

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ ОБНАРУЖЕНИЕ ПРОЦЕССА ЛОКАЛИЗАЦИИ-ДЕЛОКАЛИЗАЦИИ КУПЕРОВСКИХ ПАР В $Nd_{1.85}Ce_{0.15}CuO_4$

Ф.С.Насрединов, Н.П.Серегин, П.П.Серегин

Санкт-Петербургский государственный технический университет
195251 Санкт-Петербург, Россия

Поступила в редакцию 16 сентября 1999 г.

После переработки 12 октября 1999 г.

Методом эмиссионной мессбауэровской спектроскопии на изотопе $^{67}Cu(^{67}Zb)$ в высокотемпературном сверхпроводнике $Nd_{1.85}Ce_{0.15}CuO_4$ обнаружен процесс локализации-делокализации куперовских пар на примесных центрах ^{67}Zn , находящихся в подрешетке меди.

PACS: 74.25.-q, 76.80.+y

Явление сверхпроводимости обусловлено козникновением куперовских пар (пространственный масштаб куперовской корреляции составляет $\sim 10^7 - 10^{-4}$ см) и образованием бозе-конденсата, описываемого единой когерентной волновой функцией. Это означает, что распределение электронной плотности в узлах кристаллической решетки сверхпроводника должно различаться при температурах выше и ниже температуры перехода в сверхпроводящее состояние T_c .

Поскольку изомерный сдвиг I мессбауэровских спектров определяется как [1]

$$I = \alpha \Delta\rho(0) \quad (1)$$

(здесь $\Delta\rho(0)$ – разность релятивистских электронных плотностей на исследуемых ядрах в двух образцах, α – постоянная, зависящая от ядерных параметров используемого изотопа), то в принципе можно обнаружить процесс образования куперовских пар методом измерения температурной зависимости центра тяжести S мессбауэровских спектров сверхпроводников. Температурная зависимость S при постоянном давлении P определяется тремя членами [1]:

$$(\delta S/\delta T)_P = (\delta I/\delta \ln V)_T (\delta \ln V/\delta T)_P + (\delta D/\delta T)_P + (\delta I/\delta T)_V. \quad (2)$$

Первый член в этом выражении представляет зависимость изомерного сдвига I от объема V . Второй член описывает влияние доплеровского сдвига второго порядка D , и в дебаевском приближении он имеет вид [2]

$$(\delta D/\delta T)_P = -(3kT/2Mc^2)F(T/\Theta) \quad (3)$$

(где k – постоянная Больцмана, M – масса ядра-зонда, c – скорость света в вакууме, Θ – температура Дебая, $F(T/\Theta)$ – функция Дебая). Наконец, третий член в выражении (2) описывает температурную зависимость изомерного сдвига I при постоянном объеме. Появление этого члена вызвано изменением электронной плотности на мессбауэровских ядрах и этот эффект ожидается при переходе матрицы в сверхпроводящее состояние.

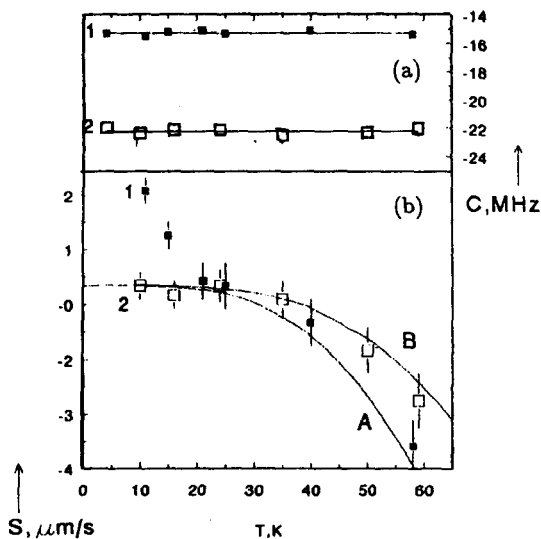
Однако попытки обнаружить процесс образования куперовских пар и бозе-конденсата методом измерения температурной зависимости центра тяжести S мессбауэровских спектров ^{119}Sn для классического сверхпроводника Nb_3Sn не были успешными [3]: наблюдаемая зависимость S от температуры удовлетворительно описывалась доплеровским сдвигом второго порядка и вблизи T_c не отмечалось особенностей в поведении $S(T)$, которые можно было бы приписать изменению изомерного сдвига. Этот факт объясняется малой величиной $\Delta I/2\Gamma_{nat}$ (здесь ΔI – максимально достижимая разность изомерных сдвигов мессбауэровских спектров в обычной и сверхпроводящей фазах, $\Gamma_{nat} = \hbar/\tau$ – естественная ширина ядерного уровня, τ – среднее время жизни ядерного уровня), которая для случая мессбауэровской спектроскопии на изотопе ^{119}Sn не превышает 6.

Условия обнаружения куперовских пар методом мессбауэровской спектроскопии должны быть более благоприятными для случая высокотемпературных сверхпроводников (имеющих минимальный масштаб куперовской корреляции), если используется мессбауэровский зонд, для которого $\Delta I/2\Gamma_{nat} \gg 10$. Выбор объектов для исследования должен также учитывать необходимость введения в узлы решетки мессбауэровского зонда. Эти условия выполняются для случая мессбауэровского зонда ^{67}Zn в решетках металлоксидов меди при использовании эмиссионного варианта мессбауэровской спектроскопии на изотопе ^{67}Cu (^{67}Zn) [4]: для ^{67}Zn $\Delta I/2\Gamma_{nat} \sim 200$ и возможно введение материнского изотопа ^{67}Cu в процессе синтеза в узлы меди, так что дочерний изотоп ^{67}Zn также оказывается в медном узле решетки.

В настоящей работе такие исследования проведены для зонда ^{67}Zn в решетке высокотемпературного сверхпроводника $\text{Nd}_{1.85}\text{Ce}_{0.15}\text{CuO}_4$. В качестве контрольного объекта, для которого не наблюдается перехода в сверхпроводящее состояние, была выбрана закись меди Cu_2O . Синтез образцов проводился по традиционной керамической технологии [5, 6]. Радиоактивный изотоп ^{67}Cu вводили в $\text{Nd}_{1.85}\text{Ce}_{0.15}\text{CuO}_4$ методом диффузионного легирования при 900°C в течение часа, а в Cu_2O – в процессе синтеза. Образцы были однофазными и для $\text{Nd}_{1.85}\text{Ce}_{0.15}\text{CuO}_4$ получено $T_c = 22\text{ K}$.

Мессбауэровские спектры ^{67}Cu (^{67}Zn) снимались с поглотителем ^{67}ZnS (поверхностная плотность 1000 мг/см^2 по изотопу ^{67}Zn). Температура поглотителя для всех спектров была $10(2)\text{ K}$, тогда как температура источника могла меняться в интервале от $10(1)$ до $60(1)\text{ K}$.

В согласии с данными, полученными авторами [5, 6] при 4.2 K , мессбауэровские спектры керамик $\text{Nd}_{1.85}\text{Ce}_{0.15}\text{CuO}_4$ в выбранном интервале температур представляли собой хорошо разрешенные квадрупольные триплеты, изомерный сдвиг которых отвечает ионам $^{67}\text{Zn}^{2+}$ в узлах меди. На рисунке приведена температурная зависимость постоянной квадрупольного взаимодействия $C = eQU_{zz}$ (здесь Q – квадрупольный момент ядра ^{67}Zn , U_{zz} – главная компонента тензора градиента электрического поля на ядре ^{67}Zn) и видно, что величина C как для $\text{Nd}_{1.85}\text{Ce}_{0.15}\text{CuO}_4$, так и для Cu_2O практически не зависит от температуры (на рисунке а нанесены также данные, полученные в [5, 6] при 4.2 K). Поскольку для зонда Zn^{2+} градиента электрического поля на ядрах ^{67}Zn создается только ионами кристаллической решетки, с учетом пренебрежимо малых изменений постоянных решетки $\text{Nd}_{1.85}\text{Ce}_{0.15}\text{CuO}_4$ в интервале температур $4.2 - 60\text{ K}$ [7], независимость C от температуры не является неожиданной.



а) Температурная зависимость постоянной квадрупольного взаимодействия C зонда ^{67}Zn для $\text{Nd}_{1.85}\text{Ce}_{0.15}\text{CuO}_4$ (1) и Cu_2O (2). б) Температурные зависимости центра тяжести S мессбауэровского спектра ^{67}Zn , измеренные относительно его значения 22 К, для $\text{Nd}_{1.85}\text{Ce}_{0.15}\text{CuO}_4$ (1) и Cu_2O (2). Данные для 4.2 К взяты из [3, 4]. Пунктиром проведены теоретические температурные зависимости S для случая доплеровского сдвига второго порядка при $\theta = 300$ К (А) и $\theta = 400$ К (В)

Температурные зависимости центра тяжести спектра S , измеренного относительно его значения при 22 К, существенно различаются для $\text{Nd}_{1.85}\text{Ce}_{0.15}\text{CuO}_4$ и Cu_2O , хотя при переходе через T_c для $\text{Nd}_{1.85}\text{Ce}_{0.15}\text{CuO}_4$ аномальных скачков в величине S не наблюдается (рисунок б).

Как отмечалось, температурная зависимость S определяется выражением (2). Как показывают расчеты [8], первым членом в выражении (2) для случая ^{67}Zn можно пренебречь поскольку для выбранного интервала температур он не превышает величину 0.03 мкм/с, а в интервале температур 10 – 60 К для соединения $\text{Nd}_{1.85}\text{Ce}_{0.15}\text{CuO}_4$ не наблюдается структурных фазовых переходов [7].

Второй член в выражении (2) описывает влияние доплеровского сдвига второго порядка и, как видно из рисунка б, экспериментальные данные для Cu_2O в интервале температур 10 – 60 К и для $\text{Nd}_{1.85}\text{Ce}_{0.15}\text{CuO}_4$ при $T > T_c$ удовлетворительно описываются зависимостью (3), проведенной для $\Theta = 300$ К и $\Theta = 400$ К (согласно [9] для $\text{Nd}_{1.85}\text{Ce}_{0.15}\text{CuO}_4$ $\Theta \sim 300$ К).

Наконец, третий член в выражении (2) описывает температурную зависимость изомерного сдвига I , и появление этого члена вызвано изменением s -электронной плотности на ядрах ^{67}Zn . Возрастание S с понижением температуры в области $T < T_c$ свидетельствует о возрастании электронной плотности на ядрах ^{67}Zn и, следовательно, о локализации на мессбауэровском зонде электронных пар.

Таким образом, установлено, что для сверхпроводника $\text{Nd}_{1.85}\text{Ce}_{0.15}\text{CuO}_4$ в области $T > T_c$ температурная зависимость S определяется доплеровским сдвигом второго порядка, тогда как в области $T < T_c$ на величину S преимущественно влияет процесс локализации куперовских пар на мессбауэровских пар на мессбауэровском зонде. Понижение температуры увеличивает влияние указанного процесса на величину S , поскольку с понижением температуры увеличивается доля бозе-конденсата. Отметим, что мессбауэровский зонд ^{67}Zn является двухэлектронным центром с отрицательной корреляционной энергией – его зарядовое состояние может меняться

только путем переноса одновременно двух электронов, причем локализованная на центре пара электронов обладает нулевыми значениями полного момента, орбитального момента и спина. В то же время, согласно модели БКШ, при $T < T_c$ спариваются электроны с противоположными импульсами, так что полный импульс, орбитальный момент и спин куперовской пары также равны 0. Именно сочетание этих факторов и благоприятствует наблюдению эффекта локализации-делокализации для зонда ^{67}Zn .

Работа поддержана Российским фондом фундаментальных исследований (грант 97-02-16216).

-
1. G.M.Rothberg, S.Guimard, and N.Benczer-Koller, *Phys. Rev.* **B1**, 136 (1970).
 2. H.Wegener, *Der Mossbauer-Effect und seine Anwendung in Physik und Chemie*, Bibliographisches Institut AG, Mannheim, 1966.
 3. J.S.Shier and R.D.Taylor, *Phys. Rev.* **174**, 346 (1968).
 4. В.Ф.Мастеров, Ф.С.Насрединов, Н.П.Серегин и др., *ЖЭТФ* **114**, 1079 (1998).
 5. N.P.Seregin, F.S.Nasredinov, V.F.Masterov et al., *Solid State Comm.* **87**, 345 (1993).
 6. Ф.С.Насрединов, В.Ф.Мастеров, Н.П.Серенин и др., *ЖЭТФ* **99**, 1027 (1991).
 7. W.Sadowski, H.Hagemann, M.Francois et al., *Physica* **C170**, 103 (1990).
 8. M.Steiner, W.Potzel, C.Schafer et al., *Phys. Rev.* **B41**, 1750 (1990).
 9. A.Tigheza, R.Kuentzler, G.Pourroy et al., *Physica* **B165**, 1331 (1990).