

МИНИСТЕРСТВО ОБРАЗОВАНИЯ РОССИЙСКОЙ ФЕДЕРАЦИИ  
МОСКОВСКИЙ ФИЗИКО-ТЕХНИЧЕСКИЙ ИНСТИТУТ  
(Государственный университет)  
ФАКУЛЬТЕТ ОБЩЕЙ И ПРИКЛАДНОЙ ФИЗИКИ  
ИНСТИТУТ ФИЗИКИ ТВЕРДОГО ТЕЛА

**Поверхностный импеданс кристаллов**  
 **$\kappa - (\text{VEDT-TTF})_2\text{Cu}[\text{N}(\text{CN})_2]\text{Br}$**

выпускная квалификационная работа  
на соискание степени бакалавра  
студента 422 гр. Перунова Н.В.

научный руководитель: д.ф.-м.н., Трунин М.Р.

работа выполнена на кафедре физики твердого тела МФТИ  
Черноголовка, 2008

## Содержание

<b>1</b>	<b>Введение</b>	<b>3</b>
<b>2</b>	<b>Структура и свойства солей <math>\kappa</math>-(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu(N(CN)<sub>2</sub>)X</b>	<b>4</b>
<b>3</b>	<b>Методика измерений</b>	<b>6</b>
3.1	Экспериментальная установка . . . . .	6
3.2	Измерительная схема . . . . .	11
3.3	Измеряемые величины и образцы . . . . .	13
<b>4</b>	<b>Эксперимент и результаты измерений</b>	<b>15</b>
<b>5</b>	<b>Заключение</b>	<b>20</b>

## 1 Введение

Сверхпроводимость в органических материалах известна достаточно давно. Впервые она была обнаружена в 1979 году Д.Джеромом в квазиодномерном соединении  $(TMTSF)_2PF_6$  [бис-тетраметил-тетраселенафульвален-гексафлюорофосфат] при температуре 0.9 К под давлением более 10 kbar. За этим последовал непрекращающийся поток открытий новых материалов с более высокими  $T_c$ . Семейство органических катион-радикальных солей  $(BEDT - TTF)_nX_m$  [где BEDT-TTF, или ET, это бис(этилендитио)тетратиафульвален] породило наибольшее число органических сверхпроводников, причем у некоторых представителей этого семейства критическая температура составляет более 10 К. Например, для  $\kappa - (ET)_2Cu(NCS)_2$   $T_c = 10.4$  К, а для  $\kappa - (ET)_2Cu[N(CN)_2]Br$   $T_c = 11.6$  К. В 1991 году был открыт класс сверхпроводников на основе соединений фуллеренов с щелочными металлами. Для разных веществ этого класса температура перехода в сверхпроводящее состояние находится в интервале от 18 К ( $K_3C_{60}$ ) до 45 К ( $Rb_xTl_yC_{60}$ ).

Несмотря на то что, высоких  $T_c$  в органических сверхпроводниках пока не удалось достичь, эти материалы представляют интерес, так как в них обнаруживаются новые intriguing свойства. Вопрос о типе сверхпроводящего взаимодействия и симметрии параметра порядка в органических сверхпроводниках до сих пор является предметом широких дискуссий и споров.

Целью данной работы является исследование транспортных свойств кристаллов  $\kappa - (BEDT-TTF)_2Cu(N(CN)_2)Br$ .

## 2 Структура и свойства солей $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu(N(CN)<sub>2</sub>)X

Катион-радикальные соли семейства  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu(N(CN)<sub>2</sub>)X, где BEDT-TTF —  $\pi$ -органический донор (рис.1), а  $X = Br, Cl, Br_{1-x}Cl_x$ , были предметом многочисленных исследований в последние годы, так как они проявляют широкое разнообразие электронных свойств.

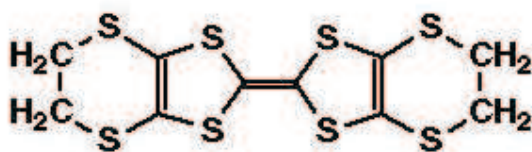


Рис. 1: Молекула BEDT-TTF

$\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu(N(CN)<sub>2</sub>)X соединения (для краткости назовем их  $\kappa$ -X) образуют слоистые кристаллы, построенные из проводящих катион-радикальных слоев *BEDT – TTF*, чередующихся с диэлектрическими слоями однозарядных анионов  $(Cu[N(CN)_2]X)^-$ .

На рисунке 2 показано чередование *BEDT – TTF* и анионных слоев в кристалле (слева) и упаковка пар молекул *BEDT – TTF* (они обведены красным) в слое, если смотреть на него сверху. Анионный слой состоит из полимерных зигзагообразных цепочек, вытянутых вдоль направления **a**. Символ  $\kappa$  в формуле определяет тип упаковки молекул в катион-радикальном слое, который сформирован из пар молекул *BEDT – TTF* со средним зарядом  $+1/2$  на молекулу, упакованных в кристалле перпендикулярно друг другу.

Перекрытие молекулярных орбиталей донорных молекул в слоях приводит к образованию широких энергетических зон для электронов в кристалле. Согласно теоретическим расчетам зонной структуры, эти материалы должны быть металлами. Было установлено, что соль с  $X = Cl$  является диэлектриком, но под давлением 0.3кбар становится металлом и испытывает переход в сверхпроводящее состояние при температуре  $T_c = 12.8$  К, тогда

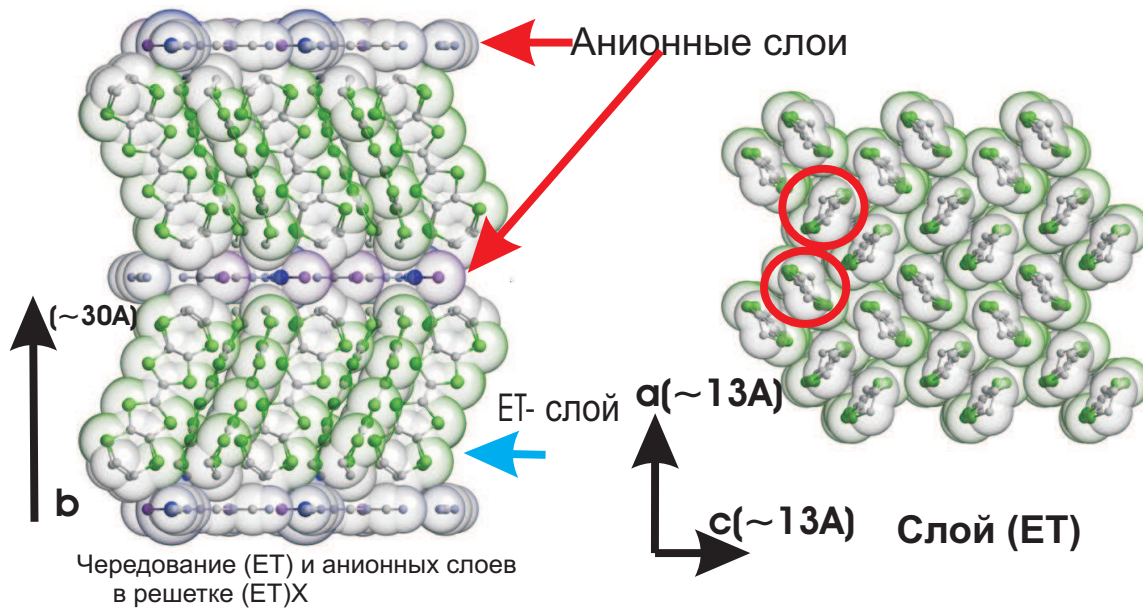


Рис. 2: Структура кристалла и слой ET

как катион-радикальные соли с  $X = Br, Br_{0.5}Cl_{0.5}$  являются органическими сверхпроводниками при нормальном давлении с  $T_c = 11.6$  К.

В данной работе исследуется температурная зависимость поверхностного импеданса  $ac$ -плоскостей катион-радикальной соли  $\kappa - Br$  на частоте 28.2 ГГц.

### 3 Методика измерений

К числу экспериментальных методов исследования сверхпроводящих материалов выше и ниже критической температуры сверхпроводящего перехода относятся измерения температурных зависимостей поверхностного импеданса  $Z(T) = R(T) + iX(T)$  в абсолютных единицах на сверхвысоких частотах. Действительная часть, кондуктанс  $R(T)$ , связана с потерями электромагнитной волны при отражении от сверхпроводника. Мнимая часть, реактанс  $X(T)$ , определяет недиссипативную энергию, запасенную в поверхностном слое исследуемого образца.

Для измерения поверхностного импеданса образцов малого размера, площадь поверхности которых порядка  $1 \text{ мм}^2$ , наиболее удобным является "hot-finger" метод. Основная идея этого метода заключается в том, что образец помещают на торце диэлектрического стержня в центр цилиндрического резонатора, работающего на моде  $H_{011}$ , т.е. в область практически однородного магнитного микроволнового поля. Резонатор вакуумируют, чтобы температуру стержня можно было менять в широком диапазоне (от 0.4 К до 100 К) без изменения температуры стенок резонатора. Обычно используют сапфировый стержень, так как сапфир обладает высокой теплопроводностью и слабо поглощает СВЧ-излучение. Меняя температуру стержня и измеряя резонансную частоту и добротность резонатора в помещенным внутрь образцом, а затем без него, можно найти температурные зависимости обеих компонент поверхностного импеданса образца.

#### 3.1 Экспериментальная установка

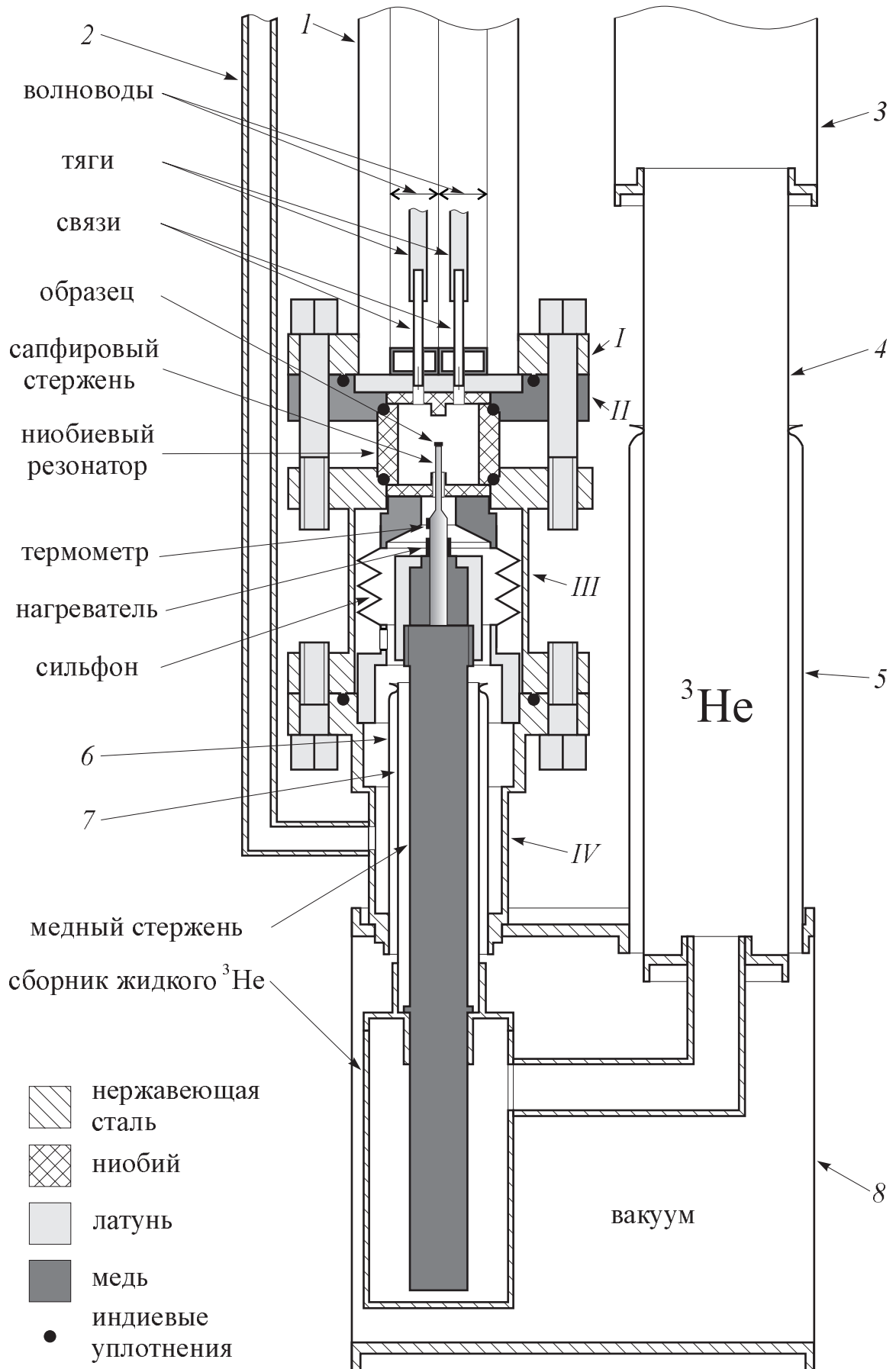
На рисунке 3 показана та часть вставки в криостат, которая помещена в жидкий гелий  $He^4$ . Вставка собрана из тонкостенных (0.3 – 0.5 мм) трубок из нержавеющей стали, соединенных аргоновой сваркой с переходниками и фланцами, сделанными из того же материала. Вставку условно можно разделить на две части: резонаторный блок и блок охлаждения образца. Основной частью резонаторного блока является объемный цилиндрический ниобиевый резонатор, внутренние диаметр и высота которого равны 14 мм. Он состоит из двух крышек и цилиндрической части. В резонаторе возбуждалась мода  $H_{011}$  на частоте  $f = 28.2 \text{ ГГц}$ . Эта мода вырождена с модой  $E_{111}$  (распределение полей в резонаторе на этих модах можно найти в [3]), поэтому для подавления и смещения  $E_{111}$  по

частоте относительно  $H_{011}$  на крышках резонатора оставлены цилиндрические выступы диаметром и высотой 2.5 мм. Для ввода и вывода СВЧ-сигнала в резонатор используются два отверстия в верхней крышке диаметром 1.6 мм на расстоянии 7 мм друг от друга.

Два размещенных в трубке 1 передающих СВЧ-сигнал прямоугольных волновода внутреннего сечения  $3.4 \times 7.2$  мм<sup>2</sup> заканчиваются переходными уголками (изгибами волноводного тракта типа Е-уголков). Короткие стороны этих уголков длиной 8 мм припаиваются к поддерживающей их латунной шайбе. В латунной шайбе и в уголках просверлены отверстия, совмещенные с отверстиями в верхней крышке резонатора. Для исключения прямого просачивания микроволнового сигнала между латунной шайбой и верхней крышкой резонатора вокруг отверстий проложены тонкие индиевые уплотнения (они не показаны на рис.3). В образованные каналы вставлены связи — коаксиальные волноводы с петлями на конце. Размер петли был подобран экспериментально: общая длина центрального проводника 7.5 мм, из них 3.5 мм приходится на петлю. Тefлоновые части коаксиальных волноводов закреплены в тягах, преобразующих вращательное движение регуляторов, расположенных вне криостата при комнатной температуре, в поступательное движение связей. Изменяя расстояние между петлями и резонатором, можно плавно менять степень связи СВЧ-тракта с резонатором непосредственно во время гелиевого эксперимента.

Нижняя крышка резонатора прижимается к его цилиндрической части сильфоном, играющим роль пружины. Через отверстие в центре нижней крышки  $\varnothing 2$  мм в резонатор входит сапфировый стержень  $\varnothing 1$  мм, на верхнем торце которого с помощью вакуумной смазки "апезон" закрепляют образец. Вне резонатора к сапфировому стержню крепятся  $RuO_2$  термометр и нагреватель. К ним по толстостенной трубке 2, обеспечивающей жесткость конструкции, подведены шесть манганиновых проводов диаметром 0.05 мм. Сапфировый стержень вклеен в медный держатель, который латунной гайкой плотно прижимается к торцу медного стержня. Медный стержень диаметром 10 мм и длиной 110 мм припаян к сборнику жидкого  $He^3$ .

Трубка 1, внутренние части волноводов, внутренняя часть резонатора и верхняя часть медного стержня составляют одну вакуумную полость, откачиваемую перед началом эксперимента через трубку 2. После охлаждения вставки остаточный газ вымерзает, и в полости устанавливается высокий вакуум.



Все разборные соединения в цепочке деталей, включающей фланец *I*, фланец *II*, цилиндрическую часть резонатора, фланцы детали *II* и фланец *IV*, герметизируются индиевыми уплотнениями и зажимаются латунными болтами. Для обеспечения доступа к сапфировому стержню соединяющие фланцы деталей *III* и *IV* латунные болты выкручиваются, и резонаторный блок на трубке 1 поднимается вверх; при этом сапфировый стержень, нижняя крышка резонатора на сильфоне и деталь *IV* остаются на месте.

При подаче в блок охлаждения образца газообразный гелий  $He^3$  проходит через трубки 3 диаметром 40 мм и 4 диаметром 25 мм. При откачке  $He^4$  из полости криостата, охлажденного до температуры 1.4К, газообразный  $He^3$  конденсируется на стенках этих трубок. Из трубки 4 конденсат попадает в сборник жидкого  $He^3$ , и охлаждает медный стержень. Серебряным припоем на трубке 4 закреплена вакуумная рубашка, состоящая из трубок 5(Ø 30 мм, l=80 мм), 6(Ø 14 мм, l=60 мм), 7(Ø 18 мм, l=50 мм), 8(Ø 80 мм, l=80 мм), а также верхней и нижней крышек. В процессе изготовления вакуумная рубашка была тщательно откачана до высокого вакуума. Для поддержания вакуума при низкой температуре на нижнюю крышку помещен адсорбент — активированный уголь.

Используемый в блоке охлаждения образца  $He^3$  хранится при комнатной температуре в 25 л баллоне под давлением 0.6 атм(см. рис.3). Контроль количества газа в баллоне производится по манометру. Баллон соединяется с криогенным насосом гибким шлангом диаметром 10 через вентиль В1. Насос изготовлен из заваренной снизу тонкостенной трубки из нержавеющей стали диаметром 22 мм длиной 90 см, заполненной на 30 см используемым в качестве сорбента активированным углем. Для улучшения теплообмена сорбента в гелиевой ванне внутри трубки расположены медные радиаторы. Для охлаждения насоса используется транспортный дьюар СТГ-40. Емкости крионасоса достаточно для откачки всего находящегося во вставке  $He^3$ . Сверху на насосе закреплен вентиль В2, этот вентиль соединен со вставкой длинным гибким сильфонным шлангом диаметром 40мм.

Так как резонатор находится в криостате непосредственно в жидком  $He^4$ , изменение давления газа над жидкостью приводит к изменению давления на стенки резонатора, а это в свою очередь — приводит к изменению размеров резонатора. Экспериментально установлено, что изменение давления  $He^4$  на 1 мм.рт.столба приводит к изменению резонансной частоты на 200 Гц. Поэтому для поддержания внутри криостата постоянного давления  $P = 1.05$  атм используется масляный газгольдер объемом 50 л, по мере наполнения кото-

рого излишки газа сбрасываются в гелиевую сеть.

Можно выделить три температурных диапазона работы установки:

а) При работе в интервале температур  $5 < T < 120$  К давление над  $He^4$  в криостате поддерживается постоянным с помощью газгольдера.

б) При работе в интервале температур  $2 < T < 5$  К газообразный  $He^4$  из полости криостата откачивается механическим насосом до давления 2 мм.рт.ст, что соответствует температуре жидкого  $He^4$  1.4К.

в) При работе в интервале температур  $0.4 < T < 2$  К газообразный  $He^3$  конденсируется в сборнике и откачивается крионасосом.

## 3.2 Измерительная схема

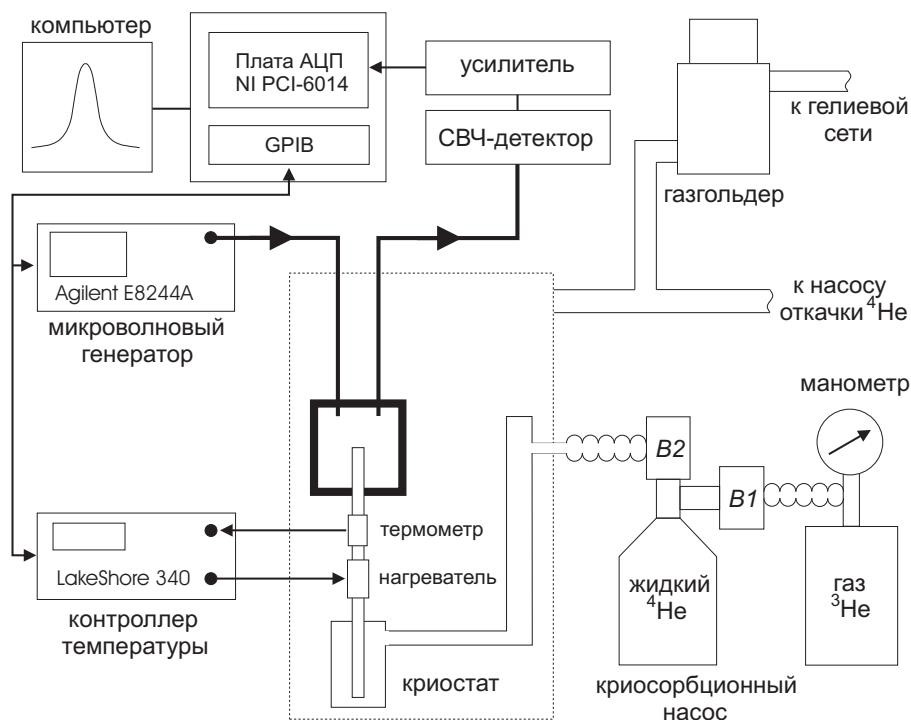


Рис. 4: Измерительная схема

На рисунке (4) приведена схема автоматизированной системы для измерения температурных зависимостей добротности и резонансной частоты.

Регулировка температуры сапфирового стержня производит контроллер LakeShore 340, который с частотой 20 Гц по четырех точечной схеме производит измерение сопротивления  $\text{RuO}_2$  термометра, установленного на сапфировом стержне. Через GPIB адаптер Agilent 82357A каждое измерение фиксируется в компьютере, а в контроллер вводится требуемое значение температуры и параметры пропорционально-интегрально-дифференциального метода регулирования температуры. В качестве нагревателя используется установленное на сапфировом стержне проволочное сопротивление 300 Ом.

Персональный компьютер через GPIB адаптер задает частоту и мощность излучаемого генератором Agilent PSG-L E8244A сигнала, который далее по волноводу подводится к резонатору. Прошедшая через резонатор СВЧ-волна по волноводу попадает измеритель

мощности Herotek DTA264080A. Сигнал с которого через усилитель  $K = 500$  попадает на АЦП NI PCI-6014, которая с частотой 200 кГц и разрешением 16 бит производит ввод измеренного напряжения в компьютер.

После установки требуемой температуры стержня, изменяя частоту свипирования  $f_{sw}$  излучаемого генератором сигнала и измеряя напряжение на АЦП PCI-6014, можно регистрировать зависимость прошедшей через резонансную систему СВЧ-мощности от частоты.

Измерения импеданса сверхпроводящих образцов начинают с низкой температуры и проводят при минимальных уровнях связей СВЧ-тракта с резонатором, при которых достигается максимальная точность измерений малых потерь. В этом случае зависимость прошедшей через резонансную систему СВЧ-мощности имеет вид обычной резонансной кривой:

$$P(f_{sw}) = \frac{Q_L^2 P_0}{4Q_L^2 (f_0 - f_{sw})^2 / f_0^2 + 1}, \quad (1)$$

где  $P_0$  — константа, не зависящая от частоты  $f_{sw}$ ,  $f_0$  — резонансная частота, а  $Q_L$  — добротность резонансной системы. При этом точности измерения добротности  $\sim 1\%$ , а точность измерения частоты 20 Гц.

При приближении температуры к  $T_c$  потери в образце растут, и добротность резонансной системы уменьшается на порядок. При этом сигнал падает, что делает практически невозможным продолжение измерений  $P(f_{sw})$  при том же положении петель в нормальном состоянии образца. Поэтому расстояние между петлями и резонатором уменьшали, до величины, обеспечивающей достаточный для измерения уровень сигнала при температурах, больших  $T_c$ . Если значительная часть петли связи находится в резонаторе, то наблюдаемая резонансная кривая не может больше описываться формулой (1). Это связано с тем, что регистрируемый детектором СВЧ-сигнал проходит не только через резонатор, но и непосредственно с одной петли на другую. Считая, что на резонансной кривой вблизи резонанса фаза сигнала и прямого просачивания остается постоянной, зависимость приходящей на диод СВЧ-мощности от частоты  $f_{sw}$  можно записать в виде:

$$P(f_{sw}) = \left| \frac{A_0}{4Q_L^2 (f_0 - f_{sw})^2 / f_0^2 + i} + B e^{i\phi} \right|^2, \quad (2)$$

где  $A_0$  — амплитуда резонансного сигнала,  $B$  и  $\phi$  — амплитуда и фаза сигнала прямого просачивания.

### 3.3 Измеряемые величины и образцы

Для нахождения связи компонент  $R_s(T)$  и  $X_s(T)$  поверхностного импеданса с измеряемыми величинами  $Q(T)$  и  $\Delta\omega(T)$  вводится понятие геометрического фактора образца  $\Gamma$ .

Разность средних мощностей потерь в резонаторе с образцом и в пустом резонаторе равна мощности  $P$ , поглощаемой самим образцом:

$$P = \frac{1}{2} \int_S R_s H_s^2 dS, \quad (3)$$

где  $H_s$  — касательная составляющая магнитной компоненты поля на поверхности образца, а интегрирование идет по поверхности  $S$  образца. Энергия запасенная в резонаторе, равна:

$$W = \frac{\mu_0}{2} \int_V H^2 dV, \quad (4)$$

где  $V$  — объем резонатора,  $H^2$  — квадрат напряженности полного поля, установившегося в резонаторе после внесения в него образца. Разность обратных собственных добротностей резонатора находится из соотношения

$$\frac{1}{Q} - \frac{1}{Q_0} = \frac{P}{\omega W} = \frac{R_s}{\Gamma_s}, \quad (5)$$

где

$$\Gamma_s = \frac{\omega \mu_0 \int_V H^2 dV}{\int_S H_s^2 dS}. \quad (6)$$

Вынужденные колебания резонатора при наличии потерь характеризуются комплексной частотой

$$\hat{\omega} = \omega + \frac{i\omega}{2Q}, \quad (7)$$

где  $\omega$  и  $Q$  — собственная частота и нагруженная добротность резонатора. Пусть при одной и той же температуре комплексная частота резонатора с образцом равна  $\hat{\omega}$ , а без образца —  $\hat{\omega}_0$ . Разность  $\hat{\omega} - \hat{\omega}_0$  определяет частоту  $\hat{\omega}_s$ , связанную с внесением образца в резонатор. При одном и том же положении связей из формул (7), (5) находим величину  $\hat{\omega}_s$ :

$$\hat{\omega}_s = \omega_s + \frac{i\omega R_s}{2\Gamma_s}. \quad (8)$$

Изменение температуры образца, приводящее к изменению его импеданса  $\Delta Z_s(T) = \Delta R_s(T) + i\Delta X_s(T)$ , можно рассматривать как малое возмущение, результатом которого является сдвиг  $\Delta\hat{\omega}_s(T)$  комплексной частоты  $\hat{\omega} = \hat{\omega}(Z_s)$  :

$$\Delta\hat{\omega}_s(T) = \frac{\partial\hat{\omega}}{\partial Z_s}(\Delta R_s + i\Delta X_s). \quad (9)$$

С другой стороны, согласно(8),

$$\Delta\hat{\omega}_s(T) = \frac{i\omega}{2\Gamma_s}(\Delta R_s - \frac{2i\Gamma\Delta\omega_s(T)}{\omega}), \quad (10)$$

откуда, сравнивая с (9), находим изменение поверхностного импеданса

$$\Delta X_s(T) = -\frac{2\Gamma_s\Delta\omega_s(T)}{\omega}, \quad (11)$$

где  $\Delta\omega_s(T) = \Delta\omega(T) - \Delta\omega_0(T)$ . Температурные зависимости поверхностного сопротивления  $R(T)$  и реактанса  $X(T)$  образца находятся по следующим формулам:

$$R(T) = \Gamma(Q^{-1}(T) - Q_0^{-1}(T)), X(T) = -\frac{2\Gamma}{f}(\Delta f(T) - \Delta f_0(T)) + X_0, \quad (12)$$

где  $\Gamma_s$  —геометрический фактор образца (6), а  $X_0$  — аддитивная постоянная.

Для кристаллов ВТСП  $X_0$  находится из условия равенства мнимой и действительной частей поверхностного импеданса в нормальном состоянии:  $R_s(T_c) = X_s(T_c)$ , так как для них выполняются критерии нормального скин-эффекта. Задача о вычислении геометрического фактора образца  $\Gamma_s$ , зависящего от формы образца, в общем случае может быть решена только численными методами. Проблеме определения  $\Gamma_s$  посвящена статья [1].

## 4 Эксперимент и результаты измерений

В работе исследовались два образца  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu(N(CN)<sub>2</sub>)Br. Они имели неправильную форму прямоугольных тонких пластинок размером  $0.5 \times 0.5 \times 0.1$  мм<sup>3</sup> и  $0.55 \times 0.25 \times 0.03$  мм<sup>3</sup>. Геометрические факторы этих образцов, вычисленные по формулам (9),(15),(16) из [2], равнялись  $\Gamma_1 = 69$  кОм и  $\Gamma_2 = 21$  кОм, соответственно. Поверхностный импеданс  $Z_{ac}$  измерялся на частоте  $f = 28.2$  ГГц в температурном интервале  $0.6 < T < 110$  К. Образцы устанавливались на торец сапфирового стержня так, чтобы ось  $b$  кристалла была направлена вдоль микроволнового поля, при этом высокочастотные токи текут в  $ac$ -плоскости кристалла.<sup>1</sup> На рисунке 5 показано расположение образца в резонаторе (Т-ориентация).

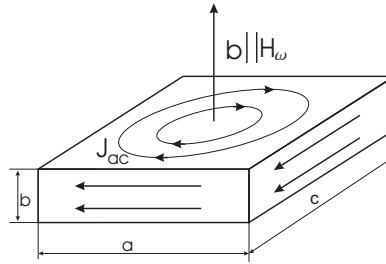


Рис. 5: Ориентация образца относительно переменного магнитного поля.

Для обоих образцов критическая температура сверхпроводящего перехода, определенная по началу резкого уменьшения  $X(T)$ , приблизительно одинакова  $T_c \approx 12$  К. При  $T > T_c$  имеется лишь малый интервал температур ( $15 \leq T \leq 45$  К для образца 1;  $15 \leq T \leq 30$  К для образца 2), где измеряемые кривые  $Q^{-1}(T)$  и  $\Delta f(T)$  имеют одинаковый вид. Совместив их, в соответствии с формулой (12), найдены значения  $R(T)$  и  $X(T)$  в  $ac$ -плоскости кристаллов. Эти зависимости представлены на рисунке 6. Данные для  $X(T)$  приведены без учета теплового расширения кристалла.<sup>2</sup> Обращает на себя внимание явно

<sup>1</sup>Органические кристаллы семейства  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu(N(CN)<sub>2</sub>)Br сильно анизотропны, поэтому отклонение кристалла от Т-ориентации может привести к вкладу  $Z_b$ . В данной работе этот вклад не учитывался.

<sup>2</sup>Коэффициент линейного расширения в  $b$ -направлении демонстрирует скачкообразные изменения в области  $T \sim 40$  К и особенно при  $T \sim 80$  К [8]. Этим может вызвано несовпадение кривых  $R(T)$  и  $X(T)$  при высоких температурах.

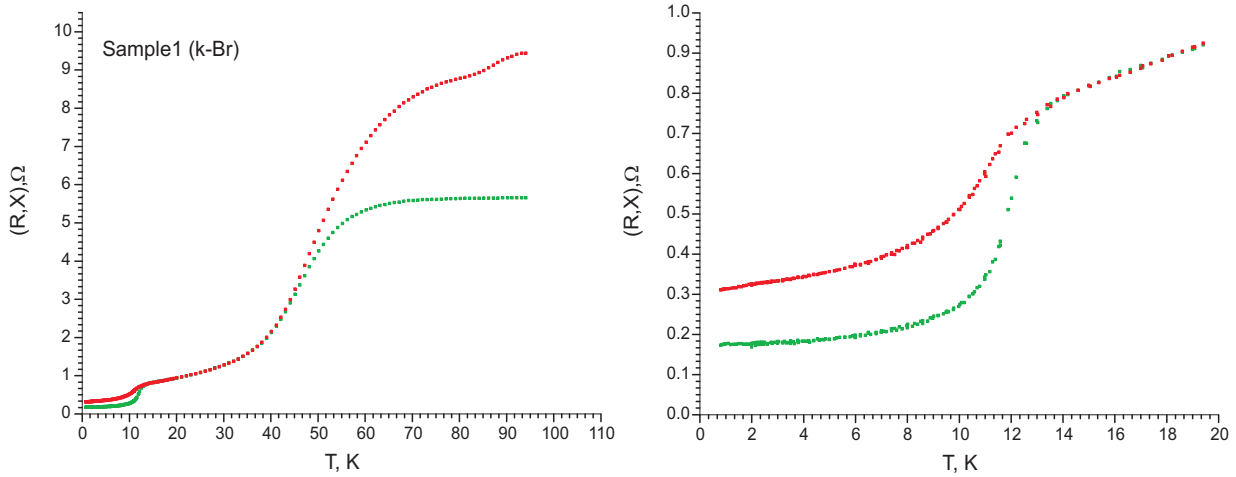
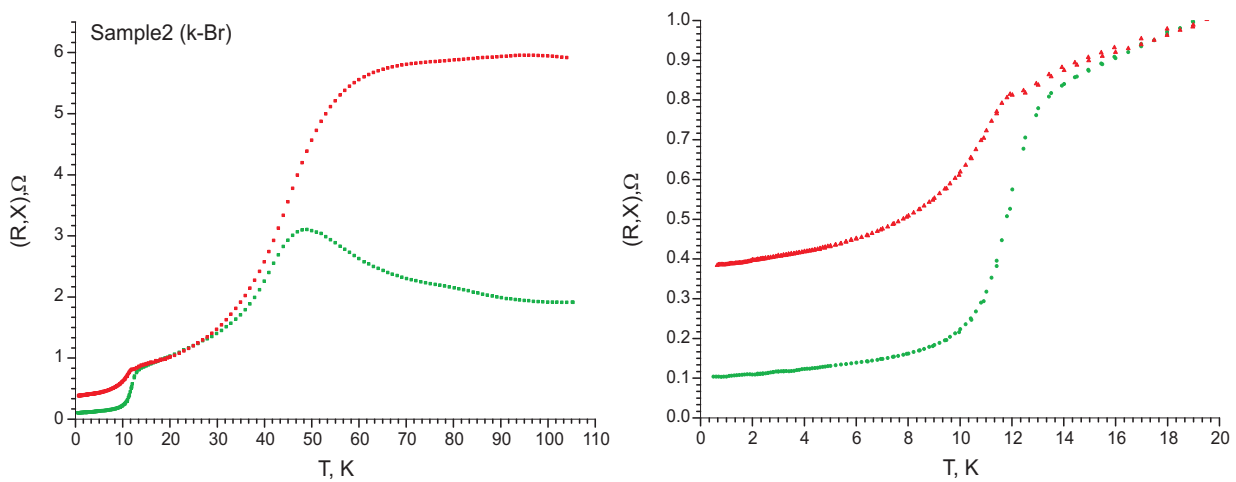
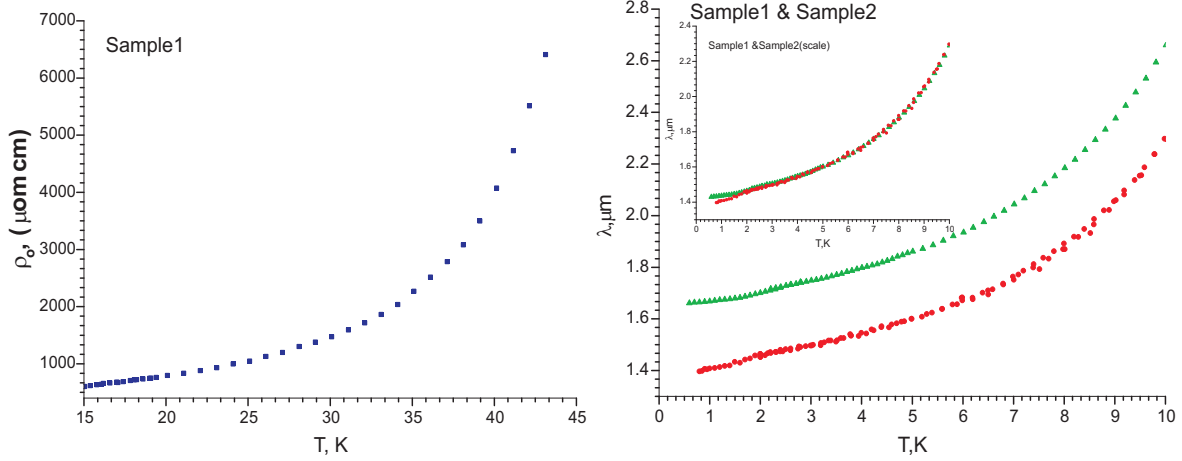
(a)  $R(T)$  (зеленые квадраты) и  $X(T)$  (красные квадраты) для образца 1.(b)  $R(T)$  (зеленые квадраты) и  $X(T)$  (красные квадраты) для образца 2.

Рис. 6: Температурные зависимости  $R$  и  $X$ . Справа показана область сверхпроводящего перехода.

различное поведение кривых  $R(T)$  при  $T > 40$  К в образцах 1 и 2. Вычисленная по формуле нормального скин-эффекта  $\rho(T) = 2R^2(T)/\omega\mu_0$ , зависимость удельного сопротивления в  $ac$ -плоскости для образца 1 показана на рисунке 7(а). Значение  $\rho_{ac}(15\text{К}) \approx 800$  мкОм·см



(а) Температурная зависимость  $\rho_{ac}$  в области нормального скин-эффекта

(б) Данные  $\lambda(T)$  для двух образцов. Зеленые треугольники соответствуют образцу 2, красные кружки — образцу 1. На вставке кривые совмещены делением верхней на 1.16.

Рис. 7:

значительно превышает характерную для нормальных металлов величину  $\sim 10$  мкОм·см. По этому значению сопротивления и данным статьи [9]  $m^* = 3.5m_0$ ,  $S_F = \pi k_F^2 = 6.4 \times 10^{14}$  см $^{-2}$  была сделана оценка для длины свободного пробега  $l_{ac} = 7.5$  нм при  $T \simeq T_c$ .

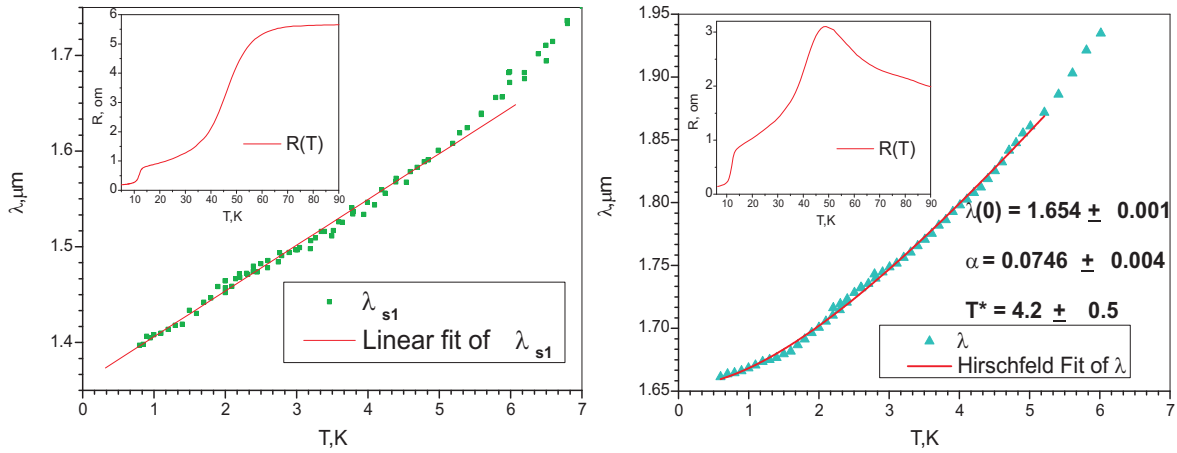
По кривым  $X(T)$  ниже критической температуры можно определить зависимости глубины проникновения поля в образцы от температуры  $\lambda = X/\omega\mu_0$ . Они представлены на рисунке 7(б). Зависимости  $\lambda(T)$  для разных образцов не совпадают, что может быть связано с неточностью определения геометрических факторов образцов, тем не менее, значения глубины проникновения отличаются менее чем на 20% ( $\lambda_1(0) = 1.4$  мкм,  $\lambda_2(0) = 1.7$  мкм), а при делении  $\lambda_2(T)$  на 1.16 кривые практически совпадают, за исключением области  $T < 2$  К. Это показано на вставке к рисунку 7(б).

В зависимости от соотношения длин  $l$ ,  $\xi_0$  и  $\lambda$  при  $T = 0$  сверхпроводники делятся на чистые ( $l > \xi_0$ ) и грязные ( $l < \xi_0$ ), лондоновские ( $\lambda > \xi_0$ ) и пипшардовские ( $\lambda < \xi_0$ ). Согласно этой классификации измеряемые нами кристаллы  $\kappa$ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu(N(CN) $_2$ )Br,

в которых длина когерентности  $\xi_0 \simeq 7$  нм [10], относятся к лондоновским сверхпроводникам на границе чистого и грязного пределов. Поэтому для определения лондоновской глубины проникновения  $\lambda_L(T)$  по измеряемой  $\lambda(T)$  надо пользоваться формулой [11]

$$\frac{1}{\lambda^2} = \frac{1}{\lambda_L^2} \cdot \frac{1}{1 + \xi/l}, \quad (13)$$

где  $\lambda_L$  — лондоновская глубина проникновения. В нашем случае  $\lambda_L(T) \approx \lambda(T)/\sqrt{2}$ .



(a)  $\lambda(T)$  для первого образца.

(b) Зеленые треугольники — данные  $\lambda(T)$  для второго образца. Красная кривая — подгонка этой кривой по формуле  $\Delta\lambda = \frac{\alpha T^2}{T+T^*}$

Рис. 8:  $\lambda(T)$  для обоих образцов. На вставках показано поведение  $R(T)$  в температурном интервале от 5 К до 90 К.

Кривые  $\lambda(T)$  на рисунке 7(b) имеют явно не экспоненциальный вид и, следовательно, кристаллы  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu(N(CN)<sub>2</sub>)Br не являются стандартными БКШ-сверхпроводниками с изотропной  $s$ -типа симметрией параметра порядка. Мы проверили, как экспериментальные данные укладываются на линейную зависимость от температуры, присущую сверхпроводникам с  $d$ -типом симметрии. Это показано на рисунке 8. Данные для образца 1 хорошо укладываются на линейную зависимость

$$\lambda(T) = \lambda(0) + \alpha T = 1.36 + 0.47 * T, [\mu m]$$

при  $T < T_c/2$ , тогда как линейная зависимость от температуры для первого образца есть только в интервале  $2 < T < 5.5$  К, при  $T < 2.5$  К зависимость перестает быть линейной и

переходит в квадратичную. В работе Хиршфельда [6] было показано, что такое поведение может быть вызвано увеличением рассеяния на примесях в области низких температур,<sup>3</sup> и была представлена интерполяционная формула  $\lambda(T) - \lambda(0) = \frac{\alpha T^2}{T+T^*}$ , где  $T^*$  имеет смысл температуры перехода от "чистого" предела к "гидродинамическому". На рисунке 8(b) приведены результаты подгонки по этой формуле. На вставках к рисунку 8 демонстрируется соответствующее  $R(T)$  в нормальном состоянии: на кривой  $R_{s2}(T)$  есть "горб" при  $40 < T < 80$  К, а на  $R_{s1}(T)$  горба нет.

---

<sup>3</sup> Аналогичное поведение  $\lambda(T)$  наблюдается при замещении атомов Сu в YBCO примесями Zn.

## 5 Заключение

1. Сделаны первые прецизионные измерения компонент поверхностного импеданса в  $ac$ -плоскостях сверхпроводящих кристаллов  $\kappa$ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu(N(CN) $_2$ )Br с критической температурой  $T_c \approx 12$  К в интервале  $0.5 < T < 120$  К на частоте 28 ГГц.

2. Из найденного соотношения длин  $\lambda \gg l \approx \xi$  следует, что кристаллы относятся к лондоновским сверхпроводникам, пограничным между чистым и грязным пределами.

3. Из измерений температурных зависимостей  $\Delta\lambda(T)$  при  $T < T_c/2$  следует, что сверхпроводящий параметр порядка в  $\kappa$ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu(N(CN) $_2$ )Br обладает нетривиальной  $d$ -симметрией.

4. Определена величина лондоновской глубины проникновения поля  $\lambda_L(0) \approx 1$  мкм в  $ac$ -плоскости кристаллов  $\kappa$ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu(N(CN) $_2$ )Br.

## Список литературы

- [1] Yu.A. Nefyodov, M.R. Trunin, A.A. Zhohov, et.al., Phys. Rev. B **67**, 144504 (2003).
- [2] М.Р. Трунин, УФН **168**, 931 (1998).
- [3] Ч.Пул, Техника ЭПР-спектроскопии, Мир, (1970).
- [4] A. Carrington, I.J. Bonalde, R. Prozorov, et.al., Phys. Rev. Lett. **83**, 4172 (1999).
- [5] I. Kosztin, Q.J. Chen, B. Janko, and Levin, Phys. Rev. B **58**, R5936 (1998).
- [6] P.J. Hirschfeld and N. Goldenfeld, Phys. Rev. B **48**, 4219 (1993).
- [7] Ch. Strack, C. Akinici, J. Schreuer, et.al., Phys. Rev. B **72**, 054511 (2005).
- [8] J. Muller, M. Lang, F. Steglich, et.al., Phys. Rev. B **65**, 144521 (2002).
- [9] L.P. Muller, G.M. Lang, B.J Sternlieb, et.al., Phys. Rev. Lett. **12**, 1923 (1992).
- [10] W.K. Kwok, et.al. Phys. Rev. B **42**, 8686 (1990).
- [11] М. Тинкхам, Введение в сверхпроводимость (М.: Атомиздат,1980).