

Полевая и температурная зависимости теплоемкости сверхпроводника $\text{La}_{1.85}\text{Sr}_{0.15}\text{CuO}_4$

© Г.Х. Панова, А.А. Шиков, М.Н. Хлопкин, Н.А. Черноплеков

Российский научный центр "Курчатовский институт",
123182 Москва, Россия

E-mail: khlopkin@issph.kiae.ru

(Поступила в Редакцию 31 мая 2001 г.)

Исследованы температурная и полевая зависимости теплоемкости высококачественных монокристаллов $\text{La}_{1.85}\text{Sr}_{0.15}\text{CuO}_4$ при низких температурах и в магнитных полях до 8 Т для двух направлений магнитного поля: вдоль кристаллографических осей [100] и [110]. Наблюдалась анизотропия полевой зависимости электронной плотности состояний при различной ориентации магнитного поля в плоскости $a-b$ с минимальной величиной электронной плотности вдоль оси a (при $H \parallel [100]$) и максимальной при ориентации поля под углом 45° к оси a (при $H \parallel [110]$). Обнаружено, что в магнитных полях электронная теплоемкость зависит линейно от температуры T и нелинейно от магнитного поля H : $C_{\text{DOS}} = bTH^{1/2}$. В нулевом поле электронная теплоемкость квадратично растет с температурой: $C_{\text{DOS}} = aT^2$. Оценка максимальной величины щели по экспериментально определенным значениям коэффициента a при T^2 и величине плотности электронных состояний в нормальном состоянии дает $\Delta_0 = 300$ К. Обнаруженные особенности указывают на то, что $\text{La}_{1.85}\text{Sr}_{0.15}\text{CuO}_4$ является сверхпроводником с d -симметрией параметра порядка.

Работа поддержана Научным советом по проблеме ВТСП и выполнена в рамках проекта № 96039 Государственной научно-технической программы "Актуальные проблемы физики конденсированных сред", направление "Сверхпроводимость".

В последние годы большое внимание уделяется изучению симметрии параметра порядка в ВТСП с использованием метода измерения теплоемкости в магнитных полях, поскольку они дают возможность определить электронную плотность состояний, которая легко может быть сопоставлена с различными теоретическими предсказаниями. Указанное обстоятельство и тот факт, что теплоемкость является объемной термодинамической характеристикой вещества, делают такие измерения удобным методом исследования механизма сверхпроводимости.

Из теории сверхпроводников с d -симметрией параметра порядка следуют различия в пространственном распределении d - и s -компонент сверхпроводящей щели. Поэтому электронная плотность состояний и в особенности ее зависимость от магнитного поля отличаются для d - и s -волнового спаривания; следовательно, измерения теплоемкости в магнитном поле могут внести существенный вклад в понимание природы спаривания. Они также дают величины плотности электронных состояний, важные для сравнения с модельными расчетами квазичастичного спектра возбуждений.

Низкотемпературное поведение термодинамических свойств зависит от энергетической плотности состояний спектра возбуждений сверхпроводника вблизи уровня Ферми. Зануление сверхпроводящей щели на некоторых участках поверхности Ферми сильно влияет на энергетический спектр, что приводит к температурным аномалиям термодинамических свойств сверхпроводника как в сверхпроводящем (мейснеровском), так и в смешанном (шубниковском) состояниях. Согласно предсказаниям теоретических работ [1–5], теплоемкость сверхпроводника с d -симметрией параметра порядка имеет три

особенности в области низких температур: 1) в нулевом поле электронная теплоемкость квадратично зависит от температуры; 2) в магнитном поле в смешанном состоянии зависимость электронной теплоемкости имеет вид $C \sim bTH^{1/2}$; 3) теплоемкость проявляет нетривиальную анизотропию четвертого порядка при ориентации магнитного поля в плоскости $a-b$.

Первые две особенности наблюдались экспериментально в различных лабораториях [6–10] в основном на поликристаллических образцах $\text{La}_{1.85}\text{Sr}_{0.15}\text{CuO}_4$ и $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$. Монокристаллы $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ при различной ориентации магнитного поля исследованы в [11–13]. Была обнаружена тривиальная анизотропия влияния магнитного поля на теплоемкость в зависимости от ориентации поля относительно плоскости Cu-O в полях, параллельных и перпендикулярных оси c . Однако в этих работах нетривиальная анизотропия именно в плоскости $a-b$ в пределах точности эксперимента не наблюдалась.

Целью настоящей работы было исследование температурной и полевой зависимостей электронной компоненты теплоемкости на массивных высококачественных монокристаллических образцах $\text{La}_{1.85}\text{Sr}_{0.15}\text{CuO}_4$, а также изучение нетривиальной анизотропии электронной плотности состояний при различной ориентации магнитного поля в плоскости $a-b$. Первоначальные результаты этих исследований опубликованы нами в работах [14–17].

1. Приготовление образцов и их характеристика

Исследования выполнялись на высококачественном массивном монокристалле $\text{La}_{1.85}\text{Sr}_{0.15}\text{CuO}_4$, полученном методом бестигельной зонной плавки с радиационным

нагревом. По данным рентгеноструктурного анализа, при комнатной температуре образец имел тетрагональную структуру ($F4/mmm$) с параметрами решетки $a = b = 3.773(1) \text{ \AA}$, $c = 13.233(2) \text{ \AA}$.

Температура сверхпроводящего перехода T_c и ширина ΔT_c определялись по магнитной восприимчивости и электросопротивлению ($T_c = 39.2 \text{ K}$, $\Delta T_c = 0.5 \text{ K}$) и по теплоемкости ($T_c = 38 \text{ K}$, $\Delta T_c = 2 \text{ K}$). На температурной зависимости теплоемкости наблюдался четкий скачок, соответствующий сверхпроводящему переходу с амплитудой $\Delta C/T = 10 \text{ mJ} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{K}^2$. Теплоемкость образца измерялась адиабатическим методом с импульсным вводом тепла. Погрешность измерения составляла величину 2% в интервале температур 1.5–4 К, 1% в интервале 4–10 К и 0.2–0.5% в интервале 10–50 К.

Исследования теплоемкости были проведены для двух ориентаций магнитного поля в плоскости a – b вдоль оси a (в направлении $[100]$) и под углом 45° к оси a (в направлении $[110]$). Суммарная погрешность определения ориентации и установки образца относительно поля по нашим оценкам не превышала 5.

2. Экспериментальные результаты

Измерения теплоемкости монокристаллического образца $\text{La}_{1.85}\text{Sr}_{0.15}\text{CuO}_4$ проводились в области низких температур и в магнитных полях 0, 2, 4, 6, 8 Т для двух направлений магнитного поля: вдоль осей $[100]$ и $[110]$. Серии зависимостей $C(T, H)$, измеренных для двух направлений магнитного поля, представлены на рис. 1–3.

Полученные экспериментальные данные анализировались как сумма вкладов, каждый из которых имеет

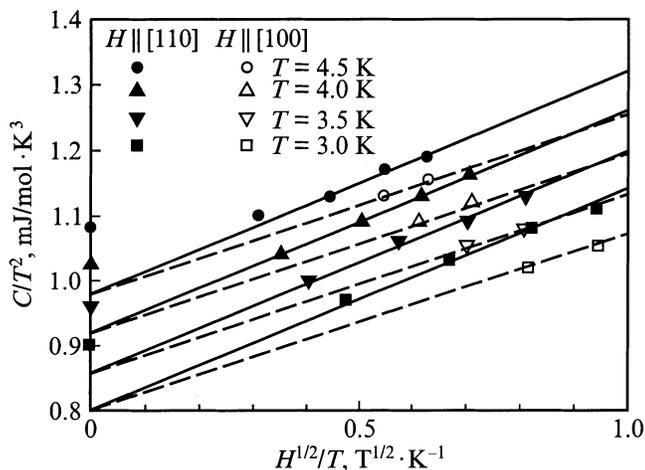


Рис. 1. Теплоемкость $C(T, H)$ образца $\text{La}_{1.85}\text{Sr}_{0.15}\text{CuO}_4$ в магнитных полях $H = 0, 2, 4, 6$ и 8 T , представленная в виде зависимости $C(T, H)/T^2$ от $H^{1/2}/T$ для четырех фиксированных температур и для двух направлений магнитного поля: вдоль осей $[100]$ и $[110]$. Прямые линии проведены по методу наименьших квадратов через экспериментальные точки, измеренные в полях 0, 2, 4, 6 и 8 T .

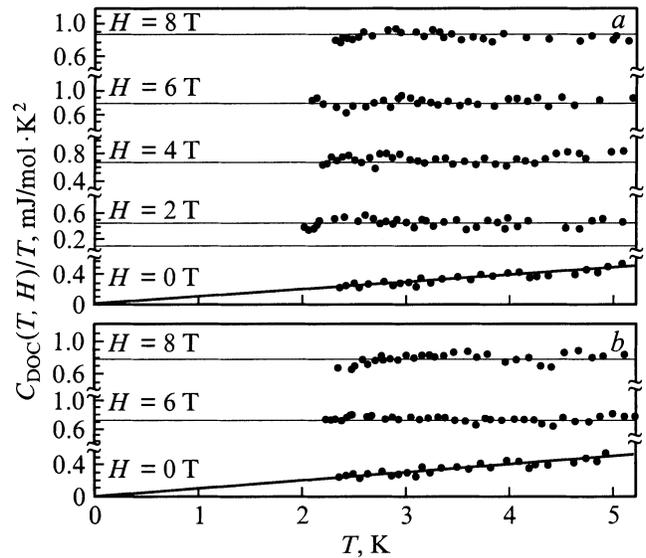


Рис. 2. Температурная зависимость C_{DOS}/T в магнитных полях 0, 2, 4, 6, 8 Т для двух ориентаций магнитного поля: a — вдоль оси $[110]$, b — вдоль оси $[100]$.

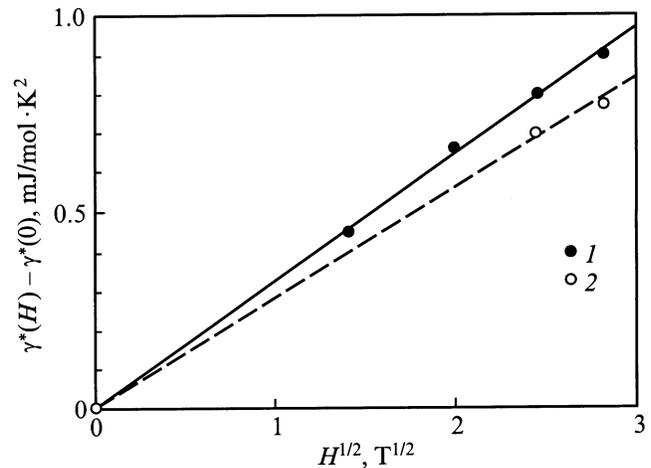


Рис. 3. Магнитная полевая зависимость величин $\Delta\gamma(H) = \gamma^*(H) - \gamma^*(0)$ как функция $H^{1/2}$ для двух направлений магнитного поля: вдоль осей $[110]$ (1) и $[100]$ (2). Прямые линии проведены по методу наименьших квадратов и соответствуют зависимости $\Delta\gamma(H) = bH^{1/2}$.

различную зависимость от температуры и магнитного поля.

В нулевом поле наличие линии нулей энергетической щели приводит к тому, что электронный вклад в низкотемпературную теплоемкость, обусловленный плотностью электронных состояний (DOS) на уровне Ферми $C_{\text{DOS}}(T, 0)$, пропорционален квадрату температуры

$$C(T, 0) = C_{\text{bkgd}}(T) + C_{\text{DOS}}(T, 0) = \gamma^*(0)T + \beta T^3 + \alpha T^2,$$

где $C_{\text{bkgd}}(T)$ включает в себя линейный по температуре вклад $\gamma^*(0)T$, природа которого еще не выяснена, и фоновый вклад βT^3 .

При анализе $C(T, H)$ в соответствии с теорией мы предполагали, что в магнитном поле член αT^2 исчезает, а $C_{bkgd}(T)$ не зависит от магнитного поля. Тогда в магнитном поле

$$C(T, H) = C_{bkgd}(T) + C_{\text{DOS}}(T, H).$$

Для выделения вкладов в теплоемкость, имеющих предсказанные теорией зависимости вида $C_{\text{DOS}}(T, H) = \alpha T^2$ при $H = 0$ и $C_{\text{DOS}}(T, H) = bTH^{1/2}$ в магнитном поле, удобно представить полученные результаты на графике в виде серии зависимостей величины $C(T, H)/T^2$ от $H^{1/2}/T$ при нескольких фиксированных температурах. На таком графике зависимость вида $C(T, H) = C_{bkgd}(T) + bTH^{1/2}$ представляется прямой линией, наклон которой соответствует коэффициенту b , а отрезок, отсекаемый на вертикальной оси, дает значение $C_{bkgd}(T)/T^2$ при данной температуре. Видно, однако, что такая зависимость не сохраняется до нуля поля: экспериментальные точки, измеренные в нулевом поле, лежат выше прямой, проведенной через точки, полученные в магнитном поле. Это можно объяснить тем, что в области малых магнитных полей появляется дополнительный вклад в теплоемкость, который пропадает при включении магнитного поля. Величина этого вклада равна разности между экспериментально измеренной в нулевом поле теплоемкостью и ее значением, экстраполированным к нулю поля.

Экспериментальные данные для четырех фиксированных температур (3, 3.5, 4, 4.5 К) в магнитных полях 0, 2, 4, 6, 8 Т в координатах $(C/T^2, H^{1/2}/T)$ для двух ориентаций магнитного поля относительно осей ($H \parallel [100]$ и $H \parallel [110]$) приведены на рис. 1. Видно, что полученные данные для каждой фиксированной температуры, кроме точек при $H = 0$, лежат на параллельных прямых с наклоном, зависящим от ориентации магнитного поля. Линии, проведенные по данным, полученным в ориентации $H \parallel [110]$ (сплошные), дают значение наклона $b_{[110]} = 0.34 \text{ мДж} \cdot \text{моль}^{-1} \cdot \text{К}^{-2} \cdot \text{Т}^{-1/2}$, а линии в случае $H \parallel [100]$ (штриховые) соответствуют наклону $b_{[100]} = 0.27 \text{ мДж} \cdot \text{моль}^{-1} \cdot \text{К}^{-2} \cdot \text{Т}^{-1/2}$.

Разности между экспериментально измеренными в нулевом поле величинами теплоемкости C/T^2 и экстраполированными к нулю поля значениями примерно постоянны для различных температур и направлений магнитного поля. Определенная по этой разности величина коэффициента α при квадратичном члене составляет $\alpha = 0.1 \text{ мДж} \cdot \text{моль}^{-1} \cdot \text{К}^{-3}$. Такая схема расчета, учитывающая квадратичный член в теплоемкости, позволяет сначала выделить величину $C_{bkgd}(T)$, а затем определить величину электронной теплоемкости $C_{\text{DOS}}(T, H) = C(T, H) - C_{bkgd}(T)$.

Анализируя температурную зависимость C_{bkgd} , полученной стандартным методом: $C_{bkgd}(T) = \gamma^*(0)T + \beta T^3$, мы определили величины коэффициентов при линейном и кубичном вкладах в теплоемкость соответственно: $\gamma^*(0) = 0.65 \text{ мДж} \cdot \text{моль}^{-1} \cdot \text{К}^{-2}$ и $\beta = 0.189 \text{ мДж} \cdot \text{моль}^{-1} \cdot \text{К}^{-4}$.

Полученная величина β соответствует температуре Дебая $\Theta_D = 419 \text{ К}$.

На рис. 2 приведена зависимость $C_{\text{DOS}}(T, H)/T$ от температуры в магнитных полях для двух направлений магнитного поля: вдоль осей $[100]$ и $[110]$. В нулевом поле экспериментальные точки расположены на прямой линии, проходящей через начало координат, что отвечает зависимости $C_{\text{DOS}}(T, H) \sim T^2$. В магнитном поле эти точки находятся на горизонтальных прямых, что соответствует линейной зависимости теплоемкости от температуры $C_{\text{DOS}}(T, H) \sim T$. С увеличением магнитного поля зависимости $C_{\text{DOS}}(T, H)/T$ смещаются параллельно в сторону больших значений.

На рис. 3 представлена магнитная полевая зависимость величин $\Delta\gamma(H) = \gamma^*(H) - \gamma^*(0)$ как функция $H^{1/2}$ для двух направлений магнитного поля: вдоль осей $[100]$ и $[110]$. Как видно из этого рисунка, с ростом магнитного поля теплоемкость увеличивается, причем этот эффект меньше для ориентации поля вдоль оси a (при $H \parallel [100]$), чем при направлении под углом 45° к оси a . Прямые линии, проведенные по методу наименьших квадратов, хорошо описывают экспериментальные данные и подтверждают, что величина $\gamma^*(H) - \gamma^*(0)$ характеризуется нелинейной зависимостью вида $bH^{1/2}$. Величины наклона b зависят от направления магнитного поля ($b_{[100]} = 0.28 \text{ мДж} \cdot \text{моль}^{-1} \cdot \text{К}^{-2} \cdot \text{Т}^{-1/2}$ и $b_{[110]} = 0.33 \text{ мДж} \cdot \text{моль}^{-1} \cdot \text{К}^{-2} \cdot \text{Т}^{-1/2}$) и близки по величине к результатам, представленным на рис. 1. Данный факт подтверждает, что вклад $C_{\text{DOS}}(T, H)$ электронной плотности состояний в теплоемкость $\text{La}_{1.85}\text{Sr}_{0.15}\text{CuO}_4$ определен достаточно корректно.

Сравнение этих величин показывает, что анизотропия электронной плотности состояний по отношению к ориентации магнитного поля $[\gamma^*(H) - \gamma^*(0)_{[110]}] / [\gamma^*(H) - \gamma^*(0)_{[100]}]$ составляет 20%.

Наблюдаемую нами анизотропию электронной плотности состояний в плоскости $a-b$ можно объяснить анизотропией энергетической щели, минимум которой расположен вдоль направления $[110]$.

В двумерном $d_{x^2-y^2}$ -сверхпроводнике энергетическая щель может быть представлена как $\Delta(k) = \Delta_0 \cos(2\varphi)$, где φ есть угол, характеризующий направление квазиимпульса относительно кристаллографических осей. Если предположить, что поверхность Ферми цилиндрическая, то энергетическая плотность состояний квазичастиц складывается из интеграла по всем направлениям угла φ

$$N(E) = \frac{N_0}{2\pi} \int_0^{2\pi} d\varphi \text{Re} \left[\frac{E}{\sqrt{E^2 - \Delta_0^2 \cos^2(2\varphi)}} \right],$$

где N_0 — энергетическая плотность состояний на уровне Ферми в нормальном состоянии. При этом электронная теплоемкость C_{DOS} в нулевом поле при $T \ll T_c$ связана с максимальной величиной щели соотношением, приве-

денным в [6],

$$C_{\text{DOS}} = 3.28\gamma_n T^2 / \Delta_0 = \alpha T^2,$$

где Δ_0 — максимальное значение энергетической щели, измеряемой в единицах температуры.

Используя оценку коэффициента электронной теплоемкости $\text{La}_{1.85}\text{Sr}_{0.15}\text{CuO}_4$ в нормальном состоянии $\gamma_n = 9 \text{ mJ/mol} \cdot \text{K}^2$ из работы [14] и полученное нами значение коэффициента $a = 0.1 \text{ mJ/mol} \cdot \text{K}^3$, мы оценили величину энергетической щели в максимуме на поверхности Ферми: $\Delta_0 = 300 \text{ K}$. Для безразмерного отношения щели к критической температуре $2\Delta_0/T_c = 16$, что указывает на сильную связь в исследуемом сверхпроводнике. Полученная нами оценка величины $2\Delta_0/T_c$ существенно больше, чем определенная из экспериментов по теплоемкости [6], неупругому рассеянию нейтронов [18] и рамановскому рассеянию [19], что может быть связано с высоким качеством исследованного монокристаллического образца.

Низкоэнергетический рамановский спектр в монокристалле $\text{La}_{1.83}\text{Sr}_{0.17}\text{CuO}_4$ был измерен при температуре выше и ниже T_c . Было обнаружено перераспределение интенсивности рассеяния как результат открытия сверхпроводящей щели. Анализ зависимости интенсивности рассеяния от поляризации фотонов показал, что щель анизотропна и имеет нули вдоль направлений $[\pm 1, \pm 1]$ и максимумы в направлении $[0, \pm 1]$ и $[\pm 1, 0]$, что указывает на $d_{x^2-y^2}$ -симметрию сверхпроводящего параметра порядка.

Полученные нами результаты по анизотропии электронной плотности состояний подтверждают информацию, полученную в экспериментах по рамановскому рассеянию, и дают основания считать, что щель на поверхности Ферми анизотропна и имеет линии зануления на поверхности Ферми.

Авторы выражают благодарность Д.А. Шулятеву за приготовление монокристаллических образцов $\text{La}_{1.85}\text{Sr}_{0.15}\text{CuO}_4$.

Список литературы

- [1] G.E. Volovik. Phys. Lett. **A142**, 282 (1989).
- [2] G.E. Volovik. Письма в ЖЭТФ **58**, 457 (1993).
- [3] N.V. Kopnin, G.E. Volovik. Письма в ЖЭТФ **64**, 641 (1996).
- [4] G.E. Volovik. Письма в ЖЭТФ **65**, 465 (1997).
- [5] Ю.А. Изюмов. УФН **169**, 225 (1999).
- [6] N. Momono, M. Ido. Physica **C264**, 311 (1996).
- [7] S.J. Chen, C.F. Chang, H.L. Tsay, H.D. Yang, J.Y. Lin. Phys. Rev. **B58**, R14 753 (1998).
- [8] N.E. Phillips, D. Buffeteau, R. Calemczuk, K.W. Dennis, J.P. Emerson, R.A. Fisher, J.E. Gordon, T.E. Hargreaves, C. Marcenat, R.W. Mc Callum, A.S. O'Connor, A. Schilling, B.F. Woodfield, D.A. Wright. J. Supercond. **12**, 105 (1999).
- [9] R.A. Fisher, N.E. Phillips, A. Schilling, D. Buffeteau, R. Calemczuk, T.E. Hargreaves, C. Marcenat, K.W. Dennis, R.W. Mc Callum, A.S. O'Connor. Phys. Rev. **B61**, 1473 (2000).
- [10] D.A. Wright, J.P. Emerson, B.F. Woodfield, J.E. Gordon, R.A. Fisher, N.E. Phillips. Phys. Rev. Lett. **82**, 1550 (1999).
- [11] K.A. Moler, D.J. Baar, J.S. Urbach, Ruing Liang, M.N. Handy, A. Kapitulnik. Phys. Rev. Lett. **73**, 4023 (1994).
- [12] K.A. Moler, D.L. Sisson, J.S. Urbach, M.R. Beasley, A. Kapitulnik. Phys. Rev. **B55**, 3954 (1997).
- [13] Y. Wang, B. Revaz, A. Erb, A. Junod. Phys. Rev. **B63**, 094 508 (2001).
- [14] A.M. Balbashov, D.A. Shulyatev, G.Kh. Panova, M.N. Khlopin, N.A. Chernoplekov, A.A. Shikov, A.V. Suetin. Physica **C256**, 371 (1996).
- [15] М.Н. Хлопкин, Г.Х. Панова, Н.А. Черноплеков, А.А. Шиков, А.В. Суетин. ЖЭТФ **112**, 1386 (1997).
- [16] М.Н. Хлопкин, Г.Х. Панова, Н.А. Черноплеков, А.А. Шиков. Письма в ЖЭТФ **66**, 683 (1997).
- [17] G.Kh. Panova, A.A. Shikov, M.N. Khlopin, N.A. Chernoplekov, D.A. Shulyatev. Physica **C334**, 25 (2000).
- [18] K. Yamada, S. Wakimoto, G. Shirane, C.H. Lee, M.A. Kastner, S. Hosoya, M. Greven, Y. Endoh, J. Birgeneau. Phys. Rev. Lett. **75**, 1626 (1995).
- [19] X.K. Chen, J.C. Irwin, H.J. Trodahl, T. Kimura, K. Kishio. Phys. Rev. Lett. **73**, 3290 (1994).