

Подавление сверхпроводимости магнитным полем в слоистых ВТСП материалах

В. Н. Варюхин, Г. Г. Левченко, Ю. В. Медведев, А. В. Пащенко

*Донецкий физико-технический институт им. А. А. Галкина НАН Украины,
Украина, 340114, г. Донецк, ул. Р. Люксембург, 72
E-mail: medvedev@host.dipt.donetsk.ua*

С. Й. Левандовский

*Institut Fizyki PAN, Al. Lotnikow, 32, PLO2-668 Warszawa, Poland
E-mail: lewan@ifpan.edu.pl*

Статья поступила в редакцию 13 мая 1997 г., после переработки 17 ноября 1997 г.

Экспериментально исследована зависимость температуры сверхпроводящего перехода монокристаллов $GdBa_2Cu_3O_{6+\delta}$ от величины внешнего магнитного поля, приложенного параллельно слоям. Обнаружена нетривиальная зависимость критической температуры от поля H , которая объясняется процессами проникновения поля в ВТСП монокристаллы. В силу слоистости в этих средах в полях $H \gg H_{c1}$ (H_{c1} — нижнее критическое поле) возникает пространственно-периодическая магнитная структура, период которой может меняться дискретным образом. При каждом изменении периода магнитной структуры наблюдается немонотонная (скачкообразная) зависимость температуры перехода от поля H . Для численных оценок эффекта используются результаты расчета критической температуры образцов малых размеров в сильных магнитных полях.

Експериментально досліджено залежність температури надпровідного переходу монокристалів $GdBa_2Cu_3O_{6+\delta}$ від величини зовнішнього магнітного поля, орієнтованого вздовж шарів. Виявлено нетривіальну залежність критичної температури від поля H , яка пояснюється процесами проникнення поля у ВТНП монокристали. Внаслідок шаруватості у цих середовищах у полях $H \gg H_{c1}$ (H_{c1} — нижнє критичне поле) виникає просторово-періодична магнітна структура, період якої може змінюватися дискретним чином. При кожній зміні періоду магнітної структури спостерігається немонотонна (скачкоподібна) залежність температури переходу від поля H . Для чисельних оцінок ефекту використовуються результати розрахунку критичної температури зразків малих розмірів у сильних магнітних полях.

PACS: 74.72.Jt, 74.80.Dm

Хорошо известно, что новые слоистые ВТСП материалы с относительно слабыми джозефсоновскими взаимодействиями между слоями проявляют специфические особенности, сходные с теми, которые наблюдаются при изучении двумерной или почти двумерной сверхпроводимости. Влияние слоистой кристаллической структуры на термодинамику и электродинамику ВТСП в настоящее время интенсивно исследуется как теоретически, так и экспериментально (например, кроссовер от двумерного к трехмерному поведению при фазовых переходах, то же для флуктуационного диамагнетизма, теплоемкости, эффекта парапроводимости, наблюдение фазового

перехода Березинского—Костерлица—Таулесса и т. п.).

Большой интерес вызывают исследования слоистых сверхпроводников в сильном магнитном поле, приложенном параллельно слоям. В этом случае свойства вихревой решетки отличны от полученных в рамках трехмерного приближения. Так, в работе [1] показано, что в сильных магнитных полях наблюдается новое явление — переход первого рода между вихревыми решетками с различными периодами $L = 2ks$ в направлении перпендикулярном слоям (здесь $k = 1, 2, \dots, s$ — межплоскостное расстояние). Эти скачки в решеточной структуре вызваны

дискретной слоевой структурой кристалла и джозефсоновской природой межслоевой связи.

Результаты исследований сверхпроводящих свойств монокристаллов $\text{GdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+\delta}$ с дефицитом кислорода, проведенных в работах [2,3], показали, что при малом содержании кислорода (при $\delta = 0,4$) в монокристаллах появляется квазидвумерная сверхпроводимость. Фазовая когерентность между слоями в системах с $\delta = 0,4$ отсутствовала. С повышением содержания кислорода (при $\delta = 0,56$) в монокристаллах устанавливалась слабая джозефсоновская связь между плоскостями, а при дальнейшем его увеличении (при $\delta = 0,75$) реализовывалась хорошо выраженная трехмерная сверхпроводимость. В связи с этим исследование подавления сверхпроводимости магнитным полем в монокристаллах $\text{GdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+\delta}$ представляет несомненный физический интерес.

В настоящей работе проводится экспериментальное и, на основе модельного представления о слоистой двумерной структуре ВТСП материалов, теоретическое исследование воздействия внешнего магнитного поля на появление сверхпроводимости в монокристаллах $\text{GdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+\delta}$ с содержанием кислорода 6,2; 6,56 и 6,75, т.е. в образцах с джозефсоновским взаимодействием между слоями. Нами обнаружены зависящие от направления внешнего магнитного поля особенности поведения критической температуры T_c указанных объектов. Вместо монотонного понижения T_c , ожидаемого из антисимметричных свойств возмущения со стороны сильных магнитных полей (см. [4]), для монокристаллов, ориентированных осью C перпендикулярно полю, обнаружено нетривиальное (скачкообразное) поведение $T_c(H)$. Используя результаты работы [1] (см. выше), а также результаты расчета критической температуры образцов малых размеров в сильных магнитных полях [4], можно показать, что такое поведение $T_c(H)$ обусловлено переходами между вихревыми решетками с различными периодами.

Методика эксперимента

В работе исследованы монокристаллы $\text{GdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+\delta}$ с содержанием кислорода 6,75 (образец 1), 6,56 (2) и 6,2 (3). Образцы выращены в алуновом тигле. После синтеза содержание кислорода достигало 6,4. Для увеличения кислородного индекса образцы подвергались специальной термической обработке в атмосфере кислорода, а его содержание и

однородность распределения по образцу исследовались на дифрактометре Syntex P2. Монокристаллы имели тетрагональную структуру и были однородны по кислороду. В образцах обнаружен 1% алюминия, который попадает в них в процессе роста. Размеры исследуемых образцов составляли: 1 — $1,2 \times 1,2 \times 0,4$ мм; 2 — $1,2 \times 2,0 \times 0,6$ мм; 3 — $2,1 \times 2,2 \times 1,6$ мм. Более подробные характеристики кристаллов приведены в [5].

Были измерены температурные зависимости дифференциальной восприимчивости (ac -восприимчивости) в постоянных внешних магнитных полях вдоль двух направлений (перпендикулярно и параллельно оси C) для всех образцов, а также температурная и полевая зависимости намагниченности образца 3 и температурные зависимости электросопротивления этого же образца во внешних магнитных полях. Восприимчивость измерялась на частоте 31 Гц (поле модуляции равнялось $2 \cdot 10^{-4}$ Тл при измерениях вдоль оси C и $6 \cdot 10^{-4}$ Тл при измерениях в перпендикулярном оси C направлении). Для всех образцов температурные зависимости восприимчивости измерены в магнитных полях: 0; 1,21; 6,04; 12,08; 18,12; 24,16; 30,25; 36,24 кЭ. Намагниченность исследовалась на вибрационном магнитометре, электросопротивление измерялось четырехзондовым методом на переменном токе. Во всех случаях образцы сначала охлаждались в нулевом магнитном поле до 1,5 К, а затем включалось магнитное поле и проводились измерения при повышении температуры.

Результаты эксперимента

На рис. 1 и 2 представлены температурные зависимости ac -восприимчивости вдоль и перпендикулярно оси C для монокристаллов $\text{GdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+\delta}$ с содержанием кислорода 6,75 и 6,56. Видно, что для обоих образцов при наложении поля вдоль оси C кривые $\chi_H^{\parallel}(T)$ сдвигаются вниз по температуре. Такой сдвиг объясняется обычным разрушением сверхпроводимости магнитным полем, большим верхнего критического поля. Температурные зависимости ac -восприимчивости в перпендикулярном оси C направлении имеют возвратный характер. Для образца с содержанием кислорода 6,75 (рис. 1,б) при $H = 0$ восприимчивость диамагнитна при $T < T_{\text{onset}}$. При увеличении магнитного поля кривые $\chi_H^{\perp}(T)$ смещаются сначала в область низких температур ($H = 6$ кЭ), затем в область высоких ($H =$

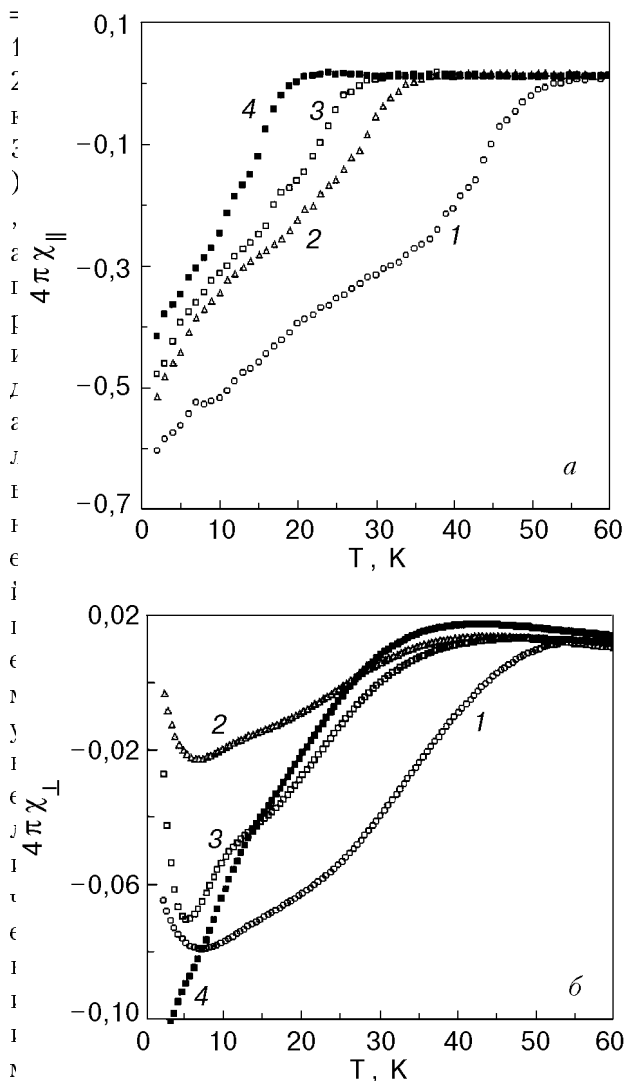


Рис. 1. Температурные зависимости ac -восприимчивости монокристалла $GdBa_2Cu_3O_{6,75}$ в постоянных внешних магнитных полях $H \parallel C$ (а) и $H \perp C$ (б): $H = 0$ (1); 6,04 (2); 12,08 (3); 36,24 (4) кЭ.

ного поля опять сдвигаются в область низких температур. Для образца с содержанием кислорода 6,56 восприимчивость в перпендикулярном оси C направлении при $H = 0$ парамагнитна (рис. 2, б). При больших полях наблюдается появление диамагнетизма.

Для понимания поведения температурных зависимостей ac -восприимчивости в магнитном поле необходимо учесть, что измеряемая восприимчивость состоит из вкладов магнитной и сверхпроводящей подсистем. Для определения вклада сверхпроводящей подсистемы необходимо из измеряемой (интегральной) ac -восприимчивости вычесть ту ее часть, которая обусловлена магнитной. Магнитный вклад в интегральную восприимчивость сверхпроводящего образца будет равен ac -

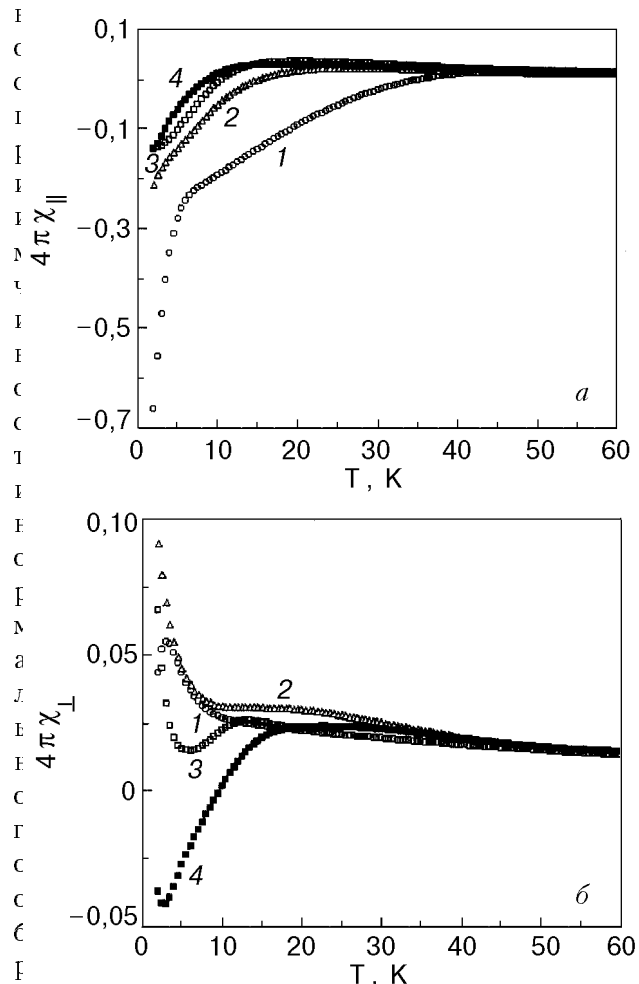


Рис. 2. Температурные зависимости ac -восприимчивости монокристалла $GdBa_2Cu_3O_{6,56}$ в постоянных внешних магнитных полях $H \parallel C$ (а) и $H \perp C$ (б): $H = 0$ (1); 6,04 (2); 12,08 (3); 36,24 (4) кЭ.

если она имеет только магнитную природу и не меняется с изменением содержания кислорода.

Для выяснения природы ac -восприимчивости несверхпроводящего образца нами были измерены зависимости $\chi(T)$ $GdBa_2Cu_3O_{6,2}$ в фиксированных внешних полях вдоль и перпендикулярно оси C (рис. 3) и проведен тщательный их анализ [6,7]. Необходимость такого анализа вытекает из наличия особенностей на кривых $\chi_{||}(T)$ и $\chi_{\perp}(T)$ в виде максимумов, положение которых зависит от величины магнитного поля. Подобное поведение $\chi(T)$ может быть обусловлено или изменением проводимости $GdBa_2Cu_3O_{6,2}$ в магнитном поле, или условиями перемагничивания магнитной подсистемы (адиабатический характер ac -восприимчивости), или чисто магнитными явлениями (эффект Шоттки). В нашем случае важно исключить изменение ac -восприимчивости, связанное с изменением проводимости. Только в этом случае

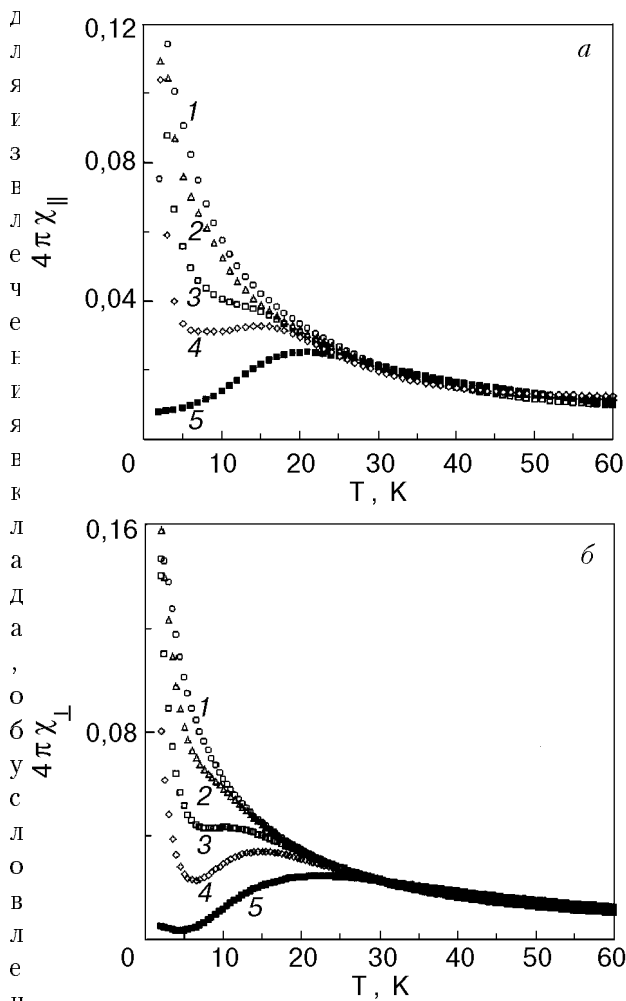


Рис. 3. Температурные зависимости ac -восприимчивости монокристалла $GdBa_2Cu_3O_{6,2}$ в постоянных внешних магнитных полях $H \parallel C$ (а) и $H \perp C$ (б): $H = 0$ (1); 6,04 (2); 12,08 (3); 18,12 (4); 36,24 (5) кЭ.

сверхпроводящей подсистемой, можно из измеряемой восприимчивости образцов, находящихся в сверхпроводящем состоянии, вычесть восприимчивость нормальных образцов.

Проводимость $GdBa_2Cu_3O_{6,2}$ в магнитном поле монотонно уменьшается (растет электросопротивление) с уменьшением температуры, причем электросопротивление образцов порядка 1 МОм. Такая величина и характер температурного изменения электросопротивления в магнитных полях позволяют утверждать, что ac -восприимчивость образца, находящегося в нормальном состоянии, имеет магнитную природу. Отсутствие особенностей на температурной и полевой (при $T = 4,2$ К) зависимостях намагниченности, измеренной на вибрационном магнитометре, указывает на адиабатическую природу появления максимумов на кривых $\chi(T)$ (рис. 3). Причем

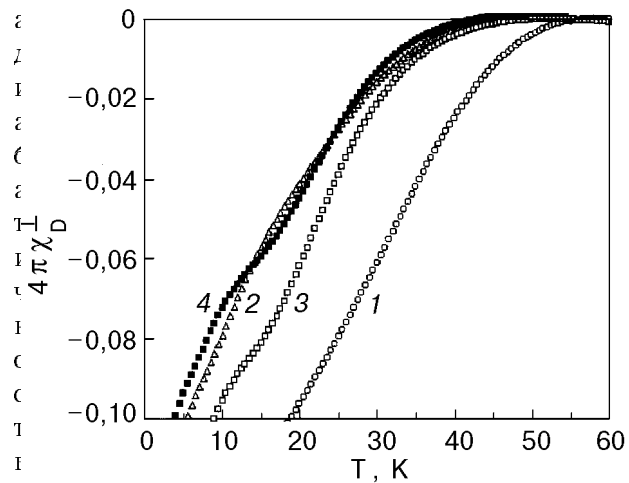


Рис. 4. Температурные зависимости диамагнитной части ac -восприимчивости монокристалла $GdBa_2Cu_3O_{6,75}$ в постоянных внешних магнитных полях $H \perp C$: $H = 0$ (1); 6,04 (2); 12,08 (3); 36,24 (4) кЭ.

определяется особенностями магнитной подсистемы [6]. С другой стороны, величина восприимчивости несверхпроводящего образца определяется только гадолиниевой подсистемой и не изменяется с изменением содержания кислорода в системе [7]. Магнитная анизотропия гадолиниевой подсистемы задается анизотропией обмена, которая мала. Поэтому восприимчивости в двух направлениях при $T > T_N$ (T_N — температура Нееля) будут мало отличаться. Этим объясняется подобие рис. 3, а и б. Это, с другой стороны, показывает, что качественное различие температурных зависимостей восприимчивости в двух направлениях для монокристаллов с $\delta = 0,75$ и $0,56$ определяется сверхпроводящей подсистемой.

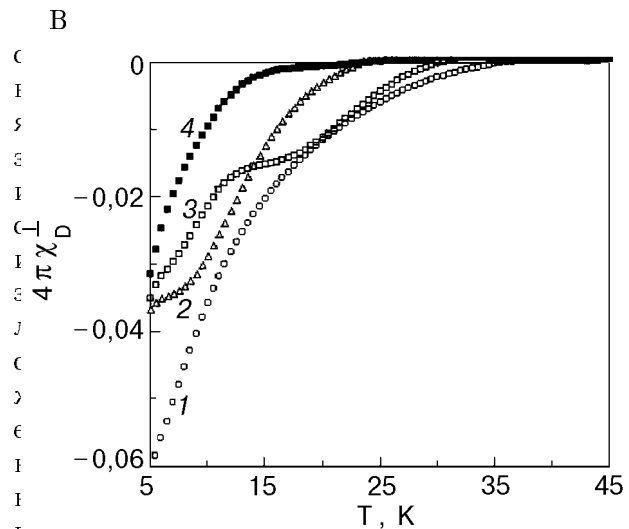


Рис. 5. Температурные зависимости диамагнитной части ac -восприимчивости монокристалла $GdBa_2Cu_3O_{6,56}$ в постоянных внешних магнитных полях $H \perp C$: $H = 0$ (1) 6,04 (2); 12,08 (3); 36,24 (4) кЭ.

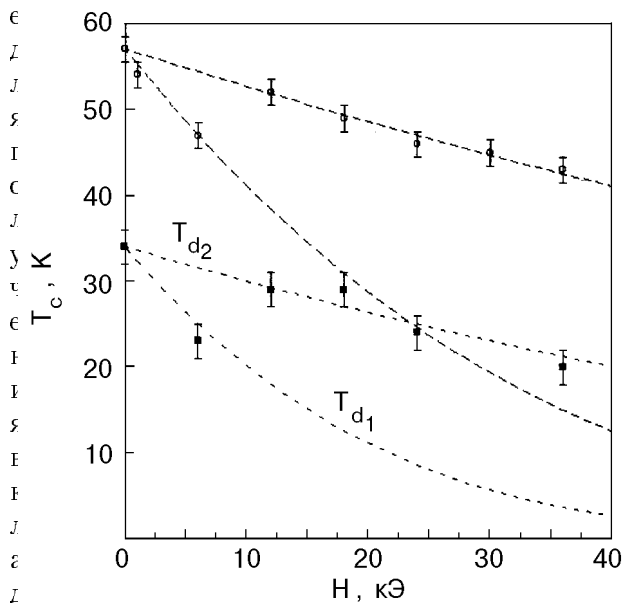


Рис. 6. Зависимость температуры сверхпроводящего перехода от величины внешнего магнитного поля $\mathbf{H} \perp \mathbf{C}$: $\text{GdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.75}$ (○); $\text{GdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.56}$ (■). Линиями показаны расчетные (на основе уравнений (4) и (2)) полевые зависимости $T_d(H)$.

словенных сверхпроводящими подсистемами, в интегральные восприимчивости монокристаллов $\text{GdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.75}$ и $\text{GdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.56}$ следует из последних вычесть восприимчивость монокристалла $\text{GdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.2}$. Результирующие кривые (в перпендикулярном оси \mathbf{C} направлении) представлены на рис. 4 и 5.

На рис. 4 и 5 видно, что аномалии на кривых зависимости восприимчивости от температуры исчезли. В то же время, если взять за T_c температуру появления диамагнетизма (это резонно, потому что флуктуации параметра порядка подавлены переменным магнитным полем), то сдвиг T_c магнитным полем будет иметь немонотонный характер для обоих образцов, как показано на рис. 6.

Обсуждение

При объяснении полученных результатов следует исходить из того, что в слоистые системы магнитное поле ($\mathbf{H} \perp \mathbf{C}$) проникает в виде джозефсоновских вихрей. В результате образуется структура из чередующихся сверхпроводящих областей и межслоевого пространства, заполненного вихрями. В полях, значительно превышающих нижнее критическое поле H_{c1} , с точностью до a/λ_j (a — расстояние между центрами джозефсоновских вихрей, λ_j — джозефсоновская глубина проникновения) можно считать, что поле, приложенное параллельно пло-

ским сверхпроводящим областям толщиной d , постоянно и равно внешнему полю. Если при этом выполняется неравенство $d \ll \xi(T)$ ($\xi(T)$ — длина корреляции), то можно также пренебречь изменениями в пространстве амплитуды параметра порядка. В этом случае исключительную роль играют свойства результирующих фаз волновых функций электронов куперовской пары, которые они набирают при движении из одной точки образца в другую, отражаясь на границах сверхпроводящих областей (см., например, [4]). Эта исключительная роль связана с «антисимметричным» возмущением, которое испытывают электроны куперовской пары со стороны магнитного поля. На опыте такая «антисимметрия» приводит к ряду удивительных свойств, в частности, к понижению критической температуры сверхпроводящего перехода. Задача о подавлении сверхпроводимости в тонкой пленке, находящейся в продольном магнитном поле, была решена Де Женом и Тинкхамом [8,9] (см. также [4]). В случае слоистого сверхпроводника ситуация более сложная. С увеличением внешнего магнитного поля в таких системах возможны нетривиальные зависимости T_c от H , связанные с процессами проникновения поля в слоистые среды.

Зависимость температуры T_c от поля возникает вследствие взаимодействия куперовской пары с магнитным полем, имеющего противоположный знак для электронов одной пары. В предположении, что отражение электронов от границ пленки (толщиной d) является диффузным, в работах [4,8,9] получена температура перехода

$$kT_c = 1,14 \hbar \omega_D e^{-1/\lambda \eta}, \quad (1)$$

где ω_D — частота Дебая; η — функция параметров образца и величины внешнего поля H :

$$\eta(H, d)^{1/2} = \frac{2}{d} \int_0^{d/2} dx \exp [(\pi H / \Phi_0)(x^2 - d^2/4)]. \quad (2)$$

Здесь Φ_0 — квант потока. В предельных случаях

$$\eta(H, d) = \begin{cases} 1 - \frac{\pi H^2}{3 \Phi_0} d & \text{при } H \ll \frac{\Phi_0}{d^2}, \\ (2\Phi_0 / \pi H d^2)^2 & \text{при } H \gg \frac{\Phi_0}{d^2}. \end{cases} \quad (3)$$

Проведенный в обзоре [10] анализ возможных механизмов высокотемпературной сверхпроводимости показал, что при учете сильного электрон-фононного взаимодействия можно объяснить большую часть как нормального, так и сверхпроводящего состояний ВТСП систем. В частности, в рамках этого подхода объясняется существование высоких значений T_c в ВТСП купратах, согласно формуле (1), при $\eta = 1$. Поэтому в настоящем исследовании для описания наблюдаемых эффектов воспользуемся результатами этой теоретической модели.

Слоистость ВТСП материалов оказывает на фазовый переход в сверхпроводящее состояние сильнейшее воздействие, которое проявляется в падении критической температуры с ростом магнитного поля и в довольно нетривиальном ее поведении как функции H . С увеличением поля H критическая температура, согласно (1), уменьшается по экспоненциальному закону:

$$T_d(H) = T_c(0) \exp \left[\frac{1}{\lambda} \frac{\eta(H, d) - 1}{\eta(H, d)} \right], \quad (4)$$

где $T_c(0)$ — температура перехода при $H = 0$; индекс при T соответствует толщине d сверхпроводящих областей.

В соответствии с развитыми выше идеями воспользуемся уравнением (4) для оценки коэффициента $\eta(H, d)$ и, в конечном счете, толщины d сверхпроводящих областей. Используя экспериментально наблюдаемые зависимости температуры перехода от поля H , приведенные на рис. 6, для $T_{d_1}(H)$ (образец с кислородным индексом 6,56) получаем коэффициент

$$\eta(H, d) \Big|_{H=0,6 \text{ кЭ}} = \left[1 + \lambda \ln \frac{T_c(0)}{T_d} \right]^{-1} \Big|_{T_d=23 \text{ К}} = 0,892.$$

В рамках электрон-фононного взаимодействия граница частоты фононного спектра купратов $\omega_D = 80$ МэВ [10]. Это позволило нам получить из уравнения (1) (экспериментальное значение температуры перехода $T_c(H=0) = 34$ (см. рис. 6)) значение

$$\lambda = \left(\ln \frac{1,14 \hbar \omega_D}{k T_c(0)} \right)^{-1} \Big|_{\omega_D=80 \text{ МэВ}} = 0,304$$

для константы электрон-фононной связи и использовать эту величину при оценке $\eta(H, d)$.

Простые вычисления с привлечением соотношения для η (3) дают, что характерный размер сверхпроводящих областей d_1 при $H \gg H_{c1}$ составляет 180 Å.

Рассмотрим теперь зависимость $T_{d_2}(H)$ для образца с кислородным индексом 6,56. Оценка величины d_2 дает значение 89 Å, что хорошо согласуется с представлениями о характере проникновения магнитного поля в слоистую среду. Действительно, из физических соображений и результатов работы [1] следует, что в сильных магнитных полях должен наблюдаться переход первого рода между решетками с кратными периодами. Это мы и наблюдаем в эксперименте. Причем, как следует из соотношения (3), с уменьшением толщины сверхпроводящих областей (в момент перестройки вихревой структуры) температура сверхпроводящего перехода повышается.

При указанном выше значении λ величины d_1 и d_2 для образцов с кислородными индексами 6,56 и 6,75 могут быть найдены также путем сравнения расчетных (на основе уравнений (2) и (4)) и экспериментальных полевых зависимостей T_c . Результаты такого сравнения представлены на рис. 6. Используя эти результаты для образца $\text{GdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6,56}$, получили $d_1 = 170$ Å, $d_2 = 84$ Å, а для монокристалла $\text{GdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6,75}$ с температурой перехода $T_c(0) = 57$ К — $d_1 = 145$ Å, $d_2 = 72,5$ Å.

Численный анализ показывает, что при малых значениях d зависимость $T_d(H)$ очень слабая. По-видимому, поэтому не удалось обнаружить экспериментально переходы между решетками с более мелкой структурой.

В заключение отметим, что проблема роли многослойности в формировании свойств сверхпроводящих систем имеет ряд дополнительных аспектов. Прогресс в технологии позволил искусственно создавать высококачественные многослойные туннельные структуры, а также экспериментально моделировать некоторые свойства ВТСП систем в макроскопическом масштабе. В полях $H \gg H_{c1}$ в этих системах неизбежно должен наблюдаться подобный рассмотренному выше процесс подавления сверхпроводимости сильным магнитным полем, параллельным слоям.

Полученные в настоящей работе результаты дают основание полагать, что в сильно анизотропных сверхпроводящих монокристаллах или слоистых системах с туннельным характером

проводимости между слоями можно наблюдать отрицательное магнитосопротивление образцов, характер которого обусловлен уменьшением T_c сверхпроводящих плоскостей в магнитном поле. В гранулированных пленках такой эффект наблюдался в работе [11].

1. L. Bulaevskii and J. R. Clem, *Phys. Rev.* **B44**, 10234 (1991).
2. А. К. Асадов, Ю. А. Гененко, Г. Г. Левченко, В. И. Маркович, Ю. В. Медведев, А. В. Пашченко, И. М. Фита, *СФХТ* **5**, 1629 (1992).
3. A. E. Asadov, Yu. A. Genenko, G. G. Levchenko, V. I. Markovich, Yu. V. Medvedev, A. V. Pashchenko, and I. M. Fita, *Physica* **C206**, 119 (1993).
4. П. Де Жен, *Сверхпроводимость металлов и сплавов*, Мир, Москва (1968).
5. В. П. Дьяконов, Г. Г. Левченко, А. В. Пашченко, В. В. Миткевич, С. М. Третьяк, *СФХТ* **5**, 1884 (1992).
6. Г. Г. Левченко, В. П. Дьяконов, И. М. Фита, В. И. Маркович, *ФТТ* **38**, 201 (1996).
7. Г. Г. Левченко, В. П. Дьяконов, Э. Е. Зубов, В. И. Маркович, И. М. Фита, *ФТТ* **37**, 395 (1995).
8. P. G. De Gennes and M. Tinkham, *Physics* **1**, 107 (1964).
9. P. G. De Gennes, *Phys. Kondens. Mater.* **3**, 79 (1964).
10. В. Л. Гинзбург, Е. Г. Максимов, *СФХТ* **5**, 1543 (1992).
11. Б. И. Белевцев, А. В. Фомин, *ФНТ* **12**, 109 (1986).

Magnetic-field suppression of superconductivity in layered high- T_c materials

V. N. Varyukhin, G. G. Levchenko,
Yu. V. Medvedev, A. V. Pashchenko,
and S. J. Lewandowski

The dependence of superconducting transition temperature on magnetic field H applied parallel to the layers of $\text{GdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+\delta}$ monocrystals is studied experimentally. The dependence is found to be non-trivial due to the mechanism of field penetration into the monocrystals. Because of the presence of layers a spatially-periodic magnetic structure appears in the crystals at $H \gg H_{c1}$ (H_{c1} being a lower critical field) with a period varying in a steps. At every change of the magnetic structure period a non-monotonous (jump-like) dependence of the transition temperature on H is observed. The calculated data on the critical temperature for small samples are used to estimate the effect numerically.