

- [2] Кнопфель Г. Сверхсильные импульсные магнитные поля. М.: Мир, 1972. 391 с.
- [3] Warich L.P. - Zeitschr. für Angew. Phys., 1964, v. 17, N 5, s. 348-350.
- [4] Мик Дж., Крэгс Дж. Электрический пробой в газах. Пер. с англ. под ред. В.С. Комелькова. М.: ИЛ, 1960, с. 472-485.
- [5] Андреев С.И., Орлов В.И. - ЖТФ, 1964, т. 35, в. 8, с. 1411-1418.
- [6] Гитерман В.Л., Зенков Д.И., Павловский А.И., Петров Н.Н., Смирнов Е.Н., Спицов Г.М. - ЖТФ, 1982, т. 52, в. 10, с. 1983-1986.
- [7] Бойко Б.Б., Сойка А.К., Качан А.И. Авт. свид. № 1250057 (СССР), 1986.
- [8] Сойка А.К., Валявко В.В. - ЖПС, 1977, т. 27, в. 1, с. 177-181.

Институт физики твердого тела  
и полупроводников  
АН БССР, Минск

Поступило в Редакцию  
22 сентября 1987 г.  
В окончательной редакции  
22 декабря 1987 г.

Письма в ЖТФ, том 14, вып. 13

12 июля 1988 г.

ПАРАМАГНИТНЫЙ РЕЗОНАНС  
В ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНЫХ СВЕРХПРОВОДНИКАХ  
(ОБЛАСТЬ МАЛЫХ МАГНИТНЫХ ПОЛЕЙ)

Ю.И. Веснин, В.Е. Истомин,  
Э.Г. Косцов

Ранее было установлено, что в оксидных сверхпроводниках  $Y\text{-Ba-Cu-O}$ ,  $Eu\text{-Ba-Cu-O}$  при температуре  $T = 77\text{-}93$  К в области малых магнитных полей наблюдается линия парамагнитного поглощения, имеющая характерную для свободных носителей заряда дайсоновскую форму, интенсивность которой при изменениях  $T$  коррелирует с поведением сопротивления образца [1].

Подобная линия поглощения описана и в ряде других работ [2-4], но ее появление связывается либо с джозефсоновскими переходами, либо с проявлением паразелектрического резонанса.

Целью настоящей работы является исследование основных закономерностей, характерных для указанной части спектра парамагнитного резонанса.

Объектом исследования служила керамика  $YBa_2Cu_3O_y$  с температурой перехода в сверхпроводящее состояние  $T_c = 93\text{-}94$  К и протяженностью области перехода  $\Delta T_c \approx 2\text{-}4$  К, полученная по методу [5]. Изменение спектра ЭПР производилось с помощью радио-

спектрометра с частотой клистрона  $\omega = 9.3 \cdot 10^9$  Гц и частотой модуляции  $9.75 \cdot 10^5$  Гц.

Рис. 1. описывает зависимость ЭПР-сигнала  $dP/dH$  от величины магнитного поля  $H$ . Кривая на рис. 1 хорошо воспроизводима, но для получения высокой высокопроизводимости необходимо учитывать гистерезисный характер изменения  $dP/dH$  при вариациях  $H$  и предысторию воздействия на образец магнитного поля, т.е. учитывать направление обхода петли гистерезиса.

Особенности формирования гистерезиса отражает рис. 2, на котором показана динамика изменения формы кривой  $dP/dH$  при последовательном увеличении амплитуды  $H$  и последующем ее уменьшении. Как видно, при снижении  $H$  невоспроизводимое поведение величины  $dP/dH$  начинается со значений  $H$ , близких к  $H_a$ , которое как известно, составляет в указанных образцах  $\sim 2-3 \cdot 10^{-2} T_1$  [6].

Анализ формы кривой на рис. 1 показывает, что она соответствует типичной зависимости  $dP/dH$  от  $H$ , характерной для металлов. Из этого рисунка видно, что отношение амплитуд  $dP/dH$  разных знаков заведомо больше, чем 2.7, т.е. выполняется условие, свидетельствующее об определяющей роли в явлении резонанса не неподвижных парамагнитных центров, а свободных носителей заряда [7] при выполнении соотношения  $T_D/T_P \rightarrow 0$  ( $T_D$  - время прохождения носителем заряда расстояния, равного толщине скин-слоя - время диффузии магнитного диполя из скин-слоя;  $T_P$  -

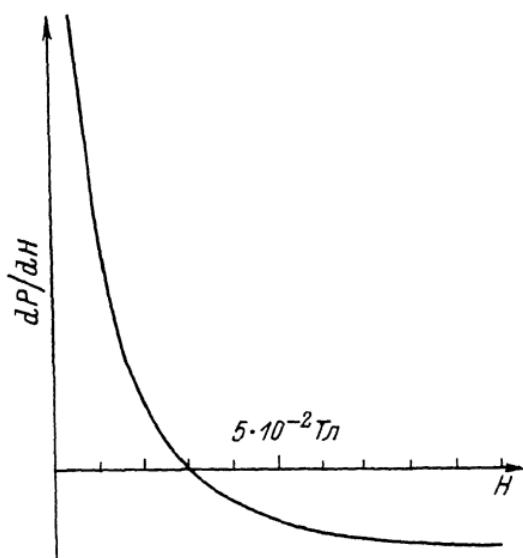


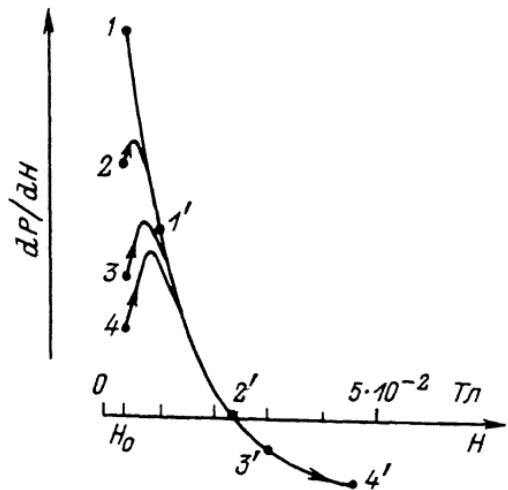
Рис. 1. Типичное изменение сигнала парамагнитного поглощения с увеличением амплитуды магнитного поля  $H$ .

время релаксации, определяющее скорость отвода энергии от возбужденной парамагнитной частицы по одному из каналов релаксации).

Анализ формы линии поглощения (рис. 1) дает возможность оценить также время  $T_P$ , оно  $\lesssim 3-5 \cdot 10^{-11}$  с. Столь короткое время релаксации не соответствует при

самых благоприятных оценках условиям наблюдения парамагнитного резонанса при определяющей роли спин-решеточной релаксации. Представляется также сомнительным, чтобы эта релаксация осуществлялась за столь короткое время - обычно в металлах оно составляет  $10^{-7}-10^{-9}$  с [7]. Остается открытый вопрос и о механизме передачи решетке энергии излучения, поглощаемой "сверх-

Рис. 2. Гистерезис кривых  $dP/dH(H)$ . Воздействие поля на образец осуществлялось в следующей последовательности: 1 - 1', 2 - 2', 3 - 3', 4 - 4'; переход образца из положения 2, 3, 4 в состояние 1 производился поворотом образца в поле  $H_0$  на  $180^\circ$ , либо его нагревом до 100 К с последующим охлаждением.



проводящими" носителями заряда, т.к. последние, как известно, слабо взаимодействуют с колебаниями решетки.

Поэтому мы высказываем предположение, что релаксация осуществляется за счет спин-спиновых взаимодействий между двумя электронными подсистемами. Отметим при этом, что спин-спиновые взаимодействия отличают наиболее малые времена релаксации, когда за счет магнитных дипольных взаимодействий происходят переходы между уровнями энергии двух или нескольких спинов при сохранении энергии спин-системы в целом.

Одна из указанных подсистем состоит из носителей заряда, участвующих в явлении сверхпроводимости, другая - из нормальных носителей заряда, которые существуют в образце при  $T \leq 77-93$  К. Наличие второй группы носителей заряда демонстрирует следующий эксперимент. Образец, помещенный в кварцевую ампулу, нагревался при  $T = 470-490$  К и давлении  $5 \cdot 10^{-2}$  торр в течение  $2 \cdot 10^3$  с, затем ампула отпаивалась. Такой образец оставался сверхпроводящим, о чем свидетельствует наличие в нем эффекта Мейснера, но линия резонансного поглощения исчезала: имело место только нерезонансное (фоновое) поглощение в широком диапазоне  $H$ . Этот факт свидетельствует о наличии скин-слоя на нормальных носителях заряда, экранирующем от воздействия СВЧ-излучения сверхпроводящий объем образца. При разгерметизации ампулы непосредственно в процессе измерения ЭПР-сигнала и температуре образца 78 К имеет место восстановление резонансного характера поглощения, первоначальной формы и амплитуды сигнала при неизменной амплитуде нерезонансного поглощения. Типичное поведение во времени амплитуды ЭПР-сигнала при фиксированном значении  $H$  представлено на рис. 3. Он свидетельствует о диффузионной природе механизма восстановления резонансной составляющей поглощения. Полагая, что протяженность скин-слоя в данном образце составляет  $2-3 \cdot 10^{-8}$  м, нетрудно оценить коэффициент диффузии кислорода в поверхностном слое сверхпроводника  $D \approx 2-4 \cdot 10^{-16} \text{ м}^2/\text{с}$ .

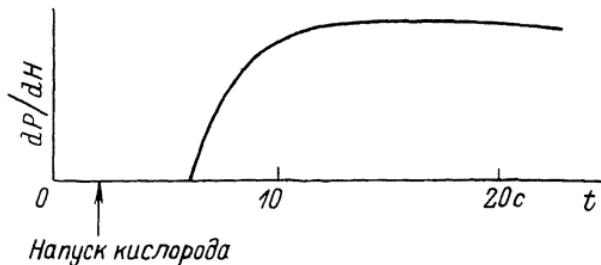


Рис. 3. Поведение во времени амплитуды ЭПР - сигнала после разгерметизации ампулы.

Кроме того, можно сделать вывод о том, что внешний слой образца толщиной  $2 \cdot 10^{-8}$  м сверхпроводящими свойствами не обладает — об этом свидетельствует время задержки момента появления сигнала после напуска кислорода, оно составляет 3–4 с.

Исходя из сказанного, схему поглощения СВЧ-энергии в сверхпроводящем образце можно представить следующим образом: СВЧ-энергия → спиновая система „сверхпроводящих“ носителей заряда → спиновая система нормальных носителей и парамагнитных ионов → решетка кристалла.

Характерной особенностью всех исследованных образцов является высокое значение  $g$  — фактора, определяемого исходя из соотношения  $\hbar\omega = g\mu_B H$  ( $\mu_B$  — магнетон Бора,  $\hbar$  — постоянная Планка). Оно достигает значения  $\sim 200$  и более. Это обстоятельство указывает [8] на малую величину эффективной массы носителей заряда  $m^*$ ; она составляет  $10^{-2}$  и менее от массы электрона  $m_e$ .

Высокая плотность носителей заряда  $n$ , характерная для данного класса материалов (до  $10^{27}$ – $10^{28}$  м $^{-3}$  [9]), и малое значение  $m^*$  дают основания полагать, что экранирование магнитного поля (эффект Мейснера) обусловлено проявлением сильного электронного (дырочного) диамагнетизма, согласно модели Бардина [10, 11]. Диамагнитная восприимчивость  $\chi_g$  обратно пропорциональна квадрату эффективной массы носителей заряда и равна:

$$\chi_g = -\frac{1}{3} \left( \frac{m_0}{m^*} \right)^2 \frac{\mu_B^2 \mu_0 n}{kT}.$$

Здесь  $\mu_0$  — магнитная постоянная,  $k$  — постоянная Больцмана. Можно отметить, что при  $T = 77$  К достаточно  $m^* \rightarrow 10^{-2} m_e$ ,  $n \rightarrow 3 \cdot 10^{27}$  м $^{-3}$ , чтобы  $\chi_g \rightarrow -1$ . Заметим также, что образец обладает в этом случае и парамагнитной составляющей восприимчивости  $\chi_g / \chi_n = 1/3 \left( \frac{m_0}{m^*} \right)^2$  [12]. Такая ситуация характерна для ряда легированных полупроводников, в которых диамагнетизм электронов проводимости значительно превышает парамагнитную составляющую [13].

С учетом сказанного можно высказать предположение, что в указанных материалах переход в сверхпроводящее состояние связан с уменьшением эффективной массы одной из групп свободных носителей заряда.

## Л и т е р а т у р а

- [1] Веснин Ю.И., Истомин В.Е., Косцов Э.Г. – Препринт ИАиЭ СО АН СССР, 1987, № 365; – Письма в ЖТФ, 1988, т. 14, в. 2, с. 185–188.
- [2] Мастеров В.Ф., Егоров А.И., Герасимов Н.П., Козырев С.В., Лихолит И.Л., Савельев И.И., Федоров А.В., Штельмак К.Ф. – Письма в ЖЭТФ, 1987, т. 46, с. 289–292.
- [3] Bhattacharyya P., Ramakrishnan T.V., Rao C.N.R. – J. Phys. C: Solid state Phys., 1987, v. 20, p. L559–L563.
- [4] Пан В.М., Попов А.Г., Фликс В.С., Брик А.Б., Матяш М.В., Ищенко С.С., Окулов С.М. Проблемы высокотемпературной сверхпроводимости, Свердловск, 1987, ч. 1, с. 213.
- [5] Wu M.K., Ashburn J.R. et al. – Phys. Rev. Lett., 1987, v. 58, p. 908.
- [6] McGuire T.R., Dingler T.R. et al. – Phys. Rev. B, 1987, v. 36, N 7, p. 4032.
- [7] Feher G., Kipp A.F. – Phys. Rev., 1955, v. 98, N 2, p. 337–348.
- [8] Электронный спиновый резонанс в полупроводниках. Сб. статей. М.: ИИЛ, 1962.
- [9] Gattwisch U., Held R., Sparn G. et al. – Europhys. Lett., 1987, v. 4(10), p. 1183–1188.
- [10] Bardeen J. – Phys. Rev., 1950, v. 79, p. 167; 1950, v. 80, p. 567.
- [11] Пайерлс Р. Квантовая теория твердых тел, М.: ИЛЛ, 1956.
- [12] Ансельм А.И. Введение в теорию полупроводников, М.: Госфизматлит, 1962.
- [13] Ашкрофт Н., Мермин Н. Физика твердого тела, М.: Мир, 1979.

Институт автоматики  
и электроники СО АН СССР,  
Новосибирск

Поступило в Редакцию  
17 марта 1988 г.