, L.B.Ioffe, and A.I.Larkin, *Phys. Rev.* **B55**, 3173 (1997).
5. N.R.Werthamer, E.Helfand, and C.Hohenberg, *Phys. Rev.* **147**, 295 (1966).
6. A.P.Mackenzie, S.R.Julian, G.G.Lonzarich et al., *Phys. Rev. Lett.* **71**, 1238 (1993); A.Carrington, A.P.Mackenzie, D.C.Sinclair, and J.P.Cooper, *Phys. Rev.* **B49**, 13243 (1994).
7. M.S.Osofsky, R.J.Soulen, Jr., S.A.Wolf, et al., *Phys. Rev. Lett.* **71**, 2315 (1993); *Journal of Supercond.* **7**, 279 (1994).
8. M.Suzuki and M.Hikita, *Jpn. Journal of Appl. Phys.* **28**, L1368 (1989).
9. Y.Hidaka and M.Suzuki, *Nature* **338**, 635 (1989); M.Suzuki and M.Hikita, *Phys. Rev.* **B41**, 9566 (1990).
10. Y.Dalichaouch, B.W.Lee, C.L.Seaman et al., *Phys. Rev. Lett.* **64**, 599 (1990).
11. S.H.Han, C.C.Almasan, M.C.de Andrade et al., *Phys. Rev.* **B46**, 14290 (1992).
12. D.J.C.Walker, O.Laborde, A.P.Mackenzie et al., *Phys. Rev.* **B51**, 9375 (1995).
13. В.Ф.Гантмахер, Г.Э.Цыдынжапов, Л.П.Козеева, А.Н.Лавров, *ЖЭТФ* **115**, 268 (1999).
14. Л.Д.Ландау и Е.М.Лифшиц, *Статистическая физика*, Наука, Москва, 1964.
15. E.Maiser, W.Mexner, R.Schäfer et al., *Phys. Rev.* **B56**, 12961 (1997).
16. A.Junod, M.Roulin, B.Revaz, and A.Erb, *Physica* **B280**, 214 (2000).
17. A.Carrington, A.P.Mackenzie, and A.Tyler, *Phys. Rev.* **B54**, R3788 (1996).
18. A.S.Alexandrov, W.H.Beere, V.V.Kabanov, and W.Y.Liang, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 1551 (1997).
19. M.R.Shafroth, *Phys. Rev.* **100**, 463 (1955).
20. R.Micnas, J.Ranninger, and S.Robaszkiewicz, *Rev. Mod. Phys.* **62**, 113 (1990).
21. A.S.Alexandrov, *Phys. Rev.* **B48**, 10571 (1993).