

На правах рукописи



Салахутдинов Линар Фидаилович

**ЭПР-исследование магнитных возмущений
на поверхности ВТСП-кристаллов
при температурах выше
сверхпроводящего перехода**

01.04.11 – физика магнитных явлений

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Казань – 2013

Работа выполнена в лаборатории физики перспективных материалов Федерального государственного бюджетного учреждения науки Казанский физико-технический институт им. Е.К. Завойского Казанского научного центра Российской Академии наук (КФТИ КазНЦ РАН).

Научный руководитель: доктор физико-математических наук,
ведущий научный сотрудник
КФТИ КазНЦ РАН
Таланов Юрий Иванович

Официальные оппоненты: доктор физико-математических наук,
заведующей лабораторией радиационной
химии и радиобиологии КФТИ КазНЦ РАН
Петухов Владимир Юрьевич

доктор физико-математических наук,
заведующей лабораторией теории
мезоскопических систем ИФМ РАН
Мельников Александр Сергеевич

Ведущая организация: Институт физики, ФГАОУ ВПО
"Казанский (Приволжский) федеральный
университет" (г. Казань)

Защита состоится **6 декабря 2013г.** в **16:30** на заседании диссертационного совета Д 002.191.01 при Федеральном государственном бюджетном учреждении науки Казанский физико-технический институт им. Е.К. Завойского КазНЦ РАН по адресу: 420029, г.Казань, ул. Сибирский тракт, 10/7.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке Федерального государственного бюджетного учреждения науки Казанский физико-технический институт им. Е.К. Завойского КазНЦ РАН.

Автореферат разослан «_____» _____ 2013 г.

Ученый секретарь
диссертационного совета



Хайбуллин Р. И.

Общая характеристика работы

Актуальность работы

Одна из самых актуальных проблем физики высокотемпературной сверхпроводимости (ВТСП) – установление механизма спаривания носителей тока. Эту проблему не удается решить уже более 25 лет, несмотря на огромные затраты, усилия исследователей и накопленный за это время экспериментальный материал. Из-за необычных свойств ВТСП переход из нормального состояния в сверхпроводящее происходит совсем не так, как в низкотемпературных сверхпроводниках. В последних при понижении температуры до критической (T_c) происходит образование куперовских пар, их «конденсация» на низколежащих уровнях энергии, в результате «открывается» щель в энергетическом спектре носителей заряда. Если повышать температуру, то при $T = T_c$ щель схлопывается, пары электронов распадаются, а сверхпроводимость и все, что с ней связано, исчезает. В ВТСП материалах все происходит иначе. При переходе ВТСП из сверхпроводящего состояния в нормальное, материал теряет только часть своих сверхпроводящих свойств: исчезает эффект Мейсснера, сопротивление достигает величины, характерной для нормального состояния. Однако некоторые особенности сверхпроводящего состояния сохраняются и обнаруживаются различными экспериментальными методами. В частности, в энергетическом спектре при $T > T_c$ остается щель. Причем эта щель (в научной литературе ее называют псевдощель) сохраняется в большом интервале температур, в десятки и даже сотни градусов превышающих T_c .

Кроме того, исследование эффекта Нернста выявило сигнал большой величины, характерный для вихревого состояния сверхпроводника [1]. На основании этих наблюдений было высказано предположение о том, что при $T > T_c$ материал находится в состоянии вихревой жидкости. Это состояние отличается от вихревого состояния сверхпроводника ниже T_c только отсутствием фазовой когерентности носителей тока, которая разрушается хаотическим движением вихрей, их спонтанным возникновением и исчезновением.

Исследование кристаллов ВТСП с помощью сканирующей туннельной микроскопии (СТМ) выявило признаки электронного фазового расслоения при $T > T_c$. На поверхности были обнаружены области размерами 1-5 нм с ненулевой энергетической щелью ($\Delta \neq 0$), окруженные материалом с $\Delta = 0$ [2]. Чтобы определить магнитные свойства этих образований, авторы работы [3] использовали зондовый микроскоп, где в качестве зонда был использован микро-сквид. Эти исследования обнаружили диамагнитные образования в кристалле $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ при $T > T_c$. Диамагнетизм очень слабый, намагниченность таких образований на

уровне 20 мкТ. Однако размер (десятки микрометров и более) совсем не согласуется с размерами образований, выявленных с помощью СТМ (несколько нанометров). Можно предположить, что крупные области, обнаруженные микро-сквидом, состоят из мелких, которые наблюдаются с помощью СТМ. Чтобы проверить это предположение, а также определить, в каком состоянии находятся различные области материала при $T > T_c$, мы провели исследование с помощью электронного парамагнитного резонанса (ЭПР).

Цель диссертационной работы

Определить особенности магнитного состояния ВТСП-кристаллов выше критической температуры.

Для достижения поставленной цели необходимо было решить следующие **задачи**:

1. обнаружить с помощью метода ЭПР-декорирования неоднородности магнитного поля на поверхности ВТСП кристаллов;
2. определить их характерные величины: амплитуду и масштаб;
3. изучить их поведение с изменением внешних условий (температуры и ориентации относительно внешнего магнитного поля);
4. на основе анализа полученных данных сделать вывод о природе явления.

В качестве **объектов исследования** были выбраны сверхпроводящие монокристаллы $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10}$ (Bi-2223) и $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{1-x}\text{Y}_x\text{Cu}_2\text{O}_{8+y}$ (Bi-2212(Y)) с содержанием иттрия $x = 0, 0.1, 0.2, 0.3, 0.4$. Образец Bi-2223 оптимально допирован кислородом и имеет самую высокую критическую температуру среди всех висмутовых ВТСП-соединений. Изменяя концентрацию иттрия в образцах Bi-2212(Y), можно изменять концентрацию носителей тока, при этом будет меняться температура перехода в сверхпроводящее состояние. Исследования Bi-2212(Y) помогут проследить изменение магнитного состояния выше T_c с изменением уровня допирования.

Научная новизна работы

Впервые с помощью метода ЭПР-декорирования были обнаружены мелкомасштабные магнитные возмущения на поверхности ВТСП-материалов при температуре выше критической. На основании полученных результатов было установлено наличие фазового расслоения при $T > T_c$. Сделаны оценки пространственного масштаба неоднородностей магнитного поля.

Научная и практическая значимость:

1. развита методика измерений на основе ЭПР поверхностного парамагнитного зонда, которая позволяет обнаружить и определить характеристики слабых

магнитных возмущений на поверхности ВТСП-материалов;

2. исследование, в котором парамагнитный зонд отводился от поверхности сверхпроводника с помощью буферного слоя, позволяет оценить пространственный масштаб магнитных неоднородностей, возникающих при $T > T_c$.

На защиту выносятся следующие результаты и положения:

1. распределение магнитного поля на поверхности ВТСП кристаллов выше критической температуры имеет неоднородный характер, причем размер неоднородностей имеет порядок десятков микрон и меняется с температурой;
2. выше T_c в кристаллах ВТСП происходит электронное фазовое расслоение, в результате которого образуются области с диамагнитной и парамагнитной восприимчивостью.

Достоверность результатов работы определяется комплексным характером выполненных экспериментальных исследований, тщательным выбором образцов и всех деталей эксперимента, многократной повторяемостью экспериментальных результатов, а также их согласованностью с литературными данными.

Апробация работы

Результаты работы были представлены на следующих научных конференциях: III и IV международные конференции «Фундаментальные проблемы высокотемпературной сверхпроводимости» (г.Звенигород, Россия, 2008, 2011); Итоговые научные конференции КФТИ им. Завойского (г.Казань, Россия, 2010, 2011, 2012); XIII International Youth Scientific School «Actual Problem of Magnetic Resonance and its Application» (г.Казань, Россия, 2010); XV и XVII международные симпозиумы «Наноп физика и наноэлектроника» (г.Н.Новгород, Россия, 2011, 2013); Международная конференция «Strongly Correlated Electron Systems» (г.Кембридж, Англия, 2011); Международная конференция «Spin physics, spin chemistry and spin technology» (г.Казань, Россия, 2011).

Публикации

Материалы диссертации опубликованы в 9 печатных работах, из них 3 статьи в рецензируемых журналах [А1-А3], включенных в перечень ВАК, а также 6 публикаций в материалах вышеперечисленных конференций [А4-А9].

Личный вклад автора

Выбор образцов и напыление на их поверхность зондирующего слоя, первичная характеристика (определение размеров, критической температуры и ширины перехода в сверхпроводящее состояние); исследование магнитных свойств образцов с помощью ЭПР поверхностного зонда; обработка, анализ и интерпретация экспе-

риментальных данных на основе современных теоретических моделей; участие в написании, оформлении и подготовке статей в печать.

Структура и объем диссертации

Диссертация состоит из введения, 4 глав, заключения, списка авторской и цитируемой литературы. Работа изложена на 108 страницах, включая 32 рисунка и одну таблицу.

Во введении обозначена актуальность работы, изложена научная и практическая значимость, сформулированы цели и задачи исследований, а также обоснован выбор объектов исследований.

В первой главе дан краткий обзор современного состояния проблемы, которой посвящена диссертация. Описаны наиболее интересные эффекты и явления, наблюдаемые в высокотемпературных сверхпроводниках вблизи температуры перехода в сверхпроводящее состояние. Приведены теории и гипотезы, которые использовались при интерпретации экспериментальных результатов.

Во второй главе описана методика и техника эксперимента, которая использовалась в работе для приготовления образцов и для получения экспериментальных данных. В начале главы приводится описание основного метода исследования – «метода ЭПР-декорирования», который позволяет зафиксировать появление магнитных неоднородностей по сдвигу и уширению сигнала ЭПР поверхностного зонда. Впервые этот метод был использован в 1989 году А. Дульчицем с соавторами для исследования распределения магнитного поля вихревой решетки, возникающей в ВТСП-материалах при переходе в сверхпроводящее состояние [4]. Мы же в своей работе усовершенствовали и использовали этот метод для исследования магнитного состояния ВТСП-материала при $T > T_c$. Суть метода заключается в том, что неоднородности магнитного поля на поверхности ВТСП-материала влияют на резонансные условия и это отражается на спектре ЭПР поверхностного зонда. Ослабление или увеличение напряженности поля у поверхности сверхпроводника приведет к сдвигу сигнала ЭПР. Пространственные вариации напряженности поля у поверхности сверхпроводника проявятся на ширине сигнала ЭПР, так как разные части парамагнитного слоя оказываются в разных по величине полях. Наблюдая за подобным поведением параметров сигнала ЭПР от парамагнитного зонда, нанесенного на образцы, можно получить информацию о магнитном состоянии материала. Также с помощью этого метода при плавном удалении парамагнитного зонда от поверхности можно оценить характерный размер неоднородностей магнитного поля на поверхности сверхпроводника.

Для того, чтобы обнаружить слабые вариации магнитного поля на поверхности сверхпроводника, необходимо, чтобы зонд обладал узким сигналом ЭПР. В

наших исследованиях в качестве парамагнитного зонда использовался слой дифенилпикрилгидразила (ДФПГ). ДФПГ содержит свободные радикалы, неспаренные электроны которых обеспечивают узкий сигнал ЭПР шириной в эрстед и $g = 2.0036$ [5]. Для точного определения положения сигнала ЭПР от ДФПГ, нанесенного на сверхпроводник, вместе с исследуемым образцом в резонатор помещался небольшой кристалл LiF, содержащий дендриты металлического лития высокой чистоты, диаметром около 10 мкм. Такие кристаллы дают очень узкий сигнал парамагнитного резонанса с шириной ~ 0.1 Э и $g = 2.00226$ за счет электронов проводимости лития [6].

Далее в этой главе описаны методы, с помощью которых парамагнитный зонд (ДФПГ) наносился на поверхность сверхпроводника (из раствора и напылением в высоком вакууме), и несколько методик для определения толщины нанесенного зонда (с помощью микроинтерферометра «МИИ-11», по интегральной интенсивности сигнала ЭПР и с помощью кварцевого измерителя толщины).

Для того чтобы определить критическую температуру образца, мы использовали метод измерения зависимости высокочастотной магнитной восприимчивости от температуры. Этот метод позволяет определять не только температуру перехода материала в сверхпроводящее состояние, но и ширину этого перехода. Последняя величина также является важной характеристикой сверхпроводящего образца, поскольку позволяет судить о степени его однородности.

В третьей главе представлены результаты экспериментального исследования сверхпроводящих и магнитных свойств оптимально допированных монокристаллов $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10}$ (Bi-2223).

На рисунке 1 приведены температурные зависимости высокочастотной магнитной восприимчивости для монокристаллов Bi-2223. Эти зависимости показывают переходы образца из нормального в сверхпроводящее состояние. Критическая температура, определенная на середине (по высоте) перехода, для первого образца равна $T_c(1) = 109.8$ К, для второго – $T_c(2) = 110$ К. Ширина сверхпроводящего перехода для первого образца составила $\Delta T_c(1) = 4.2$ К, для второго – $\Delta T_c(2) = 3.4$ К.

На образцы был нанесен парамагнитный зонд, толщина которого составляла 110 нм. Регистрировались спектры ЭПР от поверхностного зонда в интервале температур от 200 К до 50 К, при понижении температуры в фиксированном внешнем поле ~ 3330 Э (см. рис. 2). Так как экспериментальные данные, полученные при исследовании обоих образцов, очень похожи, в диссертации приведены результаты только на примере одного кристалла с $T_c = 110$ К.

В работе представлены температурные зависимости ширины сигнала ЭПР от

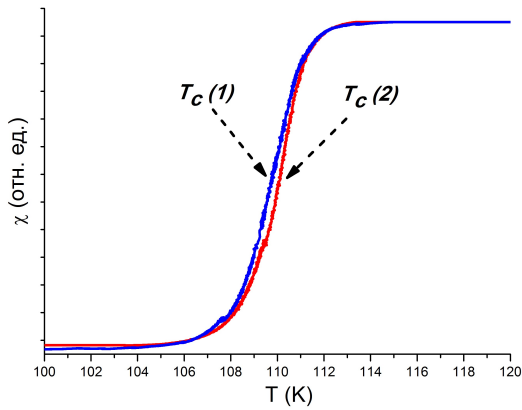


Рисунок 1 – Переходы в сверхпроводящее состояние монокристаллов Bi-2223. Критическая температура образцов определена на середине перехода: $T_c(1) = 109.8$ К, $T_c(2) = 110$ К.

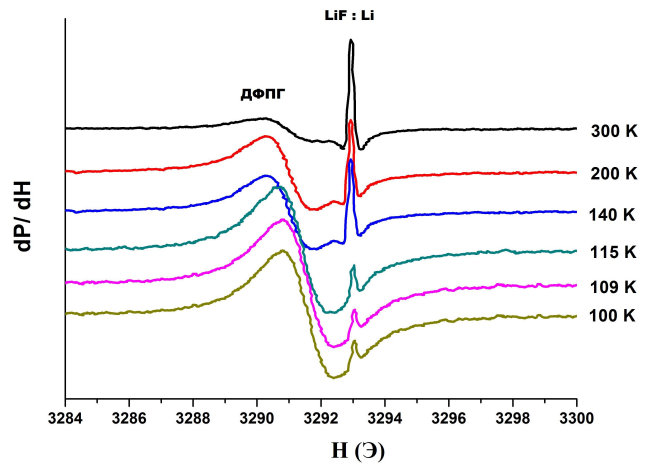


Рисунок 2 – Изменение сигналов ЭПР металлического лития и слоя ДФПГ, нанесенного на образец Bi-2223 с понижением температуры ($T_c = 110$ К).

ДФПГ (см. рис. 3), нанесенного на монокристалл Bi-2223.

Ширина резонансного сигнала ЭПР (δH), представляющего собой производную линии поглощения, определялась по расстоянию от пика до пика. Зависимости были получены в двух ориентациях относительно направления магнитного поля: перпендикулярно плоскости поверхности сверхпроводника ($H \parallel c$) и параллельно ей ($H \perp c$).

Для случая $H \perp c$, начиная с высоких температур, изменение ширины линии ЭПР незначительное (в пределах экспериментальной ошибки) до $T \sim 115$ К, что на 5 К выше T_c . Для случая $H \parallel c$ линия ЭПР начинает уширяться при $T \sim 120$ К, что на ~ 10 К выше T_c . При переходе образца в сверхпроводящее состояние это уширение становится значительным, и ширина линии быстро возрастает по мере уменьшения температуры в обеих ориентациях. Уширение сигнала говорит о неоднородности магнитного поля на поверхности сверхпроводника. Для того, чтобы убедиться, что уширение сигнала обусловлено влиянием сверхпроводящего образца и не связано со свойствами зонда, была получена температурная зависимость ширины линии от слоя ДФПГ, нанесенного на кварцевую подложку. Как видно из рисунка 3, в этом случае сигнал не уширяется с понижением температуры. Это говорит о том, что при температурах, как ниже T_c , так и в некоторой области выше сверхпроводящего перехода образец сам вносит некие возмущения в магнитное поле у поверхности, делая его неоднородным.

В Главе 3 обсуждаются возможные причины уширения сигнала ЭПР поверхностного зонда при $T > T_c$. Одна из возможных причин уширения выше критической

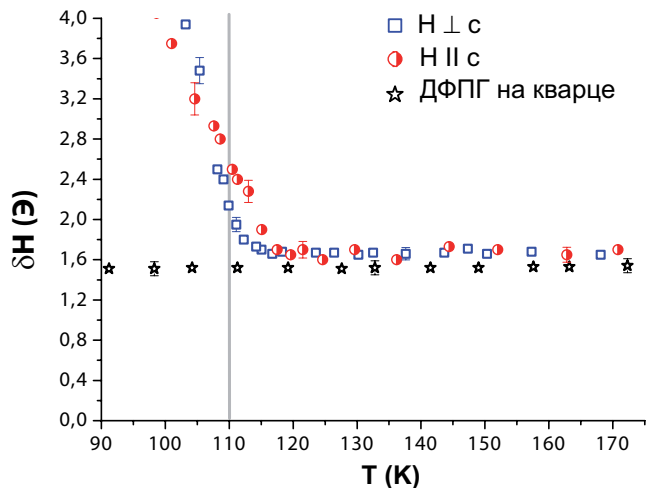


Рисунок 3 – Температурные зависимости ширины сигнала ЭПР ДФПГ, нанесенного на поверхность Bi-2223 и на кварцевую пластинку.

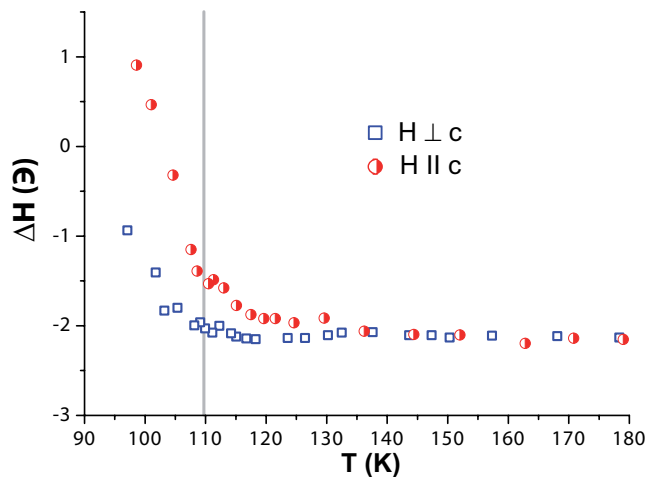


Рисунок 4 – Температурные зависимости сдвига резонансного сигнала ЭПР ДФПГ относительно реперного сигнала лития.

температуры связано с существованием примесной фазы, которая обладает более высокой критической температурой. Однако исследуемый образец оптимально допирован, и это означает, что он имеет максимально высокую критическую температуру как для этого соединения, так и для всех ВТСП соединений на основе висмута. Факт отсутствия примесной фазы также подтверждается измерениями высокочастотной магнитной восприимчивости. Если бы в образце присутствовали фазы с разными T_c , тогда переход в сверхпроводящее состояние имел бы большую ширину. Так как прописанный переход (см. рис. 1) довольно узкий ($\Delta T_c = 3.4 \text{ K}$) и не имеет изломов, то можно с уверенностью сказать, что образец однофазный.

Известно, что уширение линии ЭПР ниже T_c связано с возникновением неоднородностей магнитного поля при проникновении его в сверхпроводник в виде вихрей Абрикосова [7]. По рисунку видно, что от температуры $\sim 115 \text{ K}$ и ниже экспериментальные точки имеют общую зависимость. Возможно, что природа уширения сигнала выше и ниже T_c – одна и та же. Подобная гипотеза была высказана в работе [1], где говорилось о возможном существовании вихревой жидкости при температурах выше T_c , то есть такого состояния, в котором фазовая когерентность носителей тока разрушена хаотическим движением вихрей.

Дополнительную информацию о магнитном состоянии образца выше критической температуры можно получить по изменению положения спектра при уменьшении температуры. Температурные зависимости сдвига резонансного сигнала ДФПГ относительно реперного сигнала лития ($\Delta H = H_R(\text{ДФПГ}) - H_R(\text{Li})$) показаны на рисунке 4.

Сдвиг резонансного сигнала возникает в том случае, если в области зонда магнитное поле по тем или иным причинам отличается от приложенного. Чтобы обнаружить и оценить локальные поля, создаваемые исследуемым образцом, при анализе температурных зависимостей необходимо учесть вклад в сдвиг сигнала от размагничивающего поля тонкой пленки парамагнетика, из которого сделан поверхностный зонд. Аналитическая зависимость резонансного поля с учетом размагничивающего поля парамагнетика ($4H_0\pi\chi$) хорошо известна и описана в работе [8]. Для того, чтобы вычесть этот вклад были получены температурные зависимости сдвига резонансного сигнала ДФПГ, нанесенного на кварцевую пластинку.

На рисунке 5 показана температурная зависимость сдвига, из которого вычтен вклад размагничивающего поля тонкой пленки ДФПГ (ΔH^*). Она демонстрирует какое дополнительное поле создает исследуемый образец. Изменения в спектре

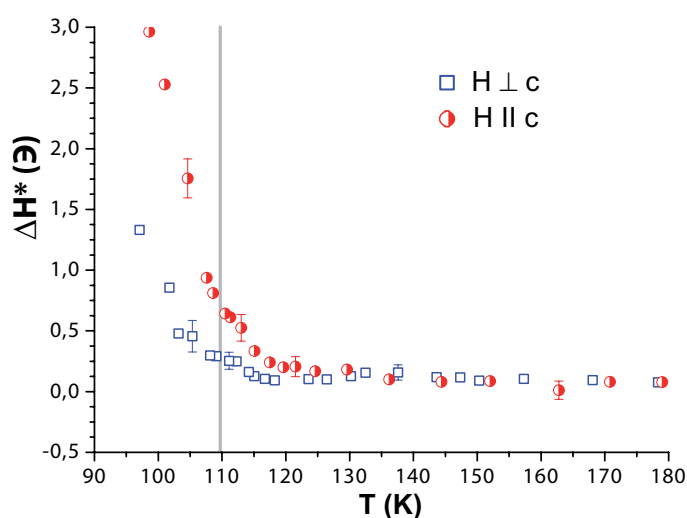


Рисунок 5 – Температурные зависимости сдвига резонансного сигнала слоя ДФПГ относительно резонансного сигнала лития с учетом вклада размагничивающего поля пленки ДФПГ.

ЭПР обусловлены искажениями магнитного поля на поверхности сверхпроводника и могут быть связаны с следующими эффектами. Во-первых, это Мейсснеровское экранирование, которое приводит к выталкиванию магнитного поля из образца. Это приводит к тому, что поле на поверхности в результате эффекта Мейсснера повышено по сравнению с приложенным. Напряженность поля будет зависеть от величины и направления приложенного поля. А это, в свое время, повлияет на резонансные условия парамагнитного зонда. Во-вторых, возникновение вихревой решетки, которое создает пространственно-неоднородное распределение поля как внутри сверхпроводника [7], так и непосредственно у его поверхности [9]. При этом средняя величина поля на поверхности сверхпроводника оказыва-

ется немного ниже, чем у внешнего приложенного, а пространственный масштаб неоднородности поля равняется среднему расстоянию между вихрями.

Сдвиг резонансного сигнала в область высоких полей, наблюдаемый в наших экспериментах ниже T_c , связан с появлением вихрей Абрикосова, которое приводит к ослаблению поля над образцом. Однако, в наших экспериментах смещение резонансного сигнала в область высоких полей наблюдается на 7-10 К выше критической температуры. Учитывая тот факт, что толщина зондирующего слоя (110 нм) одного порядка с периодом решетки абрикосовских вихрей в магнитном поле 3300 Э (70-80 нм), можно предположить, что поведение сигнала ЭПР с изменением температуры служит свидетельством в пользу гипотезы о существовании вихревой структуры при $T > T_c$ [1].

В четвертой главе представлены результаты исследования локальных магнитных полей на поверхности монокристаллов $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{1-x}\text{Y}_x\text{Cu}_2\text{O}_{8+y}$ (Bi-2212(Y)). Исследуемые монокристаллы представляют собой ВТСП-соединения $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_y$, в которых некоторая часть кальция (Ca) заменена на иттрий (Y). Изменяя уровень допирования иттрием, можно варьировать концентрацию носителей тока и критическую температуру. Переходы из нормального в сверхпроводящее состояние, критическая температура и полная ширина перехода для нескольких образцов представлены на рисунке 6. Для всех образцов были зарегистрированы

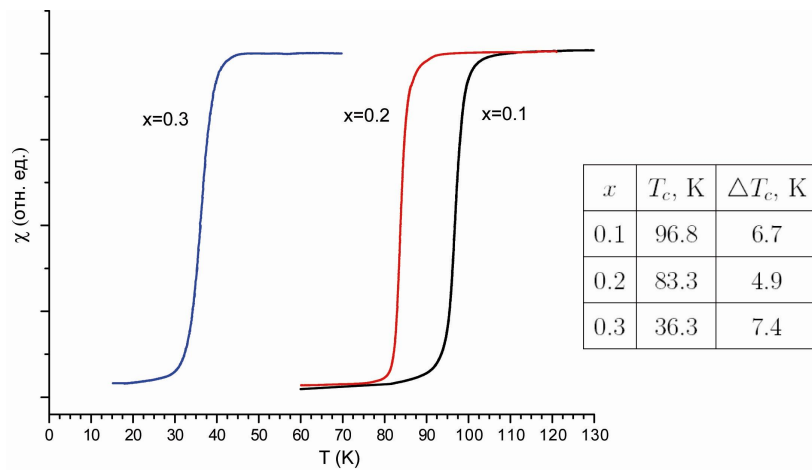


Рисунок 6 – Переходы из нормального в сверхпроводящее состояние, критическая температура и полная ширина перехода для образцов с разным уровнем допирования иттрием.

спектры ЭПР в широком диапазоне температур (300-15 К). Изменение ширины сигнала парамагнитного зонда для трех образцов с разной критической температурой показаны на рисунке 7. При понижении температуры для образца с концентрации иттрия $x = 0.2$ наблюдается сигнал с постоянной шириной вплоть до $T = 105$ К. При дальнейшем понижении температуры наблюдается сначала сла-

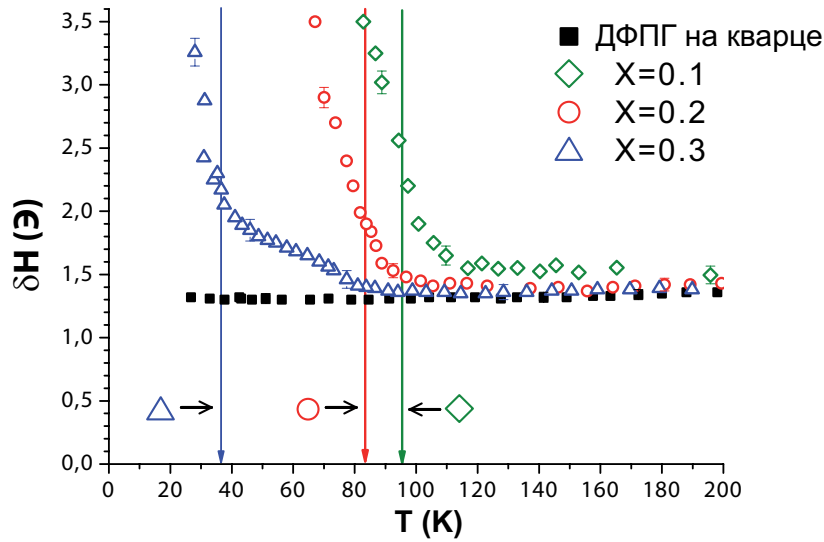


Рисунок 7 – Температурные зависимости ширины линии ЭПР слоя ДФПГ, нанесенного на поверхность образцов с разным содержанием иттрия.

бое уширение, а при температуре ниже 90 К – быстрое уширение. Аналогичное поведение ширины резонансного сигнала наблюдается и для образца с концентрацией иттрия $x = 0.3$. В отличие от предыдущего, в данном образце температура, при которой начинается заметное уширение линии $T = 75$ К, что на 40 К выше T_c . Отсутствие фаз, имеющих более высокие T_c , которые могли бы уширить сигнал ЭПР выше критической температуры, было проверено экспериментами по измерению высокочастотной магнитной восприимчивости при определении критической температуры (см. рис. 6). Результаты измерений показали, что в образцах отсутствуют примеси фазы с другой T_c . Кроме того, на температурной зависимости ширины линии для образца с содержанием иттрия $x = 0.1$, который обладает максимальной критической температурой, тоже наблюдается уширение выше температуры перехода. Температура, при которой начинается заметное уширение для оптимального допированного образца, составила $T = 110$ К, что почти на 15 К выше T_c . Из наших результатов следует, что наиболее сильно этот эффект проявляется на сильно недодопированных кристаллах Bi-2212(Y) (для $x = 0.3$).

Как говорилось ранее, причиной уширения линии ниже температуры перехода в сверхпроводящее состояние является проникновение магнитного поля в образец в виде вихрей Абрикосова [4, 7]. Так как уширение линии ЭПР для всех образцов начинается задолго до T_c , можно предположить, что именно в этой области температур начинают возникать локальные вихревые возбуждения. Тем самым наши результаты не противоречат гипотезе зарождения вихревого состояния при $T > T_c$, предложенной исследователями эффекта Нернста [1].

В работе все характерные особенности поведения спектра ЭПР показаны на при-

мере недодопированного образца с содержанием иттрия $x = 0.3$, так как эффекты влияния неоднородных полей сверхпроводника в этом образце выражены наиболее ярко.

Плавно удаляя зонд от поверхности сверхпроводника, мы оценивали пространственный масштаб неоднородностей. На расстояниях, превышающих масштаб пространственных вариаций намагниченности, поле становится однородным. Поэтому парамагнитный зонд, отодвинутый на такое расстояние, дает неискаженный (неуширенный и несмещенный) сигнал в спектре ЭПР. Для определения пространственного масштаба неоднородностей, возникающих при $T > T_c$, были проведены эксперименты с использованием промежуточного (буферного) слоя. В качестве буферной прослойки мы использовали химически чистый парафин. Парафин необходимой массы помещался на поверхность кристалла и нагревался до плавления. Растекаясь по поверхности образца, парафин образует слой необходимой толщины (h). Состояние слоя контролировалось с помощью оптического микроскопа. Поверх слоя парафина с помощью метода вакуумного напыления наносился зондирующий слой ДФПГ. Затем регистрировались спектры ЭПР, из которых были получены необходимые температурные зависимости параметров резонансного сигнала ДФПГ.

Температурные зависимости сдвига сигнала ЭПР были получены при изменении толщины слоя парафина от 0 до 55 мкм (см. рис.8). При $h = 0$ мкм и $T > T_c$

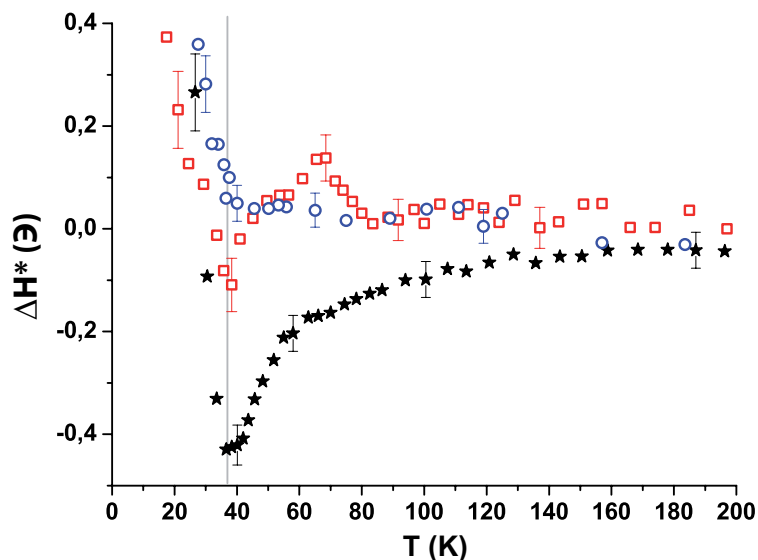


Рисунок 8 – Температурная зависимость сдвига ЭПР сигнала для образца с $x = 0.3$ при разной толщине парафиновой прослойки h .

сигнал смещается в область низких полей, что соответствует парамагнитной добавке к приложенному магнитному полю. Когда мы начинаем удалять зондирующий слой от образца, парамагнитная добавка ослабевает. При толщине буферного

слоя около 15 мкм в области температур 50-90 К сдвиг сигнала обнаруживает отрицательный (диамагнитный) вклад в магнитное поле на поверхности образца. И, наконец, при $h > 55$ мкм оба вклада исчезают. Так как наблюдаются два вклада в смещение резонансного поля, можно предположить, что сигнал не однородный, а композитный, состоящий из двух частей с разными по величине и направлению сдвига относительно невозмущенного положения. Это гипотезу мы подтвердили путем математического моделирования спектра в виде суммы двух сигналов с различным сдвигом (см. рис. 9).

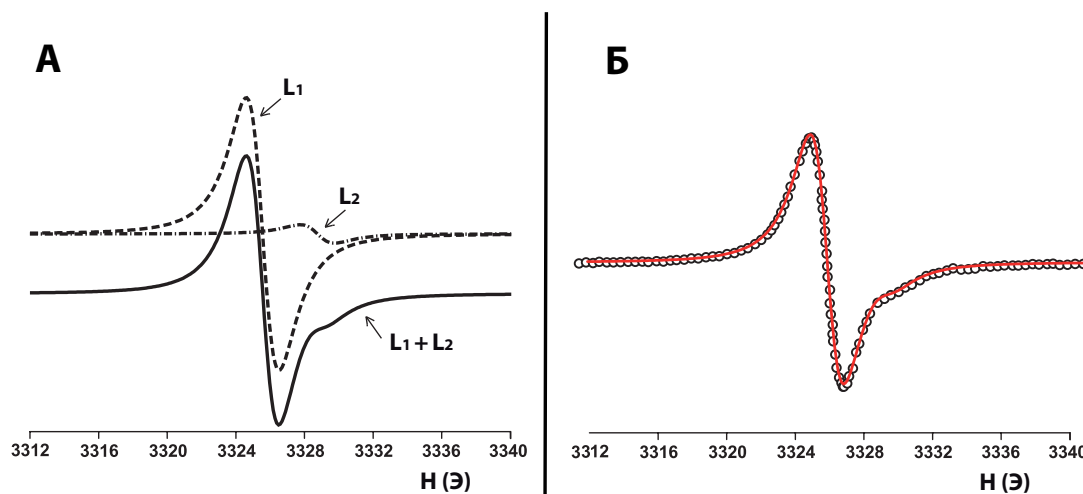


Рисунок 9 – Представление спектра ЭПР ДФПГ в виде суммы двух сигналов (L_1 и L_2) с помощью математического моделирования ($T = 65$ К). А – результат математического моделирования ($L_1 + L_2$), Б – сравнение экспериментального (кружки) и моделированного спектров (линия).

Оказалось, что ниже определенной температуры (для образца с $x = 0.3$ она составляет 65 К) сигналы, в сумме составляющие наблюдаемый сигнал, расходятся, вызывая тем самым уширение и смещение регистрируемого спектра ЭПР. Отметим, что все изменения положения максимума резонансного поглощения происходят в пределах ширины линии сигнала, которая составляет 1.5 Э и более. Это означает, что при удалении зонда от образца происходит перераспределение интенсивности поглощения внутри ЭПР-сигнала. Таким образом, можно прийти к выводу, что зависимость сдвига сигнала ЭПР от температуры и расстояния между образцом и зондом обнаруживает признаки наличия фазового расслоения.

Кроме разной магнитной природы, эти фазы имеют и разные характерные размеры, что следует из факта различной скорости подавления их вкладов в сдвиг сигнала по мере удаления зонда от образца. Для того, чтобы определить пространственный масштаб магнитных неоднородностей, была использована формула (1),

приведенная авторами статьи [10]:

$$\Delta H = \Delta H_0 \cdot \exp(-qh), \quad (1)$$

где ΔH_0 – величина сдвига при $h=0$ мкм, $q = \frac{2\pi}{L}$, где L – пространственный масштаб неоднородностей. Оценки, сделанные по изменению вклада с увеличением h , дают следующие величины: для парамагнитной фазы размер областей порядка 50 мкм, для диамагнитной фазы характерный размер порядка 10 мкм. Последняя величина хорошо согласуется с данными, полученные в работе [3] с помощью микро-сквида. Отметим, что измерения поля микро-сквидом проводилось на расстоянии ~ 10 мкм от образца. В наших ЭПР-измерениях максимальный диамагнитный вклад обнаруживается при удалении ЭПР зонда на 15 мкм. Кроме размеров, совпадает и оценка амплитуды диамагнитной намагниченности, которую авторы [3] определили в пределах 0.2 Э, что вполне соответствует максимуму «диамагнитного» сдвига, наблюдаемого в наших экспериментах (см. рис. 8).

Одной из возможных причин проявлений неоднородностей магнитного поля выше T_c является влияние флуктуаций сверхпроводящего параметра порядка ψ , которые описываются теорией Гинзбурга-Ландау [11]. Флуктуации параметра порядка представляют собой мелкоразмерные ($\sim \xi$ и менее) образования, время жизни которых $\tau \sim 10^{-12}$ с [12] в очень малой области температур вблизи T_c ($\Delta T \ll T_c$). Однако масштаб наблюдаемых неоднородностей – несколько десятков микрометров. Причем время жизни таких образований, по нашим оценкам из пересчета дополнительного уширения во временные единицы, не меньше $\sim 10^{-7}$ с. То есть, для того, чтобы обнаружить уширение сигнала на 0.1 Э, необходимо, чтобы в «система» находилась в состоянии покоя время, равное $\sim 10^{-7}$ с. Таким образом флуктуации сверхпроводящего параметра порядка не могут быть причиной образования неоднородностей магнитного поля выше T_c .

По всей видимости, обнаруженную фазовую неоднородность нельзя отнести к химическому типу, то есть неоднородному распределению примеси по образцу. Последнее могло бы привести к разбросу критических температур и, как следствие, к появлению небольших сверхпроводящих областей (диамагнитных) при температуре выше T_c^{bulk} (T_c^{bulk} – критическая температура всего объема сверхпроводника). Области размерами ~ 10 мкм должны проявлять себя в экспериментах по измерению высокочастотной магнитной восприимчивости. Однако в наших экспериментах при определении T_c и ΔT_c никакого диамагнитного проявления выше T_c^{onset} не наблюдается.

Парамагнитные области могут образоваться, если происходит электронное фазовое расслоение, сопровождающееся повышением концентрации носителей тока в отдельных частях ВТСП-материалов (они-то и становятся диамагнитными)

с одновременным обеднением носителей тока других частей. Последние имеют тенденцию к антиферромагнитному упорядочению. В достаточно больших полях (> 1 кЭ) такие области ведут себя как парамагнетики из-за скоса подрешеток под действием поля. Во внешнем магнитном поле в этих областях за счет поворота магнитных моментов ионов меди образуется небольшой магнитный момент, направленный вдоль внешнего магнитного поля. Тем самым у поверхности, где располагается зондирующий слой, появится дополнительное поле, которое смещает центр тяжести спектра в область низких полей. Подобные свойства при температуре выше критической могут проявлять страйп-структуры [13].

Диамагнитная фаза может быть обусловлена возникновением сверхпроводящих областей, в которых отсутствует фазовая когерентность. Так, например, в работе [2] с помощью сканирующей туннельной микроскопии были обнаружены локальные области с ненулевой энергетической щелью $\Delta \neq 0$, которые образуют состояние предшествующее сверхпроводящему. Есть предположения, что к разрушению фазовой когерентности приводит образование вихревой структуры [1, 14].

Возможно, потеря фазовой когерентности связана с образованием пар «вихрь-антивихрь» и переходом Березинского-Костерлица-Таулеса [15, 16]. Движения таких пар за счет тепловых флуктуаций приводят к разрушению фазовой когерентности куперовских пар и переходу материала в нормальное состояние. Но для того, что произошел переход БКТ, необходимо жесткое выполнение требования на размеры сверхпроводника: система должна быть двумерной, и толщина пленки должна быть меньше глубины проникновения магнитного поля ($d < \lambda$). Наши образцы представляют собой монокристаллы с толщиной ~ 0.1 мм, что исключает применение такого сценария разрушения фазовой когерентности.

Другое предположение о потере фазовой когерентности связано с разупорядочением регулярной вихревой решетки Абрикосова выше критической температуры [1]. Ниже T_c фаза волновой функции носителей тока жестко определена. Повышение температуры приводит к быстрому и хаотическому движению вихрей, которое разрушает фазовую когерентность. При этом образуется состояние, называемое вихревой жидкостью. Экспериментальное подтверждение этой гипотезы было получено авторами [1] при обнаружении эффекта Нернста большой величины выше T_c , характерного для вихревого состояния сверхпроводника. Мы сравнили полученные результаты с данными этой работы. По температурным зависимостям параметров спектра определили температуру возникновения магнитных возмущений $T_{onset}(\text{ЭПР})$, а по эмпирической формуле (2) [17] определили концен-

трацию носителей тока (p) в образце.

$$\frac{T_c}{T_{c,max}} = 1 - 82.6(p - 0.16)^2. \quad (2)$$

Для образца с концентрацией иттрия $x = 0.1$ с $T_c = 96.8$ К концентрация носителей тока составила $p = 0.16$. Для образца $x = 0.2$ и 0.3 , соответственно, $p = 0.12$ и 0.08 . Полученные результаты были наложены на фазовую диаграмму Bi-2212 (см. рис. 10). Как видно из рисунка, все полученные точки расположены в области

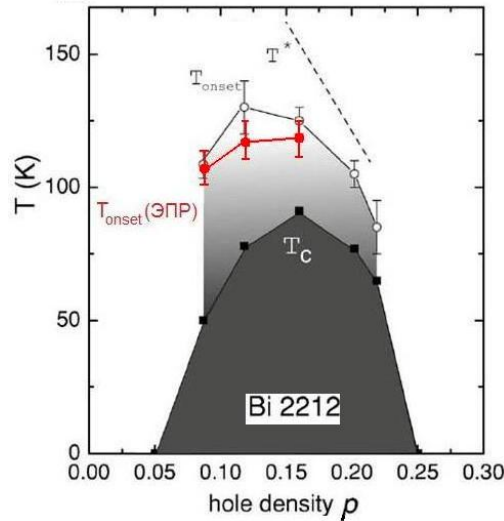


Рисунок 10 – Фазовая диаграмма Bi-2212. T_c – температура перехода в сверхпроводящее состояние, T^* – температура образования псевдощели, T_{onset} – температура появления сигнала Нернста, $T_{onset}(\text{ЭПР})$ – температура обнаружения неоднородности магнитного поля в наших экспериментах.

возникновения эффекта Нернста. Можно считать это ещё одним аргументом в пользу гипотезы вихревой жидкости выше T_c [1].

В Заключение перечислены основные результаты работы:

1) С помощью метода ЭПР-декорирования были исследованы особенности магнитного состояния монокристаллов ВТСП-соединений Bi-2223 и Bi-2212(Y) выше критической температуры. Были получены температурные зависимости параметров спектра ЭПР, таких, как положение резонансного сигнала и его ширина. Анализ данных показал, что для всех исследованных систем характерно появление неоднородностей магнитного поля на поверхности при $T > T_c$. Наиболее ярко неоднородности магнитного поля выше T_c проявляют себя в образцах Bi-2212(Y), сильно недодопированных носителями тока.

2) В экспериментах с изменением расстояния между зондирующим слоем и поверхностью сверхпроводника с помощью парафиновой прослойки были обнаружены признаки фазового расслоения. Более крупная по размерам фаза (~ 50 мкм)

проявляет парамагнитные свойства. Другая фаза, размеры включений которой около ~ 10 мкм, обладает диамагнитными свойствами.

3) Анализ показал, что такие «крупные» (~ 10 мкм) и «долго живущие» (больше, чем 10^{-7} с) образования не могут быть обусловлены флуктуациями Гинзбурга-Ландау сверхпроводящего параметра порядка вблизи температуры сверхпроводящего перехода.

4) Выяснилось, что фазовую неоднородность выше T_c нельзя отнести к химическому типу, то есть неоднородному распределению примеси по образцу. Так как области с размерами несколько десятков микрометров и с $T_c > T_c^{bulk}$ должны проявлять себя в измерениях высокочастотной магнитной восприимчивости, а в наших экспериментах, в которых определялась T_c и ширина перехода ΔT_c , никаких аномалий не обнаруживается.

5) Наличие электронного фазового расслоения может адекватно объяснить все наблюдаемые неоднородности магнитных полей на поверхности сверхпроводника при $T > T_c$. Области, проявляющие парамагнитные свойства, вероятней всего, имеют антиферромагнитный порядок. Диамагнитная фаза образована областями, в которых отсутствует фазовая когерентность носителей тока.

Цитируемая литература

- [1] Wang, Y. Nernst effect in high-Tc superconductors / Y. Wang, L.Li, N.P.Ong // *Phys.Rev.B.* — 2006. — Vol. 73. — P. 024510—024520.
- [2] Visualizing pair formation on the atomic scale in the high-Tc superconductor $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+y}$ / K. Gomes, A. Pasupathy, A. Pushp et al. // *Nature.* — 2007. — Vol. 447. — P. 569—572.
- [3] Observation of diamagnetic precursor to the meissner state above T_c in high-Tc $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ cuprates by scanning squid microscopy / I. Iguchi, A. Sugimoto, T. Yamaguchi et al. // *Physica C.* — 2002. — Vol. 367. — P. 9—14.
- [4] Rakvin, B. Epr detection of the flux distribution in ceramic high-Tc superconductors / B. Rakvin, M. Pozek, A. Dulcic // *Solid State Commun.* — 1989. — Vol. 72, no. 2. — P. 199—204.
- [5] Ч.Пул. Техника ЭПР-спектроскопии / Ч.Пул. — Москва: Мир, 1970.
- [6] Pressley, R. g -factor of conduction electrons in metallic lithium / R. Pressley, H. Berk // *Phys.Rev.B.* — 1965. — Vol. 140, no. 4. — P. 1207—1211.
- [7] А.А. Абрикосов. О магнитных свойствах сверхпроводников второй группы / А.А. Абрикосов // *ЖЭТФ.* — 1957. — Т. 32, № 6. — С. 1442—1452.

- [8] *Ч.Киттель*. Введение в физику твердого тела / Ч.Киттель. — Москва: Наука, 1978.
- [9] Local field distribution of the vortex lattice near the surface of type-II superconductors: Magnetic resonance lineshapes / M. Pozek, H. Habermeier, A. Maier, M. Mehring // *Physica C*. — 1996. — Vol. 269. — P. 61–70.
- [10] Determination of the spatial length scale of the magnetic-field distribution in the YBCO ceramic by surface EPR / N. Bontemps, D. Davidov, P. Monod, R. Even // *Phys.Rev.B*. — 1991. — Vol. 43. — P. 11512–11514.
- [11] *В.Л. Гинзбург*. К теории сверхпроводимости / В.Л. Гинзбург, Л.Д. Ландау // *ЖЭТФ*. — 1950. — Т. 20. — С. 1064–1081.
- [12] *Larkin, A.* Theory of fluctuations in superconductors / A. Larkin, A. Varlamov. — Oxford: Oxford University Press, 2005.
- [13] Evidence for stripe correlations of spins and holes in copper oxide superconductors / J. Tranquada, B. Sternlieb, J. Axe et al. // *Nature*. — 1995. — Vol. 375. — P. 561–563
- [14] *Franz, M.* Importance of fluctuations / M. Franz // *Nature*. — 2007. — Vol. 3. — P. 686–687.
- [15] *В.Л. Березинский*. Разрушение дальнего порядка в одномерных и двумерных системах с непрерывной группой симметрии / В.Л. Березинский // *ЖЭТФ*. — 1970. — Т. 59. — С. 907–920.
- [16] *Kosterlitz, J.* Ordering, metastability and phase transitions in two-dimensional systems / J. Kosterlitz, D. Thouless // *J.Phys.* — 1973. — Vol. C6. — P. 1181–1183.
- [17] General trends in oxygen stoichiometry effects on T_c in Bi and Tl superconductors / M. Presland, J. Tallon, R. Buckley et al. // *Physica C*. — 1991. — Vol. 176. — P. 95–105.

Список публикаций

- [A1] Обнаружение вихревых возмущений в кристалле $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10}$ при температурах выше критической с помощью ЭПР поверхностного слоя / Л.Ф. Салахутдинов, Ю.И. Таланов, Е. Джаннини, Р.И. Хасанов // *Письма в ЖЭТФ*. — 2009. — Т. 17, № 3. — С. 222–226.
- [A2] Vortex excitations above T_c in the cuprate superconductor $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10}$ as revealed by ESR / L. Salakhutdinov, Y. Talanov, E. Giannini, R. Khasanov // *Appl.Mag.Res.* — 2011. — Vol. 70, no. 1. — P. 37–46.
- [A3] Поиск вихревых возбуждений в кристаллах $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{1-x}\text{Y}_x\text{Cu}_2\text{O}_{8+y}$ выше критической температуры с помощью ЭПР / Л.Ф. Салахутдинов, Ю.И. Таланов, Т. Адачи, Р.И. Хасанов // *Известия РАН. Серия физическая*. — 2012. — Т. 72, № 2. — С. 161–163.

- [A4] Исследование псевдощелевого состояния $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ с помощью ЭПР / Л.Ф. Салахутдинов, Ю.И. Таланов, Т.С. Шапошникова, Н.Ю. Панарина // Фундаментальные проблемы высокотемпературной сверхпроводимости: сб.труд. 3-й Международной конференции (Звенигород, 13-17 окт. 2008). — Москва, ФИАН, 2008. — С.42-43
- [A5] ЭПР исследование локальных магнитных полей на поверхности монокристаллов $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{1-x}\text{Y}_x\text{Cu}_2\text{O}_{8+y}$ вблизи критической температуры / Л.Ф. Салахутдинов, Т.С. Шапошникова, Ю.И. Таланов, Н.Ю. Панарина // Фундаментальные проблемы высокотемпературной сверхпроводимости: сб.труд. 4-й Международной конференции (Звенигород, 3-7 окт. 2011). — Москва, ФИАН, 2011. — С.71-72
- [A6] Vortex excitations above T_c in the cuprate superconductor $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{1-x}\text{Y}_x\text{Cu}_2\text{O}_{8+y}$ as revealed by ESR / L. Salakhutdinov, Y. Talanov // Actual problem of magnetic resonance and its application: abstracts of the XIII International youth scientific school (Kazan, 4-8 окт. 2010). — Kazan, KFU, 2010. — С.88-91
- [A7] Поиск вихревых возбуждений в кристаллах $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{1-x}\text{Y}_x\text{Cu}_2\text{O}_{8+y}$ выше критической температуры с помощью ЭПР / Л.Ф. Салахутдинов, Ю.И. Таланов, Т. Адачи, Р.И. Хасанов // Нанofизика и наноэлектроника: сб.труд. XV Международного симпозиума (Нижний Новгород, 14-18 марта 2011). — Н.Новгород, 2011. — Т.1. — С.230-231
- [A8] EPR study of local magnetic fields on the $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{1-x}\text{Y}_x\text{Cu}_2\text{O}_{8+y}$ single crystal surface above T_c / L. Salakhutdinov, Y. Talanov, G. Teitelbaum et al. // Spin physics, spin chemistry and spin technology: abstracts of the international conference (Kazan, 1-5 November 2011). — Kazan, 2011. — P.138
- [A9] Исследование магнитного состояния сверхпроводника $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{1-x}\text{Y}_x\text{Cu}_2\text{O}_{8+y}$ в окрестности критической температуры с помощью парамагнитного зонда / Л.Ф. Салахутдинов, Ю.И. Таланов, Т. Адачи // Нанofизика и наноэлектроника: сб.труд. XVII Международного симпозиума (Нижний Новгород, 11-15 марта 2013). — Н.Новгород, 2013. — Т.1. — С.69-71