

Локальные пары в ВТСП: доказательство реальности и проявление в теплопереносе

В. А. Фролов, В. И. Соколенко¹⁾

Национальный научный центр “Харьковский физико-технический институт”, 61108 Харьков, Украина

Поступила в редакцию 8 ноября 2017 г.

После переработки 27 февраля 2018 г.

Сопоставлением температурных аномалий плотности носителей заряда ВТСП-купрата $\text{Bi}_{1.6}(\text{Pb}_{0.4})\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10+x}$ и особенностей параметров кристаллической решетки продемонстрирована реалистичность концепции спаривания одночастичных дырочных возбуждений на поверхности Ферми в синглетные пары. Обнаружены коррелирующие с наличием спаренных квазичастичных состояний аномалии теплопроводности. Оба вида аномалий свидетельствуют о существовании трех стадий температурной эволюции псевдощели.

DOI: 10.7868/S0370274X18070068

Введение. Под локальной парой (ЛП) дырочного (h) высокотемпературного сверхпроводника (ВТСП) подразумевается гипотетический бозон, образованный в координатном пространстве двумя дырочными носителями заряда за счет взаимодействия неустановленной природы [1, 2]. Свое происхождение концепция ЛП [3–5] ведет от модели Хаббарда [6], связывая механизм прохождения тока с основным состоянием, характеризующимся “резонансными валентными связями” (RVB), на фоне которого двум одночастичным дырочным возбуждениям на поверхности Ферми (ПФ) энергетически выгодно образовать синглетную пару с зарядом “+2e”. Считается, что ЛП могут свободно перемещаться по кристаллу и при малой концентрации конденсироваться. Успехом концепции стало объяснение наличия псевдощели (ПЩ, Δ^*), [1] в плотности квазичастичных состояний на ПФ, проявляющейся аномалиями многих свойств ВТСП ниже некоторой характеристической температуры T^* [1, 2]. В частности, локальным спариванием объясняется появление при $T = T^*$ избыточной проводимости ($\Delta\sigma$) [1, 2], свидетельствующей о фундаментальных изменениях в системе носителей заряда. В некоторых моделях ВТСП на основании того, что сверхпроводящий переход реализуется все же конденсацией куперовских пар (КП) [1, 2], ЛП считаются их предшественниками, хотя доказательств существования самих ЛП нет.

В [7] методом планарно-контактного зондирования электронной подсистемы (ESPSP) дырочного

ВТСП [8, 9] показано, что в интервале $\sim 300 \text{ K}$... T_c плотность свободных носителей заряда (n^h) купрата $\text{Bi}_{1.6}(\text{Pb}_{0.4})\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10+x}$ имеет четыре аномалии, одной из причин которых, судя по их характеру, может быть спаривание носителей в координатном пространстве. Анализ аномалии при $T = T_c + (\sim 10 \text{ K})$ эту возможность исключил, продемонстрировав ее обусловленность дырочно-электронной (h - e) конверсией носителей, указывающей на топологический переход ПФ [10]. В настоящей работе проведен анализ остальных аномалий n^h , результат которого свидетельствует о существовании в ПЩ состоянии купрата $\text{Bi}_{1.6}(\text{Pb}_{0.4})\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10+x}$ положительно заряженных спаренных носителей заряда (ЛП) и трех стадий эволюции псевдощели Δ^* . Вывод относительно Δ^* подтвержден обнаружением в ПЩ состоянии $\text{Bi}_{1.6}(\text{Pb}_{0.4})\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10+x}$ аномалий теплопроводности (k), коррелирующих с наличием ЛП.

Аномалии зависимости $n^h(T)$. Согласно [8, 9], температуры и характер аномалий зависимости $n^h(T)$ дырочного ВТСП могут быть установлены из анализа температурной зависимости электросопротивления r_c интерфейса, образующегося в приповерхностном слое ВТСП при его контакте с типичным металлом. В частности, характер аномалий n^h определяется знаком вариации δr_c :

$$\text{sgn}(\delta n^h) = \text{sgn}(\delta r_c). \quad (1)$$

На рис. 1а изображен график температурной зависимости нормированного электросопротивления r_c/r_{c0} интерфейса, возникшего в контакте $\text{Bi}_{1.6}(\text{Pb}_{0.4})\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10+x}$ с Pb [7]. Образец $\text{Bi}_{1.6}(\text{Pb}_{0.4})\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10+x}$ представлял собой

¹⁾e-mail: vsokol@kipt.kharkov.ua

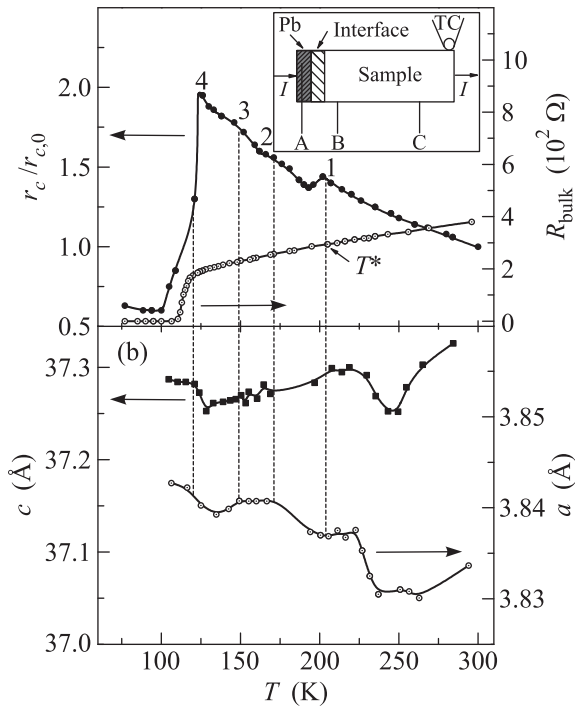


Рис. 1. (а) – Зависимости $r_c(T)/r_{c0}$, $r_{c0} = r_c(300 \text{ K})$, и $R_{\text{bulk}}(T)$. (б) – Зависимости от T параметров a и c кристаллической решетки $\text{Bi}_{1.6}(\text{Pb}_{0.4})\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10+x}$ [11]. На вставке – экспериментальная конфигурация

параллелепипед $\sim 20 \times 3 \times 3 \text{ мм}^3$, плотностью $\sim 5.2 \text{ г/см}^3$, содержащий $\sim 90\%$ оптимально допированного Bi-2223 ($T_c \approx 112 \text{ K}$). Для определения зависимости $r_c(T)$ измерялась (рис. 1а, вставка) разность потенциалов U_{AB} : $r_c = U_{AB}/I - R'_{\text{bulk}}$, где $I = 1 \div 10 \text{ мА}$ – ток вдоль нормали к интерфейсу; $R'_{\text{bulk}} \ll r_c(T)$ – сопротивление прилегающего к интерфейсу слоя массива ВТСП толщиной $\sim 2 \div 3 \text{ мм}$. Температурная зависимость сопротивления всего образца, $R_{\text{bulk}} = U_{BC}/I$, (рис. 1а), позволила оценить $T^* \sim 200 \text{ K}$ по появлению избыточной проводимости $\Delta\sigma$. Что касается анализируемых ниже аномалий (№№ 1–3), то, исходя из особенностей графика зависимости $r_c(T)/r_{c0}$ и соотношения (1), заключаем, что во всех интервалах аномалий $\delta n^h < 0$ (в режиме понижения T), а температуры возникновения аномалий, $T_{\text{ан}}^{\text{ин}}$, составляют $\sim 204, \sim 172, \sim 147 \text{ K}$.

Сопоставим зависимость $r_c(T)/r_{c0}$ с температурным поведением параметров кристаллической решетки (ПКР) также оптимально допированного $\text{Bi}_{1.6}(\text{Pb}_{0.4})\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10+x}$ [11], рис. 1б. Учтем при этом квазидвумерность ВТСП и тот факт, что 2D-3D кроссовер электронной размерности имеет место внутри интервала флуктуационной проводимости (ФП) [12], т.е. ниже всех $T_{\text{ан}}^{\text{ин}}$. Исходя из этих

соображений, обратим внимание лишь на параметр a ($\approx b$) активной плоскости (ab) и аппроксимируем объемную характеристику n^h величиной $n^h_{(ab)} = N^h_{(ab)}/V_{abd}$, где $N^h_{(ab)}$ – число дырочных носителей заряда в плоскости (ab), $V_{abd} = a \times b \times d$ – “объем” плоскости (ab), d – ее толщина.

В рамках сделанных допущений данные рис. 1а, б позволяют заключить относительно аномалии № 1 следующее: (i) – $T_{\text{ан}}^{\text{ин}} \approx 204 \text{ K}$ достаточно хорошо совпадает с $T^* \sim 200 \text{ K}$, определенной по появлению $\Delta\sigma$; (ii) – на протяжении интервала аномального изменения r_c/r_{c0} параметр $a \approx \text{const}$. Принимая во внимание соотношения $n^h_{(ab)} = N^h_{(ab)}/V_{abd}$, $V_{abd} = a \times b \times d \approx \text{const}$ и $\delta n^h_{(ab)} < 0$, приходим к выводу, что в этом интервале $N^h_{(ab)}$ уменьшается (при понижении T), что есть необходимое условие ассоциации носителей заряда в координатном пространстве. Оно, однако, не достаточно, так как имеются иные формально возможные способы уменьшения $N^h_{(ab)}$. Рассмотрим их.

Часть свободных носителей заряда локализуется в результате перехода в связанные состояния. Это действительно уменьшит $N^h_{(ab)}$, но одновременно снизит проводимость σ . Появление избыточной проводимости (см. рис. 1а), исключает эту возможность.

Некоторое число дырочных носителей конвертируется в свободные электроны. Эта формально возможная причина снижения $N^h_{(ab)}$ также должна быть исключена, ввиду того, что ниже T^* коэффициент Холла R_H данного купрата увеличивается [13], тогда как в случае появления смешанной проводимости – эффект противоположен. Единственной остающейся возможностью уменьшения $N^h_{(ab)}$ является спаривание – как наиболее вероятный процесс ассоциации – части дырочных носителей в бозоны с зарядом “+2e” (знак заряда бозона также аргументируется ростом R_H ниже T^* [13]).

В интервалах аномалий № 2 и № 3 параметр a либо постоянен, либо даже понижается (рис. 1б). Судя по конфигурации кривых $R_{\text{bulk}}(T)$ (рис. 1а) и $R_H(T)$ (рис. 1 в [13]), нет оснований связывать эти аномалии с локализацией или конверсией свободных носителей. Заключаем поэтому, что причиной этих аномалий также является спаривание носителей в координатном пространстве. Возможно, это носители других топологических групп [14–16], но в любом случае, анализ всех трех аномалий “двумерной” плотности $n^h_{(ab)}$ в интервале $T^* \dots T_c + (\sim 10 \text{ K})$ демонстрирует наличие в системе носителей заряда $\text{Bi}_{1.6}(\text{Pb}_{0.4})\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10+x}$ (i) спаренных квазичастиц с зарядом “+2e” и (ii) четко различающих-

ся трех стадий температурной эволюции псевдощели Δ^* . Последнее качественно согласуется с наблюдениями в купратах Bi-2201 и Bi-2212 псевдощелевых состояний с дискретно изменяющейся величиной Δ^* [15, 16].

Температурные аномалии теплопроводности k изучались с помощью одной из разновидностей классического метода [17], в котором измеряется разность температур ΔT , устанавливающаяся между концами идеально теплоизолированного образца вследствие подведения к одному из них стационарного теплового потока Q : $\Delta T \propto (Q/k)$. При невыполнении условий методики [17] зависимость $k(T)$ в интервале $T \dots T_0$ можно описать соотношением:

$$[\Delta T(T)/\Delta T_0] = [k(T)/k_0] \times \Theta(T), \quad (2)$$

где $\Theta(T)$ – коэффициент, интегрально учитывающий нестационарность Q и изменение условий теплообмена образца с внешней средой при изменении T . Из (2) видно, что в случае монотонности функции $\Theta(T)$ возможные аномалии зависимости $\Delta T(T)$ следует связывать с аномалиями зависимости $k(T)$.

Ориентированный горизонтально образец, исследовавшийся выше, устанавливался изначально в верхней части сосуда Дьюара, частично заполненного жидким N_2 . Понижение температуры осуществлялось пошаговым ($\delta T \sim 5$ K) перемещением образца в направлении жидкого хладагента. Тепловой поток Q , создававшийся электрическим нагревателем H , по которому пропусклся постоянный ток строго неизменной величины, подводился по медному теплопроводу HT (рис. 2а, вставка). В каждом статическом j -положении образец термализовался в течение ~ 5 мин, после чего измерялись его температура T_j при $Q = 0$ и ее изменение ΔT_j , вследствие подведения Q : $\Delta T_j = T_j(Q) - T_j(0)$; неустойчивости T_j и $(T + \Delta T)_j$ не превышали ~ 0.01 K. Измерения температуры осуществлялись термопарами Cu-Const. В отдельном эксперименте было установлено монотонное увеличение теплосъема с образца и других тепловыделяющих объектов по мере опускания измерительной ячейки (т.е. монотонный рост Θ с понижением T).

На рис. 2а изображены зависимости $[\Delta T_0/\Delta T(T)] = [k(T)/k_0] \times \Theta(T)$ и $d[\Delta T_0/\Delta T(T)]/dT$, аномалии которых имеют место в тех же интервалах, что и n^h -аномалии. На рис. 2а представлен также график модельной зависимости $d[\Delta T_0/\Delta T(T)]^{mdl}/dT$ в отсутствие нерегулярностей. Продемонстрируем достоверность результатов посредством сравнения их с имеющимися экспериментальными данными.

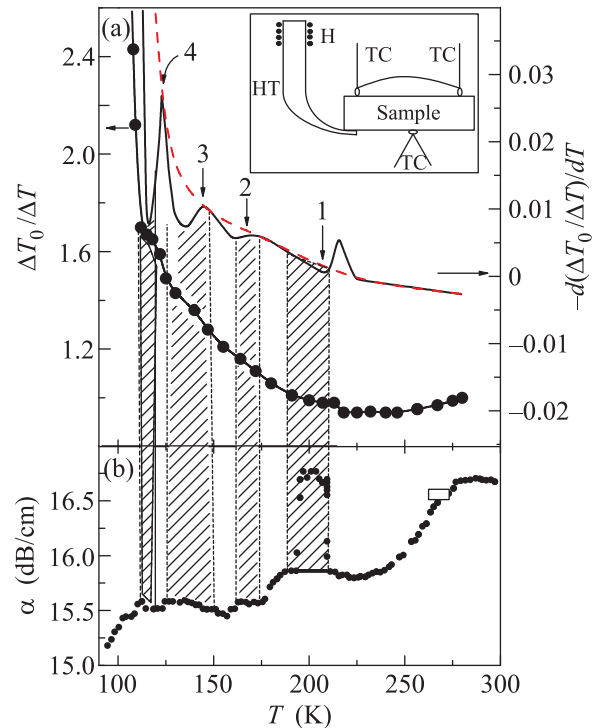


Рис. 2. (Цветной онлайн) (а) – Зависимости $\Delta T_0/\Delta T(T)$ и $d[\Delta T_0/\Delta T(T)]/dT$, штриховая линия – модельная кривая $d[\Delta T_0/\Delta T(T)]^{mdl}/dT$ (red online). (б) – Поглощение ультразвука $\alpha(T)$ в монокристалле $Bi_{1.6}(Pb_{0.4})Sr_2Ca_2Cu_3O_{10+x}$ [19]. На вставке: H – электронагреватель, HT – медный теплопровод; TC – термопары

(i) Кроме аномалий №№ 1–3, на кривой $[\Delta T_0/\Delta T(T)] \propto k(T)/k_0$ имеется крупная особенность (№ 4) ниже ~ 120 K. Точно в этой области температур в висмутовых купратах была обнаружена [18] k -аномалия того же знака классическим методом [17], что свидетельствует в пользу достоверности наших результатов.

(ii) Все нерегулярности зависимости $dk(T)/dT$ ниже $T^* \approx 204$ K коррелируют с особенностями коэффициента поглощения ультразвука α в монокристалле $Bi_{1.6}(Pb_{0.4})Sr_2Ca_2Cu_3O_{10+x}$ с такой же T_c [19]. Рис. 2b иллюстрирует идеальное совпадение температурных интервалов аномального изменения производной dk/dT с “аномальными” участками кривой $\alpha(T)$, вид которых, что существенно, указывает на увеличение поглощения фононов на фоне общего температурного снижения α .

Поскольку в псевдощелевой области коэффициент теплопроводности купратных ВТСП $k = k^e + k^{ph}$, где k^e и k^{ph} – электронная и фононная компоненты, определяется в основном фононами – $k^{ph} \sim 0.9k$ [18, 20–22], то очевидно, что k также будет реагировать на появление канала дополнительного рас-

сеяния фононов. Однако, в противоположность эффекту в поглощении звука (увеличение α), следует ожидать уменьшения k . Именно это демонстрирует рис. 2а: во всех k -аномалиях ниже T^* разность $|d[\Delta T_0/\Delta T(T)]/dT| - |d[\Delta T_0/\Delta T(T)]^{\text{mdl}}/dT|$ отрицательна. Особо отметим, что теплофизические данные (рис. 2а) как и электронные особенности, позволяют утверждать о наличии трех различных стадий температурной эволюции псевдощели Δ^* в интервале $\sim 204 \dots 120$ К.

Что касается причин снижения k вследствие появления ЛП, то это процессы, связанные со спариванием дырок в плоскостях (ab) и участием в них “резервуарных” плоскостей [23]. При этом было бы ошибочным считать переформатирование электронной подсистемы кислородной подрешетки единственной (электронной) компонентой канала дополнительного рассеяния фононов. Кроме нее, обязательно должен появиться канал рассеяния, связанный с магнитной подсистемой медной подрешетки, которая независимо от конкретного механизма локального спаривания, также должна переформатироваться, (см., например, [24]).

Заключение. Таким образом, в работе (i) впервые получены убедительные свидетельства существования в ПЩ состоянии ВТСП положительно заряженных ЛП; (ii) впервые показано, что наличие ЛП снижает теплопроводность ВТСП; (iii) независимыми методами продемонстрировано существование в интервале $T^* \dots \sim T_c$ нескольких стадий температурной эволюции псевдощели Δ^* .

Выражаем благодарность профессору А.Л. Соловьеву за плодотворные обсуждения.

1. Т. Timusk and B. Statt, Rep. Prog. Phys. **62**, 61 (1999).
2. V. M. Loktev, R. Quick, and S. G. Sharapov, Phys. Rept. **349**, 1 (2001).
3. P. Fazekas and P. W. Anderson, Phil. Mag. **30**, 423 (1974).
4. P. W. Anderson, Science **235**, 1196 (1987).
5. P. W. Anderson, G. Baskaran, Z. Zou, and T. Hsu, Phys. Rev. Lett. **58**, 2790 (1987).
6. J. Hubbard, Proc. Roy. Soc. Ser. A **276**, 238 (1963).
7. В. И. Соколенко, В. А. Фролов, ПЖЭТФ **105**(10), 621 (2017).
8. В. И. Соколенко, В. А. Фролов, ФНТ **39**(2), 134 (2013).
9. В. А. Фролов, ВАНТ, Сер. “Вакуум, чистые материалы, сверхпроводники” **1**, 176 (2016).
10. И. М. Лифшиц, ЖЭТФ **38**(5), 1569 (1960).
11. С. Г. Титова, Т. И. Арбузов, В. Ф. Балакирев, О. М. Федорова, П. П. Паль-Валь, Л. Н. Паль-Валь, ФНТ **22**, 1226 (1996).
12. А. Л. Соловьев, В. М. Дмитриев, ФНТ **35**(3), 227 (2009).
13. Q. Zang, J. Xia, M. Fang, Z. He, S. Wang, and Z. Chen, Physica C **162–164**, 999 (1989).
14. G. P. Mikitik and Yu. V. Sharlai, Phys. Rev. Lett. **82**, 2147 (1999).
15. K. K. Gomes, A. N. Pasupathy, A. Pushp, S. Ono, Y. Ando, and A. Yazdani, Nature **447**, 569 (2007).
16. T. Kondo, A. D. Palczewski, Y. Hamaya, T. Takeuchi, J. S. Wen, G. Gu, and A. Kaminski, Phys. Rev. Lett. **111**, 157003 (2013).
17. М. М. Попов, Термометрия и калориметрия, Изд. Московского ун-та, М. (1954).
18. N. V. Zavaritsky, A. V. Samoilov, A. A. Jurgens, V. S. Klotchko, and V. I. Makarov, Physica C **162–164**, 562 (1989).
19. Y. S. He, J. Xiang, F. G. Chang, J. C. Zang, A. S. He, H. Wang, and B. L. Gu, Physica C **162–164**, 450 (1989).
20. А. В. Бондаренко, О. А. Гавренко, В. А. Мерисов, М. А. Оболенский, А. В. Сологубенко, Г. Я. Хаджай, ФНТ **17**, 318 (1991).
21. А. Ежовски, Я. Клямут, Я. Тройнар, ФНТ **15**, 1025 (1989).
22. K. Mori, M. Sasakava, T. Igarashi, Y. Isikava, K. Sato, R. Noto, and Y. Muto, Physica C **162–164**, 512 (1989).
23. R. J. Cava, Science **247**, 656 (1990).
24. J. R. Schrieffer, X. G. Wen, and S. C. Zang, Phys. Rev. B **39**, 11663 (1989).