

НИЗКОТЕМПЕРАТУРНЫЕ ($T < 180\text{ K}$) РЕЛАКСАЦИОННЫЕ ПРОЦЕССЫ И ВОЗМОЖНОЕ "ЭЛЕКТРОННОЕ РАЗДЕЛЕНИЕ ФАЗ" В МОНОКРИСТАЛЛАХ $\text{R}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ ($\text{R}=\text{Y}, \text{Tm}, \text{Lu}$)

А.Н.Лавров¹⁾, Л.П.Козеева

*Институт неорганической химии СО РАН
630090 Новосибирск, Россия*

Поступила в редакцию 12 апреля 1996 г.

В кислороднодефицитных монокристаллах $\text{R}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ ($\text{R}=\text{Y}, \text{Tm}, \text{Lu}$) обнаружены релаксационные эффекты в области низких (120–180 K) температур. Изотермическая выдержка кристаллов после быстрого охлаждения приводит к увеличению их сопротивления. Определены характерные времена и энергия активации релаксационного процесса, $E_a \approx 0.46\text{ эВ}$. Обсуждается возможная связь наблюдавшихся эффектов с явлением "электронного разделения фаз".

PACS: 74.25.Dw, 74.25.Fy

В купратных высокотемпературных сверхпроводниках металлическое состояние реализуется в результате дырочного (электронного) допирования исходного антиферромагнитного (АФМ) диэлектрика. Антиферромагнитные эффекты играют значительную роль в формировании свойств нормального состояния этих соединений, и, возможно, являются причиной появления высокотемпературной сверхпроводимости. В то же время, известно [1], что однородное состояние допированного АФМ может быть неустойчиво, и, возможно, так называемое "электронное разделение фаз", то есть образование в образце областей, различающихся концентрацией носителей и магнитными свойствами. Наличие кулоновского взаимодействия предполагает, что "электронное разделение фаз" происходит на микроскопическом уровне, и его можно рассматривать как необычное основное состояние системы [1]. Это явление принципиально отличается от термодинамического разделения фаз, происходящего с участием мобильной ионной подсистемы и приводящего к образованию макроскопических областей, различающихся составом.

Вопрос о возможности "электронного разделения фаз" в соединениях высокотемпературных сверхпроводников (ВТСП), имеющий принципиальное значение для понимания особенностей нормального состояния и зависимости физических свойств соединений от концентрации свободных носителей, до сих пор остается открытым. Интенсивное изучение этой проблемы [2], проводимое на образцах $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$, осложняется необходимостью разделения эффектов, связанных с неоднородностью электронной подсистемы и с перераспределением кислорода, сохраняющего подвижность в $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ вплоть до низких ($\sim 200\text{ K}$) температур. Изучение аналогичных эффектов в других соединениях ВТСП позволило бы решить эту проблему. В этом плане привлекательным объектом для исследований являются соединения $\text{R}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$, позволяющие легко варьировать концентрацию свободных носителей, и для которых имеется достаточно подробная информация о мобильности кислородной подсистемы при низких температурах [3–5].

В данной работе проведены прецизионные измерения электросопротивления монокристаллов $\text{R}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ ($\text{R}=\text{Y}, \text{Tm}, \text{Lu}$) в области составов $0.29 \leq x \leq$

¹⁾e-mail: lavrov@casper.che.nsk.su

≤ 0.92 . Методы выращивания кристаллов, подготовки образцов и измерения сопротивления описаны в работе [6].

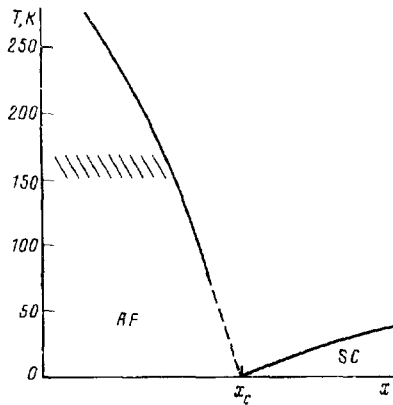


Рис.1. Фрагмент фазовой диаграммы соединений $R\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ вблизи перехода антиферромагнетик – сверхпроводник по данным работы [5]; $x_c \sim 0.4$. Штриховкой выделена область 160 К аномалии

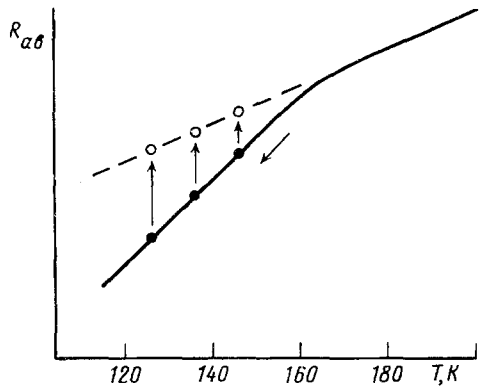


Рис.2. Схема, иллюстрирующая поведение ab -компоненты сопротивления

Увеличение содержания кислорода x вызывает увеличение концентрации дырок в CuO_2 -плоскостях и переход образца из АФМ в сверхпроводящее состояние, рис.1. АФМ переход, так же как и сверхпроводящий, хорошо проявляется на температурной зависимости сопротивления [5, 6], что позволяет характеризовать положение образцов на фазовой диаграмме. Проведенные в данной работе измерения, помимо особенностей при T_N и T_c , обнаружили еще одну аномалию сопротивления – вблизи 160 К. Наибольший интерес вызывало то обстоятельство, что появление этой аномалии качественно совпадало с переходом в АФМ область фазовой диаграммы, рис.1. Аномалия имела вид излома на кривой $\rho(T)$ и наблюдалась на всех исследованных монокристаллах с соответствующим содержанием кислорода.

Измерения, проведенные при различных скоростях охлаждения и нагрева в окрестности 160 К, обнаружили зависимость сопротивления образцов от режимов термообработки. Рис.2 схематически иллюстрирует поведение ab -компоненты сопротивления. При охлаждении с обычной скоростью (~ 1 К/мин) на кривой сопротивления наблюдается излом при $T \sim 160$ К (рис.2, сплошная линия), и сопротивление отклоняется от монотонного хода в сторону меньших значений. При уменьшении скорости охлаждения аномалия смещается в область низких температур, а сопротивление следует продолжению монотонной зависимости (рис.2, штриховая линия). Таким образом, наблюдаемая аномалия сопротивления имеет кинетическую природу и связана с замораживанием неравновесного состояния системы. Действительно, изотермическая выдержка быстро охлажденных образцов приводит к релаксационному увеличению сопротивления (стрелки на рис.2).

Для определения параметров кинетики релаксационного процесса были измерены временные зависимости сопротивления монокристалла $\text{TmBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.29}$

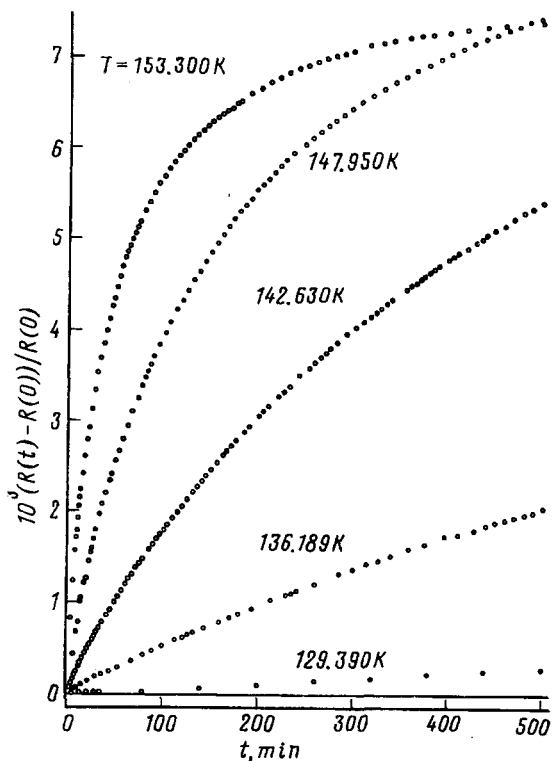


Рис.3. Изменение $a\beta$ -компоненты сопротивления монокристалла $TmV_{0.29}Cu_3O_{6+x}$ ($x \approx 0.29$) в процессе изотермической выдержки после быстрого охлаждения от 200 K

($T_N \approx 260$ K [6]) при различных температурах выдержки после быстрого охлаждения от 200 K, рис.3. Сопротивление кристалла монотонно увеличивалось, стремясь к равновесному значению R_∞ . Функциональная обработка показала, что зависимости $R(t)$ описываются выражением

$$R(t) = R_\infty - \Delta R \exp[-(t/\tau)^{1/2}].$$

На рис.4 приведены характерные времена релаксации τ , определенные для нескольких температур. Температурная зависимость $\tau(T)$ следует активационному закону $\tau = \tau_0 \exp(E_a/T)$; $E_a = 0.46 \pm 0.025$ эВ, $\tau_0 = 10^{-12 \pm 1}$ с.

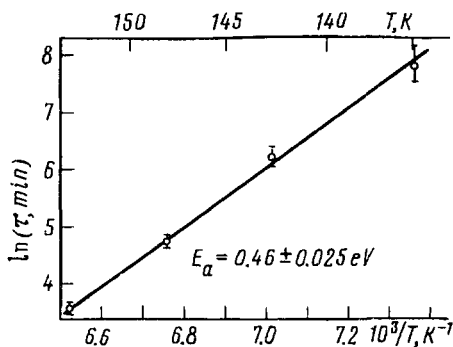


Рис.4. Температурная зависимость времени релаксации

Полученные данные свидетельствуют, что температурная зависимость сопротивления образцов с $x < 0.4$ содержит вклад, связанный с перестройкой

некоторой мобильной подсистемы. При температуре $\lesssim 160$ К изменения, происходящие в этой подсистеме, замедляются настолько, что система не успевает достигать равновесия при обычных скоростях термоциклирования, и дополнительный вклад в температурную зависимость сопротивления вымораживается.

Измерения, проведенные на различных кристаллах, показали, что положение аномалии и характерные времена релаксации хорошо воспроизводятся и с экспериментальной точностью не зависят ни от содержания кислорода, ни от типа иона R ($R = \text{Tm}, \text{Lu}, \text{Y}$). В то же время, амплитуда эффектов резко увеличивается при уменьшении содержания кислорода, то есть при углублении в АФМ область фазовой диаграммы, рис. 1.

Обнаруженные релаксационные процессы полностью обратимы и, следовательно, не могут быть связаны с отжигом структурных напряжений, в том числе и вызванных магнитным упорядочением. Наблюдающиеся особенности очень похожи на эффекты кислородного упорядочения вблизи комнатной температуры [3–5]. Однако процессы диффузионного перераспределения кислорода в CuO_x цепочках имеют энергию активации ~ 1 эВ [3–5], и при температурах ниже 250–280 К их скорость пренебрежимо мала. Появление релаксационных эффектов при переходе в область АФМ составов осложняет их интерпретацию на основе какого-либо структурного превращения.

Аналогичные особенности сопротивления были обнаружены в работе [7] при исследовании монокристаллов $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$. Закаленные образцы так же, как и в нашем случае, имели сопротивление ρ_{ab} меньше, чем медленно охлажденные, и зависимость от режима охлаждения так же появлялась при температуре ~ 160 К [7]. Эффекты, наблюдаемые в $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$, обычно связывают с электронным разделением фаз [1, 2, 7, 8]. Особенности сопротивления объясняют изменением топологии фаз при уменьшении температуры [1, 7, 8] и, соответственно, замораживанием этого процесса при низких температурах.

Сходство эффектов в существенно различающихся соединениях $\text{RBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ и $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ подтверждает их связь с процессами, происходящими в общем структурном элементе, – CuO_2 -плоскостях. Концентрационные зависимости, в свою очередь, свидетельствуют о том, что исследуемые эффекты являются результатом взаимодействия носителей заряда с магнитной подсистемой. Полученные результаты являются, таким образом, еще одним свидетельством в пользу существования в соединениях ВТСП электронного разделения фаз на микроскопическом уровне.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант 96-02-19249а) и Научного совета по ВТСП (проект 93037).

1. Э.Л.Нараев, *Физика магнитных полупроводников*, М.: Наука, 1979; УФН 165, 529 (1995).
2. *Phase separation in cuprate superconductors*, E.Sigmund, K.A.Muller, Eds., Springer-Verlag, Berlin, 1994.
3. B.W.Veal, A.P.Paulikas, H.You et al., *Phys. Rev.* B42, 6305 (1990).
4. A.N.Lavrov, *Phys. Lett.* A168, 71 (1992); *Physica* C216, 36 (1993); A.N.Lavrov and L.P.Kozeeva, *Phys. Lett.* A194, 215 (1994).
5. A.N.Lavrov and L.P.Kozeeva, *Physica* C253, 313 (1995); А.Н.Лавров, Л.П.Козеева, *Письма в ЖЭТФ* 62, 562 (1995).
6. A.N.Lavrov and L.P.Kozeeva, *Physica* C248, 365 (1995).
7. E.Sigmund, V.Hizhnyakov, R.K.Kremer et al., *Z.Phys.* B94, 17 (1994).
8. R.K.Kremer, E.Sigmund, V.Hizhnyakov et al., *Z. Phys.* B86, 319 (1992); R.K.Kremer, V.Hizhnyakov, E.Sigmund et al., *Z. Phys.* B91, 169 (1993).