

# Влияние нестехиометрического беспорядка на температурную зависимость верхнего критического поля в электронных сверхпроводниках $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4+\delta}$

Т. Б. Чарикова<sup>1)</sup>, Н. Г. Шелушинина, Г. И. Харус, А. А. Иванов<sup>+</sup>

Институт физики металлов Уральского отд. РАН, 620219 Екатеринбург, Россия

<sup>+</sup>Московский государственный инженерно-физический институт, 115410 Москва, Россия

Поступила в редакцию 26 мая 2008 г.

После переработки 10 июня 2008 г.

Представлены результаты исследования температурных зависимостей сопротивления монокристалла  $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4+\delta}$  с  $x = 0.15$  и разной степенью беспорядка ( $\delta$ ) в различных магнитных полях ( $B \parallel c$ ,  $J \parallel ab$ ) в интервале температур  $T = (1.8 \div 40)$  К. Показано, что в электронном сверхпроводнике наклон верхнего критического поля ( $dB_{c2}/dT$ ) | $T_c$  падает с ростом степени беспорядка, что позволяет экспериментально различить сверхпроводники с  $d$ -спариванием и сверхпроводники с  $s$ -спариванием. В рамках модели сверхпроводников с анизотропным примесным рассеянием представлены результаты исследования зависимости температуры сверхпроводящего перехода от параметра беспорядка в системе.

PACS: 74.25.Fy, 74.25.Op, 74.72.-h

Исследование многокомпонентных слоистых систем представляет в настоящее время значительный интерес. Об этом свидетельствуют и появившиеся в последнее время работы о существовании сверхпроводимости ( $T_c \sim 25\text{--}52$  К) в железосодержащих безмедных слоистых системах [1]. Определение типа куперовского спаривания всех систем высокотемпературных сверхпроводников продолжает оставаться в центре внимания исследователей. В электронных сверхпроводниках  $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4+\delta}$  экспериментальные исследования [2] указывают на реализацию анизотропного спаривания  $d_{x^2-y^2}$  типа с нулями функции щели на поверхности Ферми. При таком типе спаривания введение нормальных примесей в систему должно приводить к быстрому разрушению сверхпроводимости. Другой возможный тип анизотропного спаривания – анизотропное  $s$ -спаривание, при котором имеют место нули функции щели на поверхности Ферми, но параметр порядка не меняет знак.

В теоретических работах [3, 4] было показано, что контролируемое введение немагнитных примесей (введение беспорядка) приводит к принципиальному различию в поведении плотности состояний на уровне Ферми для двух типов анизотропного спаривания. Изменение наклона верхнего критического поля ( $dB_{c2}/dT$ ) | $T_c$  в зависимости от степени беспорядка в системе обсуждалось в работе [5], и было тео-

ретически установлено, что в сверхпроводниках с  $d$ -спариванием величина наклона второго критического поля должна быстро уменьшаться с ростом степени разупорядочения, а в случае анизотропного  $s$ -спаривания наклон поля должен увеличиваться с ростом степени беспорядка.

Целью нашей работы было экспериментальное определение зависимости наклона верхнего критического поля, а также температуры сверхпроводящего перехода от степени беспорядка в электронном сверхпроводнике  $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4+\delta}$ . Изучению температурной зависимости верхнего критического поля в перелегированном кристалле  $Nd_{1.82}Ce_{0.18}CuO_x$  посвящена работа [6]. В нашей работе представлены результаты исследования температурных зависимостей сопротивления монокристаллов  $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4+\delta}$  с оптимальным уровнем легирования ( $x = 0.15$ ) и разной степенью беспорядка ( $\delta$ ) в различных магнитных полях ( $B \parallel c$ ,  $J \parallel ab$ ) в интервале температур  $T = (1.8 \div 40)$  К.

Чистый  $Nd_2CuO_4$  является диэлектриком, и сверхпроводимость появляется только у твердых растворов на его основе как, например,  $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4+\delta}$  ( $0.14 \leq x \leq 0.20$ ) при дополнительном отжиге в бескислородной атмосфере. С ростом содержания церия  $Ce^{4+}$  происходит увеличение числа электронов и уменьшение удельного сопротивления. После отжига образцов в бескислородной среде при  $T \simeq 800\text{--}900$  °С в образцах  $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4+\delta}$  наблюдается изменение характера

<sup>1)</sup>e-mail: charikova@imp.uran.ru

температурной зависимости сопротивления (металлический ход) и появление сверхпроводимости. Основная роль такого отжига состоит в удалении “лишнего” нестехиометрического кислорода. Этот процесс уменьшает беспорядок, порог подвижности для электронов понижается, электроны становятся делокализованными и проявляют сверхпроводящие свойства. Таким образом, изменение содержания кислорода в системе  $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4+\delta}$  влечет за собой изменение степени беспорядка.

При оптимальном легировании и отжиге кристалл  $Nd_{2-x}Ce_xCuO_4$  представляет собой набор изолированных проводящих плоскостей  $CuO_2$ , отстоящих друг от друга на расстоянии  $6 \text{ \AA}$ , и является сильно анизотропным [7–9]. Проявление двумерного характера переноса носителей заряда в монокристаллах  $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4+\delta}$  вследствие сильной анизотропии транспортных свойств позволяет использовать представления теории неупорядоченных 2D систем [10]. Условием проводимости по делокализованным состояниям в разупорядоченной двумерной системе (в металлической фазе) является выполнение условия  $k_F\ell > 1$  ( $k_F$  – волновой вектор на уровне Ферми,  $\ell$  – средняя длина свободного пробега электрона). Параметр  $k_F\ell$  служит мерой беспорядка системы и может быть найден из экспериментальной величины  $\rho_{ab}$  [9]:

$$k_F\ell = \frac{hc_0}{e^2\rho_{ab}}, \quad (1)$$

где  $c_0 = 6 \text{ \AA}$  – расстояние между слоями  $CuO_2$ .

Методом импульсного лазерного напыления [11] в МИФИ были синтезированы эпитетаксиальные пленки  $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4+\delta}$  ( $x = 0.15$ ) с ориентацией (001) – ось перпендикулярна подложке  $SrTiO_3$ . Пленки были подвергнуты термообработке (отжигу) при различных условиях для получения образцов с разным содержанием кислорода [12]. В результате получено три вида образцов: “as grown” – без отжига; “optimal reduced” – оптимально-отожженные в вакууме (60 мин,  $T = 780^\circ\text{C}$ ,  $\rho = 10^{-2} \text{ м}\cdot\text{м.рт.ст.}$ ); “not optimal reduced” – неоптимально отожженные в вакууме (40 мин,  $T = 780^\circ\text{C}$ ,  $\rho = 10^{-2} \text{ м}\cdot\text{м.рт.ст.}$ ). Толщина пленок составляла  $1200\text{--}2000 \text{ \AA}$ . Измерения температурной зависимости сопротивления в интервале температур  $T = (1.8 \div 40) \text{ K}$  в различных магнитных полях до 9 Тл проводились на SQUID-магнитометре MPMS XL (ИФМ УрО РАН).

На рис.1 представлены температурные зависимости сопротивления монокристалла  $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4+\delta}$  с содержанием церия  $x = 0.15$  и с различным содержанием кислорода. В образцах с оптимальным режимом отжига ( $k_F\ell = 51.6$ ) в отсутствие магнитно-

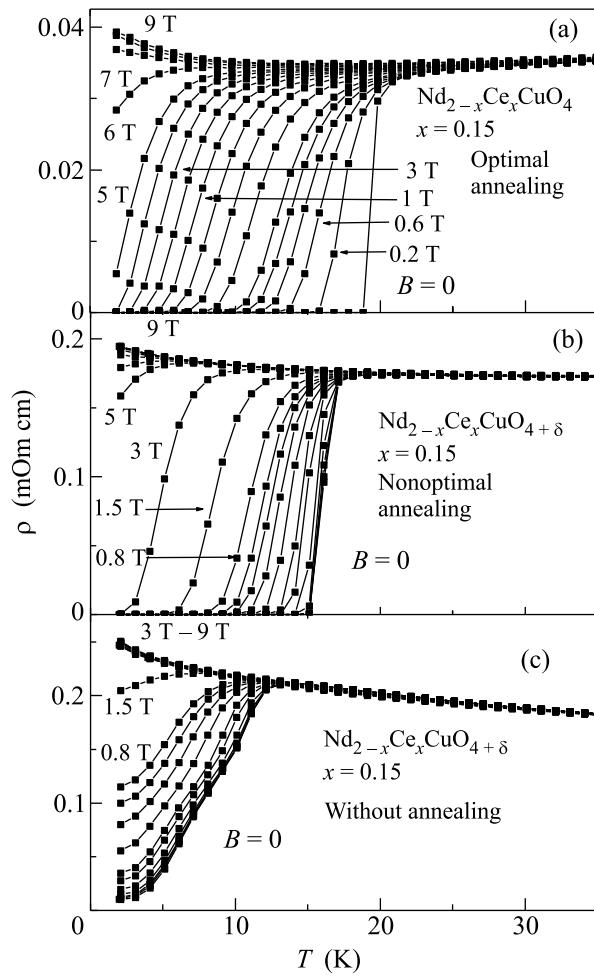


Рис.1. Температурные зависимости сопротивления образцов  $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4+\delta}$  с разной степенью беспорядка в магнитном поле

го поля наблюдается резкий сверхпроводящий (СП) переход при  $T_c = 19.5 \text{ K}$  (рис.1a). При увеличении внешнего магнитного поля СП переход, оставаясь достаточно резким, смещается в область более низких температур, и в полях  $B > 7 \text{ Tl}$  образец переходит в нормальное состояние. Аналогичное поведение наблюдается и в образце с неоптимальным отжигом, в этом случае  $T_c$  меньше и составляет  $15 \text{ K}$ . Образец переходит в нормальное состояние в поле  $B > 5.5 \text{ Tl}$  (рис.1b). В образце “as grown” наблюдается размытый СП переход с  $T_c \sim 3 \text{ K}$ , а переход в нормальное состояние происходит уже в полях  $B > 1.5 \text{ Tl}$  (рис.1c).

Воспользовавшись резистивным методом определения верхнего критического поля, мы построили зависимости  $B_{c2}(T)$  для трех образцов с различными условиями отжига (то есть с различной степенью беспорядка в системе) на уровне  $0.5\rho$  (рис.2). Далее был определен наклон верхнего критическо-

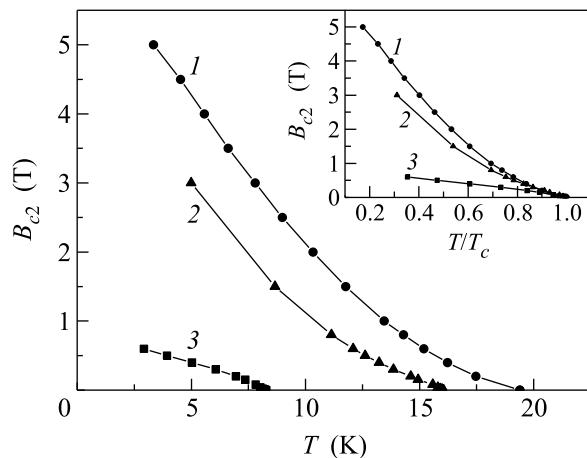


Рис.2. Температурная зависимость верхнего критического поля образцов  $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4+\delta}$  ( $x = 0.15$ ) с разной степенью беспорядка. Образцы: 1 – оптимальный отжиг, 2 – неоптимальный отжиг, 3 – без отжига. На вставке – зависимость верхнего критического поля от приведенной температуры для исследованных образцов

го поля ( $dB_{c2}/dT$ )  $|_{T \rightarrow T_c}$  для трех образцов и оценена величина верхнего критического поля по формуле Верххамера-Гельфанд-Хоенберга [13]:

$$B_{c2}(0) \cong 0.7 \left( \frac{dB_{c2}}{dT} \right)_{T_c} \cdot T_c. \quad (2)$$

Рассчитанные параметры наших образцов приведены в таблице.

**Основные параметры, полученные для образцов  $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4+\delta}$  с различной степенью беспорядка (образцы: 1 – оптимальный отжиг, 2 – неоптимальный отжиг, 3 – без отжига)**

| Образцы | $k_F \ell$ | $\gamma/kT_{c0}$ | $T_c$ (К) | $dB_{c2}/dT$ (Тл/К) | $B_{c2}(0)$ |
|---------|------------|------------------|-----------|---------------------|-------------|
| 1       | 51.6       | 1.99             | 19.5      | 0.45                | 6.2         |
| 2       | 9.1        | 11.3             | 15        | 0.41                | 4.3         |
| 3       | 8.6        | 12.0             | 3         | 0.08                | 0.2         |

Из рис.2 видно, что в ближайшей окрестности  $T_c$  производная  $dB_{c2}/dT$  весьма мала в соответствии с результатами работы [14] для недолегированных монокристаллов  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ , где существенная нелинейность зависимости  $B_{c2}(T)$  при  $T \rightarrow T_c$  описывается в рамках модели биполярной сверхпроводимости [15]. Целью нашей работы было изучить влияние беспорядка на изменение наклона второго критического поля, который мы определяли вблизи  $T_c$ , как это было теоретически рассмотрено в [5]. На вставке рис.2 приведены зависимости  $B_{c2}$  от  $T/T_c$  для исследованных образцов, откуда ясно видно, что наклон

верхнего критического поля вблизи  $T_c$  уменьшается с ростом степени беспорядка.

В модели примесного сверхпроводника в работе [5] вводится параметр беспорядка  $\gamma/kT_{c0}$ , где

$$\gamma = \frac{\hbar}{2\tau} = \frac{\pi\hbar^2 n_s}{m(k_F \ell)}, \quad (3)$$

$\tau$  – время релаксации импульса электронов за счет рассеяния на нормальных примесях,  $n_s$  – концентрация носителей в слое,  $m$  – масса электрона. На рис.3 приведена экспериментальная зависимость наклона

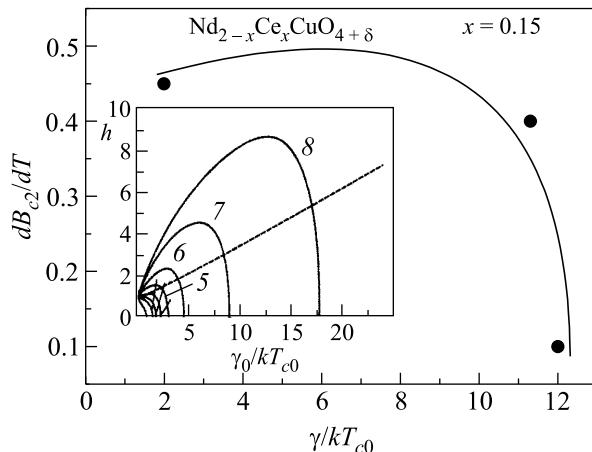


Рис.3. Экспериментальная зависимость наклона верхнего критического поля от параметра беспорядка в монокристаллических пленках  $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4+\delta}$ . На вставке – теоретическая зависимость нормированного наклона кривой верхнего критического поля  $h = (dB_{c2}/dT)|_{T_c} / (dB_{c2}/dT)|_{T_{c0}}$  от параметра беспорядка [19]. Пунктирная линия – для случая анизотропного  $s$ -спаривания, сплошные линии – для случая  $d$ -спаривания с анизотропным рассеянием для нескольких значений параметра  $\gamma_1/\gamma_0$ : 1 –  $\gamma_1/\gamma_0 = 0.0$ , 2 – 0.4, 3 – 0.5, 4 – 0.6, 5 – 0.7, 6 – 0.8, 7 – 0.9, 8 – 0.95 (кривые идут по порядку от 1 до 8)

верхнего критического поля  $dB_{c2}/dT$  от параметра беспорядка в монокристаллических пленках электронного сверхпроводника  $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4+\delta}$ . Видно, что наклон верхнего критического поля уменьшается с ростом беспорядка, что характерно для систем с  $d$ -спариванием. Такое поведение верхнего критического поля было теоретически рассчитано в работе [5], и показано отличие в поведении наклона верхнего критического поля для систем с  $d$ -спариванием и с анизотропным  $s$ -спариванием. Однако уменьшение наклона  $dB_{c2}/dT$  с увеличением степени беспорядка не является столь резким, как это предсказано теорией [5] для систем с изотропным рассеянием электронов (зависимость 1 на вставке рис.3).

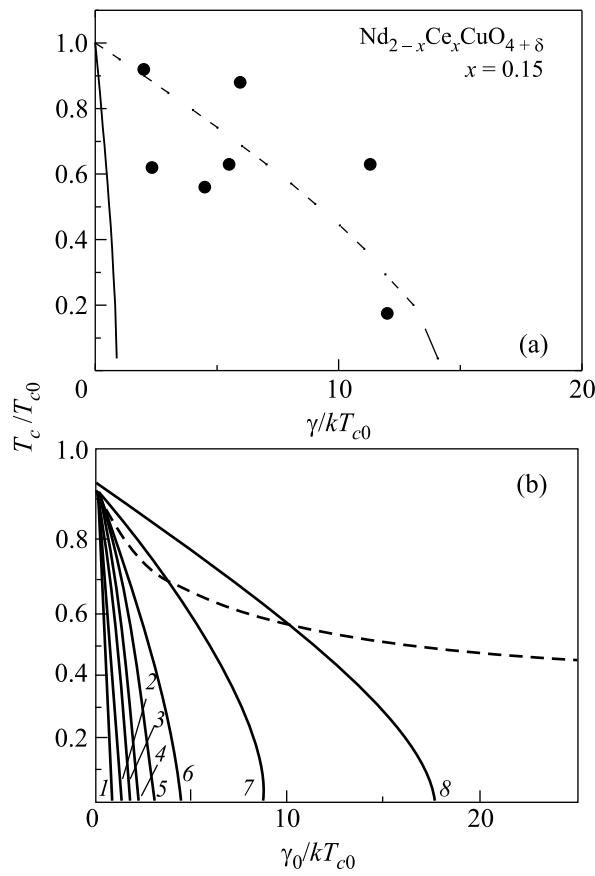


Рис.4. Экспериментальная зависимость температуры СП перехода от параметра беспорядка в монокристаллических пленках  $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4+\delta}$ . Сплошная линия – теоретическая зависимость для случая  $d$ -спаривания при изотропном рассеянии ( $\gamma_1/\gamma_0 = 0.0$ ), штриховая – для случая  $d$ -спаривания при анизотропном рассеянии ( $\gamma_1/\gamma_0 = 0.88$ ). На вставке – теоретическая зависимость температуры перехода от параметра беспорядка [19]. Пунктирная линия – для случая анизотропного  $s$ -спаривания, сплошные линии – для случая  $d$ -спаривания с анизотропным рассеянием для нескольких значений параметра  $\gamma_1/\gamma_0$ : 1 –  $\gamma_1/\gamma_0 = 0.0$ , 2 – 0.4, 3 – 0.5, 4 – 0.6, 5 – 0.7, 6 – 0.8, 7 – 0.9, 8 – 0.95

Проведенные исследования сопротивления в зависимости от степени облучения на бездвойниковом монокристалле  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  быстрыми нейтронами [16] и низкотемпературными электронами [17] дали возможность авторам статьи [18] предложить модель анизотропных сверхпроводников с сильным анизотропным примесным рассеянием. В работе [19] было показано, что при достаточно сильной анизотропии примесного рассеяния с симметрией  $d$ -типа процесс подавления сверхпроводимости при введении в систему нормальных примесей замедляется. В рамках модели сверхпроводника с сильной анизотропией рассеяния на нормальных примесях [18, 19] уда-

ется рассмотреть относительную устойчивость электронного сверхпроводника  $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4+\delta}$  к разупорядочению. Параметром беспорядка в этой модели является величина  $\gamma = \gamma_0 + \gamma_1$ , где  $\gamma_0$  – параметр беспорядка, связанный с изотропным рассеянием, а  $\gamma_1$  – с анизотропным. Из сопоставления данных рис.3 для  $(dB_{c2}/dT)|_{T_c}$  с теоретическими зависимостями (см.вставку на этом рисунке) мы получили оценку параметра анизотропного рассеяния электронов:  $\gamma_1/\gamma_0 \cong 0.9$ , то есть вероятности изотропного и анизотропного рассеяния электронов близки по величине.

Теория [5, 18, 19] предсказывает также поведение температуры СП перехода при изменении степени беспорядка в системе. На рис.4 представлена экспериментальная зависимость  $T_c/T_{c0}$  от параметра беспорядка  $\gamma/kT_{c0}$  в электронном сверхпроводнике  $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4+\delta}$  с  $x = 0.15$  и различными  $\delta$ . Критическая температура уменьшается с ростом параметра беспорядка аналогично рассчитанной согласно [19] зависимости при  $\gamma_1/\gamma_0 \cong 0.9$  в соответствии с оценкой из данных для  $(dB_{c2}/dT)|_{T_c}$ .

Таким образом, экспериментально установлено, что в монокристаллах  $Nd_{1.85}Ce_{0.15}CuO_{4+\delta}$  наклон верхнего критического поля падает с ростом степени беспорядка в системе, что характерно для систем с  $d$ -спариванием. Однако уменьшение наклона  $(dB_{c2}/dT)|_{T_c}$  не является таким резким, как для систем с  $d$ -спариванием при изотропном рассеянии электронов. Возможно, одной из причин более плавного уменьшения наклона  $(dB_{c2}/dT)|_{T_c}$  является наличие в сверхпроводнике  $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4+\delta}$  сильного анизотропного примесного рассеяния с симметрией  $d$ -типа.

Авторы признательны М.В. Садовскому за полезные обсуждения, а также А.В. Королеву за помощь в проведении эксперимента. Работа выполнена по плану РАН (тема № г.р. 01.2.006 13395) при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант # 07-02-00396).

1. Xi Dai, Zhong Fang, Yi Zhou, and Fu-chum Zhang, cond-mat/0803.3982v1.
2. N. P. Armitage, D. H. Lu, C. Kim et al., Phys. Rev. Lett. **87**, 147003 (2001).
3. R. Fehrenbacher and M. R. Norman, Phys. Rev. B **50**, 3495 (1994).
4. L. S. Borkowski and P. J. Hirschfeld, Phys. Rev. B **49**, 15404 (1994).
5. А. И. Посаженникова, М. В. Садовский, Письма в ЖЭТФ **63**, 347 (1996).
6. В. Ф. Гантмахер, Г. А. Емельченко, И. Г. Науменко, Г. Э. Цыдынжапов, Письма в ЖЭТФ **72**, 33 (2000).

7. A. N. Ignatenkov, A. I. Ponomarev, L. D. Sabirzyanova et al., JETP **92**, 1084 (2001).
8. T. B. Charikova, A. N. Ignatenkov, A. I. Ponomarev et al., Physica C **408-410**, 372 (2004).
9. T. B. Charikova, A. I. Ponomarev, G. I. Kharus et al., JETP **105**, 626 (2007).
10. P. A. Lee and T. V. Ramakrishnan, Rev.Mod.Rhys. **57**, 287 (1985).
11. A. A. Ivanov, S. G. Galkin, A. V. Kuznetsov et al., Physica C **180**, 69 (1991).
12. A. I. Ponomarev, A. N. Ignatenkov, T. B. Charikova et al., Physics Metals and Metallography **95**, 551 (2003).
13. N. R. Werthamer, E. Helfand, and P. C. Hohenberg, Phys. Rev. **147**, 295 (1966).
14. В. Ф. Гантмахер, Г. Э. Цыдынжапов, Л. П. Козеева, А. Н. Лавров, ЖЭТФ **115**, 268 (1999).
15. A. S. Alexandrov and N. F. Mott, Rep. Prog. Phys. **57**, 1197 (1994).
16. B. N. Goshchitskii, S. A. Davydov, A. E. Karkin et al., *High Temperature Superconductivity*, Eds. V. L. Aksenov, N. N. Bogolyubov, N. M. Plakida, World Scientific, Singapore, 1990, p. 104.
17. J. Giapintakis, D. M. Ginsberg et al., Phys. Rev. B **50**, 15967 (1994).
18. G. Haran and A. D. Nagi, Phys. Rev. B **54**, 15463 (1996).
19. A. I. Posazhennikova and M. V. Sadovskii, JETP **85**, 1162 (1997).