Физика низких температур, 1996, т. 22, № 5, с. 551–555

Тонкая структура в электронной плотности состояний, парамагнитные примеси и аномальный изотопический эффект для T_c в системах LSCO:Fe

А. П. Жернов

Российский научный центр «Курчатовский институт», Россия, 123182, г. Москва, пл. И. В. Курчатова, 1

Рассматривается сверхпроводник с острым пиком в плотности электронных состояний и парамагнитными примесями. Анализируются значения критической температуры T_c и фактора изотопического сдвига в зависимости от положения уровня Ферми относительно центра пика и концентрации примесей. На основе развитой теории анализируются экспериментальные данные по изотопическому эффекту для T_c в системах LSCO:Fe.

Розглянуто надпровідник з гострим піком в густині електронних станів і парамагнітними домішками. Аналізуються значення критичної температури T_c и фактора ізотопічного зсуву в залежності від положення рівня Фермі відносно центра піка і концентрації домішок. На основі розвинутої теорії аналізуються експериментальні дані по ізотопічному ефекту для T_c в системах LSCO:Fe.

1. Введение

Недавно при изучении влияния кислородного изотопического замещения на температуру сверхпроводящего перехода T_c в системах LSCO было обнаружено, что парциальный фактор изотопического сдвига по кислороду α сильно зависит от концентрации y атомов Sr. При этом фактор σ изменяется приблизительно в 5–10 раз в концентрационном диапазоне $0{,}1 < y < 0{,}15$. При $y = 0{,}12$ величина α максимальна и составляет 0,8–1 [1–3]. Для обьяснения этих экспериментов предложено несколько моделей: во-первых, модель, основанная на концепции мягкой ангармонической моды [4,5]; во-вторых, модели с острым пиком в плотности электронных состояний [6]. Относительно других моделей см. обзоры [7,8].

В [3] изучался также изотопический эффект по кислороду в LSCO:M с оптимальным составом по Sr ($y \approx 0{,}15$) и с примесями M = Fe, Co, Ni и Zn, которые замещают атомы Cu. Концентрация примесей x не превышала нескольких процентов. Было обнаружено, что во всех случаях значения критической температуры T_c существенным образом падают, а соответствующие величины α растут при увеличении концентрации дефектов x. Эти экспериментальные данные для систем LSCO:M, а также аналогичные данные для систем YBCO:M [9] обьяснены в [10] как результат появления в обеих системах эффективных парамагнитных дефектов.

Для систем LSCO:M ($y = 0{,}15$) с разными примесями, наряду с общими чертами поведения T_c и α, характерны и специфические существенные отличия. А именно: в случае M = Zn, Ni поведение T_c и α в зависимости от концентрации x описывается, согласно теории Абрикосова—Горькова (см. например, [11]), в однопараметрическом приближении. Данные же в случае M = Fe, Co в простую схему не укладываются. Заметим, что при легировании Fe изменения α оказались очень выраженными: величина α изменяется от 0,1 до 1,3 при $x = 0{,}11$.

Причины, обусловливающие различия в поведении T_c и α систем LSCO с примесями Fe, Co и Ni, Zn, в литературе ранее не обсуждались. В данной работе предлагается модель, которая позволяет качественно обьяснить причину аномально большого изотопического эффекта для случая примесей Fe, Co и сравнительно слабого эффекта для случая примесей Zn, Ni. Мы основываемся на фононном механизме и идеях работ [6] и [10], а именно, предполагается существование острого пика в плотности электронных состояний. (Вопрос о роли сингулярностей Ван-Хова в двухмерных сверхпроводниках и связи их со свойствами купратных сверхпроводников подробно обсуждается в обзоре [12], см. также недавнюю работу [13].) Одновременно примеси в позициях меди и их ближайшее окружение рассматриваются как эффективные парамагнитные дефекты. (Мы основывались на результатах работ [14–16], в которых измерялась температурная зависимость восприимчивости.) При этом считается, что трехва-

© А. П. Жернов, 1996

лентная примесь Fe в отличие от двухвалентной примеси Zn изменяет число носителей и смещает положение уровня Ферми относительно центра пика (валентность Fe была определена в экспериментах по изомерному сдвигу в эффекте Мессбауэра [17]).

Обратим внимание еще на то, что в системах с тяжелыми фермионами реализуется ситуация, когда в некотором температурном интервале проявляются и антиферромагнитные, и сверхпроводящие свойства. Считается, что возникновение тяжелых фермионов может быть обусловлено антиферромагнитными спиновыми флуктуациями в ферми-жидкости [18,19]. Но в случае купратных сверхпроводников также одновременно сосуществуют антиферромагнетизм и сверхпроводимость. Поэтому можно предположить, что в LSCO особенность в плотности состояний носителей типа Ван-Хова усиливается за счет спиновых флуктуаций (см. дискуссию в [20–22]). В такой ситуации вуалирование тонкой структуры плотности состояний из-за примесей (обычно оно весьма существенно (см., например, [23])) может иметь второстепенное значение.

2. Общие соотношения

Рассмотрим уравнение БКШ относительно T_c:

$$1 = \frac{V_{\rm ph}}{2} \int\limits_{E_{F-\omega_D}}^{E_{F+\omega_D}} dz\, N(z) \frac{\mathrm{th}\,(z/2T_c)}{z} \,. \qquad (1)$$

Здесь $V_{\rm ph}$ — параметр притягательного межэлектронного взаимодействия; ω_D — дебаевская частота; $N(z)$ — плотность электронных состояний, обладающая тонкой структурой с энергетическим масштабом $\Gamma \le \omega_D$.

Для определенности будем предполагать, что существует острый пик в плотности состояний с центром в точке $E = E_F$. При этом

$$N(z) = \frac{N_0}{2}\,(1 + \tilde{n}_R(z, \delta)) \,, \qquad (2)$$

где $N_0/2$ — значение плотности вдали от центра пика (не зависящий от энергии «пьедестал»); $\delta = E_F - E_R$ — положение уровня Ферми относительно центра пика; $z = E - E_R$ — отсчитанная от уровня Ферми энергия; $\tilde{n}_R$ — параметр распределения плотности состояний.

Воспользуемся для гиперболического тангенса выражением в виде стандартной суммы и представим уравнение (1) в форме

$$1 = 2V_{\rm ph}\, T_c \int\limits_0^{\omega_D} dz\, [N(z+\delta) + N(z-\delta)] \sum_{k=1}^{\infty} \frac{1}{\omega_k^2 + z^2} \,, \qquad (3)$$

$$\omega_k = \pi T_c (2k - 1) \,.$$

Отметим, что подынтегральное выражение в (3) имеет мнимые полюса $\omega_k = \pm iz$. Качественно учтем влияние парамагнитных примесей. В первую очередь, наличие таких примесей с концентрацией c приводит к появлению у носителей конечного времени жизни при $E \approx E_F$. Возникающая перенормировка энергии носителей сводится к появлению мнимой добавки. При этом $\omega_k \to \omega_k + \tau_s^{-1}(\omega_k)$, где [12]

$$\tau_s^{-1} = c_s \frac{7\pi}{24} J^2 S(S+1) \,. \qquad (4)$$

Здесь S — эффективный классический спин примеси. Через J обозначен обменный интеграл, имеющий размерность энергии.

В соответствии со сказанным, при $c_s \ne 0$ с учетом (4) путем простых преобразований вместо уравнения (3) получаем

$$\ln \frac{T_c}{T_c^0} = \Psi\left(\frac{1}{2}\right) - \Psi\left(\frac{1+\rho}{2}\right) +$$

$$+ \int\limits_0^{\omega_D} dz\, n_R(z) \frac{\mathrm{th}\,(z/2T_c)}{z} + \int\limits_0^{\omega_D} dz\, n_R(z) \frac{\Phi(\rho, z/\pi T_c)}{z} \,, \qquad (5)$$

$$\rho = \tau_s^{-1}/(\pi T_c) \,.$$

Здесь через T_c^0 обозначена критическая температура при $c_s = 0$ и $\tilde{n}_R = 0$. Она определяется равенством

$$T_c^0 = 1{,}134\omega_D \exp\left(-\frac{1}{\lambda}\right) \,, \quad \lambda = \frac{N_0 V_{\rm ph}}{2} \,.$$

С целью сокращения записи положим

$$n_R(z) = \frac{1}{2}\left(\tilde{n}_R(\delta + z) + \tilde{n}_R(\delta - z)\right) \,,$$

$$\Phi\left(\rho, z/\pi T_c\right) =$$

$$= \frac{2}{\pi}\,\mathrm{Im}\left[\Psi\left(\frac{1+\rho+iz/\pi T_c}{2}\right) - \Psi\left(\frac{1+iz/\pi T_c}{2}\right)\right] \,,$$

где Ψ — дигамма-функция.

Отметим, что отдельные слагаемые в (5) описывают влияние на T_c парамагнитных примесей, острого пика, а также некоторое их совместное воздействие.

Фактор изотопического сдвига α определяется как

$$\alpha = -\frac{\partial \ln T_c}{\partial \ln M} = -\frac{M}{T_c}\frac{\partial \omega_D}{\partial M}\frac{\partial T_c}{\partial \omega_D}.$$

В рассматриваемой ситуации

$$\alpha = \alpha_0 \frac{1 + \text{th}\,(\omega_D/2T_c) n_R(\omega_D) + \Phi(\rho, (\omega_D/\pi T_c)) n_R(\omega_D)}{1 + \int\limits_0^{\omega_D} \frac{dz}{2T_c}\frac{n_R(z)}{\text{ch}^2(z/2T_c)} - \rho\Psi'_\rho\left(\frac{1+\rho}{2}\right) - \int\limits_0^{\omega_D}\frac{dz}{z} T_c \frac{\partial}{\partial T_c}\Phi(\rho, z/\pi T_c)}, \tag{6}$$

где $\alpha = -\dfrac{\partial \ln T_c}{\partial \ln M}$.

Используя (5), получаем еще уравнение для экстремальных значений T_c относительно δ при произвольных величинах c:

$$\frac{\partial T_c(\rho, \delta)}{\partial \delta} = T_c \frac{F_1(\rho, \delta)}{F_2(\rho, \delta)},$$

где

$$F_1(\rho, \delta) = \int\limits_0^{\omega_D} \frac{dz}{z}\frac{\partial n_R(z)}{\partial \delta}\,\text{th}\,\frac{z}{2T_c} - \rho\Psi'_\rho\left(\frac{1+\rho}{2}\right)\frac{\partial \tilde{n}_R(0)}{\partial \delta}\frac{1}{1+\tilde{n}_R(0)} + \int\limits_0^{\omega_D}\frac{dz}{z}\frac{\partial}{\partial \delta}\left(\Phi\left(\rho, \frac{z}{\pi T_c}\right) n_R(z)\right),$$

$$F_2(\rho, \delta) = 1 - \rho\Psi'_\rho\left(\frac{1+\rho}{2}\right) + \int\limits_0^{\omega_D}\frac{dz}{2T_c}\frac{n_R(z)}{\text{ch}^2(z/2T_c)} + \int\limits_0^{\omega_D}\frac{dz}{z} n_R(z) T_c \frac{\partial}{\partial T_c}\Phi\left(\rho, \frac{z}{\pi T_c}\right).$$

Обратим внимание на то, что при $\rho \to 0$ выражения для T_c (5) и α (6) фактически совпадают с ранее полученными в [6]. В случае $n_R \to 0$ они совпадают с результатами работы [10].

3. Модель. Обсуждение результатов

Как отмечалось, в настоящей работе принимается, что плотность состояний $N(z)$ имеет тонкую структуру в форме симметричного пика (2). Соответствующий параметр $\tilde{n}_R(z)$ выбрали в виде

$$\tilde{n}_R(z) = f \exp\left(-\eta\frac{|z-\delta|}{\omega_D}\right), \tag{7}$$

где $f \approx 1$ и характеризует интенсивность пика.

Предполагаем, что форма пика (7) не изменяется при варьировании атомного состава (по стронцию) и при добавлении примесей. В то же время считается, что при допировании гетеровалентными примесями изменяется число носителей и уровень Ферми сдвигается относительно центра пика E_F.

Использовав соотношения (5), (6), мы определили зависимости T_c и α от положения уровня Ферми относительно острого пика в плотности состояний при различных концентрациях парамагнитных примесей. В расчетах предполагалось, что, во-первых, $\eta = 4$ и $f = 1$ и, во-вторых, $\lambda = 0{,}4$ и $\omega_D = 240$ K. Основные результаты представлены на рис. 1.

Рассмотрим сначала случай $c_s = 0$, которому соответствуют кривые *1* на рис. 1. Как видно, значения T_c максимальны при $E_F = E_R$. При этом величина T_c зависит от $N(E_F)$, но целиком ею не определяется. Важнее оказывается близость уровня E_F к E_R в интегральном смысле. Фактор α при $E_R = E_F$ имеет минимум. Величина α достигает максимума при $|E_F - E_R|/\omega_D \approx 1$. Зависимость α от δ приближенно описывается формулой

$$\alpha(\delta) = \alpha_0 \frac{1 + \pi/2\, n_R(\delta, \omega_D)}{1 + n_R(\delta, 0)}.$$

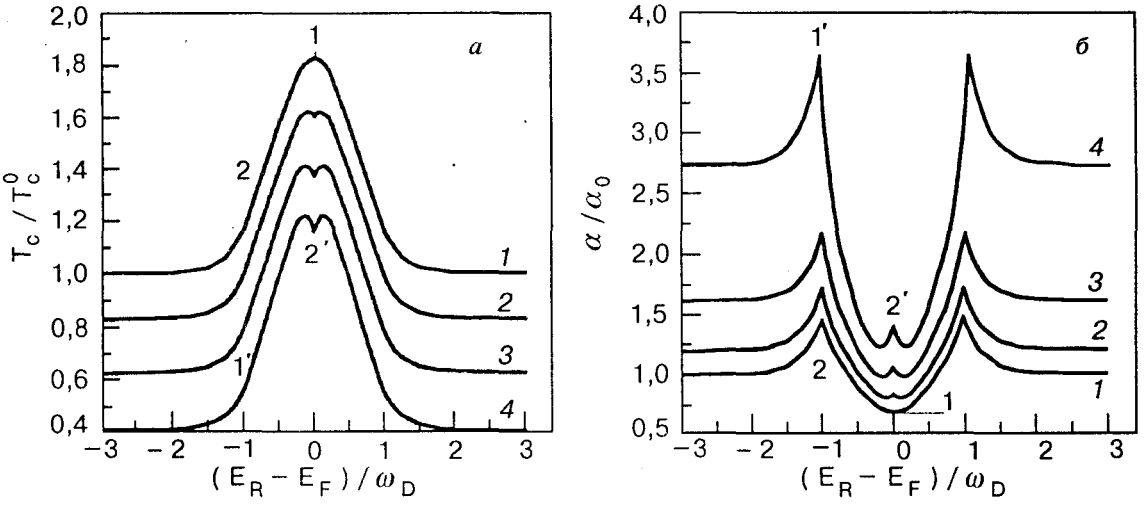

Рис. 1. Поведение T_c/T_c^0 (*а*) и α/α_0 (*б*) в зависимости от значений δ и c_s/c_s^* = 0 (*1*); 0,245 (*2*); 0,490 (*3*); 0,735 (*4*), c_s^* — критическая концентрация, при которой T_c обращается в нуль. Случай $f = 1$, $\eta = 4$.

Таким образом, фактор изотопического сдвига чувствителен к тонкой структуре электронного спектра, т. е. к производной $\partial N/\partial E$.

Обсудим общий случай, когда $c_s \neq 0$ и $n_R \neq 0$. Фигурирующие на рис. 1 кривые позволяют понять основные черты поведения T_c и α. Непосредственно видно, что при $|\delta| \leq \omega_D$ ситуация не описывается в однопараметрическом приближении. В первую очередь обратим внимание на резкую асимметрию значений T_c и α в случаях, когда сверхпроводник допируется примесями, которые могут смещать положение уровня Ферми (в принятой модели эти примеси одновременно «работают» и в качестве парамагнитных дефектов). При этом если в результате допирования уровень Ферми движется по энергетической шкале от центра пика к его краям, то величина T_c резко уменьшается, а величина α столь же резко возрастает. Наоборот, когда $\delta \to 0$, изменения T_c и α сравнительно меньше (сравните T_c и α на рис. 1 в точках 1, 2 и 1′, 2′). Отметим, что при $|\delta| \geq \omega_D/2$ роль последнего слагаемого в выражении для T_c (5) второстепенна. Соответствующее значение изотопического сдвига α приближенно задается формулой

$$\alpha(\rho, \delta) \approx \alpha_0 \frac{1 + \pi/2\, n_R(\delta, \omega_D)}{1 + n_R(\delta, 0) - \rho\Psi'((1+\rho)/2)} .$$

Отсюда также следует, что наличие острого пика в $N(E)$ может привести к существенному усилению эффекта парамагнитных примесей.

Используя полученные результаты, можно качественно объяснить экспериментальные данные в [3]. Напомним, что в системе LSCO с оптимальным составом по стронцию уровень Ферми лежит вблизи центра пика в плотности состояний. При замещении части атомов меди на изовалентные примесные атомы цинка положение этого уровня не должно изменяться. В такой ситуации эксперимент по T_c и α должен приближенно описываться в рамках однопараметрического варианта теории, когда варьируется только концентрация парамагнитных дефектов. Вместо с тем, если атомы меди замещаются трехвалентными примесями железа, уровень Ферми смещается влево по энергетической шкале. При этом электронная плотность системы близка к плотности недодопированного соединения LSCO ($y = 0{,}12$). Как следует из наших результатов, в этом случае эксперимент не описывается в рамках однопараметрической модели. За счет тонкой структуры плотности состояний эффект парамагнитных примесей существенно усиливается. Указанные отличия в поведении T_c и α для систем LSCO:Zn и LSCO:Fe проиллюстрированы на рис. 1. При этом в случае Zn при возрастании концентрации парамагнитных дефектов изменение названных параметров происходит вдоль направления $1 \to 2'$, в то время как для примеси железа с увеличением c изменения T_c и α происходят вдоль линии, соединяющей точки 1 и 1′.

Отметим, что для систем LSCO:M приведенные на рисунках кривые в действительности не симметричны относительно точки $E_R = E_F$. Дело в том, что в соединениях, передопированных Sr, существенным образом изменяются магнитные свойства и в значительной степени подавляются спиновые корреляции (см., например, [15,16]). В такой ситуации, согласно сказанному выше, в системах LSCO:M с $y > 0{,}15$ особенности проявления в T_c и α тонкой структуры плотности состояний и одно-

временно эффекта парамагнитных примесей должны быть сильно ослаблены. Это утверждение недавно подкреплено экспериментальными данными [24].

Заключение

В данной работе предложена модель для объяснения аномального изотопического эффекта для T_c в соединении LSCO:Fe [3]. Модель основана на фононном механизме сверхпроводимости и представлении о существовании тонкой структуры в плотности состояний носителей. Наличие тонкой структуры связывалось со специфическим свойством ферми-жидкости — квазидвухмерным характером спектра носителей. Считалось, что особенности в плотности состояний носителей типа Ван-Хова усиливаются за счет спиновых флуктуаций. Далее предполагалось, что появление примесей Fe и Zn в подрешетке меди ведет к локальной раскомпенсации пространственно скомпенсированного магнитного момента матрицы и к возникновению эффективных парамагнитных точечных дефектов. Наконец, считалось, что трехвалентная примесь Fe изменяет число носителей и смещает уровень Ферми, причем реализуется ситуация, характерная для недодопированного соединения LSCO. Примеси Zn ведут себя как изоэлектронные дефекты. Показано, что в рамках такой модели из-за тонкой структуры спектра носителей влияние парамагнитных примесей на изотопический сдвиг T_c существенным образом усиливается.

Выражаю признательность В. И. Ожогину за интерес к работе.

Работа выполнена при финансировании по гранту МНФ (N93000) и гранту МНФ и Российского правительства (N93300).

1. M. K. Crawford, W. E. Farneth, E. M. McCarron III, R. L. Harlow and A. H. Moudden, *Science* **250** 1390 (1990); M. K. Crawford, M. N. Kunchur, W. E. Farneth, E. M. Mc Carron III and S. J. Poon, *Phys. Rev.* **B41**, 282 (1990).
2. J. P. Frank, S. Harker, and J. N. Brewer, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 203 (1993).
3. V. Ozhogin, N. Babushkina, A. Inyushkin, A. Taldenkov, and L. Molchanova, *Appl. Supercon.* **165**, 359 (1993).
4. Н. М. Плакида, С. Черный, *СФХТ* **4**, 1281 (1991).
5. A. P. Zhernov and T. A. Mamedov, in: *VI Int. Symp. «High-Purity Materials in Science and Technology»* (Dresden, May, 1990), Dresden (1990); А. П. Жернов, Т. А. Мамедов, *СФХТ* **4**, 1046 (1991).
6. C. C. Tsui, D. M. Newns, C. C. Chi, and P. C. Pattnaik, *Phys. Rev. Lett.* **65**, 2724 (1990).
7. K. A. Mueller, *Z. Phys.* **B80**, 193 (1990); Idem, *Phase Transitions* **22**, 3 (1990).
8. R. B. Schwarz, Pascal J. Ivon, and D. Coffey, *Studies of High Temperature Superconductors* 8, Anant Narlikar (ed.), Nova Science Publishers, New York (1991).
9. H. J. Bornemann, D. E. Morris, H. B. Liu, A. P. B. Sinha, P. Nazwankar, and M. Chandrachood, *MS-HTSC III: Third Int. Conf. on Materials and Mechanisms of Superconductivity*, Kanazawa, Japan, (1991).
10. J. P. Carbotte, M Greeson, and A. Perez-Gonzales, *Phys. Rev. Lett.* **66**, 1789 (1991).
11. А. А. Абрикосов, *Основы теории металлов*, Москва, Наука (1987).
12. J. Friedel, *J. Physica* **48**, 3304 (1987).
13. K. Gofron, J. C. Campuzano, A. A. Abrikosov, M. Lindros, A. Bansil, H. Dind, D. Koeling, and B. Dubrovski, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 3304 (1994).
14. Xiao Gang, M. Z. Cieplak, J. Q. Xiao, and C. L. Chien, *Phys. Rev.* **B42**, 8752 (1990).
15. N. Ishikawa, N. Kuroda, H. Ikeda, and R. Yoshixaki, *Phys.* **C203**, 284 (1992).
16. J. Arai, S. Ogawa, and K. Umezawa, *Phys.* **C206**, 257 (1993).
17. J. M. Matukievicz, C. W. Kimball, J. Giapintzakis, A. E. Dwight, M. B. Brodsky, B. D. Dulap, M. Sladki, and F. Fradin, *Phys. Lett.* **A124**, 453 (1987).
18. N. Grewe and F. Steglich, *Handbook of the Physics and Chemistry 14*, Gschneiher, Jr. and L. Eyong (eds.), Elsevier Science Publishers, B. V. (1991).
19. A. N. Kleiman, D. J. Bishop, H. R. Ott, Z. Fisk, and J. L. Smith, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 1975 (1990).
20. T. Moriya, Y. Takahashi, and K. Veda, *J. Phys. Soc. Jpn.* **59**, 2905 (1990).
21. H. Monien, D. Pines, and C. P. Slichter, *Phys. Rev.* **B41**, 11120 (1990).
22. N. M. Plakida, *Appl. Supercond.* **1**, 231 (1993).
23. А. С. Александров, В. Е. Архипов, Б. Н. Гощицкий, В. Ф. Елесин, *Влияние облучения на физические свойства перспективных упорядоченных сверхпроводников*, Москва, Энергоатомиздат (1989).
24. Н. А. Бабушкина, А. П. Жернов, В. И. Ожогин, А. В. Инюшкин, А. Н. Талденков, *Тез. докл. XXX Совещ. по физике низких температур*, Дубна (1994), часть 1, с. 21.

Fine structure of density of electronic states, paramagnetic impurities and anomalous isotopic effect for T_c in LSCO:Fe

A. P. Zhernov

A superconductor with a sharp peak in the density of electron states and with paramagnetic impurities is considered. Critical temperature T_c values and the isotopic shift factor α are analyzed as a function of the Fermi-level position relative to the peak center and of the impurity concentration. Experimental results for isotopic factor α in LSCO:Fe system are analyzed.