

# Электрофизические свойства кристаллов, содержащих сверхпроводящие включения малых размеров

В. И. Сугаков, О. Н. Шевцова

Научный центр «Институт ядерных исследований» НАН Украины,  
пр. Науки, 47, г. Киев, 03680, Украина  
E-mail: shevtsova@naverex.kiev.ua

Статья поступила в редакцию 31 января 2000 г., после переработки 18 сентября 2000 г.

Исследовано влияние сверхпроводящих включений, находящихся в полупроводниковой или диэлектрической матрице, на электрофизические свойства диэлектрика. В предположении, что радиус включений меньше или порядка длины когерентности, определено критическое магнитное поле сферического единичного включения. Для кристалла с множеством включений рассчитана зависимость проводимости от температуры и магнитного поля. При расчетах проводимости предполагалось, что концентрация включений недостаточна для появления сверхпроводимости во всем образце (т.е. ниже порога протекания). Показано, что наличие сверхпроводящих включений приводит к резкому увеличению проводимости образца при низких температурах и сильной зависимости проводимости от магнитного поля (магнитосопротивлению). Магнитосопротивление обусловлено подавлением сверхпроводимости во включениях с ростом магнитного поля. Изучено влияние разброса размеров включений на температурную и магнитополевую зависимости проводимости.

Досліджено вплив надпровідних включень, які знаходяться в напівпровідній або діелектричній матриці, на електрофізичні властивості діелектрика. В припущення, що радіус включень менший або порядку довжини когерентності, визначено критичне магнітне поле сферичного одиничного включения. Для кристала, що містить множину надпровідних включень, розраховано залежність провідності від температури та магнітного поля. При розрахунках провідності використовувалось припущення, що концентрація включень є недостатньою для виникнення надпровідності у всьому зразку (тобто нижче порога протікання). Показано, що наявність надпровідних включень призводить до різкого збільшення провідності зразка при низьких температурах і сильної залежності провідності від магнітного поля (магнітоопору). Магнітоопір зумовлено подавленням надпровідності у включениях з ростом магнітного поля. Вивчено вплив дисперсії розмірів включень на температурну і магнітополеву залежності провідності.

PACS: 74.20.De, 74.25.Fy, 74.80.-g , 74.80.Bj

## Введение

Исследование материалов со сверхпроводящими включениями представляет как научный интерес, поскольку позволяет изучать сверхпроводимость, а следовательно, эффекты взаимодействия между квазичастицами в системах малых размеров, так и практический, поскольку в таких системах возможно появление разнообразных физических явлений, которые могут быть полезны для приложений. Кроме того, сверхпроводящие включения могут иметь технологическое происхождение и их нужно учитывать для правильного описания свойств системы.

Изучению сверхпроводящих свойств частиц малых размеров посвящена обширная литература (см. обзор в монографии [1], обзор [2], а также оригинальные работы [3–10]). Для частиц очень малых размеров наблюдается изменение критических параметров (температуры фазового перехода, величин критических магнитных полей). Это явление связывают с модификацией фононного спектра, квантованием электронного спектра, поверхностными эффектами, несовершенством структуры. Количественное описание этих явлений требует применения микроскопических уравнений, что является сложным, поскольку

требует знаний как спектра квазичастиц, так и структуры образцов малых размеров. Однако в определенной области размеров малых частиц, когда радиус еще остается меньшим длины когерентности, применима теория Гинзбурга—Ландау (ГЛ), которая значительно проще, чем микроскопическое рассмотрение, и является более общей, поскольку в нее входят феноменологические параметры. Например, для грязных сверхпроводников при  $l < R < \sqrt{\xi_0 l} (1 - T/T_c)^{-1/2}$  ( $l$  — длина свободного пробега электронов) зависимость критического магнитного поля сферы от радиуса, полученная в рамках микроскопической модели (см. книгу Де Жена [11]), совпадает с полученной Гинзбургом в модели ГЛ [12]. В этом случае критическая температура в отсутствие магнитного поля не зависит от размеров, а критическое магнитное поле обратно пропорционально радиусу сферического включения. Аналогично, начиная с некоторых значений толщины пленки  $d$  (согласно [8],  $d > 10^{-6}$  см), зависимости критических значений магнитного поля пленки от ее толщины, рассчитанные в рамках микроскопической теории [11] и в рамках модели ГЛ, совпадают, а величина критического магнитного поля обратно пропорциональна толщине пленки; при этом толщина пленки еще остается меньше длины когерентности  $\xi(T)$ . В дальнейшем мы будем рассматривать системы, для описания которых применима теория ГЛ, в частности, исследуем электрофизические свойства полупроводникового кристалла, содержащего сверхпроводящие включения.

Появление металлических областей в несверхпроводящем материале может быть обусловлено различными технологическими процессами, в частности, при распаде твердых растворов многокомпонентных систем [13]. Если один из компонентов является сверхпроводящим металлом, то выпадение его при технологических процессах приведет к появлению сверхпроводящих областей в кристалле. Так, выпадение сверхпроводящей фазы наблюдалось при термической обработке теллурида свинца—теллурида олова [14,15], а также при облучении InAs  $\alpha$ -частицами [16].

В данной работе будет показано, что малые добавки сверхпроводящих включений в материал могут значительно повлиять на электрофизические и магнитные свойства материалов при низких температурах.

## 2. Критические параметры сферического наноразмерного сверхпроводящего включения, внедренного в диэлектрическую матрицу

Прежде чем рассматривать среду со многими сверхпроводящими включениями, проанализируем сверхпроводящий переход в отдельном включении радиуса  $R$ , находящемся в среде с низкой проводимостью (диэлектрик, полупроводник). Будем считать, что размеры включения таковы, что оно может быть описано уравнениями ГЛ. Это накладывает ограничения на нижние пределы размеров включения, где требуется микроскопический подход. В рамках подхода ГЛ для сферического образца Гинзбургом получено, что критическое магнитное поле обратно пропорционально радиусу включения в предположении, что этот радиус намного меньше величин  $\lambda$ ,  $\epsilon$ . Нижний предел применимости этого решения определяется областью применимости теории ГЛ. Для оценки верхнего предела проведем дополнительные исследования. Для сверхпроводящего образца уравнение ГЛ имеет вид

$$\left( -i\nabla - \frac{A}{\sqrt{2}\kappa} \right)^2 \psi - \alpha\psi + |\psi|^2\psi = 0 , \quad (1)$$

где  $\psi$  — сверхпроводящий параметр порядка;  $\kappa$  — параметр ГЛ;  $\alpha = 1 - T/T_{c0}$ ,  $T_{c0}$  — критическая температура массивного сверхпроводника.

Если матрица является слабопроводящей средой, то параметр порядка удовлетворяет граничному условию

$$\frac{\partial\psi}{\partial\rho} = 0 \text{ при } \rho = R . \quad (2)$$

Поскольку мы рассматриваем поведение системы вблизи фазового перехода ( $\psi \rightarrow 0$ ), можно считать добавку к внешнему магнитному полю  $H$ , обусловленную включением, малой (порядка  $|\psi|^2$ ) и пренебречь магнитным полем, созданным включением. Векторный потенциал магнитного поля выберем в виде  $A = \frac{1}{2}[H \times r]$ .

Для определения критических магнитных полей исследуем линеаризованное уравнение (1), которое в сферической системе координат принимает вид

$$-\frac{1}{\rho^2} \left( \frac{\partial}{\partial\rho} \rho^2 \frac{\partial}{\partial\rho} + \frac{1}{\sin\theta} \frac{\partial}{\partial\theta} \sin\theta \frac{\partial}{\partial\theta} + \frac{1}{\sin^2\theta} \frac{\partial^2}{\partial\phi^2} \right) \psi - \alpha\psi + i \frac{H}{\sqrt{2}\kappa} \frac{\partial\psi}{\partial\phi} + \frac{1}{8\kappa^2} H^2 \rho^2 \sin^2\theta \psi = 0 , \quad (3)$$

где  $\rho = r/\xi_0$  — безразмерный модуль радиуса-вектора с началом в центре сферы; угол  $\theta$  отсчитывается от направления магнитного поля; магнитное поле дано в единицах термодинамического критического поля  $H_{c0}$ ;  $\xi_0$  — длина когерентности.

Общее решение этого уравнения будем искать в виде разложения по ортогональным функциям

$$\Psi = \sum_{i,l,m} A_{ilm} \phi_{ilm}, \quad (4)$$

где

$$\phi_{ilm} = j_l \left( \frac{\rho}{R} \sqrt{\alpha_{li}} \right) Y_{lm}(\theta, \varphi), \quad (5)$$

$j_l(z) = \sqrt{\pi/2z} J_{l+1/2}(z)$  — сферическая функция Бесселя первого рода;  $J_{l+1/2}(z)$  — функция Бесселя первого рода;  $Y_{lm}(\theta, \varphi)$  — нормированные сферические функции; коэффициенты  $\alpha_{li}$  являются корнями уравнения  $(\partial j_l(\rho)/\partial \rho) \Big|_{\rho=R} = 0$ .

Подстановка соотношений (4), (5) в уравнение (3) и интегрирование по координатам приводят к бесконечной системе алгебраических уравнений для коэффициентов  $A_{jlm}$ :

$$\begin{aligned} & \left( \alpha - \alpha_{lj} + \frac{mH}{\sqrt{2}\kappa} \right) A_{jlm} = \\ & = \frac{H^2 R^2}{8\kappa^2} \sum_{np} A_{nlp} F(l, p, j, n, m), \end{aligned} \quad (6)$$

где

$$\begin{aligned} F(l, p, j, n, m) = & \int_0^R d\rho \rho^4 j_l \left( \frac{\rho}{R} \sqrt{\alpha_{lj}} \right) j_p \left( \frac{\rho}{R} \sqrt{\alpha_{pn}} \right) \times \\ & \times \int_0^{2\pi} d\varphi \int_0^\pi d\theta \sin^3 \theta Y_{lm}(\theta, \varphi) Y_{pm}(\theta, \varphi). \end{aligned} \quad (7)$$

Решения уравнения (6) характеризуются квантовыми числами  $m$ , которые соответствуют числу квантов магнитного потока, захваченных включением. Равенство нулю детерминанта уравнения (6) (при фиксированном  $m$ ) определяет собственные значения  $\alpha$ , которые зависят от  $R$  и  $H$ . Критическое значение температуры  $T_c(H, R)$  определяется из минимального значения  $\alpha$ , при котором существует нетривиальное решение уравнения (6).

При изменении магнитного поля значение  $m$ , соответствующее ее минимальному значению  $\alpha$ , может изменяться. Это обусловлено изменением числа захваченных квантов магнитного потока. Состояния с  $m = 0$  реализуется в отсутствие магнитного поля и при слабых магнитных полях. В отсутствие магнитного поля решение системы (6) с наименьшим значением  $\alpha$  возможно только при отличном от нуля коэффициенте  $A_{100}$  ( $A_{jlm} = A \delta_{j,1} \delta_{l,0} \delta_{m,0}$ ). При этом  $\alpha_{10} = 0$  и, следовательно,  $\alpha = 0$ ,  $T = T_{c0}$ .

При наличии магнитного поля, но малых значениях  $R$  ( $R < 1$ ), коэффициент  $A_{100}$  доминирует над остальными, т.е. при  $j \neq 1$ ,  $l \neq 0$ ,  $m \neq 0$  выполняется условие  $A_{100} >> A_{jlm}$ . В этом случае систему уравнений (6) можно решить по теории возмущений. Если в (6) ограничиться коэффициентами  $A_{jlm}$  с  $j = 1, 2$ ;  $l = 0, 1, 2$ ; то для зависимости критической температуры включений от радиуса и магнитного поля получаем следующее выражение:

$$\frac{T_c}{T_{c0}} = 1 - 0,05R^2 \left( \frac{H}{\kappa} \right)^2 + 0,000141R^6 \left( \frac{H}{\kappa} \right)^4. \quad (8)$$

Ряд убывает при малых  $R$ .

Видно, что в нулевом магнитном поле температура фазового перехода совпадает с критической температурой для массивного образца. Следует отметить, что при граничных условиях более общего вида, чем (2), которые имеют место на границе сверхпроводника с металлом, существует зависимость температуры фазового перехода от радиуса даже в нулевом магнитном поле. Кроме того, при очень малых размерах имеет место зависимость критической температуры от радиуса вследствие изменения фононного, электронного спектров, дефектов структуры и других причин. Рассмотрение таких малых образцов, как уже обсуждалось во введении, не приводится в данной работе.

Ограничивааясь в (8) первыми двумя слагаемыми в правой части, получаем выражение для связи критической температуры, критического магнитного поля и радиуса, которое совпадает с результатом Гинзбурга [12]. И в этом случае реализуется состояние с  $l = 0$ ,  $m = 0$  и не могут за рождаться состояния с  $m > 0$ . Физически это означает, что включение является недостаточно большим для размещения даже одного вихря, когда включение находится в сверхпроводящем состоянии. Исследования таких мезоскопических дисков были выполнены в [17].

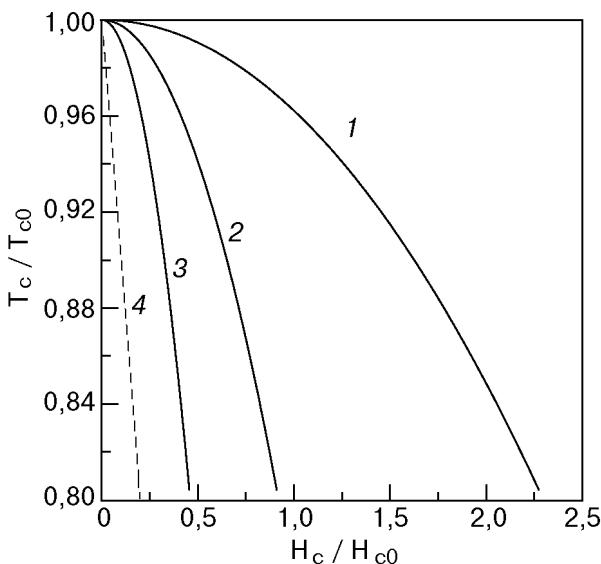


Рис. 1. Диаграмма температура—магнитное поле для различных значений радиусов включений  $R/\xi_0$ : 0,2 (1); 0,5 (2); 1 (3) ( $\kappa = 0,23$ ). Кривая 4 — зависимость критической температуры от магнитного поля для массивного сверхпроводника в теории ГЛ.

Зависимость критической температуры от магнитного поля для разных радиусов включений в кристалле с параметрами Pb (для которого  $T_{c0} = 7,2$  К,  $\xi_0 = 830$  Å,  $\kappa = 0,23$ ) представлена на рис. 1.

Исследование решения системы (6) показывает, что, для некоторых радиусов ( $1 < R < 2$ ) теория возмущений неприменима. В этом случае решения системы уравнений (6) находились из равенства нулю детерминанта для ограниченного числа отличных от нуля коэффициентов  $A_{jlm}$ . При увеличении магнитного поля, начиная с некоторых значений полей, реализуются состояния с  $m \neq 0$ , что соответствует захвату кванта магнитного потока. В дальнейшем мы будем рассматривать кристаллы с включениями  $R \leq 1$ , и поэтому результаты, касающиеся состояний с  $m > 0$ , в данной работе приводить не будем.

### 3. Макроскопические свойства кристалла со сверхпроводящими включениями

Для определения зависимости проводимости образца с включениями от температуры и магнитного поля применим результаты, полученные для отдельного сверхпроводящего включения.

Рассмотрим кристалл, содержащий включения сферической формы, которые могут иметь сверхпроводящую фазу. Предположим, что существует разброс включений по размерам. Проводимость матрицы предполагается низкой и поэтому ис-

пользованные при расчетах граничные условия (2), соответствующие границе сверхпроводник—диэлектрик, являются справедливыми.

Для расчета проводимости системы со сверхпроводящими включениями воспользуемся методом эффективной среды. Будем считать, что общий объем, занимаемый включениями, меньше объема, необходимого для появления протекания, и сверхпроводящий ток через весь образец отсутствует. Поэтому при расчете проводимости можно предполагать, что в зависимости от температуры и магнитного поля сферическое включение может находиться в двух состояниях: сверхпроводящем с проводимостью, равной бесконечности, или нормальном с сопротивлением, соответствующим материалу включения при рассматриваемой температуре. Согласно формуле для проводимости в многокомпонентных системах [18,19]

$$\frac{\sigma_1 - \sigma}{\sigma_1 + 2\sigma} P_s + \frac{\sigma_2 - \sigma}{\sigma_2 + 2\sigma} P_n + \frac{\sigma_3 - \sigma}{\sigma_3 + 2\sigma} P_3 = 0 , \quad (9)$$

где в рассматриваемой задаче  $\sigma_1 = \infty$  — проводимость включения в сверхпроводящем состоянии;  $\sigma_2$  — проводимость включения в несверхпроводящем состоянии;  $\sigma_3$  — проводимость матрицы,  $\sigma_2 > \sigma_3$ ;  $P_s$  и  $P_n$  — соответственно относительный объем сверхпроводящих и нормальных включений:

$$P_s = P \frac{\int_0^R R^3 W(R) dR}{\int_0^\infty R^3 W(R) dR} , \quad P_n = P - P_s , \quad P_3 = 1 - P , \quad (10)$$

$W(R)$  — вероятность того, что в системе содержится включение в единичном интервале радиуса  $R$ ;  $P$  — доля включений в образце.

Вообще говоря, нижний предел интегрирования по  $R$  в формуле для  $P_s$  должен определяться некоторым значением  $R_{\min}$ , ниже которого использованные уравнения ГЛ являются несправедливыми. Будем предполагать, что распределение включений по размерам таково, что таких включений мало, их вклад в проводимость несущественный и поэтому можно положить  $R_{\min} = 0$ . Количественные расчеты выполнены для нормального распределения включений по радиусу  $W(R)$  с дисперсией  $s$  и центром  $R_0$ :

$$W(R) = Z \exp \left[ -\frac{(R - R_0)^2}{2s^2} \right], \quad (11)$$

где  $Z$  определяется из условия нормировки

$$\int_0^\infty W(R)dR = 1.$$

Результаты расчетов зависимости проводимости от температуры для различных магнитных полей для включений с различной дисперсией представлены на рис. 2. Наблюдаются скачок проводимости в области низких температур. При  $H = 0$  этот скачок очень резкий (кривая 1), поскольку в рассматриваемой модели критическая температура в отсутствие магнитного поля не зависит от радиуса и все включения при одной и той же температуре испытывают фазовый переход.

При наличии магнитного поля ( $H > 0$ ) критическая температура сверхпроводящих включений зависит от радиуса, и поэтому при данной температуре  $T$  только включения с  $R \leq R_c(T, H) = 2\kappa\sqrt{5(1 - T/T_{c0})}/H$  оказываются сверхпроводящими. Поэтому с увеличением магнитного поля температурная область с увеличенной проводимостью уменьшается (кривые 2, 3). При увеличении дисперсии ступенька сглаживается.

На рис. 3 представлена зависимость проводимости от магнитного поля. Видно, что при малых полях имеет место сильная проводимость, которая падает с ростом магнитного поля, т.е. наблюдается сильная зависимость проводимости от

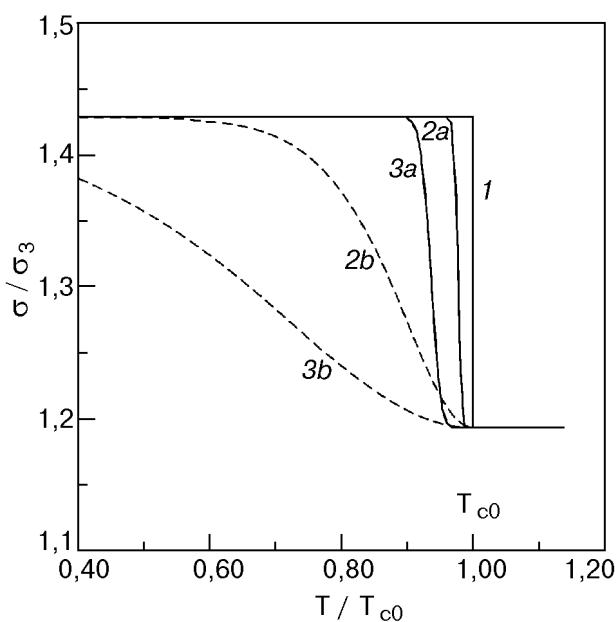


Рис. 2. Зависимость проводимости от температуры ( $P = 0,1$ ;  $\sigma_2/\sigma_3 = 5$ ;  $\kappa = 0,23$ ;  $R_0 = 0,1$ ) при  $H = 0$  (1), 1,5 (2), 2,5 (3);  $a - s = 0,01$ ,  $b - s = 0,1$ .

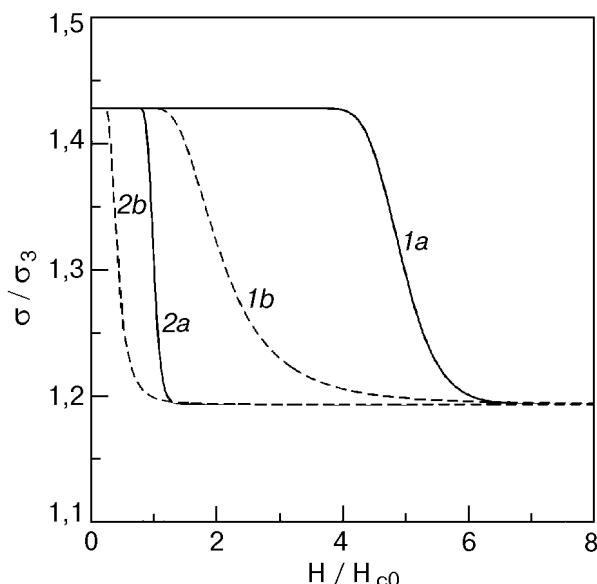


Рис. 3. Зависимость проводимости от магнитного поля ( $P = 0,1$ ;  $\sigma_2/\sigma_3 = 5$ ,  $\kappa = 0,23$ ,  $R_0 = 0,1$ ) при  $T = 0,75T_{c0}$  (1) и  $0,99T_{c0}$  (2);  $a - s = 0,01$ ,  $b - s = 0,1$ .

магнитного поля (магнитосопротивление). В рассматриваемом случае магнитосопротивление обусловлено подавлением сверхпроводимости магнитным полем: сначала во включениях больших размеров, а с ростом магнитного поля также во включениях малых размеров. На рис. 4 представлена динамика изменения фазового состояния кристалла с включениями при увеличении магнитного поля. Черные кружочки соответствуют сверхпроводящим состояниям включений, и их число с ростом магнитного поля уменьшается. Область магнитных полей, при которых магнитопроводимость испытывает спад, зависит от среднего радиуса включений, а величина области спада — от дисперсии. Таким образом, низкотемпературные зависимости сопротивления от поля и температуры существенно зависят от размера включений.

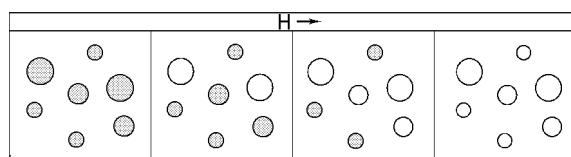


Рис. 4. Перераспределение количества включений в сверхпроводящем и нормальном состояниях с ростом магнитного поля:  $H_1 < H_2 < H_3 < H_4$ . Темным цветом обозначены включения в сверхпроводящем, а белым — в нормальном состояниях.

## Обсуждение результатов

Таким образом, наличие сверхпроводящих включений существенно изменяет электрофизические свойства кристалла при низких температурах. Проводимость кристалла возрастает и наблюдается сильная зависимость проводимости от магнитного поля, которая обусловлена фазовыми переходами включений из сверхпроводящего состояния в несверхпроводящее при росте магнитного поля. Все перечисленные эффекты сильно зависят от радиуса включений и распределения радиусов по величинам. Поэтому изучение температурной и магнитополевой зависимостей при сравнении с экспериментом дает возможность определить разброс включений по радиусам.

Полученные результаты могут быть также важны для правильного описания электропроводности при низких температурах в бинарных и более сложных полупроводниках, в которых возможно выпадение сверхпроводящей фазы при технологической обработке или при внешних воздействиях. Такие особенности электропроводности и магнитных свойств наблюдались в InAs, PbTe, PbJ<sub>2</sub>, GaAs, где возможны выпадения фаз, обогащенных металлами (In в InAs, Pb в PbTe и PbJ<sub>2</sub>, Ga в GaAs).

1. Ю. И. Петров, *Физика малых частиц*, Москва, Наука (1982).
2. Ю. Ф. Комник, *ФНТ* **8**, 115 (1982).
3. Е. А. Шаповал, *Письма в ЖЭТФ* **5**, 57 (1967).
4. I. Giaever and H. R. Zeller, *Phys. Rev. Lett.* **20**, 1504 (1968).
5. A. Rothwarf, *Phys. Lett.* **A30**, 55 (1969).
6. J. H. P. Watson, *Phys. Rev.* **B2**, 1282 (1970).
7. И. О. Кулик, *Письма в ЖЭТФ* **14**, 341 (1971).
8. В. М. Гвоздиков, И. И. Фалько, *УФЖ* **21**, 859 (1976).
9. В. М. Гвоздиков, Э. Манинен, *ФНТ* **6**, 1137 (1980).
10. F. Braun, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 921 (1997).
11. П. Де Жен, *Сверхпроводимость металлов и сплавов*, Мир, Москва (1968).

12. В. Л. Гинзбург, *ЖЭТФ* **34**, 113 (1958).
13. М. Г. Мильвидский, В. Б. Освенский, *Структурные дефекты в монокристаллах полупроводников*, Металлургия (1984).
14. Т. Т. Дедекаев, В. А. Мошников, Д. Б. Чеснокова, Д. А. Яськов, *Письма в ЖТФ* **6**, 1030 (1980).
15. С. Д. Дарчук, Т. Дитл, Л. А. Коровина, С. Колесник, М. Савицкий, Ф. Ф. Сизов, *ФТП* **32**, 786 (1998).
16. Г. А. Вихлий, А. Я. Карпенко, П. Г. Литовченко, *УФЖ* **43**, 103 (1998).
17. A. K. Geim, I. V. Grigorieva, S. V. Dubonos, J. G. S. Lok, J. C. Maan, A. E. Filippov, and F. M. Peeters, *Nature* **390**, 259 (1997).
18. Scott Kirkpatrick, *Rev. Mod. Phys.* **45**, 574 (1973).
19. B. E. Springett, *Phys. Rev. Lett.* **31**, 1483 (1973).

## Electrophysical properties of crystals with superconducting inclusions of small sizes

V. I. Sugakov and O. N. Shevtsova

The effect of superconducting inclusions, incorporated in a semiconducting or dielectric matrix, on the electrophysical properties of the dielectric is studied. The critical magnetic field of a spherical isolated inclusion is determined in the assumption that the inclusion radius is less than or of the order of coherence length. The dependence of conductivity on temperature and magnetic field is calculated for a crystal with superconducting inclusions. In the calculations an assumption is made that the inclusion concentration is inadequate for the superconductivity to appear in a whole sample (i.e. below the threshold of percolation). It is shown that the presence of superconducting inclusions leads to a sharp increase of the sample conductivity at low temperatures, and to a strong dependence of conductivity on magnetic field (magnetoresistance). The magnetoresistance is caused by suppression of superconductivity in the inclusions with increasing magnetic field. The influence of variations in inclusion size on the temperature and magnetic field dependences of conductivity is studied.