Единая аномалия верхнего критического магнитного поля $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$, $HoBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ и $Nd_{1.85}Ce_{0.15}CuO_{4-\delta}$, облученных ионами гелия

© С.И. Красносвободцев, Н.П. Шабанова, В.С. Ноздрин, А.И. Головашкин

Физический институт им. П.Н. Лебедева Российской академии наук, 117924 Москва, Россия

E-mail: natalia@shab.akzo.msk.ru

(Поступила в Редакцию 24 августа 1998 г. В окончательной редакции 1 февраля 1999 г.)

Для высокотемпературных сверхпроводников YBa₂Cu₃O_{7- δ} и HoBa₂Cu₃O_{7- δ} и Nd_{1.85}Ce_{0.15}CuO_{4- δ} обнаружена общая аномалия в изменении верхнего критического магнитного поля в результате облучения энергичными ионами гелия. При многократном росте удельного сопротивления ρ отсутствует характерное для обычных сверхпроводников повышение H_{c2} из-за рассеяния на радиационных дефектах. В рамках обычного механизма аномалия может быть объяснена существенным снижением концентрации электронов проводимости в результате потери кислорода, что вызывает значительный рост ρ при слабом изменении рассеяния.

Верхнее критическое магнитное поле H_{c2} является одной из важнейших характеристик сверхпроводников 2-го рода и, согласно классическим представлениям, определяется фундаментальными параметрами электронной структуры, а также параметрами, характеризующими рассеяние электронов проводимости [1–6]. Рассеяние повышает верхнее критическое магнитное поле H_{c2} , препятствуя ларморовскому закручиванию электронов в магнитном поле, вызывающему распад куперовских пар в конденсате [5,7]. В обычных сверхпроводниках с фононным механизмом (Nb₃Sn [8–10] и NbC [8,11,12]) имеющиеся представления получили надежное экспериментальное подтверждение.

Для высокотемпературных сверхпроводников (ВТСП) характер изменения H_{c2} из-за рассеяния электронов не изучен. Проведение исследований в этом направлении представляется актуальным для выяснения механизма высокотемпературной сверхпроводимости.

Предпринятые нами систематические экспериментальные исследования критических параметров купратов YBa₂Cu₃O_{7- δ} (YBCO), HoBa₂Cu₃O_{7- δ} (HBCO) [8,13] и Nd_{1.85}Ce_{0.15}CuO_{4- δ} (NCCO) [14,15] при последовательном изменении концентрации дефектов посредством облучения энергичными ионами гелия дали неожиданный результат [16]. Обнаружено резкое отличие характера изменения H_{c2} высокотемпературных сверхпроводников от обычных. В настоящей работе приводятся новые экспериментальные данные и рассматриваются возможные причины обнаруженной аномалии.

1. Эксперимент

Исследовались эпитаксиальные ВТСП пленки YBCO, НВСО и NCCO с ориентированной перпендикулярно поверхности монокристаллической подложки осью *с*. Технологические детали методики in situ синтеза пленок с оптимальными параметрами при лазерном распылении изложены в работах [17,18].

Изменение концентрации дефектов проводилось облучением пленок энергичными ионами. Для достижения бо́льшей однородности распределения радиационных дефектов использовались самые легкие ионы ионы гелия He⁺ и He⁺⁺ с энергией, обеспечивающей их пробег в кристаллической решетке выше толщины образца (~ 200 keV и 3.6 MeV в зависимости от толщины пленки). Облучение проводилось при комнатной температуре [8,12–16].

В эксперименте температурная зависимость верхнего критического магнитного поля $H_{c2}(T)$ определялась по температурному сдвигу сверхпроводящего перехода, вызванному перпендикулярным пленке магнитным полем [8]. Сверхпроводящий переход измерялся по сопротивлению.

Для соединения NCCO магнитное поле вызвало температурный сдвиг достаточно резкого резистивного перехода при его слабом температурном уширении, что позволило определить фазовую кривую $H_{c2}(T)$ с достаточной точностью [14,15]. Температура фазового перехода в магнитном поле, отвечающая $H_{c2}(T)$, видимо, несколько ближе к началу резистивного перехода $\rho - \rho_n$ [19]. Действительно, для этого соединения зависимость $H_{c2}(T)$, определенная по температурному сдвигу начала перехода, как показано нами в [15], практически линейна (рис. 1, *a*), в согласии с теорией Гинзбурга–Ландау для сверхпроводников 2-го рода вблизи T_c .

Для YBCO и HBCO подобное определение $H_{c2}(T)$ затруднено сильным возрастанием ширины перехода при повышении магнитного поля [20]. Тем не менее для этой группы ВТСП при определении температурной зависимости верхнего критического поля за температуру сверхпроводящего перехода в магнитном поле мы принимали точку, в которой удельное сопро-

тивление нормального состояния вблизи перехода ρ_n упало вдвое (середина перехода). Полученный результат используется для качественного сравнения с результатами для обычных и ВТСП материалов, где уширение незначительно.

Температурные зависимости верхнего критического поля NCCO для исходных и облученных образцов приведены на рис. 1, *a*. Для сравнения там же (рис. 1, *b*) показано, как изменяется $H_{c2}(T)$ при облучении NbC. В случае NbC наблюдается типичное для классического сверхпроводника возрастание наклона температурной зависимости H_{c2} при повышении концентрации радиационных дефектов [8,12]. Для высокотемпературного сверхпроводника NCCO величина $-dH_{c2}/dT$ сохраняется даже при значительном снижении критической температуры T_c . В случае YBCO и HBCO наблюдалось даже снижение наклона температурной зависимости верхнего критического магнитного поля в результате облучения (рис. 2, *a*).



Рис. 1. Температурные зависимости верхнего критического магнитного поля $H_{c2}(T)$ пленок, облученных различными флюенсами *F* ионов He⁺. *a* — Nd_{1.85}Ce_{0.15}CuO_{4- δ}, *F* (cm⁻²): *I*, *I'* — 0, *2*, *2'* — 1 · 10¹³, *3*, *3'* — 1 · 10¹⁴, *4* — пленка с недостатком кислорода [19]; *b* — NbC, *F* (cm⁻²): *I* — 0, *2* — 3 · 10¹⁴, *3* — 1.4 · 10¹⁵, *4* — 5 · 10¹⁵, *5* — 3 · 10¹⁶.



Рис. 2. Изменение наклона $-dH_{c2}/dT$ температурной зависимости верхнего критического магнитного поля $H_{c2}(T)$ с ростом удельного сопротивления ρ_n в результате облучения для ВТСП соединений YBa₂Cu₃O_{7- δ}, HoBa₂Cu₃O_{7- δ} (*a*) и сверхпроводника NbC (*b*). Сплошная линия — эксперимент, штриховая — оценки теории ГЛАГ. I — вклад рассеяния по теории ГЛАГ.

2. Аномальное изменение H_{c2} ВТСП соединений $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$, HoBa₂Cu₃O_{7- δ} и Nd_{1.85}Ce_{0.15}CuO_{4- δ} в результате облучения

Верхнее критическое поле сверхпроводника 2-го рода в отсутствие рассеяния определяется параметрами электронной структуры: $-dH_{c2}^0/dT \sim T_c/\langle v^{*2}\rangle \sim T_cm/E_F$ [3,6,8]. Здесь $\langle v^2 \rangle$ — средний по поверхности Ферми квадрат компоненты скорости Ферми v, перпендикулярной направлению магнитного поля, v^* отвечает перенормированной скорости Ферми материала с сильным электрон-фононным взаимодействием, m — эффективная электронная масса, E_F — энергия Ферми.

В обычных сверхпроводниках рассеяние электронов проводимости на радиационных дефектах повышает

верхнее критическое магнитное поле. Согласно классической теории Гинзбурга–Ландау–Абрикосова–Горькова (ГЛАГ), для сверхпроводников 2-го рода вблизи T_c вклад рассеяния в величину H_{c2} растет пропорционально величине $N^*(0)\rho_n$ [5], где $N^*(0)$ — перенормированная плотность электронных состояний на уровне Ферми, а ρ_n является мерой рассеяния.

Таким образом, в реальном сверхпроводнике наклон температурной зависимости верхнего критического поля H_{c2} выражается следующим образом: $-dH_{c2}/dT \sim -dH_{c2}^0/dT + N^*(0)\rho_n$ [11].

Чистое слагаемое $-dH_{c2}^0/dT$, определяющееся величиной $T_c/\langle v^{*2} \rangle$, неизменно, пока электронная структура материала сохраняется. Величина T_c не меняется из-за рассеяния на нормальных примесях и дефектах (согласно теореме Андерсона [21]). При достаточно высокой дефектности чистое слагаемое может относительно медленно изменяться в силу размытия поверхности Ферми и снижения критической температуры.

Вклад рассеяния, пропорциональный $N^*(0)\rho_n$, вызывает рост H_{c2} с увеличением числа рассеивающих центров в том случае, когда их количество не приводит к существенному изменению электронной структуры. В противном случае может наблюдаться резкое уменьшение $N^*(0)$, приводящее к снижению H_{c2} [8,10].

На рис. 2 представлены результаты исследований верхнего критического магнитного поля высокотемпературных сверхпроводников YBCO, HBCO, облученных различными дозами энергичных ионов гелия. (Вблизи T_c величина критического поля при заданной температуре определяется наклоном $-dH_{c2}/dT$). Для сравнения на том же рисунке приведены результаты для классического сверхпроводника NbC.

В случае сверхпроводящего соединения NbC рассеяние на радиационных дефектах приводит к росту H_{c2} в согласии с теорией ГЛАГ (рис. 2, *b*). Если использовать эти классические представления для ВТСП, то они прогнозируют аналогичную картину (рис. 2, *a*). Изменение H_{c2} YBCO и HBCO за счет рассеяния (штриховая линия) рассчитано по изменению длины свободного пробега электронов проводимости *l*, оцененной нами в облученных пленках этих соединений [8].

Для исследованных здесь ВТСП соединений экспериментально наблюдаемое поведение верхнего критического магнитного поля резко отличалось от следующего из классических представлений. В частности, при повышении концентрации радиационных дефектов в области выполнения теоремы Андерсона ($T_c \approx \text{const}$), где нет оснований ожидать существенных изменений величины $N^*(0)$, H_{c2} рассматриваемых ВТСП должно повыситься за счет рассеяния не менее чем в 2–3 раза [8,13–16]. Однако в эксперименте этого не наблюдалось (см. рис. 1, *a* и 2, *a*).

3. Возможные причины аномального изменения *H*_{c2} сверхпроводящих купратов

Если рост удельного сопротивления обусловлен рассеянием электронов проводимости на радиационных дефектах, то полученный результат противоречит обычным представлениям, согласно которым критическое поле возрастает из-за рассеяния. Наблюдаемое изменение H_{c2} ВТСП в результате ионного облучения близко к изменению чистого слагаемого (рис. 3). Тем не менее мы попытались найти объяснение этого эффекта, оставаясь в рамках обычного механизма.

1) В случае YBCO и HBCO мы предполагали, что определенное по серединам резистивных переходов критическое поле не отвечает H_{c2} . При этом приходилось считать, что резистивный переход значительно отличается от фазового в силу диссипативного движения вихрей и флуктуаций параметра порядка [13,20].

Однако исследование H_{c2} NCCO обнаружило наличие аналогичной аномалии при облучении. Сверхпроводящий переход этого купрата в магнитном поле достаточно резок для достоверного экспериментального определения $H_{c2}(T)$. Поэтому в целом объяснение данной аномалии существенным отличием резистивного перехода от фазового представляется малоубедительным.



Рис. 3. Экспериментальная зависимость критической температуры (1) и верхнего критического магнитного поля (2) от удельного сопротивления пленок Nd_{1.85}Ce_{0.15}CuO_{4- δ} (*a*) и HoBa₂Cu₃O_{7- δ} (*b*), облученных ионами гелия.

2) Результат не находит объяснения и в предположении, что верхнее критическое поле ВТСП определяется парамагнитным пределом H_p , а не разрушением куперовских пар вследствие ларморовского закручивания электронов (H_{c2}). Согласно [22], рассеяние должно ослаблять парамагнитное ограничение, т. е. препятствовать ориентации спинов в направлении магнитного поля. Следовательно, можно ожидать повышения H_p при облучении, что не находит подтверждения в эксперименте. Кроме того, оценка парамагнитного предела дает величину много больше наблюдаемой [16].

3) Можно рассматривать результат как отсутствие обычной взаимосвязи H_{c2} и удельного сопротивления ρ_n , обусловленное процессами протекания тока при неодно-родном характере повреждения.

В случае тонких пленок обычного сверхпроводящего соединения NbC облучение не приводило к неоднородности вплоть до максимальной дозы, когда концентрация дефектов повышалась более чем на порядок [12]. На это указывает резкий сверхпроводящий переход по динамической магнитной восприимчивости (индуктивный переход) в облученных образцах.

Для NCCO наблюдалось размытие индуктивного сверхпроводящего перехода в результате облучения, что свидетельствует об образовании некоторой неоднородности. Возможной причиной этого могут быть слабые атомные связи цепочечного и апикального кислорода, характерные для купратов. Мы предположили, что в результате удара энергичной частицы образуется обедненная кислородом область, размер которой сравним с длиной когерентности. В силу перераспределения тока в неоднородном сверхпроводнике в условиях магнитного поля величина сопротивления нормального состояния ρ_n может не отвечать материалу, H_{c2} которого измерено.

Однако некоторые экспериментальные факты трудно объяснить неоднородностью. В рамках обычного механизма разумно предположить, что в неоднородной системе критическое поле также неоднородно. Такой сверхпроводник в силу сложного протекания тока в условиях магнитного поля должен напоминать поликристалл анизотропного сверхпроводника, подробно рассмотренный в работах [23,24]. Ширина резистивного перехода такого материала растет при повышении приложенного магнитного поля. При этом низкотемпературная часть перехода (конец) отвечает области с минимальным значением H_{c2} , а температура начала перехода определяется величинами максимального и минимального критических полей. Однако мы не нашли роста полевого уширения перехода NCCO в магнитном поле при возникновении радиационной неоднородности.

4) Следует учитывать, что при облучении ВТСП существенные изменения критических и транспортных параметров происходят при флюенсах на 1–2 порядка меньших, чем для обычных материалов [25,26]. При таких флюенсах (10¹³–10¹⁵ 1/сm²) в обычных сверхпроводниках подобные изменения только начинаются. Чувствительность ВТСП к облучению можно объяснить

выходом слабосвязанного кислорода. При этом радиационная дефектность по атомам металла низка из-за низких доз, а дефектность по кислороду (δ) в принципе мала (несколько процентов даже при выходе кислорода, приводящем к потере сверхпроводимости). Таким образом, рассеяние меняется слабо. Тогда эффект облучения аналогичен эффекту изменения кислородного состава пленок.

Можно полагать, что в этом случае изменение параметров ВТСП вызвано главным образом изменением концентрации электронов проводимости *n*. В частности, наблюдаемый рост удельного сопротивления $\rho \sim mv/nl$ относится за счет уменьшения *n*, а не повышения концентрации рассеивающих центров. В чистом пределе слабое изменение критического поля объясняется близким темпом снижения *T_c* и уровня Ферми: $-dH_{c2}/dT \sim T_cm/E_F$.

Таким образом, для двух типов высокотемпературных сверхпроводников $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$, $HoBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ и $Nd_{1.85}Ce_{0.15}CuO_{4-\delta}$ при многократном росте удельного сопротивления, вызванном облучением энергичными ионами гелия, наблюдалось аномально слабое изменение определенного из резистивных измерений верхнего критического магнитного поля, сходное с изменением H_{c2} чистого материала в отсутствие рассеяния электронов.

На основе обычных представлений обнаруженную аномалию нельзя объяснить резким отличием измеренного критического поля от фазовой кривой $H_{c2}(T)$ в результате уширения перехода (1) или парамагнитным распариванием (2). Предположение (3) о том, что причиной проявления аномалии является неоднородность радиационных повреждений, также не объясняет всех фактов. Наиболее вероятным объяснением (4) в рамках обычного механизма нам представляется уход кислорода при облучении, вызывающий значительное изменение концентрации электронов проводимости. При этом, как показано, изменение концентрации дефектов кристаллической решетки как центров рассеяния мало.

Мы допускаем, что причиной аномального поведения H_{c2} при облучении высокотемпературных сверхпроводников может являться и необычный механизм сверхпроводимости, при котором длина когерентности конденсата слабо чувствительна к изменениям в системе электронов проводимости. Нефононный механизм спаривания электронов, например экситонный [27,28], может объяснить высокие T_c сверхпроводящих купратов. Однако в рамках представлений о когерентном спаривании в системе электронов проводимости остается непонятным, почему их рассеяние не влияет на длину когерентности и H_{c2} . В такой ситуации представляется интересной гипотеза о сверхпроводимости другой группы носителей.

Работа выполнена при поддержке Научного совета РНТП Актуальные направления физики конденсированных сред, направление "Сверхпроводимость" (грант № 98027) Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 96-02-19696).

Список литературы

- [1] В.Л. Гинзбург. ЖЭТФ 23, 236 (1952).
- [2] Л.П. Горьков. ЖЭТФ 37, 1407 (1959).
- [3] Л.П. Горьков, Т.К. Мелик-Бархударов. ЖЭТФ 45, 1493 (1963).
- [4] E. Helfand, N.R. Werthamer. Phys. Rev. 147, 288 (1966).
- [5] N.R. Werthamer. Superconductivity / ed. by R.D. Parks, Dekker Marcel. N. Y., 1, 321 (1969).
- [6] W.H. Butler. Phys. Rev. Lett. 44, 1516 (1980).
- [7] Е.З. Мейлихов, В.Г. Шапиро. Сверхпроводимость: физика, химия, техника 4, 1437 (1991).
- [8] Н.П. Шабанова, С.И. Красносвободцев, В.С. Ноздрин, А.И. Головашкин. ФТТ **38**, 1969 (1996).
- [9] А.И. Головашкин, Е.В. Печень, Н.П. Шабанова. Труды ФИАН 190. 128 (1988).
- [10] A.I. Golovashkin, N.P. Shabanova. Physica C185–189, 2709 (1991).
- [11] С.И. Красносвободцев, Н.П. Шабанова, Е.В. Екимов, В.С. Ноздрин, Е.В. Печень. ЖЭТФ 108, 970 (1995).
- [12] N.P. Shabanova, S.I. Krasnosvobodtsev, V.S. Nozdrin, E.V. Pechen, A.V. Varlashkin, S.V. Antonenko, G.I. Zhabrev, A.I. Golovashkin. Czech. J. Phys. 46, 853 (1996).
- [13] N.P. Shabanova, A.I. Golovashkin, E.V. Pechen, S.V. Antonenko, V.F. Elesin, V.E. Zhuchkov. Physica C235–240, 1355 (1994).
- [14] С.И. Красносвободцев, Н.П. Шабанова, В.С. Ноздрин, Е.В. Печень, А.И. Головашкин. Краткие сообщения по физике 1–2, 20 (1998).
- [15] S.I. Krasnosvobodtsev, N.P. Shabanova, V.S. Nozdrin, E.V. Pechen, S.V. Antonenko, G.I. Zhabrev, A.I. Golovashkin. Physica C282–287, 1291 (1997).
- [16] В.С. Ноздрин, Н.П. Шабанова, В.А. Дравин, С.И. Красносвободцев. Краткие сообщения по физике 5, 3 (1998).
- [17] A.I. Golovashkin, E.V. Ekimov, S.I. Krasnosvobodtsev, V.P. Martovitsky, E.V. Pechen. Physica C162–164, 715 (1989).
- [18] В.С. Ноздрин, С.И. Красносвободцев, О.М. Иваненко, П.В. Братухин, К.В. Мицен. Письма в ЖТФ 22, 24, 1 (1996).
- [19] J. Herrmann, M.C. Andrade, C.C. Almasan, R.P. Dickey, M.B. Maple, Wu Jiang, S.N. Mao, R.L. Greene. Phys. Rev. B54, 3610 (1996).
- [20] N.P. Shabanova, E.V. Pechen, S.V. Antonenko, V.F. Elesin, V.E. Zhuchkov. Physica C235–240, 1341 (1994).
- [21] P.W. Anderson. J. Phys. Chem. Solids 11, 26 (1959).
- [22] N.R. Werthamer, E. Helfand, P.C. Hohenberg. Phys. Rev. 147, 295 (1966).
- [23] Л.И. Глазман, А.Е. Кошелев, А.Г. Лебедь. Письма в ЖЭТФ 46, 148 (1988).
- [24] Л.И. Глазман, А.Е. Кошелев, А.Г. Лебедь. ЖЭТФ 94, 259 (1988).
- [25] С.В. Антоненко, А.И. Головашкин, В.Ф. Елесин, И.А. Есин, В.Е. Жучков, С.И. Красносвободцев, Е.В. Печень, И.А. Руднев. Письма в ЖЭТФ 47, 260 (1988).
- [26] В.Ф. Елесин, И.А. Руднев. Сверхпроводимость: физика, химия, техника 4, 2055 (1991).
- [27] В.Л. Гинзбург. ЖЭТФ 47, 2318 (1964).
- [28] W.A. Little. Phys. Rev. 134, A1416 (1964).