

## КОНКУРЕНЦИЯ АНТИФЕРРОМАГНЕТИЗМА И СВЕРХПРОВОДИМОСТИ В $R\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ ( $R = \text{Lu}, \text{Tm}$ )

А.Н.Лавров<sup>1)</sup>, Л.П.Козеева

Институт неорганической химии СО РАН  
630090 Новосибирск, Россия

Поступила в редакцию 24 августа 1995 г.

Экспериментально исследован переход антиферромагнетик–сверхпроводник в монокристаллах  $\text{LuBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  при плавном увеличении концентрации носителей тока. Показано, что сверхпроводящее состояние конкурирует с трехмерным магнитным упорядочением, сопровождающимся частичной диэлектризацией системы.

Общим свойством всех купратных высокотемпературных сверхпроводников (ВТСП) является наличие в их структуре одной или нескольких  $\text{CuO}_2$ -плоскостей, с которыми обычно связывают сверхпроводящее состояние. Роль остальных структурных элементов, согласно модели переноса заряда [1], состоит в обеспечении требуемого уровня электронного (дырочного) допирования сверхпроводящих  $\text{CuO}_2$ -плоскостей. Соединения  $R\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  вызывают особый интерес, благодаря необычной ступенчатой зависимости их физических свойств от содержания кислорода  $x$ . Зависимость  $T_c(x)$  демонстрирует два плато при 60 К и 90 К и резкие области перехода от 0 до 60 К при  $x \approx 0.4 - 0.5$  и от 60 К до 90 К при  $x \approx 0.7 - 0.8$  [1, 2]. Эти особенности обычно объясняют [1] немонотонной зависимостью концентрации носителей в  $\text{CuO}_2$ -плоскостях от содержания кислорода.

Область зарождения сверхпроводимости имеет особое значение для понимания природы ВТСП. Исследование эволюции физических свойств непосредственно вблизи порога появления сверхпроводимости может дать информацию о механизмах, определяющих ее возникновение, и позволит проверить существующие представления о корреляции  $T_c$  с концентрацией носителей.

В данной работе проведены прецизионные исследования анизотропной проводимости монокристаллов  $R\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  ( $R = \text{Lu}, \text{Tm}$ ) в области содержания кислорода вблизи фазовой границы антиферромагнетик–сверхпроводник (АФМ–СП). Методы выращивания кристаллов, подготовки образцов и измерения компонент сопротивления описаны в работе [3]. Выдержка кристаллов при комнатной температуре выполнялась в атмосфере чистого гелия.

Согласно представлениям, развитым в работе [1], носители заряда не поступают в  $\text{CuO}_2$ -плоскости вплоть до содержания кислорода  $x \approx 0.4$ , при дальнейшем увеличении  $x$  концентрация носителей  $n$  скачкообразно увеличивается. Считается, что возникновение сверхпроводимости совпадает с появлением носителей в  $\text{CuO}_2$ -плоскостях [1]. Однако наличие особенностей в зависимости  $n(x)$  обязательно должно проявляться на кинетических характеристиках. В частности, можно было бы ожидать скачкообразного изменения проводимости  $\sigma$  и коэффициента Холла  $R_H$  при увеличении  $x$  выше пороговой концентрации  $\sim 0.4$ , что экспериментально не наблюдается [3, 4]. Измерения, выполненные

<sup>1)</sup>e-mail: lavrov@casper.che.nsk.su

на монокристалле  $\text{TmBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ , показали (рис.1), что в области содержания кислорода  $0.29 \leq x \leq 0.60$  величина проводимости вдоль  $ab$ -плоскостей  $\sigma_{ab}$  изменяется плавно и монотонно и не демонстрирует существенных особенностей при переходе к сверхпроводящим составам. Отметим, что увеличение содержания кислорода  $x$  от  $\approx 0.37$  до  $0.5-0.6$ , приводящее к увеличению  $T_c$  от  $0$  до  $\approx 55\text{ K}$ , сопровождается лишь двухкратным увеличением проводимости  $\sigma_{ab}$  ( $280\text{ K}$ ), см. рис.1. Возникновение сверхпроводимости только при достаточно большой плотности носителей  $n$  свидетельствует о существовании при меньшем  $n$  (меньшем содержании кислорода) механизма, ее подавляющего.

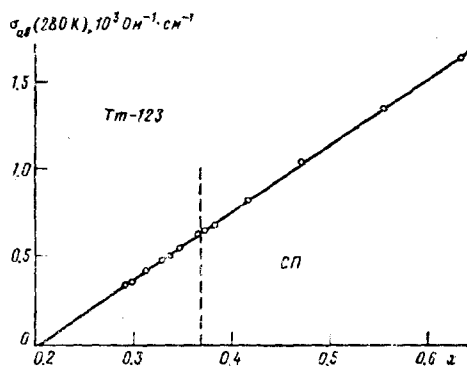


Рис.1. Зависимость проводимости  $\sigma_{ab}(280\text{ K})$  монокристалла  $\text{TmBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  от содержания кислорода  $x$ . Штриховая линия разделяет области сверхпроводящих и несверхпроводящих составов

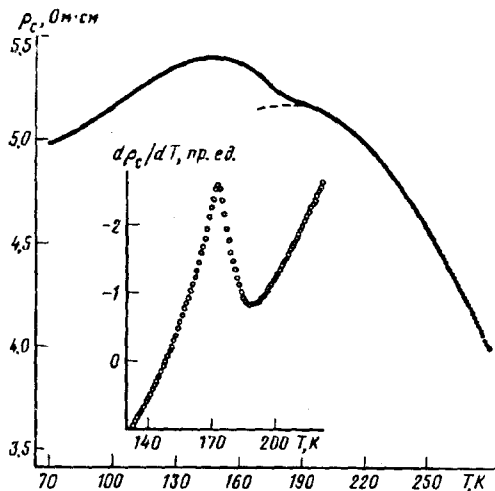


Рис.2. Температурная зависимость сопротивления  $\rho_c$  монокристалла  $\text{LuBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  ( $x \approx 0.29$ ). Штриховой линией показана качественная экстраполяция высокотемпературной зависимости. На вставке приведена температурная зависимость производной  $d\rho_c/dT$  в области аномалии (для удобства восприятия ось координат на вставке направлена вниз)

Исследования несверхпроводящих составов показали, что при температуре АФМ упорядочения  $T_N$  наблюдается значительная аномалия межплоскостного сопротивления  $\rho_c$  [3]. На рис.2 изображена типичная температурная зависимость  $\rho_c(T)$ , полученная для монокристалла  $\text{LuBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  при  $x \approx 0.29$ . Видно, что при уменьшении температуры ниже  $170-180\text{ K}$  сопротивление  $\rho_c$  скачкообразно увеличивается, что указывает на частичную диэлектризацию системы. Аномалия производной  $d\rho_c/dT$  имеет характерный для такого рода фазовых переходов вид отрицательного  $\lambda$ -пика, см. вставку на рис.2. Механизмы проводимости в сильно коррелированных системах, к которым относятся соединения  $\text{RBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  (в особенности при малых уровнях допирования), изучены недостаточно, что не позволяет сделать детального анализа аномалии сопротивления. Тем не менее, в общем виде можно сделать вывод, что установление дальнего магнитного порядка приводит к существенным изменениям энергетического спектра квазичастиц, определяющих перенос заряда.

Известно, что ближний АФМ порядок в  $\text{CuO}_2$ -плоскостях присутствует в сверхпроводящих составах [5] и взаимодействие с АФМ корреляциями рассматривается как один из возможных механизмов ВТСП. Однако, возможно, что именно установление *дальнего* АФМ порядка в  $\text{CuO}_2$ -плоскостях и вызванная им частичная диэлектризация системы являются причиной подавления сверхпроводимости при  $x < 0.4$ . Более определенную информацию о характере взаимодействия антиферромагнетизма и сверхпроводимости в  $\text{R}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  можно получить, исследовав детали перехода АФМ-СП и взаимного расположения АФМ и СП областей на фазовой  $x$ - $T$ -диаграмме. В литературе приводятся достаточно противоречивые данные о расположении границ АФМ и СП фаз, см., например, работы [2, 6, 7]. Отсутствие детальной информации связано с тем, что обычные методы приготовления и обработки образцов ВТСП, включающие изменение катионной и анионной стехиометрии, позволяют производить только дискретные изменения их свойств с относительно большим шагом. В этой ситуации перспективным представляется использованием достаточно хорошо изученного к настоящему времени явления низкотемпературного упорядочения кислорода [8-10]. Локальное упорядочение кислорода, происходящее в результате выдержки закаленных образцов при температурах вблизи комнатной, приводит к монотонному увеличению концентрации дырок в  $\text{CuO}_2$ -плоскостях [8-10]. Это явление предоставляет уникальную возможность плавного воздействия на свойства образца.

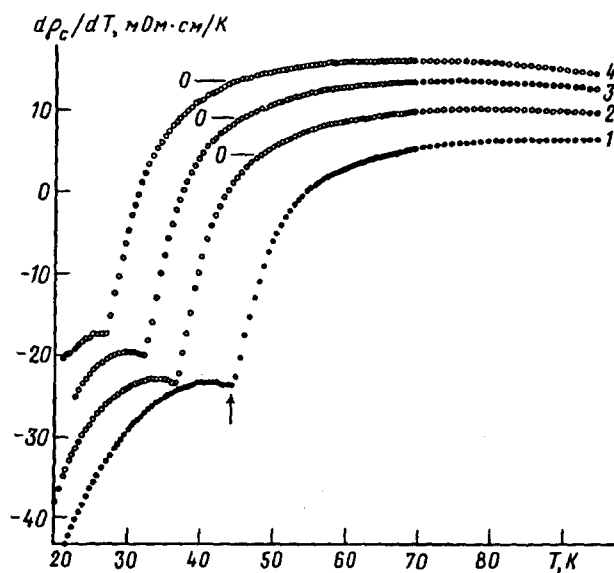


Рис.3. Температурные зависимости производной  $d\rho_c/dT$ , полученные для монокристалла  $\text{LuBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  ( $x \approx 0.34$ ). Серии измерений были проведены сразу после закалки образца (•) и после различных времен выдержки при комнатной температуре (○) вплоть до 5 дней (кривая 4). Для удобства кривые 2-4 смещены (для каждой кривой указана нулевая отметка)

Рис.3 иллюстрирует эволюцию свойств монокристалла  $\text{LuBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  ( $x \approx 0.34$ ) в процессе выдержки при комнатной температуре. Увеличение концентрации носителей в  $\text{CuO}_2$ -плоскостях, вызванное упорядочением кислорода, приводит к подавлению АФМ упорядочения, что проявляется в монотонном смещении отрицательного  $\lambda$ -пика на кривой  $d\rho_c/dT$  в сторону низких температур. Подобное уменьшение температуры Нееля при низкотемпературной выдержке образцов наблюдалось для всех исследованных АФМ составов. При

этом форма аномалии не изменяется, см. рис.3, что свидетельствует о том, что образец остается однородным.

Использование эффектов кислородного упорядочения позволило нам наблюдать, как происходит фазовый переход от трехмерного антиферромагнитного упорядочения к сверхпроводящему состоянию в монокристаллах  $R\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  при плавном увеличении концентрации носителей. Для кристалла  $\text{LuBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  было подобрано содержание кислорода в непосредственной близости к границе области АФМ составов,  $x \approx 0.36$ . При этом содержании кислорода кристалл имел в закаленном состоянии температуру Нееля, определенную по положению пика на кривой  $d\rho_c/dT$ ,  $T_N = 27 - 28 \text{ K}$  (рис.4, черные точки). Последующая выдержка кристалла при комнатной температуре вызвала переход АФМ-СП, и после 5 дней выдержки  $T_c$  достигла  $10 \text{ K}$  (рис.4, светлые точки). Подчеркнем, что все качественные изменения, - уменьшение  $T_N$ ; смена типа основного состояния; рост  $T_c$  до  $10 \text{ K}$ , - происходят при незначительном изменении транспортных характеристик. Полный масштаб изменения сопротивления  $\rho_c$  ( $50 \text{ K}$ ) составляет всего  $20 - 25\%$  (изменение  $\sigma_{ab}$  ( $280 \text{ K}$ ) еще меньше -  $12 - 15\%$ ). Таким образом, подавление дальнего АФМ порядка немедленно приводит к появлению сверхпроводимости, что свидетельствует о том, что именно их конкуренция определяет порог возникновения сверхпроводимости.

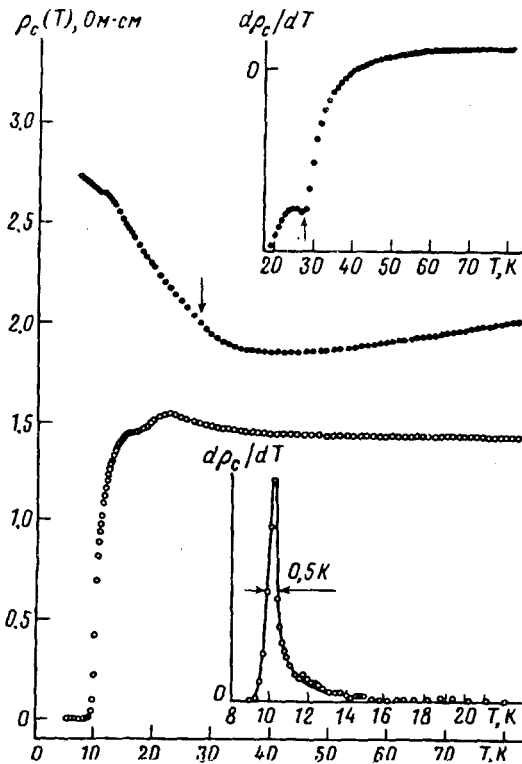


Рис.4. Температурные зависимости сопротивления  $\rho_c$  монокристалла  $\text{LuBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  ( $x \approx 0.36$ ). Данные были получены сразу после закалки ( $\bullet$ ) и после 5 дней выдержки при комнатной температуре ( $\circ$ ). На вставках показаны температурные зависимости производных

Работа поддерживается Научным советом по ВТСП и выполнена в рамках проекта 93037 Российской государственной программы "Высокотемпературная сверхпроводимость".

- 
1. R.J.Cava, A.W.Hewat, E.A.Hewat et al., *Physica C* **165**, 419 (1990).
  2. J.M.Tranquada, A.H.Moudden, A.I.Goldman et al., *Phys. Rev. B* **38**, 2477 (1988).
  3. A.N.Lavrov and L.P.Kozeeva, *Physica C* **248**, 365 (1995); *ibid.* (1995), to be published.
  4. H.-I.Yoo, H.-S.Choi, *J. Am Ceram. Soc.* **75**, 2707 (1992).
  5. A.P.Kampf, *Phys. Rep.* **249**, 219 (1994).
  6. C.Picard and P.Gerdanian, *Solid State Commun.* **87**, 775 (1993).
  7. L.Rebelsky, J.M.Tranquada, G.Shirane et al., *Physica C* **160**, 197 (1989).
  8. B.W.Veal, A.P.Paulikas, H.You et al., *Phys. Rev. B* **42**, 6305 (1990).
  9. G.V.Uimin, V.F.Gantmakher, A.M.Neminsky et al., *Physica C* **192**, 481 (1992).
  10. I.N.Kuropyatnik and A.N.Lavrov, *Physica C* **197**, 47 (1992); A.N.Lavrov, *Physica C* **216**, 36 (1993).