

УДК 538.955;538.945;538.915

ВЛИЯНИЕ МАГНИТНЫХ (ФАЗОВЫХ) НЕОДНОРОДНОСТЕЙ НА ПРОВОДИМОСТЬ АНТИФЕРРОМАГНИТНОГО МОНОКРИСТАЛЛА $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ ПРИ НИЗКИХ ТЕМПЕРАТУРАХ

© 2008 г. Н. В. Далакова, Б. И. Белевцев, Е. Ю. Беляев, Ю. А. Колесниченко,
А. С. Панфилов, И. С. Брауде

*Физико-технический институт низких температур им. Б.И. Веркина НАН Украины, Харьков
E-mail: dalakova@ilt.kharkov.ua*

Установлено, что в условиях сильной неоднородности в распределении кислорода в монокристалле $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ может происходить образование изолированных сверхпроводящих включений при средней концентрации дырок не выше 0.0024 на атом меди. Поведение проводимости в магнитном поле ниже 20 К соответствует возможному наличию диэлектрической низкотемпературной магнитной фазы (волны спиновой плотности), свойственной купратам с избыточным кислородом.

Локальные флуктуации и неоднородное распределение зарядовой и спиновой плотности в сильно коррелированных электронных системах приводят к существенному изменению их свойств. Уникальное поведение в этом отношении проявляют высокотемпературные сверхпроводники (ВТСП) из семейства купратов лантана. Нередко это обусловлено типичным для данных систем фазовым разделением (ФР) на области с разной концентрацией носителей заряда и связанными с этим локальными нарушениями структурного и магнитного порядка.

В настоящей работе обнаружено возможное влияние пространственно неоднородного распределения избыточного кислорода на низкотемпературное поведение проводимости монокристалла $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ в антиферромагнитном (АФМ) состоянии. Исходный монокристалл $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ имел температуру Нееля $T_N \approx 266$ К и концентрацию дырок около 0.0025 на атом меди (оценка проведена с использованием данных [1]). Рентгеновское исследование обнаружило наличие двойников, которые неизбежно появляются при охлаждении кристалла ниже точки структурного фазового перехода ($T \approx 530$ К) из тетрагональной фазы в орторомбическую [2]. Вольт-амперные характеристики (ВАХ) этого образца в области малых напряжений имели сравнительно узкий омический участок, на котором в интервале температур 20–250 К выполнялся закон Мотта прыжковой проводимости с переменной длиной прыжка (ПППДП) для 3D-систем [3]:

$$R(T) \propto \exp[(T_0/T)^{1/4}]. \quad (1)$$

Из величины T_0 можно определить длину локализации [3]. Согласно нашей оценке, эта длина в плоскости CuO_2 составляла $L_c \approx 0.4$ нм. При $T < 20$ К

наблюдались отклонения от закона Мотта в сторону уменьшения сопротивления.

Исходный образец был выдержан при комнатной температуре на воздухе в течение 3 лет. Можно ожидать, что в результате такого рода старения распределение кислорода в кристалле должно существенно измениться вследствие довольно высокой подвижности избыточного кислорода и склонности этой системы к ФР. Поскольку дырки в $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ носят в основном кислородный характер [4], это приведет и к неоднородному распределению плотности носителей заряда и к локальному разрушению АФМ порядка в пределах и вблизи границ обогащенных дырками областей (появляющихся вследствие характерного для легированных купратов ФР [4]). Результаты влияния подобного рода неоднородностей на транспортные свойства образца $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ представлены ниже.

Температура Нееля после 3-летней выдержки образца составила 269 К, а концентрация дырок в результате старения уменьшилась до 0.0024. Незначительное изменение T_N по сравнению с исходным состоянием свидетельствует о небольшом уменьшении концентрации кислорода и носителей заряда. Это дает основание полагать, что наблюдаемые изменения в поведении транспортных свойств в основном обусловлены не изменением средней концентрации дырок, а перераспределением кислорода и носителей заряда по объему кристалла.

Измерение электросопротивления вдоль плоскостей CuO_2 проводилось при постоянном значении тока через образец. Величина тока варьировалась от 0.03 до 2 мкА. Температурная зависимость $R(T)$ в интервале 5–100 К при нескольких значениях тока показана на рис. 1а и 1б. Видно, что с понижением температуры при ~ 45 К начинается отклонение от закона Мотта (рис. 1а) в сторону уменьше-

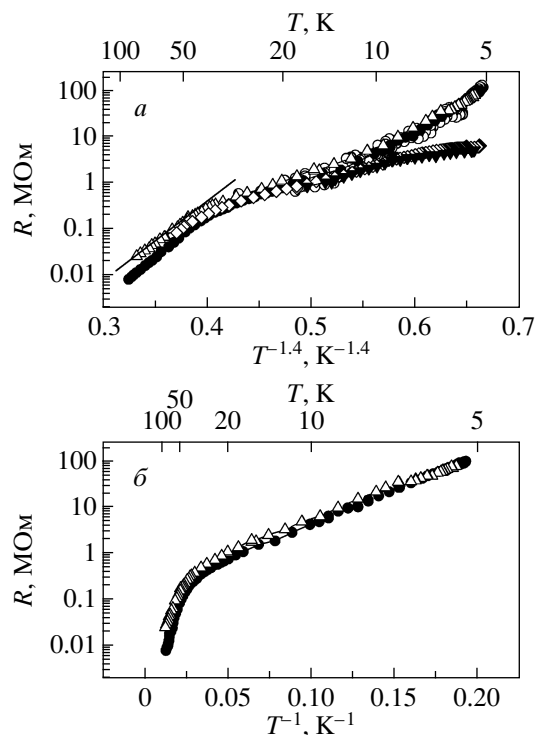


Рис. 1. *a*) Температурная зависимость электросопротивления $R = f(T^{-1.4})$ монокристалла $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ ($T_N \approx 269$ К) при различных значениях измерительного тока: \circ – 0.03 мкА, \bullet – 0.06 мкА, \triangle – 0.2 мкА, \diamond – 0.5 мкА, \blacktriangledown – 2 мкА; *б*) – зависимость $R = f(T^{-1})$ для токов 0.06 мкА (\bullet) и 0.2 мкА (\triangle).

ния сопротивления, а при $T < 25$ К и токах $J \leq 0.2$ мкА осуществляется переход к простой активационной зависимости $R \propto \exp(\Delta/kT)$, где $\Delta = 32.4$ К (рис. 1б). Выше 45 К зависимость $R(T)$ при токе 0.2 мкА описывается уравнением (1) с $T_0 \approx 2.3 \cdot 10^6$ К, что соответствует длине локализации $L_c \approx 0.262$ нм. Полученное значение L_c значительно меньше параметров орторомбической решетки в плоскости CuO_2 ($a \approx b \approx 0.54$ нм). Это указывает на существенно более сильную локализацию и на более неоднородное распределение носителей заряда по сравнению с исходным состоянием.

Поведение $R_{ab}(T)$ в области температур $T < 50$ К является неомическим, демонстрируя сильную зависимость сопротивления от тока. При некотором критическом значении тока $J > 0.2$ мкА происходит резкое уменьшение сопротивления (рис. 1а). Изменения $R(T, J)$ коррелируют с поведением ВАХ в интервале температур 5–80 К. Типичное поведение ВАХ и соответствующих зависимостей сопротивления от тока показано на рис. 2а и 2б. Зависимости $U(J)$ и $R(J)$ существенно нелинейны и имеют участок контролируемого током отрицательного дифференциального сопротивления (ОДС). Стрелками отмечены характерные токи J_1 и J_2 . Ток

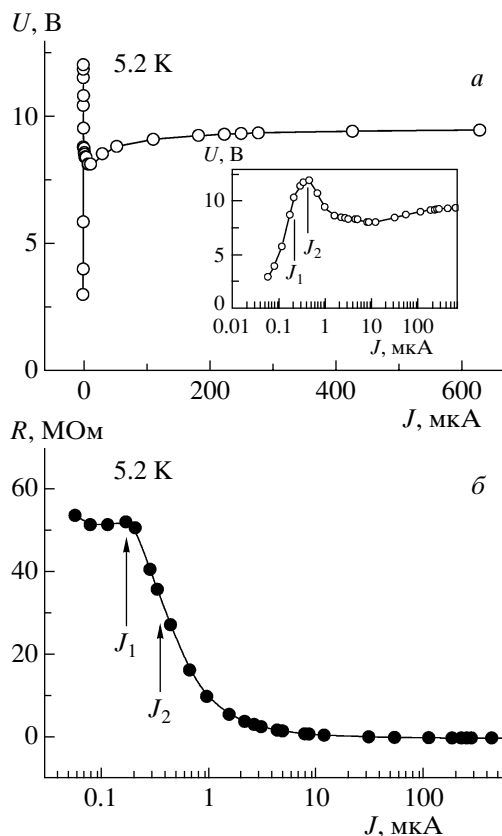


Рис. 2. *a* – вольт-амперная характеристика монокристалла $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ при $T = 5.2$ К. На вставке показана та же зависимость в полулогарифмических координатах; *б* – соответствующая зависимость сопротивления от тока.

J_1 соответствует точке перегиба на возрастающем участке зависимости $U(J)$ (вставка на рис. 2а) и точке кроссовера на кривой $R(J)$ (рис. 2б). Ток J_2 соответствует максимуму на кривой зависимости $U(J)$ и точке перегиба нижней ветви зависимости $R(J)$. Эти особенности поведения ВАХ повторяются для всех температур в интервале 5–80 К. Сравнение кривых ВАХ с температурными зависимостями сопротивления показывает, что изменение характера зависимости $R(T)$ происходит при $J = J_1$. Простая экспоненциальная зависимость имеет место при токах $J \leq J_1$ ($J_1 = 0.2$ мкА). Отклонение от закона $R \propto \exp(1/T)$ (см. рис. 2) происходит при токах $J > J_2$ ($J_2 = 0.44$ мкА).

Поведение магнитосопротивления (МС) исследованного монокристалла $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ также зависит от величины транспортного тока в температурном интервале 5–80 К. МС положительно при малых токах в области низких температур $T \leq 17$ К. Положительное МС наблюдалось в области температур и токов, где выполняется закон $R \propto \exp(\Delta/kT)$. МС становилось отрицательным при увеличении температуры или тока (рис. 3). Выше 17 К наблюдалось только отрицательное МС, величина которого уменьшалась с увеличением тока.

Известно, что в режиме прыжковой проводимости при достаточно низких полях ($E \ll kT/er_h\gamma$) сопротивление не зависит от поля (здесь r_h – средняя длина прыжка, γ – численный множитель порядка единицы). Согласно проведенной оценке, это в значительной степени справедливо и для исследованного образца, поэтому наблюдаемое нелинейное поведение ВАХ (рис. 2) не может быть явно связано с влиянием электрического поля на прыжковую проводимость однородной системы. В то же время слабая зависимость сопротивления от тока при $J \geq 1$ мкА говорит об отсутствии джоулева разогрева.

Наблюдаемая в области низких температур зависимость $R \propto \exp(\Delta/kT)$ свидетельствует о том, что в результате кислородного разупорядочения в спектре квазичастичных возбуждений, участвующих в переносе заряда, появилась щель $\Delta = 32.4$ К. Интересно выяснить природу этой щели.

Обнаруженные изменения в поведении прыжковой проводимости ниже 25 К хорошо соответствуют известным явлениям в неоднородных системах, представляющих собой смеси диэлектрической и сверхпроводящей фаз. При охлаждении такой системы ниже T_c осуществляется переход от ПППДП к зависимости $R \propto \exp(\Delta/kT)$, где Δ – сверхпроводящая щель, играющая роль диэлектрической щели [5, 6]. В нашем случае образование сверхпроводящей фазы может быть связано с ФР в купратах лантана [4, 7] на две фазы с $\delta \approx 0$ и $\delta > 0$. Ранее переход к простой экспоненциальной зависимости в $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$, обусловленный неоднородным распределением кислорода, наблюдался при $T < 20$ К для существенно менее резистивного образца с $L_c \approx 1$ нм [8] и концентрацией дырок 0.0044. Исследованный образец имеет гораздо меньшую среднюю концентрацию дырок и меньшую длину локализации (0.26 нм). В то же время он характеризуется большей степенью неоднородности вследствие предполагаемого усиления неоднородного распределения кислорода при длительной выдержке (старение). Именно ФР определяет, по нашему мнению, наблюдаемые особенности низкотемпературного поведения сопротивления исследованного образца. С понижением температуры обогащенные кислородом изолированные области переходят в сверхпроводящее состояние. В результате уменьшения плотности одночастичных возбуждений и слабой связи между изолированными сверхпроводящими включениями при достаточно низких температурах осуществляется переход от зависимости (1) к более сильной простой экспоненциальной зависимости. Увеличение тока приводит к распариванию носителей и, возможно, в условиях сильной неоднородности, к их разогреву. Оба эти механизма должны вызывать понижение сопротивления, что мы и наблюдаем при токах $J > 0.2$ мкА.

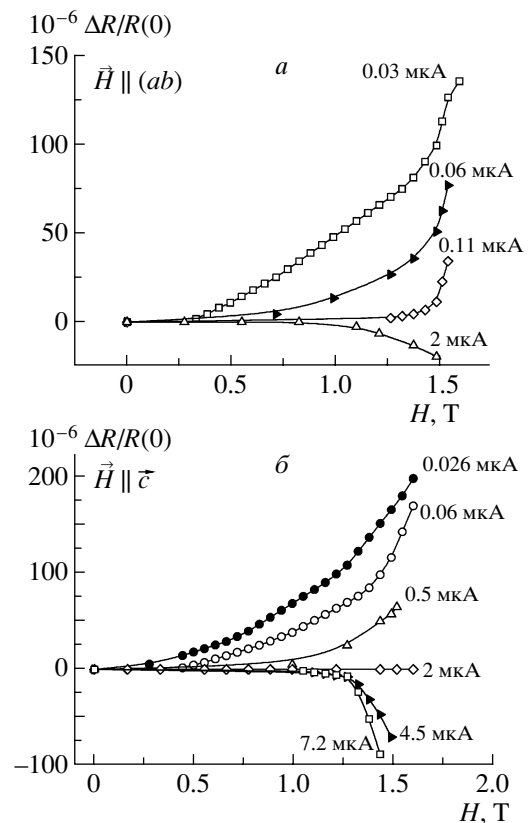


Рис. 3. Магнитополевые зависимости магнитосопротивления при разных значениях транспортного тока $J \parallel (ab)$ для двух направлений магнитного поля: $\vec{H} \parallel (ab)$ и $\vec{H} \parallel \vec{c}$.

Подавление локальной сверхпроводимости магнитным полем также должно приводить к распариванию носителей заряда и понижению сопротивления [5], однако в области низких температур и достаточно малых токов мы наблюдали положительное МС. Этот результат представляется неожиданным. Одно из объяснений такого поведения МС может быть связано с низкотемпературной магнитной фазой в системе $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$, сосуществующей со сверхпроводящей фазой. Как показали исследования фазового разделения в образцах купратов лантана с избытком кислорода, диэлектрическая фаза в смешанном состоянии ниже 40 К не является фазой Нееля, а представляет собой новое магнитное состояние – волну спиновой плотности [9]. Относительный объем этой фазы увеличивается с понижением содержания избыточного кислорода (при соответствующем понижении T_c), поэтому слаболегированный $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ обладает большим содержанием этой магнитной фазы и соответственно меньшим содержанием сверхпроводящей фазы. Магнитное поле стабилизирует магнитную фазу за счет уменьшения объемной доли сверхпроводящей фазы, имитируя изменения в степени легирования [9]. Механизм этого влияния

в настоящее время непонятен, однако ясно, что в таком случае магнитное поле должно индуцировать положительное МС.

Таким образом, из проведенного исследования следует, что в условиях сильной неоднородности образца при температуре $T < 25$ К фазовое разделение даже в $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ с малым количеством избыточного кислорода (с концентрацией дырок не больше 0.0024 на атом меди) может приводить к образованию изолированных областей (кластеров) сверхпроводящей фазы. Магниторезистивное поведение образца в этой области температур может быть связано с наличием диэлектрической низкотемпературной магнитной фазы (волной спиновой плотности) в соответствии с результатами [9].

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Chen C.Y. et al.* // Phys. Rev. B. 1991. V. 43. P. 392.
2. *Kastner M.A., Birgeneau R.J. et al.* // Rev. Mod. Phys. 1998. V. 70. P. 897.
3. *Mott N.F., Davis E.A.* // Electron Processes in Noncrystalline Materials. Oxford: Clarendon Press, 1979.
4. *Kremer R.K., Simon A. et al.* // Phase Separation in Cuprate Superconductors / Eds Sigmund E., Müller K.A. Heidelberg: Springer-Verlag, 1994. P. 66.
5. *Белевцев Б.И.* // Успехи физ. наук. 1990. Т. 160. С. 65.
6. *Ефетов К.Б.* // ЖЭТФ. 1980. Т. 78. С. 2017.
7. *Well B.O., Lee Y.S., Kastner M.A. et al.* // Science. 1997. V. 277. P. 1067.
8. *Белевцев Б.И., Далакова Н.В., Панфилов А.С.* // Физика низких температур. 1997. Т. 23. С. 375.
9. *Monottala H.E. et al.* // Nature Mater. 2006. V. 51. P. 377.