

Температурная зависимость ширины линии ЯКР $\text{Cu}(2)$ в $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-y}$

А. В. Дуглав, М. В. Ерёмин, Ю. А. Сахратов, А. В. Савинков

Казанский государственный университет, 420008 Казань, Россия

Поступила в редакцию 19 июня 2001 г.

Проведены систематические измерения ширины линии ЯКР $^{63}\text{Cu}(2)$ на недодопированных образцах $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-y}$ в температурном интервале $4.2\text{ K} < T < 300\text{ K}$. Показано, что по мере уменьшения температуры ниже критической ширина линии ЯКР меди монотонно увеличивается, напоминая своим температурным ходом поведение сверхпроводящей щели. Наблюденная закономерность связывается с зависимостью энергии конденсата скользящих токово-зарядовых состояний типа волн зарядовой плотности от фазы параметра порядка, которая, как показали расчеты, возникает лишь при $T < T_c$. Проведенные количественные оценки уширения линии при $T < T_c$ согласуются с результатами измерений.

PACS: 71.45.Lr, 74.25.Nf, 74.72.Bk, 76.60.Gv

Обычно считается, что линии ЯКР $\text{Cu}(2)$ в высокотемпературных сверхпроводниках типа 123 с кислородным индексом, близким к 7, сильно неоднородно уширены из-за дефектов кристаллической структуры (кислородные вакансии и внедрения, двойникование, примесные фазы, дефекты кристаллизации и т.д.). Подтверждением этого служит тот факт, что ширина линий ЯКР меди в соединении 1248, характеризующемся стехиометричностью состава, значительно меньше, чем в соединении 1237 [1]. Ширина линий ЯКР в образцах $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-y}$ (Y1237), исследовавшихся в разных группах, варьируется в достаточно широких пределах и составляет при комнатной температуре величину 200–350 кГц. При изменении температуры от комнатной до критической (T_c) ширина практически не изменяется. Однако начиная с T_c (а в случае слабого допирования [2] ниже T_c) наблюдается резкое увеличение ширины линии. Причины этого уширения не ясны, хотя и установлено, что оно имеет квадрупольную природу, о чем свидетельствует сравнение ширин линий изотопов ^{63}Cu и ^{65}Cu . Величина уширения, как правило, тем больше, чем больше ширина линии ЯКР при $T > T_c$. Если считать, что при $T > T_c$ ширина линии определяется дефектами кристаллической решетки, то следует признать, что ниже T_c именно наличие дефектов как-то влияет, по крайней мере частично, на уширение линий ЯКР. Имеются основания считать, что уширение при $T < T_c$ зависит от степени допирования образцов. Так, в работе [3] ширина линии ЯКР $\text{Cu}(2)$ в передопированном образце Y1237 практически вообще не изменяется в температурном интервале 300–10 К, хотя ширина линии и не является рекордно

малой (примерно 290 кГц), то есть исследованный в работе образец не является бездефектным.

Таким образом, температурное поведение ширины линии ЯКР плоскостной меди в сверхпроводнике типа 123 нетривиально и все еще далеко от полного понимания. В настоящей работе мы представляем результаты детального исследования ширины линии в двух образцах Y1237 и анализируем возможные причины уширения. Для интерпретации дополнительного квадрупольного уширения ниже T_c мы предлагаем сценарий заторможенного движения зарядовых волн, который обосновывается расчетами в рамках приближения среднего поля.

В наших исследованиях использовались те же два образца Y1237 в виде упакованного в парафин порошка с размером кристаллитов ~ 30 мкм, что и в работе [4]. Критические температуры образцов (начало перехода) равны 91.6 К (образец 1) и 91.2 К (образец 2). Измерения спектров ЯКР меди проводились с помощью широкодиапазонного когерентного импульсного ЯКР/ЯМР спектрометра в диапазоне температур 300–4.2 К. Пример спектров ЯКР $\text{Cu}(2)$, снятых при температурах 300 и 4.2 К, показан на рис.1. В обоих образцах форма линии ЯКР $^{63}\text{Cu}(2)$ хорошо описывалась лоренцевой кривой, температурная зависимость ширины на полувысоте которой показана на рис.2. Видно, что в обоих образцах от комнатной температуры до температуры ~ 120 К ширина линии очень слабо зависит от температуры. Ниже 120 К линия начинает уширяться, и особенно резкое уширение начинается ниже T_c . Относительно большая ошибка в измерении ширины линии в образце 1 не позволяет с уверенностью говорить о каких-либо

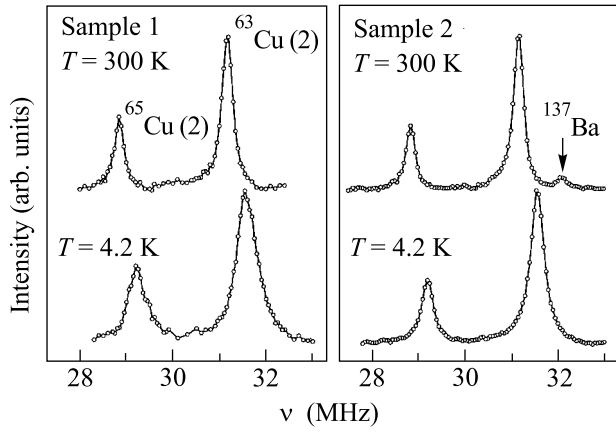


Рис.1. Спектры ЯКР $^{63,65}\text{Cu}(2)$ в $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-y}$ при 300 и 4.2 К

деталей ее поведения ниже T_c . В образце 2 ширина линии имеет явный максимум при $T = 47$ К и минимум при температуре 35 К. Причины появления последних связаны с особенностями спин-спиновой релаксации, которые обсуждались в [4].

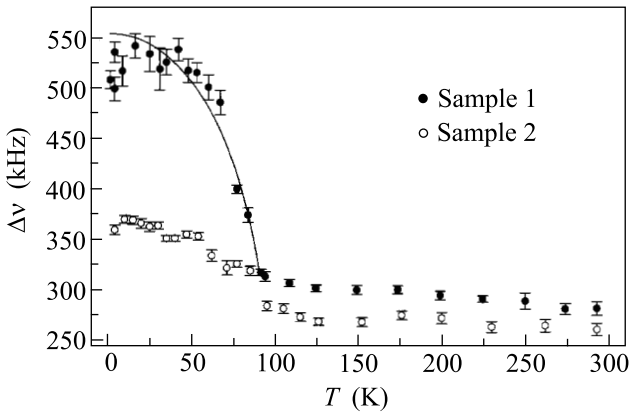


Рис.2. Температурная зависимость ширины линии ЯКР $^{63}\text{Cu}(2)$ в $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-y}$. Сплошной линией показана расчетная зависимость ширины линии от температуры (см. текст), полученная при следующих значениях параметров: $T_c = 91$ К, $T^* = 120$ К, $\Delta(T = 0\text{К}) = 25$ мэВ, $D(T = 0\text{К}) = 30$ мэВ, $S(T)/D(T) = 0.05$

Прежде чем переходить к анализу уширения линии ЯКР в области T_c , приведем несколько аргументов в пользу того, что этот эффект является внутренним, присущим самому соединению, и не связан с влиянием поверхности кристаллитов. Известно, что при переходе образца в сверхпроводящее состояние глубина проникновения радиочастотного магнитного поля, возбуждающего ядерную спиновую систему, уменьшается, вследствие чего уменьшается и наблюдаемая интенсивность сигнала ЯМР/ЯКР, поскольку

из наблюдения выпадает часть ядер от внутренних областей кристаллитов. Таким образом, ниже T_c относительный вклад в сигнал ЯМР/ЯКР от ядер, находящихся в поверхностном слое кристаллитов, увеличивается. Поверхностный слой имеет искаженную кристаллическую решетку, и линия ЯКР этого слоя обычно шире, чем линия от “внутренних” ядер. Толщина поверхностного, искаженного слоя зависит от свойств кристалла и в наихудшем случае составляет около 0.2 мкм (кристалл, не имеющий плоскостей спайности, “насухую” механически размолотый в ступке [5]). Проведенные нами расчеты показали, что даже если в поверхностном слое ширина линии ЯКР в 10 раз больше ширины линии от внутренних областей, то при размере кристаллитов 30 мкм и уменьшении интенсивности сигнала ниже T_c в 2.5 раза, как в наших экспериментах, едва заметное влияние поверхности на увеличение ширины линии ЯКР проявляется при толщине поверхностного слоя, равной одному микрометру. Поскольку в наших экспериментах относительное уширение линии составляет десятки процентов, мы считаем, что в наших экспериментах влиянием поверхности на уширение линии ЯКР Cu(2) можно пренебречь.

Отмеченные особенности в температурном ходе ширины линии, как нам представляется, проливают новый свет на режим сосуществования псевдощелевой и сверхпроводящей фаз купратов. В самом деле, энергия квазичастиц в сверхпроводнике при наличии однородной пространственной модуляции с волновым вектором $\mathbf{Q} = (\pi, \pi)$ определяется выражением

$$\begin{aligned}
 E_{1\mathbf{k},2\mathbf{k}}^2 = & \frac{1}{2}(\epsilon_{\mathbf{k}}^2 + \epsilon_{\mathbf{k}+\mathbf{Q}}^2) + |G_{\mathbf{k}}|^2 + \\
 & + \frac{1}{2}(|\Delta_{\mathbf{k}}|^2 + |\Delta_{\mathbf{k}+\mathbf{Q}}|^2) + |U_{\mathbf{k}}|^2 \pm \\
 & \pm \left\{ \frac{1}{4}[\epsilon_{\mathbf{k}}^2 - \epsilon_{\mathbf{k}+\mathbf{Q}}^2 + |\Delta_{\mathbf{k}}|^2 - |\Delta_{\mathbf{k}+\mathbf{Q}}|^2]^2 + \right. \\
 & + |G_{\mathbf{k}}|^2 [(\epsilon_{\mathbf{k}} + \epsilon_{\mathbf{k}+\mathbf{Q}})^2 + |\Delta_{\mathbf{k}}|^2 + |\Delta_{\mathbf{k}+\mathbf{Q}}|^2] - \\
 & - \Delta_{\mathbf{k}}^* \Delta_{\mathbf{k}+\mathbf{Q}} G_{\mathbf{k}}^2 - \Delta_{\mathbf{k}} \Delta_{\mathbf{k}+\mathbf{Q}}^* (G_{\mathbf{k}}^*)^2 + \\
 & + |U_{\mathbf{k}}|^2 [(\epsilon_{\mathbf{k}} - \epsilon_{\mathbf{k}+\mathbf{Q}})^2 + |\Delta_{\mathbf{k}}|^2 + |\Delta_{\mathbf{k}+\mathbf{Q}}|^2] + \\
 & + \Delta_{\mathbf{k}} \Delta_{\mathbf{k}+\mathbf{Q}} (U_{\mathbf{k}}^*)^2 + \Delta_{\mathbf{k}}^* \Delta_{\mathbf{k}+\mathbf{Q}}^* U_{\mathbf{k}}^2 + \\
 & + 2\epsilon_{\mathbf{k}} [U_{\mathbf{k}}^* G_{\mathbf{k}} \Delta_{\mathbf{k}+\mathbf{Q}} + U_{\mathbf{k}} G_{\mathbf{k}}^* \Delta_{\mathbf{k}+\mathbf{Q}}^*] + \\
 & \left. + 2\epsilon_{\mathbf{k}+\mathbf{Q}} [\Delta_{\mathbf{k}} U_{\mathbf{k}}^* G_{\mathbf{k}}^* + \Delta_{\mathbf{k}}^* U_{\mathbf{k}} G_{\mathbf{k}}] \right\}^{1/2}. \quad (1)
 \end{aligned}$$

Здесь гамильтониан модели выбран как в [6], $\Delta_{\mathbf{k}}$ – параметр порядка сверхпроводящей фазы, реальная

часть параметра $G_{\mathbf{k}} = S_{\mathbf{k}} + iD_{\mathbf{k}}$ соответствует пространственной модуляции заряда или, иными словами, волнам зарядовой плотности (ВЗП), в то время как мнимая часть – орбитальным токам, циркулирующим в соседних элементарных ячейках в противоположных направлениях. Мнимая часть $G_{\mathbf{k}}$ имеет симметрию d -типа, в то время как реальная часть характеризуется симметрией s -типа [6]. В недодопированных образцах критическая температура T^* параметра D больше температуры сверхпроводящего перехода T_c . Параметр $U_{\mathbf{k}}$ описывает неоднородное состояние сверхпроводника. В исследуемых кристаллах, согласно [4], его величина должна быть сравнительно малой.

Торможение, а в пределе – пиннинг ВЗП или орбитальных токов на пространственном потенциале решетки и дефектах обусловлены зависимостью энергии квазичастиц от фазы параметра порядка. В этой связи подставим в (1) $G_{\mathbf{k}} = |G|e^{i\varphi}$ и проследим зависимость $E_{\mathbf{k}}$ от фазы φ . Из (1) следует, что при $T_c < T < T^*$ энергия конденсата орбитальных токов и ВЗП не зависит от φ . Скользящие зарядово-токовые состояния не тормозятся (по крайней мере в приближении среднего поля) и, следовательно, не дают вклада в уширение линий ЯКР меди. Из (1) видно также, что зависимость от фазы появляется по мере появления $\Delta_{\mathbf{k}}$, то есть при $T = T_c$, и эта зависимость усиливается при понижении температуры пропорционально квадрату $\Delta_{\mathbf{k}}(T)$. Качественно это объясняет монотонное увеличение ширины линии ЯКР Cu(2) при $T < T_c$. Становится также понятным отсутствие уширения в передопированных образцах [3], так как в них $|G| = 0$.

Для количественных оценок рассмотрим фурье-компоненту пространственной модуляции заряда на ядрах меди:

$$e_Q = \frac{1}{N} \sum_j \delta_j \exp(-iQR_j), \quad (2)$$

где δ_j – число допированных дырок в расчете на элементарную ячейку бислоя CuO_2 , N – число ячеек. Однородная часть распределения δ_0 не дает вклада в e_Q . Отделяя в фурье-амплитуде модуляции заряда слагаемое, пропорциональное $\Delta_{\mathbf{k}}$, согласно [6] имеем:

$$e_Q \approx \frac{2 + \delta_0}{8N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{\Delta_{\mathbf{k}}^2 (G_{\mathbf{k}} + G_{\mathbf{k}}^*)}{(E_{1\mathbf{k}}^2 - E_{2\mathbf{k}}^2)} \times \left[\frac{1}{E_{1\mathbf{k}}} \tanh\left(\frac{E_{1\mathbf{k}}}{2k_B T}\right) - \frac{1}{E_{2\mathbf{k}}} \tanh\left(\frac{E_{2\mathbf{k}}}{2k_B T}\right) \right]. \quad (3)$$

Здесь для простоты мы ограничиваемся случаем $U_{\mathbf{k}} = 0$. Отметим, что при отсутствии реальной ком-

поненты псевдощели ($S_{\mathbf{k}}$) e_Q обращается в нуль. Для численных оценок закон дисперсии квазичастиц зададим в виде

$$\epsilon_{\mathbf{k}} = \frac{2 + \delta_0}{4} \left[t_1 (\cos k_x + \cos k_y) + t_2 \cos k_x \cos k_y + t_3 (\cos 2k_x + \cos 2k_y) \right], \quad (4)$$

где $t_1 = 78 \text{ мэВ}$, $t_2 = 0$, $t_3 = 12 \text{ мэВ}$ [6]. В соответствии с данными фотоэмиссии [7] будем считать, что $\Delta_{\mathbf{k}} = \Delta(T)(\cos k_x - \cos k_y)$, $D_{\mathbf{k}} = D(T)(\cos k_x - \cos k_y)$, $\delta_0 \approx 0.3$. Отклонение величины $|G_{\mathbf{k}}|$ от $|\cos k_x - \cos k_y|$ для недодопированного $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{1-x}\text{Dy}_x\text{Cu}_2\text{O}_{8+y}$ при $T > T_c$ (см. рис.2 работы [7]) позволяет оценить относительную величину S - компоненты: $S(T)/D(T) \approx 0.05 \div 0.1$. Для оценок по порядку величины зависимостью $S_{\mathbf{k}}$ от волнового вектора пренебрежем, то есть будем считать, что $S_{\mathbf{k}}$ зависит только от температуры. Градиент электрического поля на ядрах меди главным образом определяется решеточным и валентным вкладами [8]. Валентный вклад от дырочной орбитали меди $d_{x^2-y^2}$ доминирует и составляет примерно $V_{zz}(\text{val}) \approx 70 \text{ МГц}$. Ширину линии ЯКР меди из-за пространственной модуляции заряда можно оценить как $\Delta\nu \approx 2V_{zz}(\text{val})e_Q$. Рассчитанная таким образом температурная зависимость ширины линии показана на рис.2 сплошной линией. Качественно она хорошо соответствует результатам эксперимента. Имеется согласие и по порядку величины. Важно отметить, что формула (2) справедлива в пределе относительно медленного движения ВЗП по сравнению с периодом зондирующего поля и не предполагает полного пиннинга ВЗП.

Полная картина влияния ВЗП на ширину линии, конечно, должна включать вклад компоненты, имеющийся уже при $T > T_c$. При $T < T^*$ она определяется выражением

$$e'_Q \approx \frac{2 + \delta_0}{4N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{S_{\mathbf{k}}}{E_{1\mathbf{k}} - E_{2\mathbf{k}}} \left[f(E_{1\mathbf{k}}) - f(E_{2\mathbf{k}}) \right], \quad (5)$$

где

$$E_{1\mathbf{k}, 2\mathbf{k}} = \frac{\epsilon_{\mathbf{k}} + \epsilon_{\mathbf{k}+\mathbf{Q}}}{2} \pm \frac{1}{2} \left[(\epsilon_{\mathbf{k}} - \epsilon_{\mathbf{k}+\mathbf{Q}})^2 + 4|G_{\mathbf{k}}|^2 \right]^{1/2}, \quad (6)$$

а $f(E_{\mathbf{k}})$ – фермиевские функции распределения.

Мы не наблюдаем компоненты e'_Q в наших экспериментах: уширение линии несколько выше T_c хоть и заметно на рис.2, но очень мало. В рамках предлагаемой картины это можно объяснить усреднением e'_Q относительно быстрым движением ВЗП выше

T_c . Важную роль в этом отношении имеет и тот факт, что критическая температура параметра порядка $S(T)$ “размыта” за счет сильных флуктуаций, свойственных псевдощелевой фазе. Наличие таких флуктуаций, как известно, не учитывается в приближении среднего поля и требует специальных расчетов.

Присутствие S -компоненты можно усмотреть также из данных фотоэмиссии в $Bi_2Sr_2Ca_{1-x}Dy_xCu_2O_{8+y}$ при $T > T_c$ [7], однако ее влияние на фотоэмиссионные спектры находится на пределе точности эксперимента и видимо поэтому в [7] не отмечалось. В нашем случае iD -компонента не дает вклада в квадрупольную ширину и, таким образом, S -компонента проявляется более четко.

Итак, измерения ширины линии ЯКР меди на $YBa_2Cu_3O_{7-y}$ вблизи оптимального допирования показали, что при $T < T_c$ она начинает монотонно увеличиваться, напоминая своим температурным ходом поведение параметра порядка сверхпроводящей щели. Наблюдаемую зависимость мы связываем с наличием компоненты S -типа в параметре порядка псевдощелевой фазы. В приближении среднего поля мы показали, что энергия конденсата зарядово-токовых состояний зависит от фазы параметра порядка лишь при $T < T_c$. Проведенная количественная оценка согласуется с результатами измерений.

Работа выполнена при поддержке Российской программы “Сверхпроводимость”, проект # 98014-1, а также при частичной поддержке BRNE, грант # REC-007.

1. D. Brinkmann, in *Materials and Crystallographic Aspects of HTc – Superconductivity*, Kluwer Academic Publishers, 1994, pp.225-248.
2. S. Krämer and M. Mehring, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 396 (1999).
3. K. Kumagai, K. Nozaki, and Y. Matsuda, *Phys. Rev.* **B63**, 144502 (2001).
4. М. В. Ерёмин, Ю. А. Сахратов, А. В. Савинков и др., *Письма в ЖЭТФ* **73**, 609 (2001) [*JETP Lett.* **73**, 540 (2001)].
5. R. Yu. Abdulsabirov, A. A. Bukharaev, M. R. Zhdanov et al., *cond-mat/9808163*.
6. С. В. Варламов, М. В. Ерёмин, И. М. Ерёмин, *Письма в ЖЭТФ* **66**, 726 (1997) [*JETP Lett.* **66**, 569 (1997)]; М. В. Ерёмин, И. А. Ларионов, *Письма в ЖЭТФ* **68**, 583 (1998) [*JETP Lett.* **68**, 611 (1998)].
7. J. M. Harris, Z.-X. Shen, P. J. White et al., *Phys. Rev.* **B54**, R15665 (1996).
8. С. Н. Pennington, D. J. Durand, C. P. Slichter et al., *Phys. Rev.* **B39**, 2902 (1989).