

Влияние высокого давления на электросопротивление интеркалированных дейтерием монокристаллов 2H-NbSe_2

В.И. Белецкий¹, Х.Б. Чашка², А.Н. Соколов¹, Р.В. Вовк¹

¹*Харьковский национальный университет им. В.Н. Каразина
пл. Свободы, 4, г. Харьков, 61022, Украина
E-mail: r.v.vovk@mail.ru*

²*Technion Institute of Technology, Technion City, Haifa, 32000, Israel
E-mail: chashka@ph.technion.ac.il*

Статья поступила в редакцию 24 февраля 2015 г., после переработки 18 марта 2015 г.,
опубликована онлайн 23 мая 2015 г.

Исследовано влияние гидростатического давления до 13 кбар на сверхпроводящий переход и электросопротивление в интервале температур 4,2–50 К интеркалированных дейтерием образцов 2H-NbSe_2 . Показано, что рост T_c в интеркалированных образцах не может быть связан только с подавлением волны зарядовой плотности (ВЗП). Для более полного объяснения эффекта возрастания T_c необходимо учесть изменение плотности электронных состояний на уровне Ферми, не связанное с ВЗП, а также изменение константы электрон-фононной связи, вызванное давлением.

Досліджено вплив гідростатичного тиску до 13 кбар на надпровідний перехід і електроопір в інтервалі температур 4,2–50 К інтеркальованих дейтерієм зразків 2H-NbSe_2 . Показано, що зростання T_c в інтеркальованих зразках не може бути пов'язано тільки з пригніченням хвилі зарядової густини (ХЗГ). Для більш повного з'ясування ефекту зростання T_c необхідно врахувати змінення густини електронних станів на рівні Фермі, не пов'язане з ХЗГ, а також змінення сталої електрон-фононного зв'язку, обумовлене тиском.

PACS: 74.78.–w Низкоразмерные сверхпроводящие структуры.

Ключевые слова: низкоразмерные сверхпроводники, сверхпроводящий переход, волна зарядовой плотности.

В последние два десятилетия наряду с исследованием анизотропных высокотемпературных сверхпроводников не ослабевал интерес к изучению сверхпроводящих свойств дихалькогенидов переходных металлов (ДПМ), относящихся к классу веществ с пониженной размерностью. Среди них квазидвумерное соединение 2H-NbSe_2 занимает особое место, так как является сверхпроводником с наивысшей в этом классе веществ температурой сверхпроводящего перехода $T_c \approx 7-7,2$ К [1].

Благодаря относительно слабой (ван-дер-ваальсовой) связи между халькогенидными слоями коэффициент сжимаемости этого соединения анизотропный (перпендикулярно слоям в семь раз больше, чем вдоль слоев). Квазидвумерный характер соединения способствует возникновению при температуре ~ 33 К фазового перехода типа волны зарядовой плотности (ВЗП), с

которым связывают появление энергетической щели над частью поверхности Ферми. Связанное с этим понижение плотности состояний может уменьшать T_c [2]. В ряде работ авторы указывают на возможные параллели в описании состояния с ВЗП в ДПМ и псевдощелевого состояния в ВТСП [3,4].

До настоящего времени влияние давления на T_c исследовалось только в чистом соединении 2H-NbSe_2 [5–7], в NbSe_2 с контролируемым отклонением от стехиометрии по Nb [8] и в NbSe_2 с частичной заменой ниобия оловом [9,10]. В этих работах наблюдался близкий к линейному рост T_c с $dT_c/dP = 0,05$ К/кбар. Представляется интересным изучить влияние гидростатического давления на T_c интеркалированного дейтерием кристалла. При интеркаливании двумерность усиливается, T_c , как правило, понижается [11], а всестороннее

сжатие, наоборот, трехмеризует кристалл. Использование в качестве интеркалянта дейтерия или водорода, являющихся по отношению к NbSe₂ донорами, имеет то преимущество, что при малости размера атома и простоте электронной структуры интеркалянта позволяет изменять электронную структуру матрицы без существенных искажений кристаллической решетки.

В настоящей работе приведены результаты исследования влияния гидростатического давления приблизительно до 13 кбар на критическую температуру NbSe₂, интеркалированного ~ 2 ат.% дейтерия.

Монокристаллы 2H-NbSe₂ выращивали стандартным методом химических газотранспортных реакций в атмосфере йода в трехзонной печи [12]. Полученные монокристаллы представляли собой пластины с характерными размерами 10×7×0,1 мм. Из них вырезали образцы прямоугольной формы нужного размера. Отношение сопротивлений $R(300\text{ K})/R(8\text{ K})$, характеризующее чистоту образцов, составляло 30–35.

Интеркалирование образцов дейтерием проводилось из газовой фазы на установке, которая позволяла производить циклическое дейтерирование в области температур 20–500 °С и давлений 10⁵–10⁷ Па. Количество дейтерия определялось по контрольным образцам с помощью хроматографа.

Температурную зависимость электросопротивления образцов $R(T)$ измеряли стандартным четырехконтактным методом. Электрические контакты создавали с помощью проводящей серебряной пасты для избежания перегрева образцов во время подпайки и связанного с этим ухода дейтерия. Сопротивление измеряли в интервале температур 300–40 К через 2 К, в интервале 40–4,2 К — через 0,01 К. Гидростатическое давление создавали с помощью камеры типа поршень–цилиндр с фиксированным зажимом и измеряли манганиновым резистивным датчиком.

Экспериментальные результаты, полученные при исследовании влияния гидростатических давлений до $P = 13$ кбар на $R(T)$ образцов 2H-NbSe₂ интеркалированных дейтерием в интервале температур 5–40 К, представлены на рис. 1. Видно, что с возрастанием давления сопротивление уменьшается. Это связано с тем, что всестороннее сжатие приводит к сближению слоев и способствует перекрытию волновых функций проводящих электронов в соседних слоях [13].

На вставке к рис. 1 представлена форма сверхпроводящего перехода (СП) при различных давлениях. Температуру перехода T_c определяли как температуру, соответствующую значению $R/R_{\text{res}} = 0,5$ (R_{res} — остаточное сопротивление). При этом ширина перехода ΔT_c , определяемая как разность температуры начала и конца СП, когда $R = 0$, составляет: 0,15 К при $P = 0$; 0,22 К при $P = 7,3$ кбар и 0,19 К при $P = 12,7$ кбар.

При приложении давления одновременно с ростом T_c происходит уменьшение температуры T_{CDW} воз-

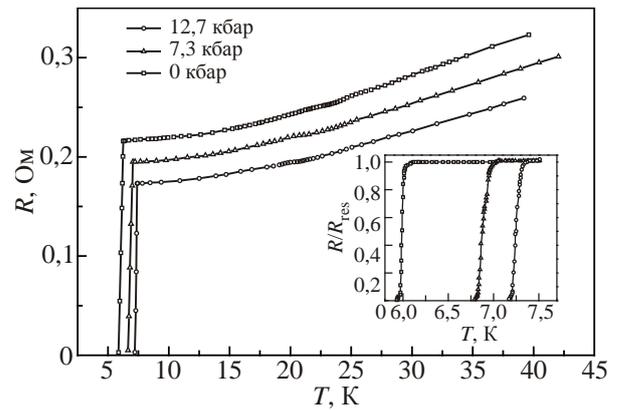


Рис. 1. Температурная зависимость сопротивления $R(T)$, интеркалированного дейтерием 2H-NbSe₂, при разных давлениях. На вставке: резистивные переходы в сверхпроводящее состояние при разных давлениях. Обозначения те же.

никновения структурной неустойчивости типа ВЗП. Это показано на рис. 2, где выделены участки в области температур вблизи T_c и T_{CDW} . Для сравнения на рис. 2 (верхняя часть) приведены барические зависимости T_c и T_{CDW} для чистого образца 2H-NbSe₂ из работы [8].

Температура возникновения ВЗП уменьшается по закону, близкому к линейному, со скоростью $dT_{CDW}/dP = -0,16$ К/кбар. Одновременно наблюдается возрастание T_c , причем в области давлений $P < 7$ кбар $dT_c/dP = 0,12$ К/кбар, в то время как в интервале $7\text{ кбар} < P < 13$ кбар $dT_c/dP = 0,07$ К/кбар. В указанных интервалах давлений величина dT_c/dT_{CDW} составляет соответственно $-0,75$ и $-0,45$, что в 5 и 3 раза больше по сравнению с аналогичными данными для чистого 2H-NbSe₂ и образца Nb_{1,02}Se₂ с $T_c = 6,3$ К при $P = 0$ [8]. По-видимому, такое изменение T_c в интеркалированном образце связано не только с подавлением ВЗП, как это предложено в работе [7].

Согласно формуле Макмиллана для сверхпроводников с сильной связью [14],

$$T_c = \frac{\theta_D}{1,45} \exp\left(-\frac{1,04(1+\lambda)}{\lambda - \mu^*(1+0,62\lambda)}\right), \quad (1)$$

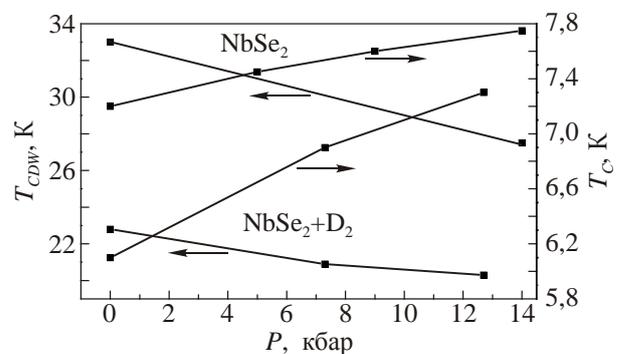


Рис. 2. Барические зависимости T_c и T_{CDW} чистого и интеркалированного образцов.

где θ_D — температура Дебая, μ^* — кулоновский псевдопотенциал, λ — константа электрон-фононной связи, давление (изменение объема) влияет на θ_D , λ и μ^* . Величины θ_D и $d\theta_D/dP$ для чистого и интеркалированного дейтерием образца практически одинаковы. Оценка по формуле Грюнаизена [15]

$$\frac{1}{\theta_D} \frac{\partial \theta_D}{\partial P} = \frac{\alpha V}{C_V}, \quad (2)$$

где α — коэффициент теплового расширения, C_V — теплоемкость, показывает, что величина $d\theta_D/dP$ на порядок меньше соответствующего изменения T_c с давлением. Большой относительный рост T_c можно качественно связать с особенностями зонной структуры NbSe₂ и, как следствие, с изменением $\lambda(P)$. Согласно расчетам [16], уровень Ферми в NbSe₂ лежит вблизи максимума плотности состояний $N(\varepsilon_F)$ узкой сильно гибридизированной подзоны, расположенной между полностью заполненной зоной, образованной p -состояниями Se, и частично заполненной зоной, образованной d -состояниями Nb. Если перенос заряда при интеркаляции смещает уровень Ферми в область склона кривой плотности состояний [17], то это может приводить к относительно большому изменению $N(\varepsilon_F)$ под давлением, а следовательно, и T_c . Ранее было показано [18], что около 10% интеркалированного водорода (дейтерия) находится в межслоином пространстве, в то время как на сверхпроводящие свойства влияет внутрислойный интеркалянт. Перераспределение межслоиного и внутрислойного дейтерия под давлением может служить дополнительной причиной изменения T_c . В пользу последнего предположения свидетельствует некоторое увеличение под давлением ширины сверхпроводящего перехода (вставка к рис. 1) и более выраженное проявление его ступенчатой формы. Подобная эволюция резистивного перехода в сверхпроводящее состояние в условиях приложения высокого давления наблюдалась и в ВТСП монокристаллах системы 1–2–3 [19], так же имеющих слоистую структуру и близкий параметр анизотропии [20,21]. Как показано в работе [22], подобные явления в такого рода структурах могут быть обусловлены процессами восходящей диффузии [23] при наличии в образце лабильной компоненты [24] (в нашем случае водорода или дейтерия). В настоящем кратком сообщении мы не проводим детальный анализ этих особенностей и электросопротивления при $T \geq T_{CDW}$, которые могут быть обусловлены специфическим поведением $R(T)$, связанным с сосуществованием различных механизмов проводимости [25].

Таким образом, в интеркалированном образце кроме предложенного ранее механизма увеличения T_c , связанного с подавлением ВЗП, возможны дополнительные механизмы, один из которых обусловлен переносом заряда с изменением плотности состояний $N(\varepsilon_F)$, что приводит к изменению зависимости $\lambda(P)$, а

следовательно, и усилению барической зависимости T_c , а второй связан с тем, что давление приводит к перераспределению лабильного дейтерия из межслоиного пространства внутрь слоя и связанного с этим дополнительного переноса заряда.

1. I. Wilson and A. Yoffe, *Adv. Phys.* **19**, 193 (1969).
2. D. Gerome, C. Berthier, P. Molinie, and J. Rouxel, *J. Phys. C* **4**, 125 (1977).
3. A.H. Castro Neto, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 4382 (2001).
4. S.V. Borisenko, A.A. Kordyuk, V.B. Zabolotny, D.S. Inosov, D. Evtushinsky, B. Buchner, A.N. Yeresko, A. Varykhanov, R. Follant, W. Eberhardt, and L. Patthey, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 166402 (2009).
5. T.F. Smith, L.E. DeLong, A.R. Moodenbaugh, T.H. Geballe, and R.E. Schwall, *J. Phys. C* **5**, L 230 (1972).
6. P. Molinie, D. Jerome, and A.J. Grant, *Philos. Mag.* **30**, 1091 (1974).
7. C. Bertier, P. Molinie, and D. Jerome, *Solid State Commun.* **18**, 1393 (1976).
8. T.F. Smith, R.N. Shelton, and R.E. Schwall, *J. Phys. F, Metal Phys.* **4**, 2009 (1974).
9. Kh.B. Chachka, M.A. Obolenskii, D.D. Balla, V.I. Beletskii, and R.V. Vovk, *Fiz. Nizk. Temp.* **19**, 450 (1993) [*Low Temp. Phys.* **19**, 317 (1993)].
10. M.A. Obolenskiy, D.D. Balla, A.A. Zavgorodniy, R.V. Vovk, Z.F. Nazyrov, I.L. Goulatis, M. Januszczuk, and J.N. Latosinska, *Acta Phys. Pol. A* **122**, 159 (2012).
11. М.А. Оболенский, В.И. Белецкий, Х.Б. Чашка, А.В. Бастеев, *ФНТ* **10**, 765 (1984) [*Sov. J. Low Temp. Phys.* **10**, 402 (1984)].
12. R. Kershaw, M. Vlasse, and A. Wold, *Inorg. Chem.* **6**, 1599 (1967).
13. R.F. Frindt, R.B. Murray, G.D. Pitt, and A.D. Yoffe, *J. Phys. C* **5**, 154 (1972).
14. W.L. McMillan, *Phys. Rev.* **167**, 331 (1968).
15. Ю.Н. Рябинин, К.П. Родионов, Е.С. Алексеев, *ЖТФ* **34**, 1913 (1964).
16. L. Mattheise, *Phys. Rev. Lett.* **30**, 784 (1973).
17. М.А. Оболенский, Х.Б. Чашка, В.И. Белецкий, В.М. Гвоздиков, *ФНТ* **15**, 984 (1989) [*Sov. J. Low Temp. Phys.* **15**, 544 (1989)].
18. А.В. Скрипов, А.П. Степанов, М.А. Оболенский, *ФНТ* **13**, 283 (1987) [*Sov. J. Low Temp. Phys.* **13**, 160 (1987)].
19. Д.Д. Балла, А.В. Бондаренко, Р.В. Вовк, М.А. Оболенский, А.А. Продан, *ФНТ* **23**, 1305 (1997) [*Low Temp. Phys.* **23**, 777 (1997)].
20. A. Chroneos, I.L. Goulatis, and R.V. Vovk, *Acta Chimica Slovenica* **54**, 179 (2007).
21. R.V. Vovk, G.Ya. Khadzhai, and O.V. Dobrovolskiy, *Mod. Phys. Lett. B* **28**, 1450245 (2014).
22. R.V. Vovk, G.Ya. Khadzhai, Z.F. Nazyrov, I.L. Goulatis, and A. Chroneos, *Physica B* **407**, 4470 (2012).
23. R.V. Vovk, Z.F. Nazyrov, M.A. Obolenskii, I.L. Goulatis, A. Chroneos, and V.M. Pinto Simoes, *Philos. Mag.* **91**, 2291 (2011).

24. R.V. Vovk, N.R. Vovk, A.V. Samoilo, I.L. Goulatis, and A. Chroneos, *Solid State Commun.* **170**, 6 (2013).
25. R.V. Vovk, Z.F. Nazyrov, I.L. Goulatis, and A. Chroneos, *Physica C* **485**, 89 (2013).

The effect of high pressure on temperature dependence of electrical resistance of the 2H-NbSe₂ single crystals intercalated with deuterium

V.I. Biletskyi, Kh.B. Chashka, A.N. Sokolov, and R.V. Vovk

The effect of hydrostatic pressure up to 13 kbar on superconducting transition and electrical resistivity in D-intercalated 2H-NbSe₂ samples was investigated

in the temperature range 4,2–50 K. It is shown that the growth of T_c in the intercalated samples cannot be associated with the suppression of the charge density wave (CDW) only. To provide a more comprehensive explanation of the effect of increasing T_c , the change in density of electronic states at the Fermi level not associated with CDW and as the change in electron-phonon coupling, caused by pressure should be taken into account.

PACS: **74.78.-w** Low dimensional superconducting structures.

Keywords: low-dimensional superconductors, superconducting transition, charge density wave.