Физика низких температур, 1996, т. 22, № 6, с. 613–617

Андреевское отражение и эффект близости в $Hg_{0,8}Pb_{0,2}Ba_2Ca_2Cu_3O_{8+\delta}$ керамиках под давлением: аномально быстрый рост $\Delta(P)$

В. Ю. Таренков, А. В. Абалешев, А. И. Дьяченко, В. М. Свистунов

Донецкий физико-технический институт им. А. А. Галкина НАН Украины, Украина, 340114, г. Донецк, ул. Р. Люксембург, 72

Р. В. Луцив, Ю. Н. Мясоедов

Львовский государственный университет, Украина, 290001, г. Львов, ул. Драгоманова, 50

E-mail:dyachenko@sts.dipt.donetsk.ua

Из экспериментов по андреевскому отражению на контактах Ag/Hg1223 установлено, что энергетическая щель ртутной керамики $\Delta \approx 42$ мэВ возрастает с давлением P существенно быстрее ее критической температуры T_c ($d\Delta/dP = 0,43 \pm 0,03$ мэВ/кбар, $dT_c/dP = 0,28 \pm 0,04$ К/кбар. При этом отношение $2\Delta/kT_c$ увеличивается с 7,3 до 8 для $P = 11$ кбар. Как известно, для обычных БКШ-сверхпроводников ситуация обратная: если давление P приводит к росту фононных частот, то $2\Delta/kT_c$ уменьшается с увеличением P.

З експериментів по андріївському відбиттю на контактах Ag/Hg1223 знайдено, що енергетична щілина ртутної керамики $\Delta = 42$ меВ зростає з тиском P значно швидше, ніж її критична температура T_c ($d\Delta/dP = 0,43 \pm 0,03$ меВ/кбар, $dT_c/dP = 0,28 \pm 0,04$ К/кбар. При цьому відношення $2\Delta/kT_c$ збільшується з 7,3 до 8 при $P = 11$ кбар. Як відомо, для звичайних БКШ-надпровідників ситуація протилежна: якщо тиск P приводить до зростання фононних частот, то $2\Delta/kT_c$ зменшується із зростанням P.

Измерения характеристик металлических NS-контактов позволяют определить параметр энергетической щели Δ сверхпроводника [1]. Метод основан на андреевском отражении от NS-границы, при котором инжектируемые из нормального металла квазичастицы с энергией $\varepsilon < \Delta$ и импульсом $\mathbf{k}$ отражаются от NS-границы в квазидырки с той же энергией, но противоположным импульсом $-\mathbf{k}$, а в сверхпроводнике рождается куперовская пара [2]. Изменение коэффициента отражения электронов с $\varepsilon > \Delta$ приводит к ступенчатой особенности в проводимости $G(V) = dI/dV$ контакта при напряжении смещения $V \approx \Delta/e$ [3]. Если на границе металл—сверхпроводник имеется туннельный барьер либо фермиевские скорости в N- и S-металлах сильно различаются, то в окрестности $eV = \Delta$ дифференциальная проводимость NS-контактов имеет пикообразную особенность [3]. Достаточно резкий характер изменения проводимости металлических NS-контактов при смещении $V \approx \Delta/e$ использован в настоящей работе для исследования зависимости параметра порядка Δ металлооксида Hg1223 от давления.

Эксперимент

Керамика $Hg_{0,8}Pb_{0,2}Ba_2Ca_2Cu_3O_{8+\delta}$ (Hg1223) синтезировалась в замкнутом кварцевом объеме при температуре $T = 850$ °C. Из керамических шайб алмазным диском выпиливались образцы размерами $8 \times 1,5 \times 1$ мм. Контактные площадки для определения транспортных характеристик керамики приготовлялись вжиганием в образец серебряной пасты при кислородном обдуве и температуре $T = 400$ °C. Контакты для спектроскопических измерений создавались гидростатическим впрессовыванием мелкодисперсного серебра в керамику. На поверхность ее свежего скола насыпался порошок серебра с размерами частиц $d = 3$ мкм, после чего это место заливалось клеем БФ-2, который предохранял область контакта от попадания масла при гидростатической прессовке. Прессовка контакта проводилась в гидростатической установке при давлении ~ 15 кбар с выдержкой 10 мин. Под действием высоких давлений мелкодисперсное серебро внедрялось в поверхность керамики, образуя металлический контакт наружным диаметром $d = 0,5$ мм, механической устойчивости которого способствовала высокая пластичность се-

© В. Ю. Таренков, А. В. Абалешев, А. И. Дьяченко, В. М. Свистунов, Р. В. Луцив, Ю. Н. Мясоедов, 1996

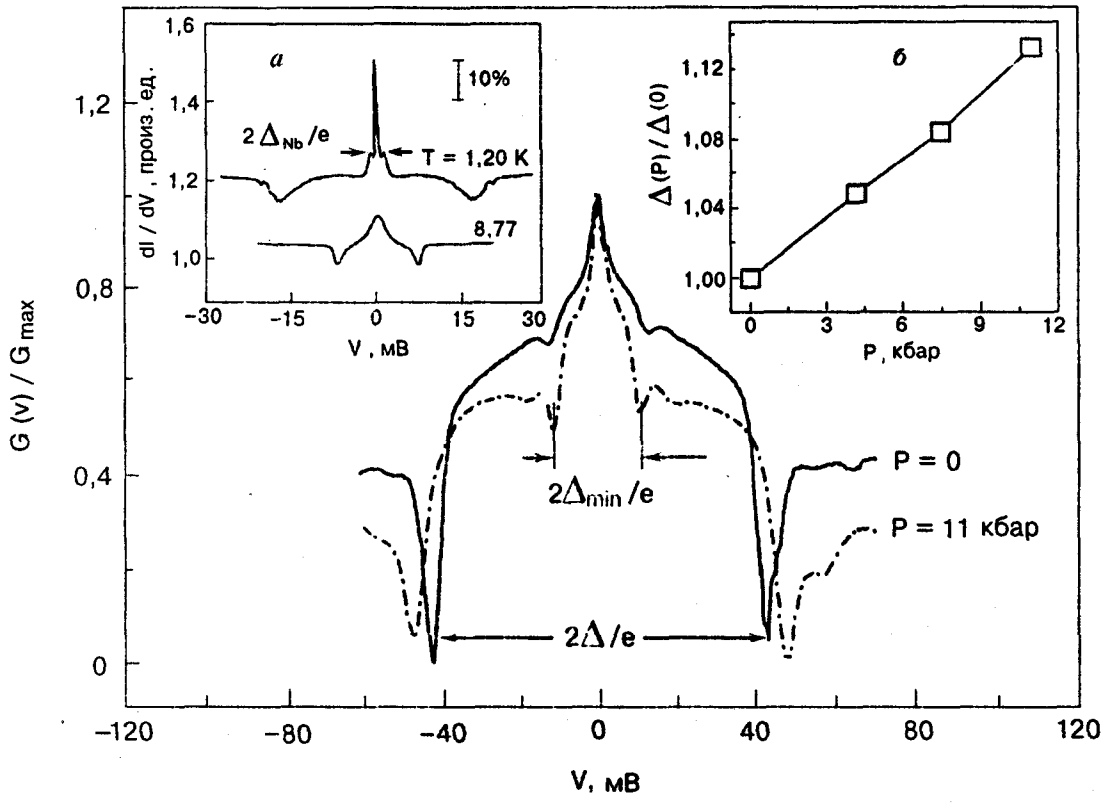

Рис. 1. Влияние давления на проводимость *NS*-микроконтакта $Hg_{0,8}Pb_{0,2}Ba_2Cu_3O_{8+\delta}$–Ag. Вставка *а*: проводимость контакта Nb–Ag при разных температурах (из работы [5]), вставка *б*: зависимость энергетической щели $\Delta(P)$ керамики Hg1223 от гидростатического давления.

ребра и разветвленность поверхности керамического материала. К полученным с помощью прессования и вжигания контактам припаивались токовые и потенциальные провода, после чего образец покрывался лаком, применяемым в низкотемпературной технике. Защитный слой лака предохранял ртутную керамику от быстрой деградации в лабораторной атмосфере.

Высокие давления для спектроскопических измерений создавались сжатием керосино-масляной смеси в стандартной камере типа поршень—цилиндр. Кроме образца, в камеру помещались датчики давления и температуры. Металлический характер полученных *NS*-микроконтактов контролировался как по виду их вольт-амперных характеристик (рост сопротивления при больших напряжениях смещения [1]), так и по слабой «металлической» реакции их проводимости на давление [4].

На рис. 1 представлены кривые динамической проводимости $G = dI/dV$ контакта Hg1223–Ag. Подобные спектры характерны для *NS*-микроконтактов с большой плотностью измерительного тока [1,5–8]. В качестве примера на рис. 1,*а* приведена проводимость *NS*-контакт Ag–Nb [5]. Отметим общее сходство характеристик контактов Ag–Nb и Ag–Hg1223, в частности присутствие аномалии в проводимости при нулевом напряжении смещения (рис. 1). Величина энергетической щели купрата $\Delta \approx 42$ мэВ определялась из согласования экспериментальной кривой dI/dV (рис. 1) с теорией *NS*-контакта [3]. Близкие значения параметра $\Delta = 35 - 40$ мэВ для керамик Hg1223 были получены в туннельных экспериментах [9]. Температурная зависимость параметра $\Delta(T)$ соответствовала зависимости $\Delta_{BCS}(T)$ энергетической щели БКШ (рис. 2).

Давление увеличивало критическую температуру T_c купрата Hg1223 (рис. 2,б) и его энергетическую щель Δ (рис. 1,б), причем отношение $2\Delta/kT_c$ с давлением возрастало с 7,3 ($P = 0$) до 8,0 ($P = 11$ кбар). Отмеченная на рис. 1 особенность при $eV = \Delta_{min}$ может быть обусловлена как присутствием низкотемпературной фазы в исследуемой керамике [1], так и анизотропией энергетической щели Hg1223. С ростом давления параметр Δ_{min} убывал со скоростью $d\ln(\Delta_{min})/dP = -0{,}015 \pm 0{,}2$ кбар$^{-1}$.

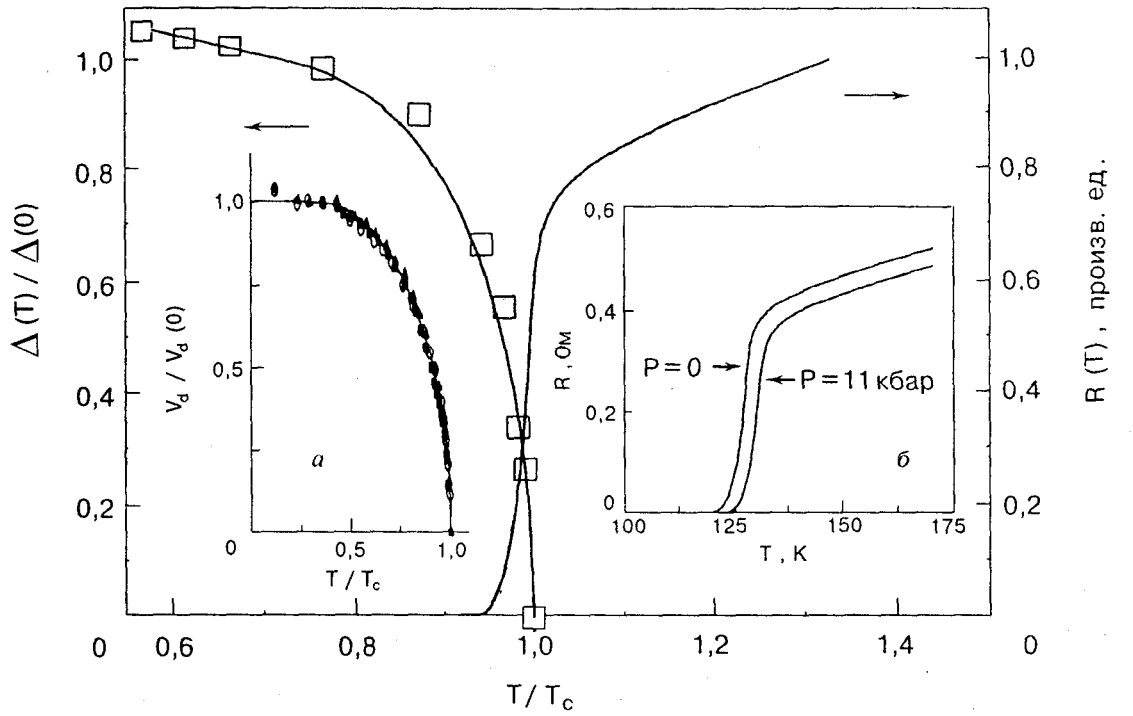

Рис. 2. $R(T)$-переход для керамики Hg1223 и температурная зависимость особенностей при $eV = \Delta$ контакта Hg1223–Ag. Вставка *а*: температурный ход особенностей сопротивления для контактов Nb–Ag (из работы [5]) и кривая $\Delta(T)/\Delta(0)$ БКШ, вставка *б* демонстрирует влияние давления на $R(T)$-переход для керамики Hg1223.

Обсуждение результатов

Для отношения $2\Delta/kT_c$ в теории сильного электрон-фононного взаимодействия справедлива формула Гейликмана—Кресина [10]

$$2\Delta/kT_c = 3{,}52\left[1 + 5{,}3(kT_c/\omega_0)^2 \ln(\omega_0/kT_c)\right], \quad (1)$$

где ω_0 — характерная фононная частота. Влияние давления на сдвиг частоты ω_0 в ртутных купратах можно оценить по данным рамановского рассеяния [11]: $\gamma = d\ln\omega_0/dP = 1{,}2\cdot10^{-4}$ кбар$^{-1}$. Согласно (1), при такой величине γ и экспериментальном значении $dT_c/dP = 0{,}28$ K·кбар$^{-1}$ отношение $2\Delta/kT_c$ при давлении $P = 11$ кбар может увеличиться не более чем на 0,2%. Это намного меньше наблюдаемого роста $2\Delta/kT_c$ с 7,3 ($P = 0$) до 8,0 ($P =$ 11 кбар). Формула (1) неоднократно уточнялась (см., например, [12,13]), однако даже использование уточненных выражений не улучшает согласие теории сильной связи с экспериментом.

В теории БКШ можно получить точную формулу для производной $d\Delta/dP$, если продифференцировать по давлению P исходные выражения теории для критической температуры T_c и энергетической щели Δ:

$$\frac{1}{\lambda_{BCS}} = \int_0^{\omega_D/2kT_c} \frac{\mathrm{th}\,x}{x}\,dx\,, \quad \Delta(T=0) = \frac{\omega_D}{\mathrm{sh}\,(1/\lambda_{BCS})}\,. \quad (2)$$

Используя правило дифференцирования неявной функции, из (2) находим

$$\frac{d\ln\Delta}{dP} = \frac{d\ln(kT_c/\omega_D)}{dP}\,\frac{\mathrm{th}\,(\omega_D/2kT_c)}{\mathrm{th}\,(1/\lambda_{BCS})}\,, \quad (3)$$

где параметр БКШ $\lambda_{BCS} = (\lambda - \mu^*)/(1+\lambda)$; ω_D — характерная частота фононного спектра; λ — константа электрон-фононного взаимодействия; μ^* — кулоновский псевдопотенциал. Согласно (3), при $\gamma = 1{,}2\cdot10^{-4}$ [11] и экспериментальной величине $dT_c/dP = 0{,}28$ K/кбар расчетное изменение $d\ln\Delta/dP \approx 5\cdot10^{-5}$ кбар$^{-1}$, тогда как экспериментальное значение $d\ln\Delta/dP \approx 0{,}01$ кбар$^{-1}$ (рис. 1,*б*).

В обычных, низкотемпературных БКШ-сверхпроводниках параметр $\gamma = d\ln\omega_0/dP$ положителен (частота под давлением P растет), в то время как критическая температура T_c, как правило, убывает. Поэтому, согласно формулам (1), (3), на-

блюдается уменьшение величины $2\Delta/kT_c$ с увеличением давления [14]. Интересное исключение — лантан, для которого как T_c, так и отношение $2\Delta/kT_c$ с давлением возрастают [15]. Такое поведение $T_c(P)$ и $2\Delta/kT_c(P)$ в лантане можно объяснить размягчением низкочастотных мод фононного спектра, так как при этом входящий в формулы (1), (3) параметр kT_c/ω_0 увеличивается [16]. Но столь прямолинейное объяснение непригодно для высокотемпературных сверхпроводников.

Если исходить из предположения, что высокотемпературная сверхпроводимость купратов обусловлена некоторой модификацией электрон-фононного взаимодействия, когда еще применимы уравнения Элиашберга, то, согласно работам [17,18], основной вклад в величину T_c и параметр Δ будут вносить высокочастотные фононные моды. Их энергия с ростом давления [11,19] увеличивается, что коррелирует с наблюдаемым в данной работе возрастанием T_c и Δ, но не объясняет быстрый рост отношения $2\Delta/kT_c$ (во всяком случае, в рамках изотропной модели, для которой справедливы формулы (1), (3) и расчеты [17,18]).

Заметим, что некоторое увеличение производной $d\Delta/dP$ может быть связано с неоптимальным допированием исследуемых образцов Hg1223. Как известно, для дырочных высокотемпературных сверхпроводников имеется универсальное соотношение между отношением T_c/T_{cmax} и концентрацией n дырок в ab-плоскости: $T_c = T_{cmax} f(n)$. Здесь T_{cmax} — максимальное значение критической температуры для данного композита, а $f(n)$ — универсальная функция с максимумом $f(n_c) = 1$ при $n = n_c$ [20]. Для оптимально допированного сверхпроводника концентрация $n = n_c$ и $df/dn|_{n=n_c} = 0$, поэтому $dT_c/dP = dT_{cmax}/dP$. В более общем случае

$$\frac{dT_c}{dP} = f\frac{dT_{cmax}}{dP} + T_{cmax}\frac{df}{dn}\frac{dn}{dP}, \qquad (4)$$

где второе слагаемое обусловлено изменением концентрации дырок в CuO_2-плоскостях, индуцированным давлением, а первое обязано всем другим вкладам при фиксированной концентрации дырок n. Предположим, что и для параметра порядка сверхпроводника Δ также справедливо универсальное соотношение $\Delta = \Delta_{max}\psi(n)$. Тогда

$$d\Delta/dP = \psi d\Delta_{max}/dP + \Delta_{max} d\psi/dP . \qquad (5)$$

Для семейства ртутных керамик $dT_{cmax}/dP \approx$ $\approx 0{,}18$ К/кбар [21]. В нашем случае $dT_c/dP =$ $= 0{,}28 \pm 0{,}04$ К/кбар (рис. 2,*б*), $T_{cmax} \approx 135$ К, поэтому, согласно (4), $df/dP \approx 0{,}001$. Полагая выполненным условие $df/dP \approx d\psi/dP$, из (5) находим, что недостаток дырок в CuO_2-плоскостях может изменить производную $d\Delta/dP$ не более чем на 10%, т.е. практически все наблюдаемое изменение параметра Δ ($d\ln\Delta/dP \approx 10^{-2}$ кбар$^{-1}$) следует отнести к специфике механизма ВТСП.

Малая щель Δ_{min} (рис. 1) наблюдалась во всех исследуемых образцах. Поэтому имеются основания предполагать, что ее появление может быть обусловлено анизотропией энергетической щели купрата Hg1223. Принципиальная возможность наблюдения анизотропных эффектов в *NS*-контакте объясняется спецификой андреевского отражения, при котором даже падающие под большим углом к *NS*-границе электроны могут отразиться по-андреевски [2]. В результате если микроконтакт образовался на гладком торцевом изломе микрокристаллика керамики, то его проводимость может отражать все особенности зависимости $\Delta(k)$. Для ртутных керамик, имеющих большую анизотропию параметра Δ, наиболее ярко должны проявляться особенности, связанные с энергетической щелью в направлении оси c (Δ_c) и в плоскости ab.

Отметим, что существенный рост параметра Δ ($d\ln\Delta/dP \approx 1{,}2\cdot10^{-2}$ кбар$^{-1}$) для точечных туннельных *NIS*-контактов с керамикой $La_{1,85}Sr_{0,15}CuO_{4-\delta}$ обнаружен также в работе [22]. Однако этот результат был получен при одноосной нагрузке на металлическую иглу, в то время как в нашем случае большая производная $d\Delta/dP$ наблюдается в условиях гидростатики.

Работа выполнена в рамках проектов «Сэндвич» и «Экситон» при поддержке Государственным комитетом Украины по вопросам науки и технологий и грантом ISSEP SPU 042058 (BMC).

1. И. К. Янсон, *ФНТ* **17**, 275 (1991).
2. А. Ф. Андреев, *ЖЭТФ* **46**, 1823 (1964).
3. G. E. Blonder, M. Tinkham, and T. M. Klapwijk, *Phys. Rev.* B25, 4515 (1982).
4. В. М. Свистунов, В. Ю. Таренков, А. И. Дьяченко, А. В. Василенко, *СФХТ* **5**, 495 (1992).
5. X. Peng, Xiao Gang, and R. B. Laibowitz, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 1907 (1993).
6. E. Polturak, G. Koren, D. Cohen, and E. Aharoni, *Phys. Rev.* B47 (1993).
7. Y. De Wilde, J. Heil, A. G. M. Jansen, P. Wyder, R. Deltour, W. Assmus, A. Menovsky, W. Sun, and L. Taillefer, *Phys. Rev. Lett.* **72**, 2278 (1994).
8. И. К. Янсон, Л. Ф. Рыбальченко, В. В. Фистун, Н. Л. Бобров, М. А. Оболенский, М. Б. Космына, В. П. Семиноженко, *ФНТ* **14**, 1157 (1988).
9. G. T. Jeong, J. L. Kye, S. H. Chun, S. Lee, and S. L. Lee, *Phys. Rev.* B49, 15416 (1994).
10. Б. Т. Гейликман, В. З. Кресин, *ФТТ* **7**, 3294 (1965).
11. In-Sang Yang, Hye-Soo Shin, Hye-Gyong Lee, Seung-Joon Jeon, Hang-Sun Ahn, Jaejun Yu, Sergey Lee, Sung-Ik Lee, and Nam H. Hur, *Preprint*, Pohang University Science and Technology, Pohang (1995).

12. М. А. Белоголовский, А. А. Галкин, В. М. Свистунов, *ФТТ* 17, 145 (1975).
13. V. Yu. Fedotov and E. M. Savitsky, *Phys. Lett.* 110A, 372 (1984).
14. В. М. Свистунов, М. А. Белоголовский, О. И. Черняк, *УФН* 151, 31 (1987).
15. H. Wuhl, A. Eichler, and J. Wittig, *Phys. Rev. Lett.* 31, 1393 (1973).
16. R. Baquero and E. Lopez-Olazagasti, *Phys. Rev.* B30, 5019 (1984).
17. A. I. D'yachenko, A. A. Kvachev, I. V. Kochergin, and V. M. Svistunov, *Phys. Lett.* A150, 121 (1990).
18. S. V. Shulga, O. V. Dolgov, and I. I. Mazin, *Physica* C192, 41 (1992).
19. И. А. Сибарова, *Обзоры по высокотемпературной сверхпроводимости*, 2, 70 (1990).
20. H. Zhang and H. Sato, *Phys. Rev. Lett.* 70, 1697 (1993).
21. A.-K. Klehe, J. S. Schilling, J. L. Wagner, and D. G. Hinks, *Physica* C223, 313 (1995).
22. P. J. M. van Bentum, H. F. C. Hoevers, L. E. C. van de Leemput, M. J. M. F. de Nivelle, L.W. M. Schreurs, R. T. M. Smokers, P. A. A. Teunissen, and H. van Kempen, *Phys. Script.* 25, 91 (1989).

Andreev reflection and proximity effect in $Hg_{0.8}Pb_{0.2}Ba_2Cu_3O_{8+\delta}$ ceramic under pressure: abnormally quick increase in $\Delta(P)$

V. Yu. Tarenkov, A. V. Abalioshev, A. I. D'yachenko, V. M. Svistunov, R. V. Lutsiv, and Yu. N. Myasoedov

The experiments on Andreev reflection for the Ag/Hg1223 junctions have revealed that the energy gap $\Delta \approx 42$meV of this compound increases with pressure much more steeply than the critical temperature T_c ($d\Delta/dP = 0.43 \pm 0.03$ meV/kbar, $dT_c/dP = 0.28 \pm 0.04$ K/kbar). The $2\Delta/kT_c$ ratio is thus increased from 7.3 to 8 at $P = 11$ kbar. As is known, the conventional BCS type superconductors behave quite inverse way, if the pressure causes an increase in phonon frequencies the $2\Delta/kT_c$ ratio decreases.