Физика низких температур, 1996, т. 22, № 6, с. 675–678

Особенности поведения теплопроводности, термодиффузии и теплоемкости ВТСП вблизи T_c

И. К. Камилов, А. Б. Батдалов, Ш. Б. Абдулвагидов

Институт физики Дагестанского НЦ РАН, Россия, 367003, г. Махачкала, ул. 26 Бакинских комиссаров, 94

Впервые измерена теплопроводность одного и того же образца монокристаллов $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ как в плоскости *ab* (κ_{ab}), так и в направлении оси *c* кристалла (κ_c) в интервале температур 4–300 K. На зависимости $\kappa_c(T)$ не наблюдаются характерные для ВТСП аномалии вблизи и ниже T_c, обусловленные электрон-фононным взаимодействием. Обнаружены аномалии теплопроводности иттриевой керамики, допированной серебром, вблизи T_c, которые связываются с влиянием сверхпроводящих флуктуаций.

Вперше виміряно теплопровідність того ж самого монокристала $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ як в площині *ab* (κ_{ab}), так і в напрямку вісі *c* кристала (κ_c) в інтервалі температур 4–300 K. На залежності $\kappa_c(T)$ не спостерігаються характерні для ВТНП аномалії поблизу та нижче T_c, обумовлені електрон-фононною взаємодією. Виявлено аномалії теплопровідності ітрієвої кераміки, допованої сріблом, поблизу T_c, які пов'язуються з впливом надпровідних флуктуацій.

Введение

Интерес к исследованию тепловых явлений в высокотемпературных сверхпроводниках (ВТСП) как к богатому источнику информации о свойствах ВТСП не ослабевает. Особенно это относится к теплопроводности κ и влиянию на нее термодинамических флуктуаций при температурах вблизи сверхпроводящего фазового перехода.

Имеющиеся в литературе данные об анизотропии теплопроводности монокристаллов $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ противоречивы: если идентичность поведения $\kappa_{ab}(T)$ не вызывает сомнений, то сведения о $\kappa_c(T)$ не столь однозначны. В частности, авторы [1] не нашли в поведении $\kappa_c(T)$ вблизи T_c аномалий, в то время как в [2] обнаружено характерное для κ_{ab} увеличение κ_c ниже T_c. Этот вопрос имеет принципиально важное значение в свете ведущейся в последнее время полемики о причинах происхождения пика на зависимости $\kappa_{ab}(T)$ [3]. Кроме того, проведенная в [1] оценка коэффициента анизотропии теплопроводности монокристаллов $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ не совсем корректна, так как κ_{ab} измерялась на одних образцах, κ_c — на других, а поскольку теплопроводность ВТСП сильно зависит от содержания кислорода и иных структурных несовершенств, это могло привести к серьезным ошибкам. Что же касается влияния сверхпроводящих флуктуаций на теплопроводность слоистых ВТСП, то теоретически этот вопрос был рассмотрен в работе [4], в которой показано, что флуктуационная добавка к электронной теплопроводности может достигать нескольких процентов измеряемой величины и возрастать по мере приближения к T_c со стороны бóльших температур, что и наблюдалось экспериментально в [5]. Последствия влияния флуктуаций на фононную теплопроводность, насколько нам известно, ни теоретически, ни экспериментально не рассматривались.

Настоящая работа посвящена исследованию анизотропии теплопроводности монокристаллов $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ и возможного влияния флуктуаций на κ_{ph} иттриевой керамики вблизи T_c.

Методика эксперимента

Методика измерения κ в плоскости *ab* подобна описанной в [6], а измерение теплопроводности вдоль *c*-оси керамики проводилось по разработанному нами оригинальному варианту метода *ac*-калориметрии [7,8]. Подробно методика и экспериментальная установка будут описаны в отдельной статье. Теплоемкость C_P и термодиффузия η измеряются одновременно при одном и том же монтаже, а теплопроводность находится как их произведение: $\kappa = (d/\mu)C_P\eta$, где d — плотность образца; μ — молярная масса. Следует отметить, что эта методика рассчитана на определение теплопроводности тонких пластин в направлении пер-

© И. К. Камилов, А. Б. Батдалов, Ш. Б. Абдулвагидов, 1996

пендикулярном плоскости образца, поэтому не может быть использована пока для измерения κ_{ab}.

Монокристалл $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ был выращен методом кристаллизации из раствора в расплаве с разделением этапов плавления (гомогенизации), кристаллизации и отжига. Геометрические размеры кристалла 3,0×3,0×0,28 мм; m = 15 мг; кислородный индекс $\delta < 0{,}15$; T_c = 86,6 K; $\Delta T_c \approx 2$ K.

Образец $(YBa_2Cu_3O_{7-\delta})_{0,9}Ag_{0,1}$ был выращен по обычной керамической технологии, имел примерно такие же размеры, T_c = 91 K, $\Delta T_c \approx 1$ K.

Результаты и обсуждение

На рис. 1 приведены температурные зависимости теплопроводности монокристалла для двух кристаллографических направлений. Как видно из рисунка, теплопроводность в плоскости *ab* имеет характерный для ВТСП керамик вид — подъем κ ниже T_c и колоколообразный максимум примерно при $T_c/2$, а на кривой $\kappa_c(T)$ кристалла при T_c и ниже аномалии не наблюдаются, причем сама величина κ_c значительно меньше κ_{ab} и имеет качественно иной температурный ход. Оценка электронной составляющей теплопроводности из соотношения Видемана—Франца (верхний предел значений, T = 100 K) показывает, что $\kappa_c^e \approx 1{,}8\,\%\kappa_c$, в то время как $\kappa_{ab}^e \approx 17{,}5\,\%\,\kappa_{ab}$ т.е., с достаточной уверенностью, можно утверждать, что электронной теплопроводностью вдоль оси *c* можно пренебречь при анализе результатов измерений $\kappa_c(T)$. Коэффициент анизотропии κ_{ab}/κ_c равен 4,2 при $T > 100$K и достигает значения 10,7 при T_{max}.

Если придерживаться широко распространенного мнения о том, что колоколообразный максимум на зависимости $\kappa(T)$ в ВТСП ниже T_c имеет фононное происхождение и обусловлен ослаблением рассеяния фононов на электронах вследствие их спаривания при $T < T_c$ [1,6,9], то можно предположить, что фонон-электронное рассеяние вдоль *c*-оси очень мало либо совсем отсутствует.

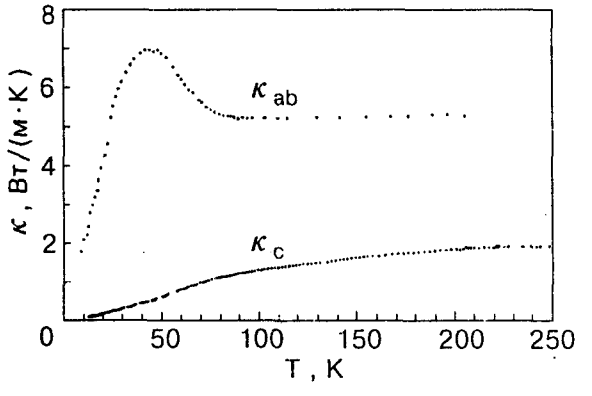

Рис. 1. Зависимость $\kappa(T)$ монокристалла $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ в плоскости *ab* и в направлении оси *c*.

По-видимому, и фонон-фононные процессы не играют существенной роли в ограничении потока тепла вдоль оси *c*, иначе следовало бы ожидать возрастания κ_c при понижении температуры, что экспериментально не наблюдается.

Согласно теории теплопроводности высокотемпературных сверхпроводников со слоистой структурой [10], анизотропия решеточной теплопроводности обусловлена различием интенсивности рассеяния фононов для двух направлений в кристалле: теплопроводность перпендикулярно слоям CuO_2 ограничена рассеянием фононов на дефектных плоскостях, а вдоль слоя такое рассеяние отсутствует. Поскольку теплоперенос вдоль оси *c* является чисто фононным, а фонон-электронное и фонон-фононное столкновения являются неэффективными, можно предположить, в соответствии с [10], что фононы рассеиваются главным образом на дефектных плоскостях (sheetlike faults).

Анизотропия теплопроводности монокристаллов $La_{1,96}Sr_{0,04}CuO_4$ и ее поведение вдоль оси *c* авторы [11] объяснили, привлекая эту модель, в рамках которой при доминирующем рассеянии фононов на дефектных плоскостях скорость релаксации фононов τ_{sh}^{-1} и количество дефектных плоскостей на единицу длины N_s связаны соотношением $\tau_{sh}^{-1}(x) = 0{,}7(6\pi^2)^{3/2}\gamma^2 N_s T^2 \varepsilon^2$, где γ — постоянная Грюнайзена, которую в нашем случае можно считать равной единице; $\varepsilon = \hbar\omega/k_B T$ — приведенная энергия фонона.

Определив τ_{sh}^{-1} с помощью экспериментального значения κ_c, можно оценить N_s. Оказалось, что $N_s = 3{,}3 \cdot 10^{-8}$ м$^{-1}$, т.е. примерно через 30Å расположены дефектные плоскости, в качестве которых могут выступать как плоскости CuO_x, чувствительные к кислородной стехиометрии, так и слои CuO_2.

Как отмечалось выше, масштаб связанных с флуктуациями аномалий в зависимости $\kappa(T)$ невелик и составляет всего несколько процентов измеряемой величины, что находится в рамках погрешности обычных методов измерения κ, поэтому наблюдать экспериментально эти аномалии до сих пор не удавалось. Использование методики определения κ из измерений η и C_P с точностью не хуже 1 % позволяет устранить эти трудности.

Количественную оценку влияния термодинамических флуктуаций на теплопроводность керамики $(YBa_2Cu_3O_{7-\delta})_{0,9}Ag_{0,1}$ вблизи T_c мы провели с помощью выражения $\Delta\kappa = \kappa^+ t^{-\alpha}$ [4], где $\Delta\kappa$ — аномальная часть теплопроводности; κ^+ — критическая амплитуда теплопроводности выше T_c; $t = (T - T_c)/T_c$; α — критический индекс теплопроводности.

Критическая температура $T_c = 91{,}20$ K была определена из измерений теплоемкости, а в качестве регулярной части теплопроводности κ_s взяли линейную аппроксимацию теплопроводности выше T_c.

Аномальная часть теплопроводности $\Delta\kappa = \kappa - \kappa_s$ была найдена как разность измеренной теплопроводности κ, изображенной на рис. 2, на котором также представлены $C_P(T)$ и $\eta(T)$, и регулярной части теплопроводности κ_s. Анализ зависимости $\Delta\kappa = f(t)$ показал, что при $T > T_c$ вблизи T_c она аппроксимируется прямой, соответствующей трехмерному гауссовскому поведению с $\alpha = 0{,}5$.

Если считать, что наблюдаемые в окрестности T_c аномалии зависимости $\kappa(T)$ и $\eta(T)$ обусловлены только электронной составляющей теплопроводности, которая составляет 16% измеренной при 100 K величины, то для проявления этих аномалий необходимо, чтобы $\Delta\kappa_e/\kappa_e \approx 12\%$, при этом приращение $\Delta\kappa_e(T)$, обусловленное флуктуациями, должно плавно увеличиваться при приближении к T_c со стороны бо́льших температур [4], что в эксперименте не наблюдается. Отсюда следует, что эти аномалии могут быть связаны и с влиянием флуктуаций на фононную теплопроводность.

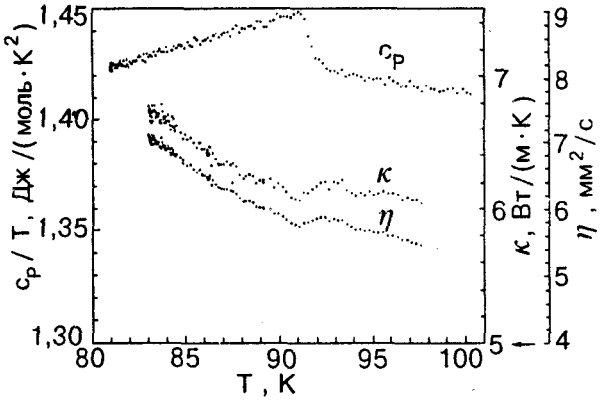

Рис. 2. Температурная зависимость удельной теплоемкости C_P, термодиффузии η и теплопроводности κ керамики $(YBa_2Cu_3O_{7-\delta})_{0,9}Ag_{0,1}$.

Если представить сверхпроводящие флуктуации как систему точечных дефектов с переменной концентрацией и максимумом при T_c и учесть, что максимум теплоемкости, минимумы термодиффузии и теплопроводности приходятся на $T_c = 91{,}2$ K, то можно предположить, что происходит критическое рассеяние носителей тепла на сверхпроводящих флуктуациях (аналог критической опалесценции). На эту же мысль наводит и поведение $\eta(T)$ вблизи T_c. Известно, что измерение $\eta(T)$ при исследовании процессов теплопередачи обладает рядом преимуществ, так как в этом случае непосредственно измеряется скорость рассеяния носителей тепла, которая обратно пропорциональна термодиффузии. Как видно из рис. 2, при T_c происходит резкое возрастание интенсивности рассеяния носителей тепла, а в качестве центров рассеяния могут выступать сверхпроводящие флуктуации.

Выводы

Впервые измерена теплопроводность образцов одного и того же монокристалла $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ как в плоскости *ab*, так и в направлении оси *c* в интервале 4–300 K.

На зависимости $\kappa_c(T)$ не наблюдаются характерные для ВТСП аномалии вблизи T_c и ниже, что свидетельствует о неэффективности электрон-фононного взаимодействия в направлении оси *c*. Для объяснения поведения $\kappa_c(T)$ привлекается модель эффективного рассеяния фононов на дефектных плоскостях.

Обнаружены аномалии поведения теплопроводности иттриевой керамики, допированной серебром, вблизи T_c, которые связываются с влиянием сверхпроводящих флуктуаций.

Работа выполнена в рамках проекта No 92069 «Спинон» Российской государственной программы «Высокотемпературная сверхпроводимость» и была частично поддержана грантом Американского физического общества.

1. S. J. Hagen, Z. Z. Wang, and N. P. Ong, *Phys. Rev.* **B40**, 9389 (1989).
2. Coa Sheo Chun, Zhang Dong Ming, Zhang Dian Lin, H. M. Duan, and A. M. Hermann, *Phys. Rev.* **B44**, 12571 (1991).
3. Э. А. Пашицкий, В. И. Пентегов, *ЖЭТФ* **108**, 652 (1995).
4. А. А. Варламов, Д. В. Ливанов, *ЖЭТФ* **98**, 584 (1990).
5. J. L. Cohn, E. F. Skelton, S. A. Wolf, J. Z. Liu, and R. N. Shelton, *Phys. Rev.* **B45**, 13144 (1992).
6. В. В. Флорентьев, А. В. Инюшкин, А. Н. Талденков, И. К. Мельников, А. В. Быков, *СФХТ* **3**, 2302 (1990).
7. I. K. Kamilov, Sh. B. Abdulvagidov, G. M. Shakhshaev, Kh. K. Aliev, and A. B. Batdalov, *Int. J. Thermophysics* **16**, 821 (1995).
8. Ш. Б. Абдулвагидов, Г. М. Шахшаев, *СФХТ* **4**, 741 (1991).
9. И. К. Камилов, А. Б. Батдалов, М. С. Буттаев, Б. К. Чакальский, *СФХТ* **4**, 1899 (1991).

10. L. Tewordt and T. Woelkhausen, *Solid State Commun* **70**, 839 (1989).
11. D. T. Morelli, G. L. Doll, J. Heremans, M. S. Dresselhaus, A. Cassanho, D. R. Gable, and H. P. Jenssen, *Phys. Rev.* **B41**, 2520 (1990).

Peculiar behaviors of thermal conductivity, thermal diffusivity and specific heat of high-T_c superconductors near T_c

I. K. Kamilov, A. B. Batdalov, and Sh. B. Abdulvagidov

The thermal conductivity of $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ single crystals is measured for the first time both in the *ab* plane (κ_{ab}) and along the crystal axis *c* (κ_c) at temperatures between 4 and 300 K. The dependence $\kappa_c(T)$ exhibits no anomalies due to electron-phonon interaction which are typical of HTSC near T_c and below. The thermal conductivity of a silver-doped yttrium ceramics displays some anomalies near T_c which may be attributed to the effect of superconducting fluctuations.