ФИЗИКА ТВЕРДОГО ТЕЛА

УДК 537.312.8+543.253

К ТЕОРИИ ИЗОТОПИЧЕСКОГО ЭФФЕКТА В ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНЫХ СВЕРХПРОВОДЯЩИХ СОЕДИНЕНИЯХ

А. В. Ведяев, А. М. Савченко, М. А. Савченко, А. В. Стефанович

(*кафедра магнетизма*)

Рассматривается изотопический эффект в ВТСП-системах. В случае сильного спин-фононного взаимодействия рассчитанный индекс изотопического эффекта существенно ниже классического индекса в низкотемпературных сверхпроводниках. Для расчета индекса изотоп-эффекта в ВТСП-системах, таких как $La_{2-x}Sr_xCuO_4$, $YBa_2Cu_3O_{7-y}$, определена зависимость обратной обменной корреляционной длины от массы иона. Такая зависимость может быть получена в пределе максимального усиления эффективного электрон-фононного взаимодействия спиновыми флуктуациями обменной природы. Проведено сравнение теории с экспериментом.

Многочисленные исследования (см. библиографию в работе [1]) изотопического эффекта в ВТСП — высокотемпературных сверхпроводниках — показывают, что он сильно отличается от подобного эффекта в классических НТСП — низкотемпературных сверхпроводниках (металлы, системы А-15 и т.п.). Экспериментальные исследования [2–8] также подтверждают, что индекс изотоп-эффекта в НТСП-системах стабильно выше, чем в ВТСП-системах. (Исключение, пожалуй, составляет относительно низкотемпературная система ($T_c = 30$K) — $Ba_{1-x}K_xBiO_3$, а также системы типа $Nd_{2-x}Ce_xCuO_4$ ($T_c = 20$K), где индекс изотоп-эффекта (по кислороду) оказывается порядка 0,4, т.е. близким к индексу изотоп-эффекта в НТСП-системах $\alpha \cong 0,5$.) Однако до сих пор не существовало последовательного подхода, позволяющего объяснить это необычное поведение ВТСП-систем. По мере увеличения температуры T_c перехода в сверхпроводящее состояние индекс изотопического эффекта по кислороду при замене атома ^{16}O на более тяжелый изотоп ^{18}O начинает сильно уменьшаться и для классической ВТСП-системы $YBa_2Cu_3O_{7-y}$ составляет 0,1. На основе строгой теории высокотемпературной сверхпроводимости [1] этот факт объяснить довольно несложно.

Дело в том, что в соответствии с данной теорией основную роль в повышении критической температуры в ВТСП играет эффект обменного усиления эффективного электрон-фононного взаимодействия спиновыми флуктуациями обменной природы. Поскольку усиление возникает благодаря резонансному взаимодействию продольных фононов с продольными спиновыми флуктуациями, то чем выше параметр спин-фононной связи $\tilde{\zeta}_0$ [1], который является функцией обратной обменной корреляционной длины k_c ($k_c = 2\pi/r_c$, где r_c — обменный радиус корреляции), тем больше коэффициент усиления эффективного электрон-фонноного взаимодействия k_y и тем выше T_c. Необходимо также подчеркнуть связь обратной обменной корреляционной длины k_c с массой иона приведенной кристаллографической элементарной ячейки. Действительно, $k_c = 2\pi/r_c$, где r_c — обменный радиус корреляции, определяемый по формуле

$$r_c = \left(\frac{\displaystyle\int d\mathbf{x}\, x^2 J(\mathbf{x})}{\displaystyle\int dx\, J(x)} \right)^{1/2}. \qquad (1)$$

Потенциал обменного взаимодействия между спинами носителей электрического тока в системе можно взять в виде $J(\mathbf{x}) = A\,(r/a)\,\mathrm{e}^{-r/a}$, где a — постоянная решетки (в ВТСП-системах это подрешетка Cu–O), поскольку именно она определяет как сверхпроводящие, так и магнитные свойства системы [1]. Вычисления по формуле (1) приводят к результату: $r_c = 2\sqrt{5}a$. Поскольку параметр a зависит от массы вводимого в решетку изотопа M (в данном случае это изотоп ^{18}O), то и k_c должно зависеть от M, что и будет рассмотрено в данной работе.

Кроме того, поскольку с увеличением $\tilde{\zeta}_0$ роль спиновых флуктуаций в притяжении электронов, образующих синглетные пары, возрастает [1], то очевидно, что критическая температура ВТСП в пределе достаточно высокой спин-фононной связи $z_0 = \tilde{\zeta}_0/\sqrt{1+\tilde{\zeta}_0} \to 1$ должна определяться не фононной частотой $<\omega_D>$, а частотой спиновых флуктуаций $<\omega_s>$, которая, на первый взгляд, не должна зависеть от массы иона приведенной кристаллографической элементарной ячейки. Отсюда и следует слабая зависимость критической температуры T_c от массы при замене ^{16}O на ^{18}O.

Однако на самом деле все гораздо сложнее. Все дело в том, что, как уже было показано, при изотопическом замещении атомов кислорода ^{16}O на ^{18}O изменяется обратная обменная корреляционная длина k_c. Поэтому об изменении индекса изотоп-эффекта при увеличении эффективного параметра спин-фононного взаимодействия можно судить только в случае, если известна зависимость $k_c(M)$.

Попробуем определить эту зависимость. Для этого рассмотрим логарифм отношения критических температур при изменении массы иона приведенной кристаллографической элементарной ячейки. Соответствующие выражения для критических температур, которые должны стоять под логарифмом, могут быть определены на основе выражения, впервые полученного в работе [9], в которой учитывалось не только обычное электрон-фононное взаимодействие в рамках модели Фрелиха, но также и резонансное взаимодействие продольных фононов с высокочастотными спиновыми флуктуациями, а также спин-фонон-электронное взаимодействие, обусловленное дополнительной экранировкой кулоновского отталкивания электронов продольными фононами, резонансно взаимодействующими со спиновыми флуктуациями. Отношение критических температур мы возьмем в пределе достаточно высокой спин-фононной связи [9], т. е. в случае, когда обычным параметром электрон-фононного взаимодействия можно пренебречь по сравнению с параметрами электрон-спин-фононного взаимодействия (реально обычный параметр электрон-фононного взаимодействия не превышает $0,4 \div 0,6$ [1]). Итак, логарифм отношения T_c/T_{c0} будет иметь следующий вид:

$$\ln\frac{T_c}{T_{c0}} = \ln\frac{<\omega_D>\sqrt{1+\tilde{\zeta}_j^2}}{<\omega_D>_0\sqrt{1+\tilde{\zeta}_{i0}^2}}\times$$
$$\times\exp\left\{-\frac{1}{<\lambda^{\text{eff}}_{e-s-ph}>-\tilde{\mu}^*}+\frac{1}{<\lambda^{\text{eff}}_{e-s-ph0}>-\tilde{\mu}_0^*}\right\}, \tag{2}$$

где

$$<\lambda^{\text{eff}}_{e-s-ph}(q)>_{\rho(q)} = \nu(\varepsilon_F)\frac{4}{9}\frac{P_F^2}{m_e}\tilde{\zeta}_{ie}^2\tilde{\zeta}_i^2, \tag{3}$$

$\nu(\varepsilon_F)$ — плотность состояний на «поверхности Ферми», p_F — импульс Ферми [1]. Индексом «0» обозначены параметры, соответствующие изотопу ^{16}O, параметры без такого индекса — ^{18}O. Параметры спин-фононной $\tilde{\zeta}_i$ и спин-электронной $\tilde{\zeta}_{ie}$ связи можно оценить по формулам (см. также работу [10])

$$\tilde{\zeta}_i = \frac{h}{e}\frac{Z}{r_i}\sqrt{\frac{r_c}{SM_i}}, \tag{4}$$

$$\tilde{\zeta}_{ie} = \frac{h}{e}\frac{1}{r_k}\sqrt{\frac{r_c}{Sm_e}}, \tag{5}$$

где Z — среднее число электронов на атом; M_i, m_e — ионная (приведенная) и электронная массы (ионная масса берется для соответствующего изотопа атома кислорода); r_i — средний ионный радиус ковалентно связанной пары Cu–O. Он вычисляется по таблице радиусов ионов, приведенной в монографии [1], и оказывается порядка 10^{-8} см. Кулоновский корреляционный радиус вычисляется по формуле, аналогичной формуле (1), с учетом того, что в нее входит экспоненциально спадающий, экранированный кулоновский потенциал, радиус экранирования в котором составляет порядка $(n_e)^{-3}$, где n_e — средняя плотность носителей электрического тока в ВТСП-системах: $n_e \cong 10^{22}$ см$^{-3}$.

Таким образом, кулоновский корреляционный радиус оказывается порядка 10^{-7} см. В выражение (2) также входят перенормированные частоты продольных фононов, резонансно взаимодействующих с продольными спиновыми флуктуациями: $<\omega_D>\sqrt{1+\tilde{\zeta}_i^2}$ и $<\omega_D>_0\sqrt{1+\tilde{\zeta}_0^2}$. В выражении (3) $\tilde{\mu}^*$, $\tilde{\mu}_0^*$ — перенормированные потенциалы кулоновского отталкивания электронов в паре, аналогичные потенциалу, впервые полученному в работах Н. Н. Боголюбова [11]:

$$\tilde{\mu}^* = \frac{\mu_0}{1+\mu_0\ln\dfrac{\varepsilon_F}{<\omega_D>\sqrt{1+\tilde{\zeta}_i^2}}}, \tag{6}$$

$\mu_0 \approx \varepsilon_F$.

Разлагая теперь в ряд по $\Delta M/M$ функции $<\omega_D>\sqrt{1+\tilde{\zeta}_i^2}$, $\tilde{\zeta}_i$, $\tilde{\zeta}_{ie}$, $\tilde{\mu}^*$, получим для логарифма отношения T_c/T_{c0} следующее уравнение:

$$\ln\frac{T_c}{T_{c0}} = \left[-\alpha(1+z_0^2)+z_0^2\frac{d\ln k_c}{d\ln M}\right]\frac{\Delta M}{M}+$$
$$+\frac{<\lambda^{\text{eff}/}_{e-s-ph0}>2}{<\lambda^{\text{eff}}_{e-s-ph0}>-\tilde{\mu}_o^*}\left(-\alpha+2\frac{d\ln k_c}{d\ln M}\right)\frac{\Delta M}{M}. \tag{7}$$

Здесь $\alpha = 0,5$. В этом уравнении стоит величина $d\ln k_c/d\ln M$, найдя которую мы можем определить зависимость $k_c(M)$.

Предположим, что спин-фононная связь неограниченно возрастает, т. е. $z_c \to 1$, $<\lambda^{\text{eff}}_{e-s-ph0}> \to \infty$. Тогда индекс изотопического эффекта должен стремиться к нулю, так как теперь притяжение электронов полностью определяется продольной спиновой модой. Тогда получаем уравнение

$$-\alpha(3+z_c^2)+(z_c^2+4)\frac{d\ln k_c}{d\ln M} = -\beta. \tag{8}$$

Полагая в уравнении (8) $z_c = 1$ и $-\beta = 0$, получим следующее уравнение, определяющее величину $d\ln k_c/d\ln M$:

$$-4\alpha+5\frac{d\ln k_c}{d\ln M} = 0. \tag{9}$$

Решая уравнение (9) и принимая во внимание, что $\alpha = 0,5$, получаем следующее решение для k_c:

$$k_c = A_0k_{c0}\left(\frac{M}{M_0}\right)^{2/5}. \tag{10}$$

Теперь попробуем оценить величину индекса изотопического эффекта в случае уменьшения параметра спин-фононного взаимодействия z_c. Пусть $z_c \ll 1$. Однако это не означает, что величина $\tilde{\zeta}_{il}\tilde{\zeta}_{i0}$ оказывается при этом малой. Так как масса атома кислорода в 10^4 раз больше массы электрона, то даже в случае $\tilde{\zeta}_{0i} \cong 0,1$ будет $\tilde{\zeta}_{ie} = \sqrt{M_i/m_e}\tilde{\zeta}_{0i} = 10$, т.е. величина $2<\lambda^{\mathrm{eff}'}_{e-s-ph0}>/<\lambda^{\mathrm{eff}}_{e-s-ph0}> - \tilde{\mu}^*_0 = 2A$ все равно оказывается порядка 10. Тогда уравнение для индекса изотопического эффекта перепишется в виде

$$-\alpha\left(A\tilde{\zeta}_0^2 + 1 + \tilde{\zeta}_0^2\right) + \left(\tilde{\zeta}_0^2 + 2A\tilde{\zeta}_0^2\right)\frac{d\ln k_e}{d\ln M} = -\beta. \tag{11}$$

Поскольку $\zeta_0 \ll 1$, а $A\tilde{\zeta}_0^2 \cong 1$, то, принимая во внимание, что $d\ln k_c/d\ln M = 2/5$, мы получаем оценку $\beta \cong 0,2$. Случай достаточно слабой спин-фононной связи соответствует системе $\mathrm{La}_{2-x}\mathrm{Sr}_x\mathrm{CuO}_4$ (см. также [12, 13]). Увеличение параметра спин-фононной связи приводит к уменьшению индекса изотопического эффекта с увеличением T_c, что и наблюдается экспериментально. Так, индекс изотопического эффекта в системе $\mathrm{YBa_2Cu_3O}_{7-y}$ оказывается около 0,1, что легко можно получить из формулы (11) при увеличении $\tilde{\zeta}_0^2$. Однако, на наш взгляд, более ценную информацию содержит формула (10). Увеличение массы иона приводит к увеличению обратной обменной корреляционной длины, т.е. увеличение массы иона при замещении элементов, образующих ковалентные связи в ВТСП-системах, не приводит к резкому уменьшению температуры сверхпроводящего перехода T_c. Следовательно, наши возможности синтеза новых ВТСП-систем с целью повысить критическую температуру T_c оказываются шире с точки зрения использования тяжелых элементов. Не случайно в висмутовых системах [1] мы не наблюдаем снижения T_c, несмотря на значительную массу висмута, а наоборот, T_c в этих системах оказывается даже выше, чем в системах $\mathrm{YBa_2Cu_3O}_{7-y}$.

Таким образом, использование более легких элементов при синтезе новых ВТСП — не единственная возможность повысить T_c. Главное — обеспечить минимально возможную обменную корреляционную длину, а с этой целью можно также и использовать тяжелые элементы, при условии, конечно, что у них достаточно малый ионный радиус и что они способны образовывать в синтезируемых соединениях ковалентные связи.

Литература

1. *Ильичев В.И., Савченко М.А., Стефанович А.В.* Высокотемпературная сверхпроводимость керамических систем. М., 1992.
2. *Franck J.P., Jung J., Mohamed A.K.* // Phys. Rev. 1991. **B44**. P. 5318.
3. *Zhao G., Ager J.W. III, Morris D.E.* // Phys. Rev. 1996. **B54**. P. 14982.
4. *Franck J.P., Gygax S., Jung J.* // Proc. Workshop on Electronic Struct. and Mechanisms for High T_c' Supercond. Miami, January 1991. N.Y.; L., 1991.
5. *Franck J.P., Hartin A., Yu M.K.* // Proc. Workshop on Lattice Effects in High T_c Supercond (Santa Fe, January 1992). Singapore, 1992.
6. *Bornemann H.J., Morris D.E.* // Phys. Rev. 1991. **B44**. P. 5322.
7. *Bornemann H.J., Morris D.E., Liu H.B.* // Physica C. 1991. **182**. P. 132.
8. *Nickel J.H., Morris D.E., Ager J.W.* // Phys. Rev. Lett. 1993. **70**. P. 81.
9. *Савченко М.А., Стефанович А.В.* // ДАН. 1993. **328**, № 3. С. 348.
10. *Ведяев А.В., Савченко А.М., Стефанович А.В., Николаев М.Ю.* // Вестн. Моск. ун-та. Физ. Астрон. 1996. № 4. С. 69 (Moscow University Phys. Bull. 1996. No. 4. P. 57).
11. *Боголюбов Н.Н., Толмачев В.В., Ширков Д.В.* Новый метод в теории сверхпроводимости. М., 1958.
12. *Battlogg B., Kourouklis G., Weber W.* et al. // Phys. Rev. Lett. 1987. **59**. P. 912.
13. *Faltens A., Ham W.K., Keller S.W.* // Phys. Rev. Lett. 1987. **59**. P. 915.

Поступила в редакцию
03.07.97