

УДК 538.9:537.312.6:537.312.7:537.312.8

РЕЗИСТИВНЫЕ СВОЙСТВА НИЗКОЛЕГИРОВАННЫХ КУПРАТОВ $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ В АНТИФЕРРОМАГНИТНОМ СОСТОЯНИИ ПРИ НИЗКИХ ТЕМПЕРАТУРАХ

© 2012 г. Н. В. Далакова¹, Б. И. Белевцев¹, Н. П. Бобрышева², А. С. Панфилов¹,
Е. Ю. Беляев¹, А. А. Селютин²

E-mail: dalakova@ilt.kharkov.ua

Обнаружены нелинейные эффекты проводимости и отрицательное дифференциальное сопротивление керамических образцов $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ в антиферромагнитном состоянии. Обсуждено возможное влияние пространственно неоднородного распределения примеси стронция на низкотемпературное поведение проводимости.

Интерес к изучению сложных окислов переходных металлов, к которым относятся и высокотемпературные сверхпроводники (ВТСП), объясняется уникальным сочетанием необычных физико-химических свойств этих соединений. Для технических приложений представляют интерес системы, у которых на кривых вольт-амперных характеристик (ВАХ) имеется участок отрицательного дифференциального сопротивления (ОДС). Поискам условий возникновения ОДС, а также систем, в которых эти условия могут быть реализованы, было посвящено достаточно большое количество как теоретических, так и экспериментальных работ. Известно, что одно из условий возникновения ОДС – наличие примесей, дефектов, или какого-либо рода неоднородностей, создающих неоднородное распределение электрического поля внутри образца на микроскопическом уровне. В связи с этим перспективен поиск ОДС в низколегированных купратах. Присущее этим системам термодинамическое фазовое разделение (ФР) на области с разной концентрацией легирующего элемента создает естественную (intrinsic) неоднородность распределения заряда. Помимо intrinsic-неоднородности в ВТСП-купратах может проявляться неизбежная неоднородность, связанная с внешним (extrinsic) фактором [1]. Этот вид неоднородности зависит от технологии приготовления и плохо контролируется в системах с низким уровнем легирования. Обычные методы контроля (рентгеновская дифракция, электронная микроскопия) недостаточно точны для регистрации неоднородности в таких системах. В то же время магнитные и транспортные свойства очень чувствительны к композиционной неоднородности слаболегированных систем. Возможно, по этой причине экспериментальные данные для низколегированных образцов

одинакового состава в разных работах довольно сильно различаются. Мы полагаем, что в исследованных нами образцах $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ присутствуют неоднородности обоих типов.

Экспериментальные исследования купратов показывают, что ФР в значительной степени определяет нелинейное поведение их транспортных свойств. Ранее обусловленные ФР нелинейные эффекты проводимости были обнаружены в диэлектрических монокристаллических образцах $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ [2–4]. А в работах [3, 4] наблюдали контролируемое током ОДС. Несмотря на определенный прогресс в понимании природы нелинейного поведения проводимости купратов, эффекты ОДС в слаболегированных ВТСП еще недостаточно изучены экспериментально. Известные теоретические модели в основном применимы к полупроводникам, поскольку, как правило, построены на использовании особенностей зонной структуры полупроводников. До сих пор не ясно, является ли ОДС общим свойством купратов с ФР, насколько сильно влияет зарядовое и спиновое разупорядочение на пороговый ток и температуру перехода к режиму ОДС. Для выяснения этих вопросов интересно исследовать купраты одинакового состава с низким уровнем легирования и разной концентрацией примеси. Мы предполагаем, что уменьшение концентрации легирующего элемента должно приводить к увеличению неоднородности распределения примеси и к усилению нелинейных эффектов в проводимости.

В данной работе исследовали слаболегированные керамические образцы $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$, полученные стандартным методом твердофазного синтеза. Были измерены два образца, в которых содержание стронция различалось в 10 раз ($x = 0.001$ и 0.01). Концентрацию стронция в приготовленных образцах контролировали посредством высокочувствительного WDS-спектрометра MICROSPEC. Пробы брали в пяти участках

¹ Физико-технический институт низких температур им. Б.И. Веркина НАН Украины, Харьков.

² Санкт-Петербургский государственный университет.



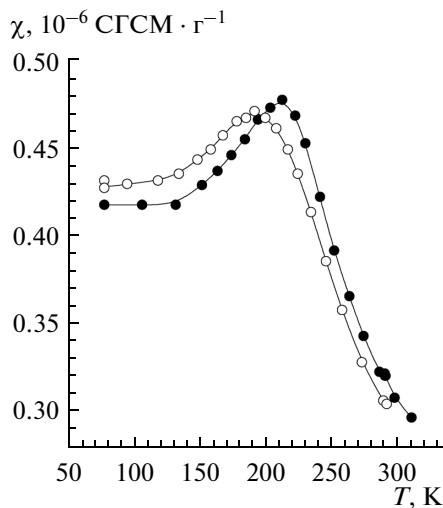


Рис. 1. Температурная зависимость магнитной восприимчивости двух образцов $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$: ● — $x = 0.001$ ($T_N = 212 \pm 2$ К), ○ — $x = 0.01$ ($T_N = 193 \pm 3$ К).

образца. Проверка содержания Sr показала, что в керамике с минимальным содержанием Sr ($x = 0.001$) концентрация Sr в пробных участках составила 0.002. Это говорит о том, что в образце с $x = 0.001$ существуют области, обедненные и обогащенные стронцием по сравнению с ожидаемой средней концентрацией. Температура перехода в антиферромагнитное состояние (АФМ), определенная по положению пика на кривой температурной зависимости магнитной восприимчивости, составила 212 и 193 К для образцов с $x = 0.001$ и $x = 0.01$ соответственно (рис. 1). Из рис. 1 видно, что переход в АФМ-состояние для обоих образцов размыт по температуре. Это свидетельствует о магнитной неоднородности образцов. Используя данные работы [5] и найденные значения температуры Нееля, мы оценили концентрацию дырок на атом меди, которая составила 0.00552 и 0.00654 для образцов с $x = 0.001$ и $x = 0.01$. Представляется неожиданным, что при увеличении содержания стронция в шихте в 10 раз T_N и концентрация дырок увеличилась незначительно (на ~18%). Этот факт может служить еще одним подтверждением неоднородного распределения примеси Sr и носителей заряда (дырок) в обоих образцах. Результаты измерения температурной зависимости сопротивления представлены на рис. 2. Резистивные измерения проводили по четырехпроводной схеме в режиме заданного тока. При температуре $T < 100$ К для обоих образцов выполняется закон Мотта прыжковой проводимости с переменной длиной прыжка (ПППДП) для 3D систем [6]: $R(T) \propto \exp[(T_0/T)^{1/4}]$. С понижением температуры имеет место отклонение от закона Мотта в сторону уменьшения сопротивления. Температура начала отклонения от закона Мотта для более резистивного образца с меньшей концентрацией $x =$

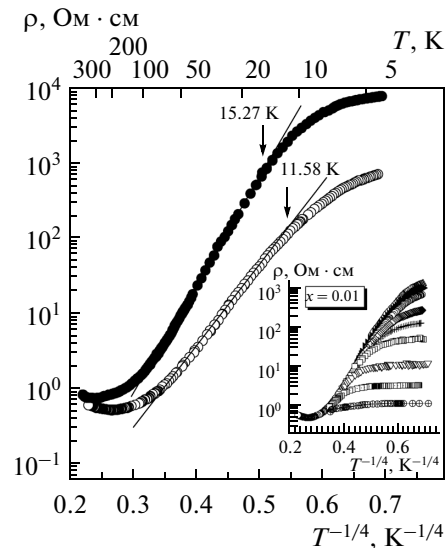


Рис. 2. Температурные зависимости удельного сопротивления, $\rho(T)$, двух образцов $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$, измеренные при токе $J = 100$ мкА: ● — $x = 0.001$, ○ — $x = 0.01$. Прямые линии показывают область выполнения закона Мотта. На вставке показаны зависимости $\rho(T)$ образца с $x = 0.01$ при разных значениях транспортного тока от 0.5 мкА (верхняя кривая) до 100000 мкА (нижняя кривая).

$= 0.001$ выше, чем для образца с $x = 0.01$, и составляет 15.27 К при токе $J = 100$ мкА (рис. 2). Для обоих образцов эта температура увеличивается с увеличением тока. Это видно на примере образца с $x = 0.01$ (вставка на рис. 2). Оценив значения T_0 и зная плотность состояний носителей заряда на уровне Ферми $N(E_F) = 2.8 \cdot 10^{46}$ Дж⁻¹ · м⁻³ [7], можно рассчитать длину локализации носителей заряда. Она оказалась равной 0.32 нм для $x = 0.001$ и 0.478 нм для $x = 0.01$. При такой низкой концентрации носителей заряда и малой расчетной длине локализации (если сравнивать ее с параметрами решетки) следует ожидать, что проводимость образцов при низких температурах носит перколяционный характер. В этом случае наибольшие аномалии в поведении проводимости следует ожидать при низких температурах, когда имеется только ограниченное число проводящих каналов, определяющих полную проводимость системы. В области низких температур зависимость $\rho(T)$ керамических образцов $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ принципиально отличается от наблюдаемой зависимости $\rho(T)$ в монокристаллических образцах $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ [3, 4]. Температурные зависимости сопротивления $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ в работах [3, 4] соответствовали наличию сверхпроводящих включений [4] или изолированных сверхпроводящих цепочек в диэлектрической матрице [3]. Зависимость $\rho(T, J)$ на рис. 2 не выявляет наличия сверхпроводящих включений при токах $J \geq 0.5$ мкА. Это неожиданно, поскольку концентрация дырок и длина лока-

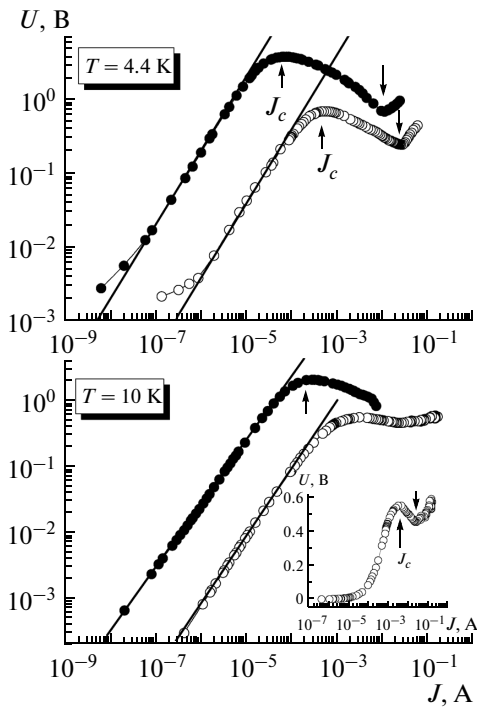


Рис. 3. Вольт-амперные характеристики образцов $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ с концентрацией стронция $x = 0.001$ (●) и $x = 0.01$ (○) при $T = 4.4$ К и 10 К. На вставке показана ВАХ образца с $x = 0.01$ в полулогарифмических координатах. Прямые линии показывают область выполнения закона Ома.

лизации в образце $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ с $x = 0.01$ близки к аналогичным данным для $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ в работе [3]. Для образца с $x = 0.001$ эти параметры были даже выше, чем для $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ в [4]. Поведение проводимости $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ отличается от проводимости $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ [3, 4] и при высоких температурах. При $T > T_N$ в обоих образцах $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ имеет место переход к металлическому поведению $\rho(T)$ (рис. 2). Для $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ в [3, 4] этот переход не наблюдали.

В целом поведение $\rho(T)$ (рис. 2) демонстрирует нелинейные эффекты в проводимости и согласуется с результатами измерения ВАХ. На рис. 3 и 4 показаны примеры нелинейных ВАХ $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ при температурах 4.4, 10 и 30 К. Прямые линии на кривых ВАХ отвечают линейной зависимости U от J . Стрелками отмечены точки экстремумов $dU/dJ = 0$. Зависимости на рис. 3 показывают немонотонное изменение напряжения выше порогового значения тока J_c , при котором происходит переход в режим ОДС. Видно, что при низких температурах существует некоторая область электрических полей, в которой определенному значению напряжения образца соответствуют несколько значений тока. Состояние, отвечающее такому участку ВАХ, неустойчиво.

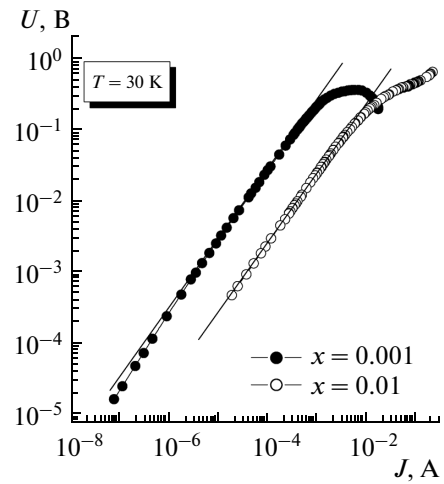


Рис. 4. Вольт-амперные характеристики образцов $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ с $x = 0.001$ и $x = 0.01$ при $T = 30$ К. Прямые линии показывают область выполнения закона Ома.

Для образца с $x = 0.01$ переход в режим ОДС происходит при $T < 20$ К. Для более неоднородного образца с содержанием стронция $x = 0.001$ режим ОДС наблюдался при более высокой температуре $T = 30$ К (рис. 4).

Мы оценили влияние электрического поля на электросопротивление в режиме ПППДП [6]: $R(T, E) = R_0(T) \exp(-eEr_h\gamma/kT)$, где $R_0(T)$ — сопротивление при $E \rightarrow 0$, которое соответствует закону Мотта, r_h — средняя длина прыжка, γ — численный множитель порядка единицы. Из этого выражения следует, что при достаточно низких полях, когда $eEr_h\gamma/kT \ll 1$, сопротивление не зависит от поля. Оценки показывают, что это неравенство выполняется для исследованных образцов даже при максимально достижимых нами полях. Таким образом, наблюдаемое нелинейное поведение ВАХ и наличие ОДС (рис. 3) не могут быть явно связаны с влиянием электрического поля на проводимость. Примечательно, что для исследованных образцов $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ переход к режиму ОДС происходит в сравнительно низких полях, когда напряженность поля в образце достигает $E_c \sim (5-10) \text{ В} \cdot \text{см}^{-1}$. В обычных полупроводниках область ОДС начинается при существенно больших значениях порогового поля. (Например, оценки порогового поля для GaAs дают значение $E_c \sim 3000 \text{ В} \cdot \text{см}^{-1}$ [8].) При увеличении температуры пороговое поле E_c в $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ уменьшается, а пороговый ток J_c растет. При фиксированной температуре величина J_c всегда меньше для более резистивного образца с $x = 0.001$. Таким образом, мы обнаружили, что переход к режиму ОДС в образце с $x = 0.001$ происходит при более высоких температурах и при меньших значениях транспортного тока, чем в образце с $x = 0.01$. Мы полагаем, что наблюдаемые разли-

чия в значениях порогового тока и температуры перехода к режиму ОДС могут быть связаны с различиями в степени однородности двух образцов. Композиционная неоднородность образцов ведет к неоднородному пространственному распределению носителей заряда. Это приводит к неоднородности распределения приложенного электрического поля, так что возникают области с повышенной (по сравнению со средней, $(5-10) \text{ В} \cdot \text{см}^{-1}$) напряженностью электрического поля. Это может вызвать локальный перегрев носителей заряда. Пространственная неоднородность распределения поля больше в более неоднородном образце ($x = 0.001$). В таком образце перегрев электронов и переход к режиму ОДС может наступить при меньших токах и при более высоких температурах, что и наблюдается в эксперименте. Не исключено, что с локальным перегревом носителей заряда связано и отсутствие признаков сверхпроводящих включений в $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ даже при минимальных используемых токах.

Поведение магнитосопротивления (МС) исследованных образцов $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ также сильно зависит от величины транспортного тока (рис. 5). МС положительно при низких температурах $T \leq 10 \text{ К}$. С увеличением тока и (или) температуры положительное МС уменьшается и становится отрицательным. Положительное МС больше для образца с большей концентрацией стронция ($x = 0.01$). (В поле 1.3 Тл положительное МС составляет 9.5% ($x = 0.01$) и 1.6% ($x = 0.001$)). Величина тока, при котором происходит переход к отрицательному МС, существенно больше для более однородного и менее резистивного образца ($x = 0.01$) (рис. 5).

В работе [3] положительное МС связывалось с влиянием сверхпроводящих включений, когда образуются достаточно протяженные сверхпроводящие цепочки в диэлектрической матрице. Поведение МС соответствовало наличию сверхпроводящих включений со слабыми джозефсоновскими связями между отдельными сверхпроводящими гранулами. В нашем случае $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ влияние сверхпроводящих включений на проводимость при токах $0.5 \leq J \leq 100 \text{ мкА}$ явно не проявляется. Однако полностью исключить возможность образования сверхпроводящих включений нельзя. Возможно, из-за сильной неоднородности при низких температурах локальный разогрев в области межфазных границ приводит к понижению сопротивления по мере увеличения тока, но полное разрушение джозефсоновских связей не происходит. Магнитное поле разрушает слабые связи между сверхпроводящими гранулами, что приводит к положительному МС. При дальнейшем повышении тока, когда происходит полное подавление током слабых связей между сверхпроводящими включениями в нулевом магнитном поле, МС отрицательно. Разогрев носителей в более однородном образце меньше, поэтому положительное МС боль-

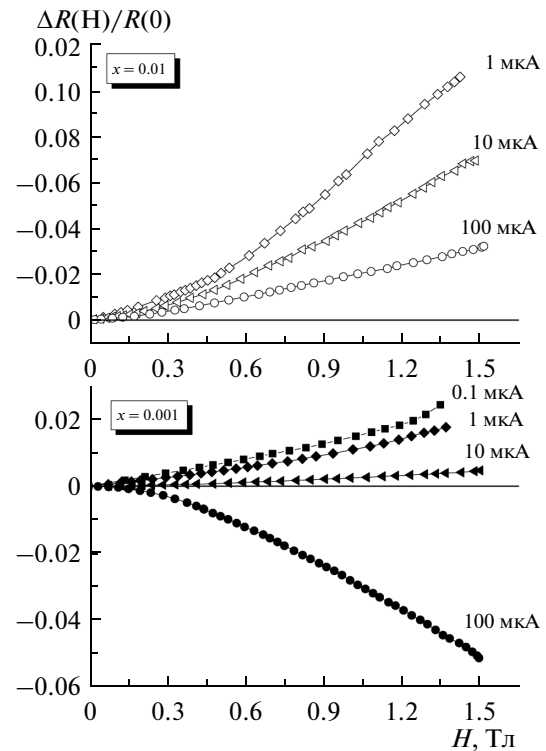


Рис. 5. Магнитосопротивление двух образцов $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ при 4.4 К и разных значениях транспортного тока $\vec{J} \parallel \vec{H}$.

ше и переход к отрицательному МС происходит при больших значениях тока. Мы не исключаем, однако, и других механизмов положительного МС в слаболегированных образцах $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$.

Итак, мы обнаружили, что в низколегированных купратах имеют место сильные нелинейные эффекты в проводимости, в том числе и ОДС. Степень нелинейности возрастает с понижением концентрации стронция.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Belevtsev B.I. // Low Temp. Phys. 2004. V. 30. P. 421.
2. Белевцев Б.И., Далакова Н.В., Панфилов А.С. // ФНТ. 1998. Т. 24. С.1086.
3. Белевцев Б.И., Далакова Н.В. // Изв. РАН. Сер. физ. 2005. Т. 69. № 7. С. 941; Belevtsev B.I., Dalakova N.V. // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2005. V. 69. № 7. P. 1050.
4. Далакова Н.В., Белевцев Б.И., Беляев Е.Ю., Колесниченко Ю.А., Панфилов А.С., Брауде И.С. // Изв. РАН. Сер. физ. 2008. Т. 72. № 8. С. 1215; Dalakova N.V., Belevtsev B.I., Belyayev E.Yu., Kolesnichenko Yu.A., Panfilov A.S., Braude I.S. // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2008. V. 72. № 8. P. 1149.
5. Chen C.Y., Birgeneau R.J., Kastner M.A. et al. // Phys. Rev. B. 1991. V. 43. P. 392.
6. Mott N.F., Davis E.A. Electron Processes in Noncrystalline Materials. Oxford: Clarendon Press, 1979.
7. Jarlborg T. // Helv. Phys. Acta. 1988. V. 61. P. 421.
8. Hilsum C. // Proc. IRE. 1962. V. 50. P. 185.