# 05.4 Исследование высокотемпературных сверхпроводников, содержащих магнитные ионы, методом фононного эха

#### © И.В. Плешаков, А.А. Нечитайлов, А.П. Паугурт, В.В. Матвеев, Я.А. Фофанов, Eero Ylinen

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург, Россия E-mail: ivanple@yandex.ru Санкт-Петербургский государственный университет, Институт физики им. В.А. Фока, Санкт-Петербург, Россия Институт аналитического приборостроения РАН, Санкт-Петербург, Россия Wihuri Physical Laboratory, Department of Physics, University of Turku,FI-20014 Turku, Finland

## Поступило в Редакцию 1 мая 2007 г.

Исследованы поликристаллические высокотемпературные сверхпроводники, содержащие ионы железа и гадолиния. В качестве метода использовано фононное эхо — отклик порошкообразного образца на последовательность нескольких радиочастотных импульсов, имеющий акустическую природу. Показано, что поведение этого сигнала в железосодержащем материале обладает рядом особенностей по сравнению с откликом обычной иттриевой керамики. Проведена оценка сверхпроводящей щели, которая, как оказалось, в образцах с магнитными ионами существенно не отличается от соответствующей величины для обычного высокотемпературного сверхпроводника. Последнее обстоятельство связывается с пространственным разделением магнитной и сверхпроводящей фаз в изученных материалах.

### PACS: 74.25.Ld, 74.25.Nf, 74.72.-h

Исследование высокотемпературных сверхпроводников (ВТСП), содержащих магнитные ионы, интересно с той точки зрения, что оно затрагивает важный вопрос о сосуществовании сверхпроводимости и магнетизма. В настоящее время известен целый ряд материалов состава 1-2-3 с редкоземельными элементами, в которых происходит переход в магнитоупорядоченное состояние. Большое внимание уделяется также веществам, в которых медь частично замещена железом, обладающим

38

39

особыми структурными и магнитными свойствами [1,2]. В последнем случае магнитный ион непосредственно вносится в подсистему, связанную с протеканием сверхтока, что приводит к заметному ухудшению сверхпроводящих свойств. Однако, по некоторым данным, эти соединения обладают весьма высокой температурой антиферромагнитного перехода  $T_N$ . В настоящей работе исследованы гадолиниевый ВТСП GdBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>, с наибольшей среди материалов на основе редких земель температурой Нееля ( $T_N = 2.2 \text{ K}$  [3,4]), а также железосодержащий сверхпроводник YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3-x</sub>Fe<sub>x</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>, x = 0.15 ( $T_N \approx 10 \text{ K}$  [5]).

Один из методов изучения сверхпроводимости основан на наблюдении фононного эха — отклика порошкообразного материала на воздействие нескольких радиочастотных импульсов, который появляется вследствие нелинейного взаимодействия мод упругих колебаний отдельных порошинок, возбужденных каждым из имульсов серии [6]. По существу, это бесконтактный метод возбуждения и регистрации звука, особенно удобный при изучении акустических свойств поликристаллов. Для исследования ВТСП такая методика применялась в [7–9], она же была использована и в настоящей работе.

Образцы YBa<sub>2</sub>Cu<sub>2.85</sub>Fe<sub>0.15</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>(YBCFO) и GdBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>(GBCO) изготавливались из стехиометрических смесей нитрата бария и соответствующих окислов по стандартной керамической технологии. После вторичного спекания они измельчались в порошки с размерами частиц порядка нескольких десятков микрон, запаивались в ампулы и проверялись на сверхпроводимость по радиочастотной восприимчивости. Образец с гадолинием имел температуру перехода в сверхпроводящее состояние  $T_c = 90$  K, начало перехода у железосодержащего материала было сдвинуто вниз и составляло около 80 K (температуру достижения нулевого сопротивления можно оценить в 60 K [10]). По данным рентгенофазового анализа, это вещество было однородно и имело тетрагональную структуру, что согласуется с результатами других исследований [5,10].

Для наблюдения сигналов эха применялась импульсная методика, сходная с той, которая используется при регистрации нестационарного ядерного магнитного резонанса. Ампула с образцом помещалась в катушку, создающую радиочастотное магнитное поле. Перпендикулярно ее оси прикладывалось постоянное магнитное поле  $B_0 = 0.75$  Т. Возбуждающие импульсы подавались на несущей частоте 17 MHz и имели длительности  $\tau = 1-3 \mu s$ , время задержки между ними  $t_{12}$ 

регулировалось в пределах нескольких десятков микросекунд. Сигнал двухимпульсного эха регистрировался в момент  $2t_{12}$  той же катушкой и после прохождения усилительного тракта радиоспектрометра наблюдался на осциллографе. Времена релаксации  $T_2$  определялись из экспоненциально спадающей зависимости амплитуды эха от  $t_{12}$ . По аналогичной схеме проводились эксперименты на другой аппаратуре, при несущей частоте 28 MHz и  $B_0 = 1$  T. Их результаты численно несколько отличались от тех, что были получены в предыдущем случае, но качественно им соответствовали. Далее данные приводятся для первого варианта.

Температурные зависимости амплитуды эха, показанные на соответствующих вставках рис. 1, существенно различались для железосодержащего и гадолиниевого образов. В то время как в последнем наблюдалось характерное для ВТСП состава 1-2-3 [8] быстрое убывание сигнала с ростом температуры (он регистрировался до  $T \approx 45$  K), в материале с частичным замещением меди на железо интенсивность отклика практически не изменялась в большом температурном интервале. Поскольку механизм формирования эхо-сигнала в ВТСП должен быть связан с системой магнитных вихрей [8,9], можно предположить, что введение железа изменяет в веществе свойства пиннинга. Подтверждением этому является существование сильного полевого гистерезиса амплитуды эха в образце YBCFO при наблюдении данного эффекта в сильных магнитных полях.

Затухание ультразвука в сверхпроводнике  $\alpha_s$  может быть определено по скорости релаксации фононного эхо-сигнала [7]. С другой стороны, в соответствии с теорией Бардина–Купера–Шриффера (БКШ) эта величина связана со сверхпроводящей щелью через известные соотношения [11]:

$$\frac{\alpha_s}{\alpha_n} = \frac{2}{\exp[\Delta(T)/kT + 1]}, \qquad \frac{\Delta(T)}{\Delta(0)} = \sqrt{1 - \left(\frac{T}{T_c}\right)^2}.$$
 (1)

Здесь  $\alpha_n$  — затухание ультразвука в нормальном состоянии,  $\Delta(T)$  — щель при температуре T. Далее, используя (1) и экспериментально полученную температурную зависимость скорости релаксации, а также оставляя в стороне вопрос о существовании псевдощели [12] и применимости теории БКШ к описанию ВТСП, определим величину  $\Delta(0)$ , которую будем формально считать величиной сврехпроводящей щели.

 $1/T_2, 10^4 \text{ s}^{-1}$ 

 $1/T_2, 10^4 \text{ s}^{-1}$ 



T, К Рис. 1. Температурные зависимости скорости релаксации в образцах: a — YBa<sub>2</sub>Cu<sub>2.85</sub>Fe<sub>0.15</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>, b — GdBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>. Сплошная линия — теория, пунктир — составляющая скорости релаксации, не связанная с электрон-фононным механизмом рассеяния звука. На вставках: a — температурная зависимость амплитуды эхо-сигнала в YBa<sub>2</sub>Cu<sub>2.85</sub>Fe<sub>0.15</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>, b — то же для GdBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>.

Письма в ЖТФ, 2007, том 33, вып. 24

Соответствующим подходом пользовались и авторы [7], которые, используя метод фононного эха, продемонстрировали, что в чистом YBCO для  $\Delta(0)$  получается результат, не сильно расходящийся с классической теорией сверхпроводимости (в соответствии с БКШ  $2\Delta(0) = 3.5kT_c$ ). Конечно, следует иметь в виду, что здесь  $\Delta$  — усредненный параметр, измеренный для поликристаллического материала. С учетом сделанных оговорок можно предположить, что из экспериментов по фононному эху извлекается условная величина, связанная со щелью и являющаяся некоторым критерием, характеризующим сверхпроводящее состояние.

В акустическую релаксацию, кроме интересующего нас электронфононного взаимодействия, описываемого выражениями (1), дают вклад другие механизмы рассеяния звука. Согласно (1), затухание, связанное со щелью, становится малым уже при  $T \approx 0.25T_c$ , и при более низких температурах им можно пренебречь, определив таким образом остальные составляющие скорости релаксации. То есть далее считается, что

$$\alpha_s \propto \left(\frac{1}{T_2}\right)', \qquad \left(\frac{1}{T_2}\right)' = \frac{1}{T_2} - \left(\frac{1}{T_2}\right)_{bgr},$$
(2)

где  $1/T_2$  — величина, измеренная при произвольной температуре,  $(1/T_2)_{bgr}$  — "подставка", которую находят по поведению скорости релаксации ниже  $T = 0.25T_c$ .

На рис. 1 приведены температурные зависимости  $1/T_2$  для образцов YBCFO и GBCO. Как и в [7], затухание, не связанное со щелью, аппроксимировано прямой линией; и далее, после ее вычитания в соответствии с (2), проведена подгонка теоретической кривой (1) к экспериментальным данным. Величина  $\Delta(0)$  использована при этом как изменяемый параметр, а в качестве  $T_c$  взяты значения 60 и 90 К для железосодержащего и гадолиниевого образцов соответственно. Следует отметить, что если в последнем случае сверхпроводящий переход является достаточно резким, то для железосодержащего образца он размыт, и выбор  $T_c$  становится до некоторой степени произвольным. Правда, использование пробных значений  $T_c$  в широком температурном интервале (от 50 до 70 К) показало, что это не очень сильно влияет на результат — величина  $2\Delta(0)$  во всех случаях оказывалась близкой к  $4kT_c$ . В качестве окончательного нами принято указанное выше значение  $T_c$ , которое соответствует литературным данным, и при

Параметры сверхпроводящих материалов, исследованных методом фононного эха

№ п/п	Материал	<i>T</i> <sub>c</sub> , K	$2\Delta(0)/kT_c$	Источник данных	Примечание
1 2	$\begin{array}{l} YBa_{2}Cu_{3}O_{7-\delta}\\ YBa_{2}Cu_{3}O_{7-\delta} \end{array}$	90 90	3.5–6.8 3.7	[6] Настоящая работа	Для разных образцов Результат обработки данных [8]
3	$GdBa_2Cu_3O_{7-\delta}$	90	8	То же	
4	$YBa_{2}Cu_{2.85} Fe_{0.15}O_{7-\delta}$	60	4.4	»» »»	

котором в наших экспериментах наблюдалось исчезновение сигнала эха (см. вставку рис. 1, *a*).

Сопоставление поведения  $\alpha_s$  в "чистом" ВТСП и ВТСП, содержащем магнитные ионы, выполнено нами с использованием данных работы [8]. Полученная в ней зависимость времени релаксации  $T_2$  от температуры для YBCO была обработана по описанной выше процедуре с определением  $\Delta(0)$ . Температурный ход  $(1/T_2)'$  для YBCO и YBCFO показан на рис. 2.

Численные значения сверхпроводящих параметров изученных в работе материалов сведены в таблицу. Из нее видно, что, несмотря на сделанное выше замечание об известной условности величины  $\Delta(0)$ , она во всех случаях оказывается достаточно близкой к предсказанию теории БКШ. Особо следует подчеркнуть, что это касается и тех соединений, которые содержат магнитные ионы. Для гадолиниевого образца данный факт легко может быть объяснен тем, что подсистемы, связанные с магнетизмом и протеканием сверхтока в нем, структурно разделены. В железосодержащем материале это не так, и величины, характеризующие его сверхпроводящие свойства (Т<sub>с</sub>, критический ток), заметно снижены. Тем не мнеее для YBCFO получено  $2\Delta(0) = 4.4kT_c$ , весьма близкое к значению  $3.5kT_c$  (а последнее, в свою очередь, почти идеально совпадает с измеренным для некоторых образцов чистого YBCO). Можно предположить, что и в данном материале также происходит микроскопическое разделение сверхпроводящей и магнитной фаз. Ионы железа с кислородным окружением могут формировать некие неодно-



**Рис. 2.** Зависимость величины затухания звука, связанной со щелью, от температуры для: I — YBa<sub>2</sub>Cu<sub>2.85</sub>Fe<sub>0.15</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub> и 2 — YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>. Линии проведены в соответствии с выражением (1), точки: I — усредненные данные рис. 1, 2 — обработанные данные работы [8]. Вертикальным пунктиром отмечены температуры сверхпроводящего перехода для каждого образца.

родности, или кластеры, внедренные в подсистему, ответственную за транспортные свойства. Тогда параметр щели определяется для ее до некоторой степени независимо существующей сверхпроводящей части. Это согласуется с наличием сверхтонкого поля на ядрах Fe, которое наблюдается при достаточно больших температурах [2]. Кроме того,

магнитные кластеры могут служить центрами пиннинга или каким-то образом изменять свойства уже имеющихся центров, что соответствует нашим экспериментальным данным по необычно сильному гистерезису и характеру спада амплитуды сигнала эха с температурой.

## Список литературы

- [1] Yinghao Liu, Guangcan Che, Keqiang Li, Zhongxian Zhao // Supercond. Sci. Technol. 2004. V. 17. N 10. P. 1097–1102.
- [2] Lindén J., Karppinen M., Grigoravičiūte I., Yamauchi H. // Phys. Rev. Lett. 2007. V. 98. N 6. P. 067001–067005.
- [3] Brown S.E., Thompson J.D., Willis J.O., Aikin R.M., Zirngiebl J.L., Smith J.L., Fisk Z., Schwarz R.B. // Phys. Rev. B. 1987. V. 36. N 4. P. 2298–2300.
- [4] Ramirez A.P., Schneemeyer L.F., Waszczak J.V. // Phys. Rev. B. 1987. V. 36. N 13. P. 7145–7147.
- [5] Zhou X.Z., Raudsepp M., Pankhurst Q.A., Morrish A.H., Luo Y.L., Maartense I. // Phys. Rev. B. 1987. V. 36. N 13. P. 7230–7233.
- [6] Tsuruoka F., Kajimura K. // Phys. Rev. B. 1980. V. 22. N 11. P. 5092-5109.
- [7] Nishihara H., Hayashi K., Okuda Y., Kajimura K. // Phys. Rev. B. 1989. V. 39.
   N 10. P. 7351–7353.
- [8] Дробинин А.В., Ципенюк Ю.М. // ЖЭТФ. 1997. Т. 111. В. З. С. 1032–1046.
- [9] Petrov M.P., Pleshakov I.V., Paugurt A.P., Krasinkova M.V., Nechitailov A.A., Melech B.T. // Solid. State Commun. 1991. V. 78. N 10. P. 893–895.
- [10] McGurie T.R., La Placa S.J., Boehme R.F., Shivashankar S.A., Keane T.D. // J. Appl. Phys. 1991. V. 69. N 8. P. 5388–5390.
- [11] Morse R.W., Bohm H.V. // Phys. Rev. 1957. V. 108. N 4. P. 1094-1096.
- [12] Le Tacon M., Sacuto A., Georges A., Kotliar G., Gallais Y., Colson D., Forget A. // Nature Phys. 2006. V. 2. P. 537–543.