

РЕЗИСТИВНЫЙ ПЕРЕХОД И ВЕРХНЕЕ КРИТИЧЕСКОЕ ПОЛЕ В НЕДОДОПИРОВАННЫХ МОНОКРИСТАЛЛАХ $YBa_2Cu_3O_{6+x}$

В. Ф. Гантмахер*, Г. Э. Цыдынжапов

Институт физики твердого тела Российской академии наук
142432, Черноголовка, Московская обл., Россия

Л. П. Козеева, А. Н. Лавров

Институт неорганической химии
Сибирского отделения Российской академии наук
630090, Новосибирск, Россия

Поступила в редакцию 16 июля 1998 г.

Исследован сверхпроводящий переход в температурной зависимости сопротивления в плоскости ab для монокристаллов $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ с различными уровнями допирования в области $T_c \lesssim 30$ К. Ширина перехода, в отличие от таковой для образцов с оптимальным допированием, в магнитном поле возрастала незначительно, а при $T \lesssim 13$ К она уменьшалась по мере увеличения поля. Точка перехода $T_c(B)$ определялась по флюктуационной проводимости. Зависимости $B_{c2}(T)$, полученные в области $T/T_c \gtrsim 0.1$, не обнаруживают тенденции к насыщению и имеют положительную вторую производную всюду, включая непосредственную окрестность T_c . Функции $B_{c2}(T)$ для различных состояний кристаллов различаются лишь масштабом по T и B и могут быть представлены в виде универсальной зависимости, которая в окрестности T_c хорошо описывается моделью бозонной сверхпроводимости Александрова.

1. ВВЕДЕНИЕ

Природа высокотемпературной сверхпроводимости на сегодняшний день — одна из наиболее интересных задач физики твердого тела. Одним из важных ее аспектов является исследование температурной зависимости верхнего критического поля B_{c2} . Для обычных (низкотемпературных) сверхпроводников в рамках модели БКШ зависимость $B_{c2}(T)$ описывается универсальной функцией $b_{BCS}(t)$, выраженной в приведенных переменных: температура отнесена к температуре перехода в нулевом поле: $t = T/T_c$, а магнитное поле — к произведению T_c и производной $B_{c2}(T)$ в точке T_c : $b = B/[T_c(-dB_{c2}/dT)|_{T=T_c}]$ [1]. Функция $b_{BCS}(t)$ линейна вблизи T_c и выходит на насыщение $b \simeq 0.7$ при $t = 0$. В высокотемпературных сверхпроводниках наблюдается кардинально иное поведение B_{c2} . Положительная вторая производная и сильный рост функции $B_{c2}(T)$ при низких температурах наблюдался в монокристаллах $Tl_2Ba_2CuO_6$ [2], в пленках $Bi_2Sr_2CuO_y$ [3], в монокристаллах $K_{0.4}Ba_{0.6}BiO_3$ [4, 5]. Аналогичные свойства функции $B_{c2}(T)$ наблюдались также и в других ВТСП-системах, а именно, в $YBa_2(Cu_{1-y}Zn_y)_3O_{6+x}$ с температурой перехода T_c , подавленной сильным рассеянием [6], и в $Sm_{1.85}Ce_{0.15}CuO_{4-y}$, обладающем электронной проводимостью [7].

* E-mail: gantm@issp.ac.ru

ВТСП не являются единственным классом материалов, в которых наблюдаются отклонения от универсальной функции $b_{BCS}(t)$. Но здесь эти отклонения присутствуют, по-видимому, во всех материалах и выражены исключительно ярко [2, 3]. Поэтому следует искать фундаментальные причины для таких отклонений, общие для всех ВТСП-материалов. Было предложено несколько вариантов.

Овчинников и Кресин [8] сосредоточились на роли магнитных примесей, предполагая, что рассеяние на них вызывает распад пар и эффективно подавляет сверхпроводимость вблизи T_c ; тенденция к магнитному упорядочению при понижении температуры уменьшает вероятность процессов с переворотом спина, ведя тем самым к усилению сверхпроводимости. Наличие магнитных примесей является весьма общим свойством ВТСП, так как в большинстве из них носители возникают в результате допирования, создающего одновременно магнитные дефекты.

Спивак и Жоу [9] изучали роль квантования Ландау в комбинации со случайным потенциалом. Квантование увеличивает плотность состояний на уровнях Ландау, а случайный потенциал выводит на уровень Ферми в соседних точках пространства подуровни Ландау с противоположными направлениями спинов. При этом на случайный потенциал накладываются два противоположных условия: его вариации на масштабе длины когерентности ξ должны быть больше зеемановского расщепления, но, с другой стороны, рассеяние на нем не должно размывать максимумы в плотности состояний. Структура ВТСП способствует удовлетворению этих условий: флуктуации концентрации допирующих центров, являющихся одновременно и центрами рассеяния, ожидаются даже в высококачественных кристаллах, но эти центры и носители тока пространственно разделены.

Возможно, что причины необычного поведения $B_{c2}(T)$ более фундаментальны и связаны со специфической природой сверхпроводимости ВТСП. Примером может служить «биполярная» или, в более общем подходе, «бозонная» модель сверхпроводимости, предложенная Александровым и Моттом [10]. В этой модели предполагается, что пары (заряженные бозоны, например, биполяроны) сформированы заранее, до сверхпроводящего перехода, а сам переход состоит в их бозе-конденсации. При наличии случайного потенциала зависимость $B_{c2}(T)$ имеет положительную кривизну. Обычная сверхпроводимость в ферми-жидкости может переходить в бозонную, когда электрон-фононная связь становится сильной, а плотность носителей малой. И вновь ВТСП оказываются хорошими кандидатами на реализацию такого сценария. Концентрация носителей в них меньше, чем в обычных металлах, а с понижением уровня допирования уменьшается дополнительно. В то же время константа связи $\lambda \gtrsim 1$.

Абрикосов предложил для описания ВТСП модель, в которой ключевую роль для сверхпроводимости играет сингулярность типа седловой точки в электронном спектре. Эта модель, в частности, предсказывает положительную кривизну $B_{c2}(T)$ [11] — благодаря седловой точке задача становится эффективно одномерной, что резко снижает способность магнитного поля разрушать сверхпроводимость. В отсутствие парамагнитного предела модель дает расходящуюся зависимость $B_{c2}(T)$, учет его ограничивает поля конечными значениями.

Накопленных экспериментальных данных недостаточно для окончательного выбора в пользу одной из моделей. Необходимы дополнительные исследования, и данная работа является шагом в этом направлении. В ней представлены результаты изучения влияния магнитного поля на поведение сопротивления монокристаллов $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ при различных уровнях допирования, меньших оптимального. Нашей целью было из-

мерить температурную зависимость B_{c2} в этом материале при значениях x , обеспечивающих $T_c < 30$ К, и проследить изменение определяющих ее параметров при $T_c \rightarrow 0$.

Статья организована следующим образом: разд. 2 содержит основные теоретические представления о фазовой диаграмме сверхпроводника в магнитном поле и о поведении сопротивления при переходе от нормального к сверхпроводящему состоянию; они необходимы при анализе экспериментальных данных. В разд. 3 описываются методики подготовки образцов и проведения эксперимента, в разд. 4 — полученные результаты. Экспериментальные зависимости $\rho(T)$ и их эволюция при приложении магнитного поля рассматриваются в разд. 4.1. Способ извлечения величин B_{c2} из температурных зависимостей сопротивления в ВТСП остается спорным местом (см., например, [12, 13]); поэтому нами уделено специальное внимание этому вопросу (разд. 4.2). Благодаря незначительности уширения перехода в поле качественные выводы о поведении $B_{c2}(T)$ не зависят от конкретного способа определения этой точки, но, чтобы получить численные значения $B_{c2}(T)$, мы использовали температурные зависимости флуктуационной проводимости в нормальном состоянии. Раздел 4.3 содержит данные, полученные для $B_{c2}(T)$. Положительная кривизна $B_{c2}(T)$ наблюдалась во всем диапазоне температур, включая непосредственную окрестность T_c ; в области низких температур не было обнаружено признаков насыщения. Полученные данные рассматриваются в сравнении с существующими моделями.

2. ОСНОВНЫЕ ТЕОРЕТИЧЕСКИЕ ПРЕДСТАВЛЕНИЯ

2.1. Фазовая диаграмма

Фазовая диаграмма сверхпроводника второго рода на плоскости B – T в приближении среднего поля состоит из мейснеровской области, в которой магнитное поле полностью выталкивается из образца, области смешанного состояния, в которой существует решетка абрикосовских вихрей, и нормального металла. Эти области отделены друг от друга линиями фазовых переходов второго рода: $B_{c1}(T)$ между мейснеровской и смешанной фазами и $B_{c2}(T)$ между смешанным состоянием и нормальным металлом.

За пределами приближения среднего поля учет тепловых флуктуаций параметра порядка несколько меняет вид фазовой диаграммы. Ниже $B_{c2}(T)$ на ней появляется область «вихревой жидкости», в которой флуктуации затрагивают в основном фазу параметра порядка (что эквивалентно может быть представлено как свободное движение абрикосовских вихрей), а также область критических флуктуаций в ближайшей окрестности $B_{c2}(T)$, где флуктуирует амплитуда параметра порядка и ее среднее значение быстро изменяется при изменении температуры или поля. Выше $B_{c2}(T)$ также присутствуют сверхпроводящие флуктуации, но их амплитуда мала и спадает при удалении от линии $B_{c2}(T)$. Фазовый переход в сверхпроводящее состояние (с установлением дальнего порядка) происходит при этом на границе между вихревой жидкостью и вихревой решеткой (линия плавления, $B_m(T)$), а линия $B_{c2}(T)$, определенная в приближении среднего поля, соответствует кроссоверу от нормального металла с малой амплитудой флуктуаций параметра порядка к вихревой жидкости, где модуль параметра порядка практически равен единице [14–16].

В обычных сверхпроводниках ширина области критических флуктуаций и вихревой жидкости очень мала и практически ненаблюдаема. Линия плавления $B_m(T)$ совпадает с $B_{c2}(T)$, и поэтому приближения среднего поля вполне достаточно для описания

фазовой диаграммы. В ВТСП ситуация иная. Высокое значение T_c , малая длина когерентности и большая анизотропия увеличивают роль флуктуаций и приводят к тому, что вихревая жидкость занимает уже существенную часть фазовой диаграммы и B_m и B_{c2} разделены. Так как флуктуации размывают особенности транспортных или термодинамических свойств в точке B_{c2} , ее экспериментальное определение сильно затруднено. Однако сама величина $B_{c2}(T)$ не теряет своего значения, так как именно она является параметром, определяющим поведение термодинамических величин вдали от линии перехода, где применимо приближение среднего поля.

В материалах с сильным пиннингом вихрей на дефектах фазовая диаграмма претерпевает дополнительные коррективы: пиннинг нарушает упорядоченность вихревой решетки и превращает ее в вихревое стекло. При этом линия плавления заменяется на «линию необратимости» $B^*(T)$, выше которой вихри отрываются от центров пиннинга тепловыми флуктуациями и движутся свободно даже при токах, стремящихся к нулю, что приводит к конечному сопротивлению и обратимому поведению намагниченности в постоянном поле. Ниже $B^*(T)$ движение вихрей в пределе малых токов отсутствует, а на кривой намагниченности появляется гистерезис.

2.2. Резистивный переход

В высокотемпературных сверхпроводниках оптимального допирования в магнитном поле зависимости $\rho(T)|_B$ представляют собой веерообразный набор кривых с практически не зависящей от поля температурой начала перехода [14, 17]. Спад сопротивления в области начала перехода определяется увеличением вклада в проводимость сверхпроводящих флуктуаций. Характерным полем подавления флуктуаций является B_{c2} , и, соответственно, смещение верхней части резистивного перехода следует именно зависимости $B_{c2}(T)$. В свою очередь, в нижней части перехода исчезновение сопротивления должно соответствовать замораживанию движения вихрей. Качественной границей на фазовой диаграмме B - T , указывающей, где подвижность вихрей становится существенной, является «линия необратимости» $B^*(T)$. Таким образом, интервал для резистивного перехода ограничен линиями $B_{c2}(T)$ и $B^*(T)$ и связывается с областью вихревой жидкости на фазовой диаграмме, а веерообразное поведение кривых сопротивления отражает увеличение ширины этой области по мере возрастания поля на фоне почти вертикальной кривой $B_{c2}(T)$.

Размер области вихревой жидкости и, тем самым, ширину перехода определяет соотношение между пиннингом и флуктуациями. Депиннингу вихрей способствуют малая длина когерентности ξ , высокие температуры и слабая связь между сверхпроводящими слоями CuO_2 — сильная анизотропия. Изменение уровня допирования (концентрации носителей n) в обе стороны от оптимального n_{opt} ведет к понижению T_c и возрастанию ξ . Однако при уменьшении допирования анизотропия растет, а при увеличении — убывает. Резистивное поведение передопированных образцов ВТСП с высокой концентрацией носителей и низкой анизотропией становится похожим на поведение обычных сверхпроводников с сильным пиннингом [2, 18].

Различие пере- и недоопированных состояний было продемонстрировано при сравнении образцов $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ с различными x [18]. В то время как в недоопированном образце с $x = 0.08$ и $T_c \approx 30$ К магнитное поле $B = 8$ Тл приводило к расширению резистивного перехода на 15–20 К, передопированный образец, $x = 0.20$, имеющий такое же значение T_c , демонстрировал почти параллельный сдвиг кривой перехода [18]. Это же было подтверждено в работах [19, 20], где сообщалось, что уменьше-

ние содержания кислорода в тонких пленках и монокристаллах $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ приводит к заметному усилению эффектов, связанных с движением вихрей, и, в частности, к увеличению уширения перехода в магнитном поле. Однако в этих работах изучались образцы с $T_c \gtrsim 40$ К, и неясно, сохраняется ли эта тенденция вплоть до малых значений T_c .

Существует иная интерпретация резистивного перехода в купратах, связывающая основное уменьшение сопротивления с фазовым переходом между вихревой жидкостью и вихревой решеткой (вихревым стеклом) при $B_m(T)$ [14, 21, 22]. В этом случае наблюдаемый резистивный переход расщепляется на скачок сопротивления при пересечении линии $B_m(T)$ (существенно ниже $B_{c2}(T)$) и кроссовер на $B_{c2}(T)$ [21], который может быть мало заметен на кривых сопротивления. Возможно, что в передопированных купратах высокая проводимость в нормальном состоянии действительно может замаскировать переход из нормального состояния в фазу вихревой жидкости [2]. Однако даже в оптимально допированных кристаллах $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ исключительного качества с чрезвычайно низким пиннингом [23] изменение транспортных свойств в окрестности B_{c2} хорошо заметно. Оно должно быть тем более заметно в недоопированных образцах, обладающих меньшей нормальной проводимостью.

3. ЭКСПЕРИМЕНТ

Монокристаллы $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ были выращены путем медленного охлаждения расплава, содержащего 10.0–11.4 масс. % $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ и эвтектическую смесь 0.28 BaO–0.72 CuO в качестве растворителя, с последующей декантацией оставшегося флюса. Для измерений были отобраны кристаллы без видимых следов блочной структуры, имеющие форму пластин толщиной 20–40 мкм и площадью порядка нескольких квадратных миллиметров. После отжига в атмосфере кислорода при 500°C они имели $T_c \approx 90$ –92 К и достаточно узкий сверхпроводящий переход по сопротивлению, $\Delta T < 1$ К.

В соединении $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ носители заряда (дырки) в плоскостях CuO_2 появляются в результате захвата электронов в слои CuO_x -цепочек. Концентрация дырок зависит от содержания кислорода x и от его расположения в цепочках в слоях CuO_x . Соответственно, существуют два способа менять концентрацию носителей (а вместе с ней температуру сверхпроводящего перехода) в $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$: изменение содержания кислорода и варьирование степени его упорядочения в слоях CuO_x .

Изменение содержания кислорода осуществляется путем высокотемпературного отжига и позволяет получать весь спектр состояний от антиферромагнитного диэлектрика до оптимально допированного сверхпроводника. Температура отжига при известном парциальном давлении кислорода определяет содержание кислорода в кристалле и может использоваться как удобный технологический параметр [24]. Для уменьшения содержания кислорода до значений $x = 0.37$ –0.47 мы отжигали кристаллы на воздухе при 800–700°C и затем закаливали в жидком азоте для исключения обмена кислородом с атмосферой в процессе охлаждения.

Второй метод позволяет изменять концентрацию носителей в относительно узкой области, меняя среднюю длину кислородных цепочек при постоянном значении x [25, 26]. В цепочках конечной длины на q атомов кислорода приходится $q+1$ атом меди и, следовательно, $(q+1)/q$ электронов на один атом кислорода; поэтому атомы кислорода, входящие в короткие цепочки, менее эффективны в захвате заряда из плоскостей

CuO_2 . Средняя длина цепочек может изменяться благодаря высокой диффузионной подвижности кислорода в слоях CuO_x при комнатной и более высоких температурах. Длинные цепочки более выгодны энергетически, но проигрывают в энтропии, что делает их менее предпочтительными при высоких температурах. Баланс двух этих факторов определяет равновесную среднюю длину цепочек и, тем самым, число дырок в зависимости от температуры. Время установления равновесия сильно зависит от температуры, а быстрое охлаждение замораживает расположение атомов кислорода и фиксирует концентрацию носителей. На практике кристаллы нагревали до 120–140°C и закаливали в жидком азоте. Это приводило к существенному уменьшению числа дырок и, соответственно, понижению T_c . После этого образцы могли сохраняться при температуре жидкого азота неограниченно долго без каких-либо изменений. Нагрев закаленного образца до комнатной температуры приводил к медленному¹ возрастанию концентрации носителей за счет коагуляции кислорода в более длинные цепочки. Этот процесс старения можно было контролировать по изменению сопротивления образца при постоянной температуре и прервать в любой момент охлаждением, что позволяло получить любую промежуточную величину T_c . Выдержка образца при комнатной температуре в течение нескольких суток возвращала его к начальному равновесному состоянию. Так как все процессы перестройки кислородной подсистемы происходят при сравнительно низких температурах, этот метод позволяет получить последовательность состояний образца, минимально отличающихся друг от друга по расположению дефектов и центров пиннинга.

Всего нами было изучено три кристалла при нескольких концентрациях носителей каждый. Данные об образцах собраны в таблице. В ней разные кристаллы обозначены цифрами (1, 2, 3), различные содержания кислорода в одном кристалле — буквами (a , b) и, кроме того, указана степень закалки (закаленное, промежуточное либо равновесное состояние). Отношение сопротивлений при комнатной температуре и при 50 К, где длина свободного пробега обусловлена в основном рассеянием на дефектах, характеризует степень чистоты кристаллов. Для кристалла 2 она приблизительно втрое больше, чем для кристаллов 1 и 3. Параметр B_{sc} рассматривается в разд. 4.3.

Образцы

Образец №	$\rho_{room}/\rho_{50\text{ К}}$	x	Степень закалки	T_c , К	B_{sc} , Тл
1a	3	0.43	закаленный	16.5	3.0
			промежуточный	20.5	3.8
			равновесный	25.5	8.9
2a	8	0.41	равновесный	19	2.8
2b	10	0.47	закаленный	38.5	120
			равновесный	44.5	240
3a	3	≈ 0.37	закаленный	0	—
			равновесный	6.3	0.61
3b	3	≈ 0.37	равновесный	≈ 3	—

Мы проводили измерения сопротивления в плоскости ab по четырехточечной схеме. Так как кристаллы $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ с низким содержанием кислорода очень анизотропны, очень важно обеспечить равномерное распределение тока по толщине образца, чтобы измерять одну компоненту тензора сопротивления. Для этого токовые контакты были сделаны полностью покрывающими противоположные боковые грани кристаллов. Контакты наносились серебряной пастой и вжигались заранее, перед всеми термообработками, менявшими концентрацию дырок. Сопротивление измерялось стандартным способом с помощью *lock-in* нановольтметра на частоте 23 Гц. Измерительный ток был достаточно мал, чтобы обеспечить линейный режим и отсутствие признаков перегрева до самых низких температур. Погрешность определения геометрического фактора ограничивала точность абсолютных значений удельной проводимости на уровне 10–20%, однако для каждого кристалла геометрический фактор не изменялся от состояния к состоянию.

Основная часть экспериментов проводилась в металлическом криостате с системой откачки ^3He в диапазоне температур 0.3–300 К [27]. При температурах 0.3–1.2 К образец находился в жидком ^3He , а в остальном диапазоне — в атмосфере газообразного ^3He при давлении несколько мм рт.ст., который выполнял роль теплообменного газа. Температуру измеряли угольным термометром сопротивления, калиброванным по эталонному платиновому термометру, парам ^4He и церий-магниевого нитрату в соответствующих диапазонах. Магнитное поле до 8.25 Тл прикладывалось параллельно оси c кристалла.

Образец $3b$ в равновесном состоянии, имевший низкое значение T_c , был промерен в рефрижераторе растворения при температурах до 30 мК и полях до 14 Тл.

4. РЕЗУЛЬТАТЫ

4.1. Температурные зависимости сопротивления

В наших экспериментах, проведенных на образцах с $T_c \geq 30$ –35 К ($2b$, закаленный и равновесный), наблюдались веерообразные наборы кривых $\rho(T)|_B$, аналогичные полученным в работах [19, 20]. В образцах же с меньшими T_c влияние магнитного поля на резистивный переход было качественно другим, и в данной работе мы сосредоточимся именно на них, т.е. на поведении кристаллов $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ в состояниях с $T_c \leq 30$ К ($1a$, $2a$, $3a$ и $3b$ во всех степенях закалки). В них магнитное поле вызывало сдвиг перехода без значительного его уширения (рис. 1), что свидетельствует о том, что в этой области температур влияние движения вихрей на форму перехода уже не является доминирующим. Тем не менее форма перехода в магнитном поле изменялась, и, как видно из приведенных на правой части рис. 1 кривых производных $\partial\rho/\partial T$, это изменение не было монотонным. Поскольку величина нормального сопротивления слабо менялась с температурой, то высота пика производной практически обратно пропорциональна ширине резистивного перехода. Как следует из приведенных рисунков, независимо от значения T_c (≤ 30 К), ширина перехода была максимальна примерно при 13–14 К. Если исходное значение T_c выше, то переход сначала смещается к более низким температурам, расширяясь (рис. 1а); после того как он оказывается в районе 13–14 К, дальнейшее смещение перехода сопровождается его сужением. При более низких T_c (рис. 1б, в) смещение перехода при приложении магнитного поля практически сразу сопровождается его сужением, и, кроме того, переход в поле становится более крутым даже по сравнению с кривой в нулевом поле.

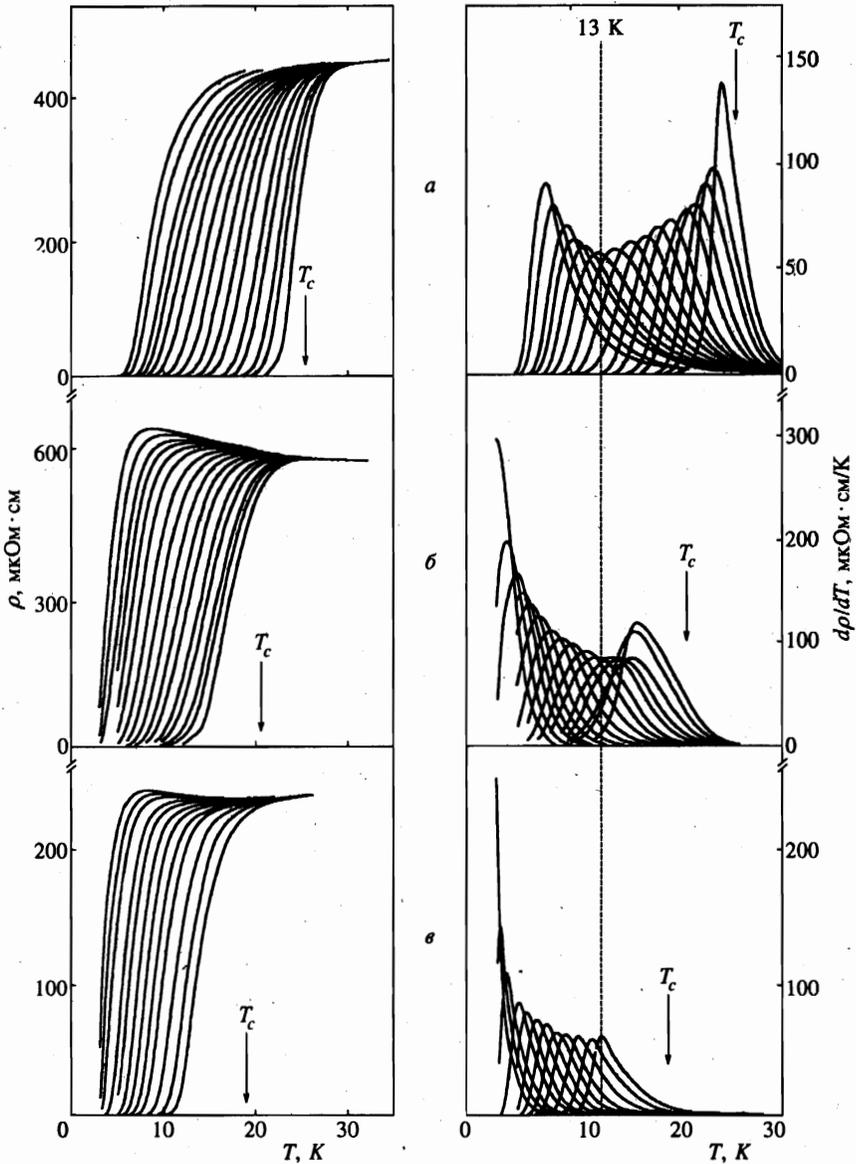


Рис. 1. Проводимость ρ (слева) и ее производная (справа) в различных магнитных полях, приложенных вдоль оси c . *a* — Кристалл 1а, равновесное состояние; поля (справа налево): 0, 0.06, 0.12, 0.23, 0.35, 0.6, 0.8, 1.2, 1.6, 2.2, 3.0, 3.8, 4.6, 5.5, 6.7 и 8.2 Тл. *б* — Кристалл 1а, промежуточное состояние; поля: 0, 0.06, 0.12, 0.23, 0.35, 0.6, 0.8, 1.2, 1.6, 2.2, 3.0, 3.8, 4.6, 5.5, 6.7 и 8.2 Тл. *в* — Кристалл 2а, равновесное состояние; поля: 0.12, 0.23, 0.5, 0.8, 1.2, 1.6, 2.2, 3.0, 3.8, 5.5, 6.7 и 8.2 Тл

Проведенное сравнение образцов 1а и 2а показало, что немонотонная эволюция ширины перехода в магнитном поле является хорошо воспроизводимым свойством, мало зависящим от качества кристалла. Температуры сверхпроводящих переходов в этих кристаллах были подогнаны отжигом к одному значению (рис. 1б, в), но свойства в нормальном состоянии у них сильно различались. Кристалл 2а имел меньше примесей и структурных дефектов, и в результате его нормальное сопротивление вблизи T_c было вдвое меньше (рис. 1), сильнее убывало при охлаждении от комнатной температуры до 50 К (таблица) и слабее возрастало при низкой температуре. Однако, несмотря на такое различие, и величина сдвига перехода, и эволюция его формы были у обоих кристаллов одинаковы. Сужение резистивного перехода в недодопированном кристалле $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ при увеличении магнитного поля в этом диапазоне температур наблюдалось также в работе [25], но, поскольку в этой работе результаты представлены в ином виде, непосредственное сравнение с нашими данными затруднено.

Описанное выше поведение кривых перехода наблюдалось на всех образцах с $T_c \geq 6$ К. Для состояний с более низкими температурами перехода не удается получить узкий переход в нулевом поле и определить T_c и ширину перехода. Поэтому результаты измерения на образце 3в мы приведем и обсудим отдельно в разд. 4.3.

4.2. Извлечение $B_{c2}(T)$ из измерений сопротивления

Отсутствие заметного уширения перехода в магнитном поле у образцов $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ с малыми T_c свидетельствует о том, что у них в отличие от образцов с $T_c \geq 30-35$ К область «вихревой жидкости» на фазовой диаграмме невелика. Однако ширина перехода все же не настолько мала, чтобы можно было пренебречь ею при определении $B_{c2}(T)$. Поскольку точка B_{c2} не выделена на кривых $\rho(T)$, наиболее разумным представляется определять ее как параметр подгонки экспериментальных данных теоретической зависимостью, описывающей кроссовер от состояния нормального металла к фазе вихревой жидкости. Пытаясь реализовать такой подход, мы рассматривали проводимость образца как сумму нормальной и флуктуационной компонент: $\sigma(T) = \sigma_n(T) + \sigma_{fl}(T)$.

Флуктуационная проводимость σ_{fl} в квазидвумерных системах в нулевом поле обычно описывается с помощью выражения Лоренса—Дониаха:

$$\sigma_{fl} = \frac{1}{16} \frac{e^2}{\hbar d \epsilon} \left[1 + \left(\frac{2\xi_c(0)}{d} \right)^2 \frac{1}{\epsilon} \right]^{-1/2}, \quad \epsilon \equiv \ln \frac{T}{T_c}, \quad (1)$$

где d — межплоскостное расстояние. В работе [28] было показано, что даже при описании флуктуационной проводимости в оптимально допированных кристаллах $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ с анизотропией сопротивления всего 30–100 можно пренебречь слагаемым, учитывающим отклонения от двумерности, и перейти к выражению Асламазова—Ларкина для 2D-случая:

$$\sigma_{fl} = \frac{1}{16} \frac{e^2}{\hbar d} \epsilon^{-1}. \quad (2)$$

В кислорододефицитных кристаллах анизотропия достигает $(5-10) \cdot 10^3$ [24] и заведомо можно использовать зависимость (2) во всей области температур, за исключением непосредственной окрестности T_c .

В ненулевом магнитном поле теоретическое описание $\sigma_{fl}(T, B)$ для произвольного вида $B_{c2}(T)$ отсутствует. Улла и Дорси провели анализ σ_{fl} в системе с сильными флуктуациями в магнитном поле [16] и предложили скейлинговое выражение для флуктуационной проводимости, которое часто применяется для описания резистивного перехода и определения $B_{c2}(T)$ в купратных сверхпроводниках [29–31]. Так как их подход следует приближению среднего поля и предполагает линейную зависимость $B_{c2}(T)$ вблизи T_c , этот способ анализа невозможен в случае ее сильной нелинейности. (Ниже будет показано, что как раз это имеет место в нашем случае.) Однако в области заметно выше $T_c(B)$ ($\epsilon_B \gtrsim 0.1$), где преобладают гауссовы флуктуации, можно использовать формулу вида Асламазова—Ларкина:

$$\sigma_{fl} \propto \frac{1}{\epsilon_B}, \quad \text{где } \epsilon_B = \ln \frac{T}{T_c(B)}, \quad (3)$$

как в нулевом, так и ненулевом магнитном поле (см. работу [16] и приведенные там ссылки; $T_c(B)$ — функция, обратная $B_{c2}(T)$). Эта формула, вообще говоря, тоже предполагает линейную зависимость $B_{c2}(T)$, но возможное изменение показателя степени в ней вызовет лишь систематическое смещение получаемых значений $T_c(B)$ на небольшую величину.

В наших образцах, в отличие от случая оптимального допирования, нормальная проводимость мала. Она порядка e^2/hd (если считать d порядка параметра решетки, 11.7 Å), см. рис. 1. Простые оценки на основе формулы Асламазова—Ларкина (2) с разумным выбором d показывают, что вклад σ_{fl} будет составлять несколько процентов от σ_n даже при $\epsilon_B \gtrsim 0.5$. Это затрудняет определение $\sigma_n(T)$. Трудности еще более усугубляются тем, что сопротивление в нормальном состоянии имеет минимум в районе 30–40 К и возрастает при низких температурах. Поэтому мы пошли по пути априорного выбора функциональной зависимости $\sigma_n(T)$ с несколькими параметрами, которые подлежат определению. При этом подгонка экспериментальных данных проводится путем варьирования всех параметров как в $\sigma_{fl}(T)$, так и в $\sigma_n(T)$ [29]. Эта процедура едва ли могла бы дать какие-нибудь результаты, если бы для каждой кривой $\rho(T)$ набор параметров был своим. Однако в рассматриваемой области полей и температур магнитосопротивление кристалла $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ в нормальном состоянии практически отсутствует, т. е. кривая $\sigma_n(T)$ не зависит от магнитного поля.

Наши исследования монокристаллов $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ вблизи границы области сверхпроводимости [32] показали, что нормальное сопротивление этих образцов при $T < 20$ К описывается логарифмической функцией. В более широком диапазоне температур ($0.5 \text{ К} < T < 150 \text{ К}$) проводимость может быть очень хорошо описана эмпирической зависимостью

$$\sigma_n(T) = \rho_n^{-1} = [\alpha - \beta \lg T + \gamma T]^{-1}. \quad (4)$$

Эта функция, содержащая три параметра, была использована нами при обработке данных.

Аппроксимация проводимости в нулевом поле суммой σ_n в виде (4) и σ_{fl} в виде (2) с T_c и d в качестве свободных параметров наряду с α , β и γ дает разумные величины $d = 8\text{--}15$ Å, согласующиеся с параметром решетки $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ в направлении c . Это свидетельствует о том, что выражение Асламазова—Ларкина дает верную оценку флуктуационной проводимости в CuO_2 -слоях и его использование обосновано. Оптимизация нормального сопротивления проводилась с таким расчетом, чтобы обеспечить

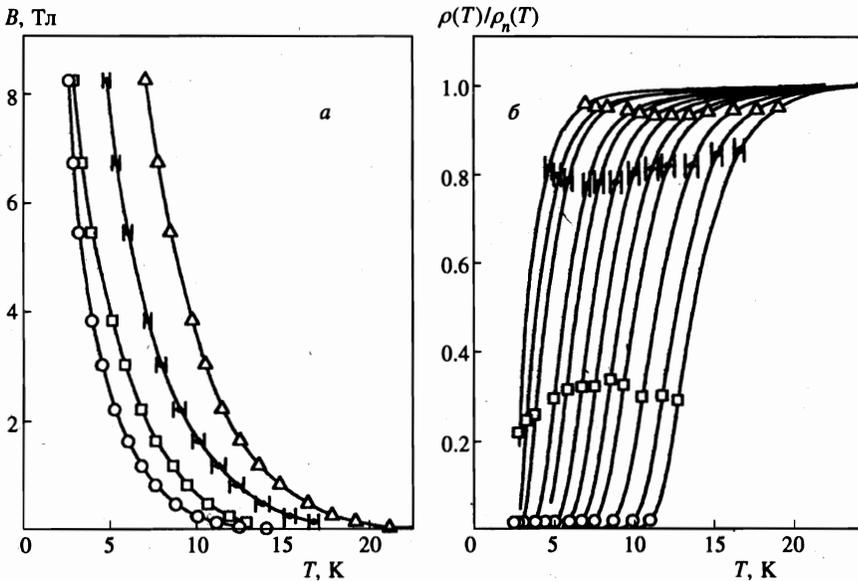


Рис. 2. Характерные точки сверхпроводящего перехода в образце 2а на плоскостях BT (а) и ρT (б) (сопротивление ρ нормировано на функцию $\rho_n(T)$ из (4), использованную при определении флуктуационной проводимости): \circ — «линия необратимости», $\rho = 5$ мкОм·см; \square — максимум производной $\partial\rho/\partial T$; \bullet — $B_{c2}(T)$; Δ — «начало перехода», $\partial\sigma_{f1}/\partial T = 10^2$ (Ом·см) $^{-1}/K$

наилучшую аппроксимацию флуктуационной проводимости для всех значений магнитного поля. Несмотря на это, нормальное сопротивление определялось со значительной погрешностью. Однако оказалось, что определяемые значения температуры перехода лишь слегка зависят от допустимых вариаций $\sigma_n(T)$; соответствующая неопределенность значений показана на рис. 2.

Описанная процедура позволяет экспериментально определить величины $B_{c2}(T)$ для приближения среднего поля. Поскольку нелинейная зависимость $B_{c2}(T)$ ставит под сомнение применимость формулы (3), мы сочли необходимым продемонстрировать, что качественный вывод о поведении $B_{c2}(T)$ благодаря отсутствию уширения перехода не зависит от деталей процедуры его определения. На рис. 2а для образца 2а построена зависимость $B_{c2}(T)$ вместе с положением других характерных точек, а именно, «линии необратимости», определенной по $\rho = 5$ мкОм·см, максимума производной $\partial\rho/\partial T$ и «начала перехода», определенного как точка, в которой $\partial\sigma_{f1}/\partial T = 10^2$ (Ом·см) $^{-1}/K$. На рис. 2а они построены в плоскости BT , а на рис. 2б показано положение этих точек на кривых перехода. (Обращает на себя внимание тот факт, что величины B_{c2} слабо отличаются от значения, получившегося бы, определи мы их по постоянному уровню $\rho/\rho_n = 0.8$.) Как видно на рис. 2а, все кривые на плоскости BT имеют положительную кривизну во всем диапазоне магнитных полей, в том числе и в малых полях. Это позволяет сделать вывод, что даже в случае, если наша процедура дает неверное значение B_{c2} , зависимость последнего от температуры качественно останется той же. Мы, однако, весь дальнейший анализ будем основывать на значениях, полученных из данных по флуктуационной проводимости.

4.3. Универсальная температурная зависимость критического поля

Результаты измерения $B_{c2}(T)$, проведенные на образцах в пяти состояниях образцов (все состояния 1a, 2a и равновесное 3a), представлены на рис. 3. Оказалось, что все результаты для всех состояний всех образцов изменением масштабов по осям полей и температуры могут быть совмещены друг с другом, т. е. подчиняются соотношению

$$B_{c2} = B_{sc} b_{sc}(t), \quad t = T/T_c, \quad (5)$$

где B_{sc} — параметр, зависящий от состояния, а $b_{sc}(t)$ — универсальная функция (рис. 4). $b_{sc}(t)$ может быть определена лишь с точностью до постоянного множителя. На рис. 4 в качестве B_{sc} взято значение B_{c2} при приведенной температуре, одинаковой для всех состояний, а именно $T_c/2$, т. е. кривые $B_{c2}(T)$ совмещались в двух точках — при $t = 1$ и $t = 0.5$. Значения B_{sc} для разных состояний приведены в таблице и показаны на вставке к рис. 4 как функция температуры перехода в нулевом поле. Они оказываются лежащими на гладкой кривой, несмотря на то что здесь присутствуют данные для трех разных кристаллов. Уменьшение характерного масштаба критических полей и, соответственно, увеличение длины когерентности при снижении уровня допирования происходит существенно быстрее, чем понижение T_c : B_{sc} — сверхлинейная функция T_c . Это может быть основной причиной сужения области вихревой жидкости на диаграмме B - T . В результате для сильно недодопированных кристаллов $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ с $T_c \lesssim 30$ К не наблюдается значительного расширения резистивного перехода в магнитном поле.

Для кристалла 2b функция $B_{c2}(T)$ была измерена из-за ограничений по полю лишь в узком температурном интервале $T/T_c \gtrsim 0.9$. В этом интервале ее вторая производная тоже положительна и измеренные значения $B_{c2}(T)$ можно совместить с функцией (5). Однако, поскольку никаких данных о дальнейшем поведении $B_{c2}(T)$ нет, а ожидаемые значения поля очень велики, далее данные для 2b из рассмотрения исключены.

Функция $b_{sc}(t)$ сильно отличается от $b_{BCS}(t)$. Во-первых, она не имеет линейного участка вблизи $t = 1$. Это утверждение опирается на соблюдение соотношения (5), так

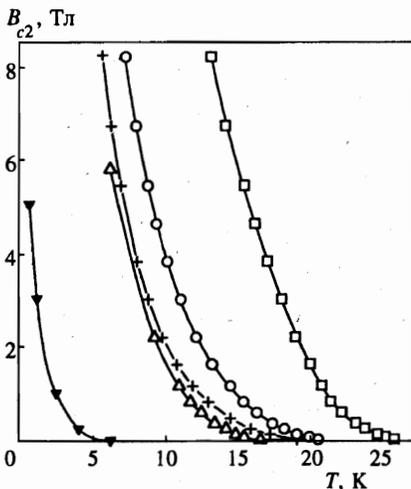


Рис. 3. Зависимости $B_{c2}(T)$ для различных состояний. Результаты измерений в кристалле 1a в закаленном состоянии (Δ), промежуточном (\circ), равновесном \square ; в кристалле 2a (\oplus) и в кристалле 3a (\blacktriangledown) в равновесном состоянии

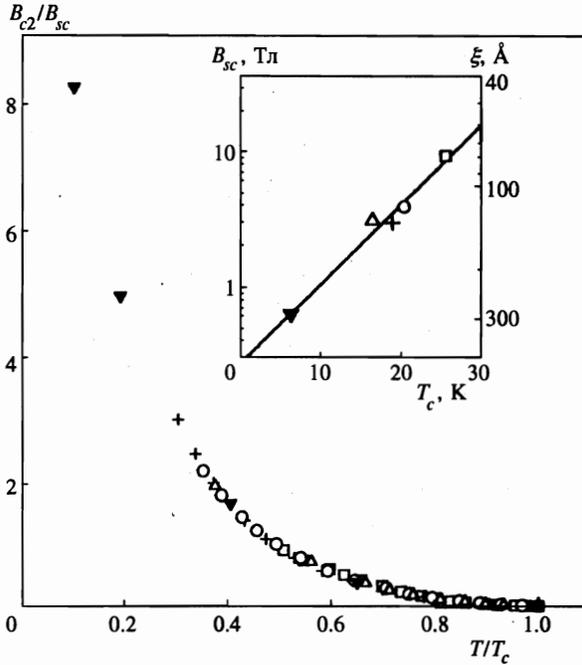


Рис. 4. Зависимости $B_{c2}(T)$ для разных образцов, совмещенные нормировкой (5) в одну кривую $b_{sc}(t)$. Обозначения соответствуют рис. 3. На вставке — коэффициенты B_{sc} (левая ось) и длина корреляции ξ_0 согласно уравнению (6) (правая ось)

как для каждой отдельной кривой $B_{c2}(T)$ ограниченная точность измерений в принципе позволяет провести прямую с малым наклоном в области $\approx 1-2$ К около T_c , однако при рассмотрении образцов со все бóльшими T_c эта область соответствует все меньшему диапазону приведенных температур, а производную функции $b_{sc}(t)$ в точке $t = 1$ приходится делать все меньше и меньше, что приводит к необходимости признать отсутствие на ней линейного участка.

Во-вторых, b_{sc} продолжает возрастать при $t \rightarrow 0$. До $t = 0.1$ это можно видеть на рис. 4. Для получения информации об области меньших t мы исследовали в области милликельвиновых температур образец $3b$ с $T_c \approx 3$ К. Его переход был слишком широким, чтобы количественно определить T_c и $B_{c2}(T)$. Тем не менее эти данные дают важную качественную информацию. На рис. 5 представлены полевые зависимости сопротивления образца в этом состоянии для температур 50 и 36 мК, нормированные на значения сопротивления в поле 14 Тл. На рисунке видно, что уменьшение температуры приводит к сдвигу кривой магнитосопротивления в более высокие поля. Тем самым, $B_{c2}(T)$ продолжает возрастать и в области столь низких температур, $T/T_c \sim 0.01$. Мы можем сделать оценку: на уровне $\rho/\rho_n = 0.8$, который, согласно рис. 2б, приблизительно соответствует $B_{c2}(T)$, поле увеличивается на 0.6 Тл, что соответствует производной 40 Тл/К. Поставить соответствующую точку на график на рис. 4 мы не можем, так как не удастся определить T_c и B_{sc} .

Возрастание $B_{c2}(T)$, продолжающееся вплоть до самых низких температур, находится в согласии с наблюдениями на других материалах, например на $Tl_2Ba_2CuO_6$ [2],

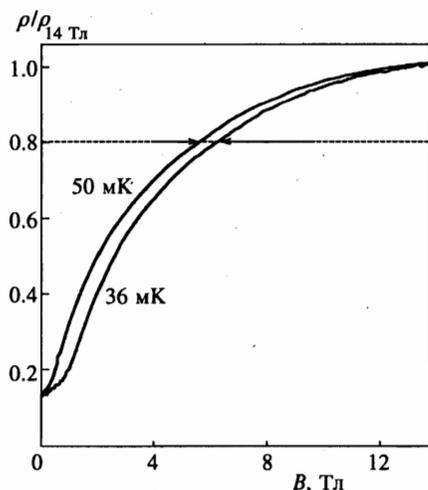


Рис. 5. Зависимости нормированного сопротивления от магнитного поля для образца 3b в равновесном состоянии при температурах 50 и 36 мК. Стрелки указывают разницу полей, при которых достигается уровень $\rho/\rho_{14 T_L} = 0.8$

где критическое поле продолжает увеличиваться вплоть до $T/T_c = 0.001$.

Полученные нами данные свидетельствуют, что в недодопированном $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ функция $B_{c2}(T)$ вблизи T_c нелинейна и $(\partial B_{c2}/\partial T)|_{T_c} = 0$. Это вступает в противоречие с большинством теоретических моделей, построенных на основе БКШ или функционала Гинзбурга—Ландау, которые дают или используют *a priori* линейное поведение $B_{c2}(T)$ вблизи T_c . В предшествующих экспериментальных работах [2–7] этот вопрос не обсуждался, но всюду производная $\partial B_{c2}/\partial T$ в T_c если и не равна нулю, то весьма мала.

Увеличение критического поля за счет ослабления магнитного рассеяния, предсказанное Овчинниковым и Кресиным [8], вступает в действие при низких температурах, оставляя вблизи T_c зависимость $B_{c2}(T)$ практически неизменной — линейной. Механизм, предложенный Спиваком и Жоу [9], эффективен только в больших полях, где выражено квантование Ландау, т. е. он не влияет на $B_{c2}(T)$ вблизи T_c . Абрикосов [11] вычисляет $B_{c2}(T)$ на основе построенного для своей модели функционала Гинзбурга—Ландау, что, естественно, приводит к тому, что поле B_{c2} линейно в первом порядке по $1 - t$.

Отмеченная нелинейность $B_{c2}(T)$ вблизи T_c на сегодняшний день находит описание лишь в модели биполярной сверхпроводимости [10, 33], которая дает положительную кривизну $B_{c2}(T)$ для заряженной бозе-жидкости в условиях локализации, причем во всем диапазоне температур. Согласно работе [33], при не слишком низкой температуре

$$B_{c2}(T) = B_d^* \left(\frac{T_c}{T} \right)^{3/2} \left[1 - \left(\frac{T}{T_c} \right)^{3/2} \right]^{3/2}, \quad B_d^* = \frac{\Phi_0}{2\pi\xi_0^2} \left(1 - \frac{n_L}{2n} \right)^{1/2}. \quad (6)$$

Здесь ξ_0 — корреляционная длина, а $n_L/2n$ характеризует случайный потенциал. Формула (6) задает универсальную функцию в приведенных координатах без свободных параметров. Единственный параметр нормировки B_d^* соответствует введенной нами величине B_{sc} ; из (6) следует, что $B_d^* = 0.68B_{sc}$. Сравнение наших данных с (6) (рис. 6a) показывает прекрасное совпадение при $T/T_c > 0.3$. При меньших приведенных температурах точки отклоняются от этой зависимости, но следует отметить, что в этой области мы располагаем только данными для одного состояния (3a равновесное).

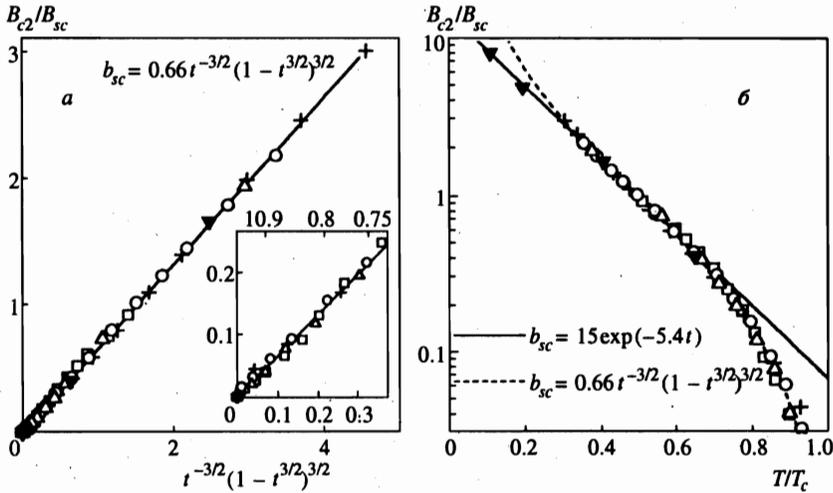


Рис. 6. Функция $b_{sc}(t)$ в различных координатах: *a* — координаты выбраны согласно бозонной модели, уравнение (6); вставка показывает в увеличенном масштабе область вблизи $t = T/T_c = 1$; *б* — полулогарифмические координаты; штриховая линия проведена согласно (6)

Величина $(1 - n_L/2n)^{1/2}$ в уравнении (6) неизвестна, но, так как ни для состояния $3a$, ни для $3b$ мы не наблюдаем предсказанного в работе [33] возвратного поведения $B_{c2}(T)$, она не слишком отличается от единицы. Предположив это, мы можем определить из уравнения (6) длину корреляции ξ_0 (рис. 4, правая ось вставки). Величина ξ_0 меняется от 70 до 300 Å. Такое значительное увеличение длин когерентности ξ_0 , возможно, является основной причиной сужения области вихревой жидкости на B - T -диаграмме.

В низкотемпературной области $0.1 < t < 0.6$ зависимость $b_{sc}(t)$ может быть эмпирически описана экспонентой вида

$$b_{sc} = b_0 \exp(-t/t_0) \tag{7}$$

с параметрами $b_0 = 15$ и $t_0 = 5.4$ (рис. 6б). Такая необычная температурная зависимость в области низких значений T наблюдалась в работах [25, 34] для линии необратимости $B^*(T)$. Мы считаем, что для образцов с низкими T_c область вихревой жидкости занимает очень небольшой интервал между B^* и B_{c2} и, соответственно, B^* особенно при низких температурах следует поведению $B_{c2}(T)$.

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Наши исследования дополнили список объектов, обладающих аномальной температурной зависимостью верхнего критического поля $B_{c2}(T)$, недодопированным купратом $YBa_2Cu_3O_{6+x}$. Были изучены кристаллы с различными концентрациями носителей и значений T_c от 6 до 30 К. Во всей исследованной области температур кривые $B_{c2}(T)$ для этой системы имеют положительную кривизну во всем температурном интервале и

не насыщаются при низкой температуре. Для состояний с разными T_c они могут быть совмещены в приведенных координатах T/T_c и $B/B_{sc}(T_c)$. Принципиальной особенностью полученной таким образом универсальной зависимости $b_{sc}(t)$ является равенство нулю первой производной $\partial B_{c2}/\partial T$ в точке T_c . Такое поведение находит объяснение только в рамках модели [10, 33], рассматривающей сверхпроводящий переход как бозеконденсацию предварительно сформированных пар. Другие модели [8, 9, 11] аномального поведения $B_{c2}(T)$ предсказывают линейную зависимость B_{c2} вблизи T_c .

В нижней части температурного интервала $T/T_c < 0.3$ экспериментальные данные отклоняются от зависимости (6). С другой стороны, на интервале от самых низких из достигнутых t до $t \approx 0.6$ данные следуют зависимости (7). Совокупность формул (6) и (7) дает аналитическое описание функции $b_{sc}(t)$.

«Универсальность» функции $b_{sc}(t)$, по-видимому, ограничена. Мы проверили это на наших данных для $K_{0.4}Ba_{0.6}BiO_3$ [5]. Полученная в результате нормировки осей согласно (5) кривая отличается от зависимости $b_{sc}(t)$, приведенной на рис. 4.

Авторы благодарны В. Т. Долгополову и А. А. Шашкину за возможность провести низкотемпературные измерения в криостате растворения.

Работа выполнена при поддержке RFBR-PICS (грант 98-02-22037), RFBR-INTAS (грант 95-02-302) и программы «Статистическая физика» Министерства науки России.

Литература

1. N. R. Werthamer, E. Helfand, and C. Hohenberg, Phys. Rev. **147**, 295 (1966).
2. A. P. Mackenzie, S. R. Julian, G. G. Lonzarich et al., Phys. Rev. Lett. **71**, 1238 (1993).
3. M. S. Osofsky, R. J. Soulen, Jr., S. A. Wolf et al., Phys. Rev. Lett. **71**, 2315 (1993).
4. M. Affronte, J. Marcus, C. Escribe-Filippine et al., Phys. Rev. B **49**, 3502 (1994).
5. V. F. Gantmakher, L. A. Klinkova, N. V. Barkovskii et al., Phys. Rev. B **54**, 6133 (1996).
6. D. D. Lawrie, J. P. Franck, J. R. Beamish et al., J. Low Temp. Phys. **107**, 491 (1997).
7. Y. Dalichaouch, B. W. Lee, C. L. Seaman, J. T. Markert, and M. B. Maple, Phys. Rev. Lett. **64**, 599 (1990).
8. Yu. N. Ovchinnikov and V. Z. Kresin, Phys. Rev. B **54**, 1251 (1996).
9. B. Spivak and Fei Zhou, Phys. Rev. Lett. **74**, 2800 (1995).
10. A. S. Alexandrov and N. F. Mott, Rep. Prog. Phys. **57**, 1197 (1994).
11. A. A. Abrikosov, Phys. Rev. B **56**, 446 (1997); A. A. Abrikosov, Phys. Rev. B **56**, 5112 (1997).
12. A. S. Alexandrov, V. N. Zavaritsky, W. Y. Liang, and P. V. Nevsky, Phys. Rev. Lett. **76**, 983 (1996).
13. A. V. Nikulov, Phys. Rev. Lett. **78**, 981 (1997).
14. D. S. Fisher, M. P. A. Fisher, and D. A. Huse, Phys. Rev. B **43**, 130 (1991).
15. G. Blatter, M. V. Feigelman, V. B. Geshkenbein, A. I. Larkin, and V. M. Vinokur, Rev. Mod. Phys. **66**, 1125 (1994).
16. S. Ullah and A. T. Dorsey, Phys. Rev. B **44**, 262 (1991).
17. M. Tinkham, Phys. Rev. Lett. **61**, 1658 (1988).
18. M. Suzuki and M. Hikita, Phys. Rev. B **44**, 249 (1991).
19. A. Carrington, D. J. C. Walker, A. P. Mackenzie, and J. R. Cooper, Phys. Rev. B **48**, 13051 (1993).
20. S. Fleshler, W. K. Kwok, U. Welp et al., IEEE Trans. Appl. Supercond. **3**, 1483 (1993).
21. G. W. Crabtree and D. R. Nelson, Physics Today **4**, 38 (1997).
22. A. Carrington, A. P. Mackenzie, and A. Tyler, Phys. Rev. B **54**, R3788 (1996).
23. W. K. Kwok, S. Fleshler, U. Welp et al., Phys. Rev. Lett. **69**, 3370 (1992).

24. A. N. Lavrov and L. P. Kozeeva, *Physica C* **248**, 365 (1995).
25. G. T. Seidler, T. F. Rosenbaum, D. L. Beinz et al., *Physica C* **183**, 333 (1991).
26. A. N. Lavrov and L. P. Kozeeva, *Physica C* **253**, 313 (1995).
27. С. И. Дорожкин, Г. В. Мерзляков, В. Н. Зверев, ПТЭ № 2, 165 (1996).
28. T. A. Friedmann, J. P. Rice, J. Giapintzakis, and D. M. Ginsberg, *Phys. Rev. B* **39**, 4258 (1989).
29. S. B. Han, C. C. Almasan, M. C. de Andrade et al., *Phys. Rev. B* **46**, 14290 (1992).
30. M. A. Crusellas, J. Fontcuberta, and S. Piñol, *Physica C* **213**, 403 (1993).
31. B. Iwasaki, S. Inaba, K. Sugioka et al., *Physica C* **290**, 113 (1997).
32. V. F. Gantmakher, L. P. Kozeeva, A. N. Lavrov et al., *Письма в ЖЭТФ* **65**, 834 (1997).
33. A. S. Alexandrov, *Phys. Rev. B* **48**, 10571 (1993).
34. K. E. Gray, D. B. Kim, B. W. Veal et al., *Phys. Rev. B* **45**, 10071 (1992).