

УДК:538.9:538.945:538.955

## ИЗМЕНЕНИЯ ТЕМПЕРАТУРНОГО ПОВЕДЕНИЯ ПРОВОДИМОСТИ МОНОКРИСТАЛЛА $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ ПРИ ПЕРЕХОДЕ ПАРАМАГНЕТИК–АНТИФЕРРОМАГНЕТИК

© 2011 г. Н. В. Далакова, Б. И. Белевцев, А. С. Панфилов, Е. Ю. Беляев

Физико-технический институт низких температур имени Б.И. Веркина НАН Украины, Харьков

E-mail: dalakova@ilt.kharkov.ua

С целью обнаружения корреляции транспортных и магнитных свойств была изучена температурная зависимость сопротивления  $R(T)$  монокристалла  $\text{La}_2\text{CuO}_{(4+\delta)}$  ( $\delta \approx 0.05$ ) с температурой Нееля  $T_N \approx 205$  К. Вблизи  $T_N$  на зависимости  $R(T)$  обнаружен излом, связанный с усилением проводящих свойств образца при переходе из антиферромагнитного в парамагнитное состояние. При повышении температуры значительно выше  $T_N$  наблюдали переход из диэлектрического ( $dR/dT < 0$ ) в металлическое состояние ( $dR/dT > 0$ ). Наблюдаемое поведение сопротивления связано с делокализацией носителей заряда выше  $T_N$ .

Исследование купратных сверхпроводников – это одна из фундаментальных проблем физики твердого тела. Природа сверхпроводимости в этих соединениях (открытых более 20 лет назад) все еще недостаточно ясна. Однако понятно, что их магнитные и сверхпроводящие свойства тесно взаимосвязаны. В нормальном состоянии проводящие свойства также могут существенно зависеть от магнитного состояния системы. Например, в монокристалле  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  метамагнитный переход из антиферромагнитного (АФМ) в слабоферромагнитное состояние вызывает резкое увеличение проводимости [1, 2]. Исследование взаимодействия между носителями заряда и магнитной подсистемой важно не только для высокотемпературных сверхпроводников, но, вообще, для широкого класса магнитных проводников и полупроводников.

Цель данной работы – поиск возможной корреляции транспортных и магнитных свойств в монокристалле  $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ . Нелегированный  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  является АФМ-изолятором с  $T_N \approx 320$  К [3]. Его легирование избыточным кислородом ( $\delta \neq 0$ ) вызывает появление носителей заряда (дырок) и подавляет АФМ-порядок (понижает  $T_N$ ). Эти свойства монокристалла  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  в значительной степени определяются его кристаллической и магнитной структурой [3, 4]. В исследованной нами температурной области (ниже 430 К)  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  имеет орторомбическую решетку перовскитного типа, состоящую из чередующихся слоев  $\text{CuO}_2$  и  $\text{La}_2\text{O}_2$ . В пространственной группе  $Bmab$  слои  $\text{CuO}_2$  перпендикулярны оси  $c$  и параллельны плоскости  $(ab)$  [3]. Предполагается, что носители заряда (дырки) имеют главным образом кислородный характер. Нестехиометрический кислород ( $\delta \neq 0$ ) локализован в слоях  $\text{La}_2\text{O}_{2+\delta}$  между соседними плоскостями  $\text{CuO}_2$  [5]. Это обеспечивает делокализацию дырок из плоскостей  $\text{CuO}_2$  и приводит к 3D-характеру проводимости. Магнитная

структура образована ионами меди  $d^9\text{Cu}^{2+}$  со спином  $S = 0.5$ . Спины на соседних узлах  $\text{Cu}^{2+}$  противоположно направлены и лежат вдоль орторомбической оси  $b$  (направление  $\text{Cu}-\text{Cu}$ ) в плоскости  $(bc)$ . Эти спины наклонены ( $\approx 0.17^\circ$ ) относительно оси  $b$ . Каждый слой  $\text{CuO}_2$  имеет слабый ферромагнитный момент, перпендикулярный этому слою. Ниже  $T_N$  магнитные моменты в соседних плоскостях  $\text{CuO}_2$  направлены в противоположные стороны, поэтому система в целом ведет себя как 3D АФМ [1].

Хорошо известно, что в металлических проводниках переход из парамагнитного (ПМ) в АФМ-состояние обычно сопровождается уменьшением магнитной части электросопротивления, что вызывает излом на температурной зависимости  $R(T)$  [6] или даже заметный скачок электросопротивления при переходе в АФМ-состояние [7]. В магнитных полупроводниках влияние спинового упорядочения на электросопротивление при  $T \leq T_N$  все еще недостаточно хорошо изучено. Однако известно [8, 9], что проводимость в этих системах демонстрирует слабый излом  $R(T)$  при  $T \approx T_N$ . Можно ожидать, что подобный эффект будет иметь место и в проводимости  $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ .

Следует отметить, что влияние перехода ПМ–АФМ на температурную зависимость электросопротивления изучали ранее для некоторых слабодопированных (underdoped) купратных сверхпроводников. Например, для монокристалла  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+\delta}$  на температурной зависимости сопротивления перпендикулярно базовой плоскости обнаружена явная особенность вблизи  $T_N$ , тогда как в случае, когда ток направлен параллельно слоям  $\text{CuO}_2$ , электросопротивление не обнаруживает никаких особенностей при  $T = T_N$  [10]. Такое же поведение было обнаружено для слабодопированного  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  [11]. В обоих случаях это отражает сильную анизотропию

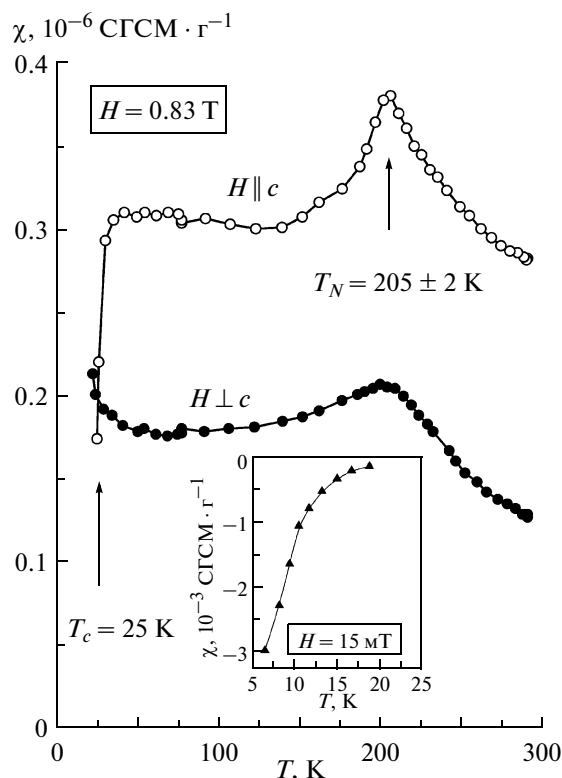


Рис. 1. Температурная зависимость магнитной восприимчивости. На вставке показан диамагнитный отклик в сверхпроводящем состоянии.

квазидвумерной (2D) проводимости этих слоистых соединений.

В целом анализ известных литературных данных показывает, что однозначного ответа на вопрос о наличии аномалии транспортных свойств в области АФМ-перехода в купратах нет. Остаются без ответа некоторые критические вопросы, связанные с этим эффектом. Например, в тех случаях, когда вблизи  $T_N$  аномалия наблюдается, важно знать, насколько она универсальна и какие факторы за нее отвечают. Мы полагаем, что результаты наших исследований помогут ответить на эти вопросы.

Нами использован образец монокристалла  $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$  (с размерами  $1.5 \times 2 \times 2 \text{ мм}^3$ ). Ранее этот образец изучали в [12]. В этой работе было оценено значение  $\delta \approx 0.05$  и было показано, что этот образец должен быть неоднородным и состоять из смеси АФМ и сверхпроводящей фаз. Измеренная в настоящей работе температурная зависимость магнитной восприимчивости  $\chi(T)$  (рис. 1) действительно показывает как АФМ- ( $T_N = 205 \pm 2 \text{ К}$ ), так и сверхпроводящий ( $T_c \approx 25 \text{ К}$ ) переходы, что отражает состояние фазового разделения. Найденные нами значения  $T_N$  и  $T_c$  хорошо соответствуют значениям, полученным в [12].

Температурная зависимость сопротивления  $\rho(T)$  была измерена с использованием четырехзондового метода в нулевом магнитном поле ( $H = 0$ ) при токе

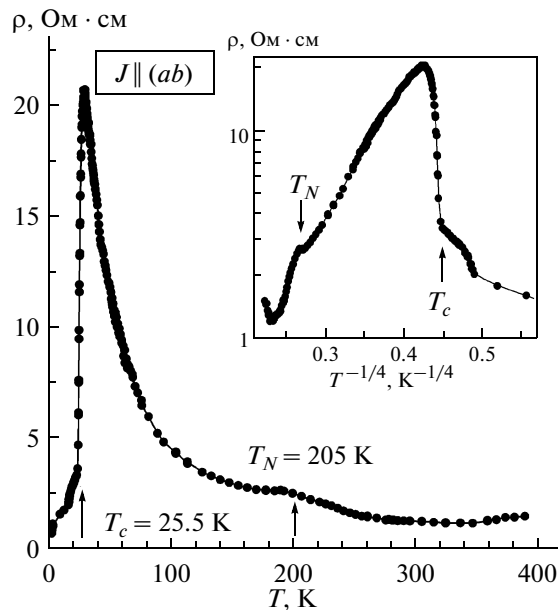


Рис. 2. Температурная зависимость сопротивления в плоскости (ab).

$J \leq 100 \text{ мкА}$ . Ток пропускали как вдоль, так и поперек плоскостей  $\text{CuO}_2$ . Величину тока выбирали, исходя из измеренных ВАХ, так, чтобы закон Ома выполнялся во всей температурной области измерений. Температурное поведение  $\rho(T)$ , записанное для тока, направленного вдоль плоскостей  $\text{CuO}_2$  (рис. 2), находится в полном соответствии с  $\chi(T)$ , показывая резистивный сверхпроводящий переход с  $T_c \approx 25.5 \text{ К}$  и явную особенность (излом) вблизи  $T_N \approx 205 \text{ К}$ .

Несмотря на наличие сверхпроводящего перехода, прыжковая проводимость с переменной длиной прыжка (ПППДП)  $[\ln \rho(T)] \propto T^{-1/4}$  [13] также проявляется в этом образце в интервале температур между  $T_c$  и  $T_N$  (рис. 2). Видно, что в области выше  $T_N$  скорость уменьшения сопротивления с ростом температуры увеличивается. Кроме того, намного выше  $T_N$  (при  $T_{\min} \approx 350 \text{ К}$  там, где появляется минимум электросопротивления) имеет место переход от неметаллического поведения  $R(T)$  ( $d\rho/dT < 0$ ) к металлическому ( $d\rho/dT > 0$ ). Сверхпроводящий резистивный переход при направлении тока в плоскости  $\text{CuO}_2$  довольно резок (рис. 2).  $T_c \approx 25.5 \text{ К}$  определяется как температура точки перегиба на кривой  $R(T)$ , которая найдена по изменению производной  $dR/dT$ . В низкотемпературной области резистивного перехода (при  $T \leq 25.5 \text{ К}$ ) можно видеть отчетливое “плечо” на кривой  $\rho(T)$ , которое обычно наблюдается в гранулированных сверхпроводниках (высокотемпературных и низкотемпературных) с довольно слабыми связями между гранулами [14, 15]. Можно предположить, что сверхпроводящие области в этом неоднородном образце образуют некоторую достаточно протяженную цепочку, дающую достаточно резкий резистивный сверхпроводящий пере-

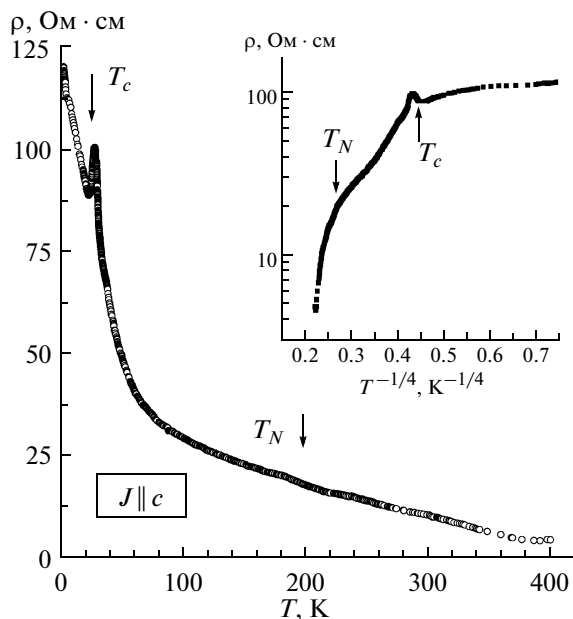


Рис. 3. Температурная зависимость сопротивления в направлении, перпендикулярном плоскости ( $ab$ ).

ход. Однако некоторые связи в этой цепочке оказываются слабыми, и они определяют плечо в низкотемпературной части на кривой резистивного перехода [14, 15].

Сопротивление в направлении, перпендикулярном плоскости ( $ab$ ) ( $J \parallel c$ ) (рис. 3) намного больше, чем сопротивление для тока, направленного вдоль плоскостей ( $ab$ ). Тем не менее и в этом случае температурная зависимость сопротивления имеет основные черты, подобные тем, которые наблюдаются для тока, направленного вдоль плоскости. Сверхпроводимость проявляет себя как заметное падение сопротивления при приближении к температуре перехода  $T_c \approx 25.5$  К со стороны более высоких температур. Однако сопротивление не падает до нуля, что свидетельствует о более высокой фазовой неоднородности в этом направлении, в результате чего непрерывный сверхпроводящий канал не образуется. Изменение в поведении  $\rho(T)$  после увеличения температуры выше  $T_N$  идентично поведению для тока, направленного вдоль плоскостей  $\text{CuO}_2$ . Также имеет место переход от неметаллического к металлическому поведению  $\rho(T)$  (наблюдается минимум сопротивления при  $T_{\min} \approx 385$  К).

Полученные результаты демонстрируют явную взаимосвязь между магнитными и проводящими свойствами слабодопированного  $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ . Выше  $T_N$  система становится менее резистивной и более металлической, а при дальнейшем повышении температуры существенно выше  $T_N$  имеет место переход неметалл–металл. Это согласуется с известными теоретическими концепциями и некоторыми экспериментами [16]. Согласно этим представлениям, АФМ-порядок усиливает локализацию дырок, а тепловые

возбуждения разрушают АФМ-порядок и приводят к делокализации носителей, так что выше  $T_N$  при увеличении температуры система может приближаться к металлическому состоянию. При  $T \approx T_N$  исчезает только межплоскостной АФМ-порядок, тогда как АФМ-порядок внутри плоскостей  $\text{CuO}_2$  может сохраняться даже при температурах, намного превышающих  $T_N$ . В то же время длина АФМ-корреляций  $\zeta_{\text{AF}}$  очень сильно уменьшается с ростом температуры выше  $T_N$  [3], и это должно сопровождаться увеличением подвижности дырок [17]. Сильное увеличение проводимости выше  $T_N$  в некоторых случаях может привести к переходу неметалл–металл, что и наблюдалось в наших исследованиях. Эти эффекты проявляются для проводимости как в плоскостях  $\text{CuO}_2$ , так и в направлении, перпендикулярном этим плоскостям. Это связано с 3D-характером прыжковой проводимости в  $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ .

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Tineke Thio, Thurston T.R., Preyer N.W. et al. // Phys. Rev. B. 1988. V. 38. P. 905.
2. Belevtsev B.I., Dalakova N.V., Savitsky N.V. et al. // Low Temp. Phys. 2004. V. 30. P. 411.
3. Kastner M.A., Birgeneau R.J., Shirane G., Endoh Y. // Rev. Mod. Phys. 1998. V. 70. P. 897.
4. Vaknin D., Sinha S.K., Moncton D.E. et al. // Phys. Rev. Lett. 1987. V. 58. P. 2802.
5. Kremer R.K., Simon A., Sigmund E., Hizhnyakov E. // Phase Separation in Cuprate Superconductors / Ed. Sigmund E., Müller K.A. / Heidelberg: Springer, 1994. P. 66.
6. Gratz E., Zuckermann M.J. // Handbook of the Physics and Chemistry of the Rare Earths / Ed. Gschneidner K.A., Jr, Eyring L. / Amsterdam: North-Holland, 1982. P. 117.
7. Belevtsev B.I., Hennings B.D., Rathnayaka K.D.D., Naugle D.G. // Studies of High Temperature Superconductors / Ed. Narlicar A.V. N.-Y.: Nova Sci. Publ., 2003. V. 46. P. 99.
8. Methfessel S., Mattis D.C. Magnetic Semiconductors (Handbuch der Physik Bd. XVIII/1) / Berlin: Springer, 1968.
9. Нагаев Э.Л. Физика магнитных полупроводников. М.: Наука, 1979.
10. Lavrov A.N., Ando Yoichi, Segawa Kouji, Takeya J. // Phys. Rev. Lett. 1999. V. 83. P. 1419.
11. Komiya Seiki, Ando Yoichi, Sun X.F., Lavrov A.N. // Phys. Rev. B. 2002. V. 65. 214535.
12. Gnezdilov V.P., Pashkevich Yu.G., Tranquada J.M. et al. // Phys. Rev. B. 2004. V. 69. 174509.
13. Momm H., Дэвис Э. Электронные процессы в некристаллических веществах. М.: Мир, 1979.
14. Belevtsev B.I. // Sov. Phys. Usp. 1990. V. 33. P. 36.
15. Belevtsev B.I., Beliayev E.Yu., Naugle D.G. et al. // J. Phys.: Condens. Matter. 2007. V. 19. 036222.
16. Lavrov A.N., Kozeeva L.P., Trunin M.R., Zverev V.N. // Phys. Rev. B. 2009. V. 79. 214523.
17. Ando Y., Lavrov A.N., Komiya S. et al. // Phys. Rev. Lett. 2001. V. 87. 017001.