

## О ПРИМЕНИМОСТИ МОДЕЛИ РЕЗОНАНСНОГО ТУННЕЛИРОВАНИЯ ДЛЯ ОПИСАНИЯ АНИЗОТРОПИИ ПРОВОДИМОСТИ МОНОКРИСТАЛЛОВ $TmBCO$

*В.Я.Диковский<sup>1)</sup>, А.Н.Лавров, Л.П.Козеева, Э.В.Матизен,  
А.П.Шелковников*

*Институт неорганической химии Сибирского отделения РАН  
630090 Новосибирск, Россия*

Поступила в редакцию 18 октября 1996 г.

После переработки 30 октября 1996 г.

Температурные зависимости анизотропии сопротивления двух монокристаллов системы  $TmBa_2Cu_3O_x$  с кислородными индексами  $x = 6.71$  и  $6.47$  проанализированы с точки зрения применимости теории Абрикосова [1]. Показано, что согласие теории с экспериментом значительно улучшается, если при аппроксимации данных помимо резонансного туннелирования учитывать вклад обычной туннельной проводимости.

PACS: 74.50.+г

Несмотря на значительный интерес к проблеме электронного транспорта в высокотемпературных сверхпроводниках, вопрос о доминирующих механизмах, определяющих поведение компонент сопротивления этого класса веществ, не решен до настоящего времени. Наименее изученной, как в теоретическом, так и в экспериментальном плане, является проводимость вдоль оси  $c$ . В недавно вышедшей статье Абрикосова [1] предложено возможное объяснение поведения  $c$ -компоненты и анизотропии сопротивления купратных ВТСП. Основные результаты этой работы получены для системы YBCO, в которой наличие цепочечных медь-кислородных состояний создает условия для реализации эффекта резонансного туннелирования [2], лежащего в основе данной теории. Если этот эффект является единственным механизмом электронного транспорта перпендикулярно купратным слоям, то, согласно [1], отношение  $c$ - и  $ab$ -компонент сопротивления имеет температурную зависимость вида

$$\frac{\rho_c}{\rho_{ab}} = A(x) \frac{\cosh(T_0/T) - \cosh(T_1/T)}{\sinh(T_1/T)}, \quad (1)$$

где температуры  $T_0$  и  $T_1$  – характерные энергетические параметры системы. Коэффициент  $A$  зависит от содержания кислорода в цепочках, поскольку он связан с плотностью резонансных уровней  $n_j$  ( $A \sim 1/n_j^2$ ). Применимость выражения (1) для описания анизотропии YBCO-системы была проверена в [1] на базе экспериментальных данных В. Veal (неопубликовано). Настоящая работа посвящена количественной проверке теории [1] на монокристаллах системы  $TmBCO$ . Нас интересовало, в какой мере магнитный момент иона  $Tm$  влияет на температурную зависимость  $\rho_c/\rho_{ab}(T)$ . Другим фактором, который мог бы сказаться на соответствии теории и эксперимента, является упорядоченность кислородной подсистемы цепочек (при выводе выражения (1) распределение кислорода в цепочках считалось случайным). В связи с этим мы исследовали

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

влияние низкотемпературного отжига, который, как известно, повышает степень кислородной упорядоченности в цепочках и заметно влияет на величину анизотропии [3]. Кроме того, в выражении, описывающем температурный ход анизотропии сопротивления, мы учли две возможности для улучшения согласия теории и эксперимента. Во-первых, для реальных ВТСП кристаллов можно ожидать подмешивания некоторой доли  $ab$ -компоненты к проводимости вдоль оси  $c$ . Причиной подмешивания могут служить, например, винтовые дислокации, оси которых параллельны оси  $c$ . О наличии заметной плотности таких дислокаций в монокристаллах купратных ВТСП неоднократно сообщалось в литературе (см., например, [4]). Влияние этих дефектов на анизотропию сопротивления может быть учтено следующим образом:

$$\frac{\rho_c}{\rho_{ab}} = \left[ \left( A(x) \frac{\cosh(T_0/T) - \cosh(T_1/T)}{\sinh(T_1/T)} \right)^{-1} + B \right]^{-1}, \quad (2)$$

где константа  $B$  отражает относительную долю  $ab$ -проводимости, вносимую дефектами в проводимость вдоль оси  $c$ .

Другая возможность состоит в учете аддитивного вклада в  $c$ -проводимость ( $C$ ), связанного с обычным (нерезонансным) туннельным эффектом. В первом приближении этот вклад не имеет температурной зависимости, в связи с чем отношение проводимостей  $\sigma_c/\sigma_{ab}$  приобретает поправку вида  $C\rho_{ab}(T)$ . Для анизотропии сопротивления это дает

$$\frac{\rho_c}{\rho_{ab}} = \left[ \left( A(x) \frac{\cosh(T_0/T) - \cosh(T_1/T)}{\sinh(T_1/T)} \right)^{-1} + C\rho_{ab} \right]^{-1}. \quad (3)$$

Введение дополнительной туннельной проводимости становится естественным, если учесть, что в зонной структуре цепочек помимо резонансных имеются состояния, не совпадающие по энергии с зонными состояниями  $\text{CuO}_2$ -слоя. При выводе же выражения (1) суммирование в гамильтониане задачи производилось только по резонансным цепочечным состояниям [1].

**Методика эксперимента и результаты.** Выражения (1), (2) и (3) были использованы нами для аппроксимации экспериментального температурного хода анизотропии сопротивления монокристаллов системы  $\text{TmBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ . Монокристаллы были выращены раствор-расплавным методом, подробности приведены в [5]. Данные  $\rho_c(T)$  и  $\rho_{ab}(T)$  были получены на двух образцах, вырезанных из одного кристалла и имеющих одинаковые кислородные концентрации. Требуемое содержание кислорода достигалось отжигом на воздухе и фиксировалось последующей закалкой в жидком азоте [5]. На конечном этапе приготовления образцов проводился выравнивающий отжиг при комнатной температуре, повышающий упорядоченность кислорода в  $\text{CuO}$ -цепочках [5]. Измерение сопротивления как в  $ab$ -плоскости, так и вдоль оси  $c$  производилось по четырехзондовой схеме. Особенности расположения контактов при измерении  $c$ -компоненты описаны в работах [3, 5]. Электрические контакты выполнялись с помощью серебряной пасты, которая фиксировалась высокотемпературным отжигом. Это позволяло использовать образцы многократно, меняя в них содержание кислорода. Наше исследование было проведено для двух кислородных концентраций:  $x = 6.71$  (образец 1) и  $x = 6.47$  (образец 2). Температуры сверхпроводящего перехода образцов были равны соответственно

$T_c(1) = 57$  (56 К) и  $T_c(2) = 37$  (27 К). В скобках указаны значения  $T_c$  до отжига при комнатной температуре.

Температурное поведение отношения  $\rho_c/\rho_{ab}$  анализировалось в диапазоне температур 80–280 К. Для обоих образцов измерения компонент сопротивления проводились как до, так и после выравнивающего отжига. Соответствующие зависимости  $\rho_c/\rho_{ab}(T)$  представлены на рисунках. Как можно видеть, анизотропия сопротивления для обоих образцов имеет довольно резкий температурный ход, приблизительно одинаковый в отожженном и закаленном состояниях. Здесь же показаны расчетные кривые, полученные при наилучшей аппроксимации данных на интервале 160–280 К выражениями (1), (2) и (3) (далее в тексте – модели 1, 2 и 3). Из приведенных графиков следует, что на интервалах температур 120–280 К для образца 1 и 160–280 К для образца 2 поведение  $\rho_c/\rho_{ab}(T)$  удовлетворительно описывается формулами (2) и (3). Выражение (1) согласуется с экспериментом заметно хуже. Однако и для моделей 2 и 3, имеющих большее число подгоночных параметров, теоретические кривые очевидно расходятся с экспериментальными в низкотемпературной области. Возможные причины такого расхождения будут обсуждены ниже. Сравнительный количественный анализ применимости моделей 1, 2 и 3 проводился для различных температурных интервалов с использованием критерия Фишера и оценки области устойчивости модельных параметров. Его основные результаты состояли в следующем. 1) Модель 1 не дает адекватного описания экспериментальных массивов, – ошибка аппроксимации на 1 – 2 порядка превышает дисперсию. 2) Сопоставление моделей 2 и 3 говорит о предпочтительности последней. Во-первых, модель 3 для всех температурных интервалов дает наименьшее отношение ошибки аппроксимации к дисперсии. Начиная с интервала 135–280 К и далее по мере увеличения нижней границы эта модель обеспечивает выполнение критерия Фишера (на уровне надежности 95%) для образца 1 в отожженном состоянии. Во-вторых, при использовании этой модели во всех случаях наблюдалась устойчивость подгоночных параметров при сдвиге границ интервала аппроксимации, тогда как для модели 2 область устойчивости параметров была найдена только для отожженного образца 1. 3) Для образца 2 ни одна из моделей не дает адекватного описания, хотя согласие с моделью 3 является наилучшим. 4) Влияние низкотемпературного отжига неоднозначно, – для образца 1 отжиг ухудшает, а для образца 2 улучшает согласие всех моделей с экспериментом.

**Обсуждение результатов.** Таким образом, проведенное сопоставление моделей 1, 2 и 3 говорит о том, что последняя модель является предпочтительной. Дополнительным аргументом против модели 2 служит тот факт, что параметр  $B$  заметно изменяется при переходе от образца 1 к образцу 2. В то же время, исходя из процедуры приготовления образцов, мы должны были бы получить одно и то же значение, поскольку количество дислокаций не может измениться в результате низкотемпературной термической обработки образцов, обеспечивающей изменение кислородной стехиометрии.

Возможность количественного описания экспериментальных данных с использованием модели 3 реализуется, строго говоря, только для образца 1 в отожженном состоянии. Полученные в этом случае устойчивые значения параметров  $T_0 = 1206$  и  $T_1 = 477$  К удовлетворительно согласуются со значениями одноименных параметров, найденных в [1] для близкого кислородного содержания ( $T_0 \approx 1250$ ,  $T_1 \approx 700 - 800$  К). Имеется согласие и по величине

предэкспоненциального множителя (в нашем случае  $A \approx 16$ , в [1] —  $A \approx 17.5$ ). Однако это согласие может говорить лишь о близости экспериментальных кривых, так как в работе [1] значения  $A$ ,  $T_0$  и  $T_1$  получены из аппроксимации температурных зависимостей, а не из микроскопического расчета.

При переходе от образца 1 к образцу 2 наблюдается очевидное расхождение наших результатов с результатами работы [1]. Учет нерезонансного туннелирования приводит к тому, что величина  $A$  уменьшается при понижении кислородного индекса, а не увеличивается, как это предсказывается теорией Абрикосова. Мы видим возможную причину этого несоответствия в существенной перестройке по мере изменения кислородного индекса зонной структуры цепочек и купратных слоев. Ее следствием может быть как перераспределение плотности резонансных и нерезонансных состояний, так и изменение средней фермиевской скорости  $v_F$ , входящей в определение коэффициента  $A$  [1]. Об энергетической перестройке говорит и значительное (более чем в 1.5 раза) увеличение разности  $T_0 - T_1$  при понижении  $x$  от 6.71 до 6.47. Естественно считать, что такое увеличение происходит прежде всего благодаря изменению  $T_0$ . Действительно, величина  $T_0$  имеет по модели [1] смысл среднего положения резонансного уровня (отсчитанного от химического потенциала). Если предположить, что она примерно одинакова для первого и второго образцов, то получается, что  $T_1$ , характеризующая размытие резонансных уровней под действием случайного потенциала, должна уменьшиться для второго образца почти до нуля, что маловероятно. Более того, при постоянстве  $T_0$  оказалось бы, что закалка образца приводит не к расширению, а к сужению резонансного уровня, так как разность  $T_0 - T_1$  в результате закалки увеличивается для второго образца на  $\sim 150$  К и для первого — на  $\sim 40$  К, что противоречит физическому смыслу. Аналогичные выводы следуют и из анализа абсолютных значений  $T_0$  и  $T_1$ , однако, как следует из структуры формул (1)–(3), разность этих параметров определяется существенно точнее, и поэтому мы опираемся прежде всего на значения  $T_0 - T_1$ .

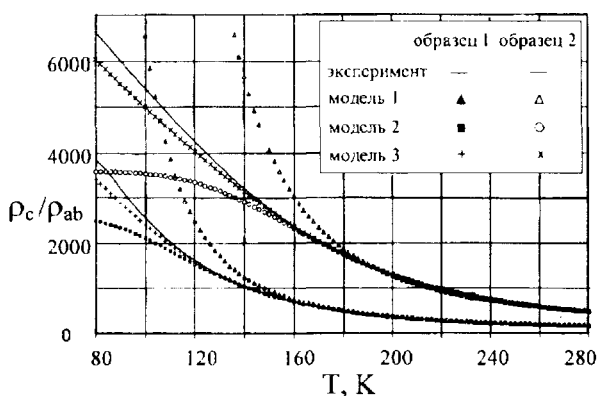


Рис.1. Температурные зависимости отношения  $\rho_c/\rho_{ab}$  для образцов 1 и 2 в отожженном состоянии

В рамках модели 3 интересно сопоставить вклады резонансного и нерезонансного туннелирования для различных случаев. При уменьшении  $x$  от 6.71 до 6.47 коэффициент  $C$  уменьшается приблизительно втрое. Такое заметное спадание нерезонансной туннельной проводимости естественно связать с повышением туннельного барьера из-за уменьшения числа состояний в плоскости

цепочек, а также с падением плотности носителей в купратных слоях. Расчет, проведенный с устойчивыми значениями модельных параметров, показывает, что несмотря на абсолютное уменьшение нерезонансной компоненты, ее относительная доля в полной проводимости растет с понижением кислородного индекса. Так, для образца 1 она превышает резонансную составляющую при температурах ниже 172 в отожженном и 182 К – в закаленном состояниях. В то же время, для образца 2 эти значения составляют соответственно 246 и 272 К, то есть почти во всем исследованном диапазоне нерезонансная проводимость является доминирующей.

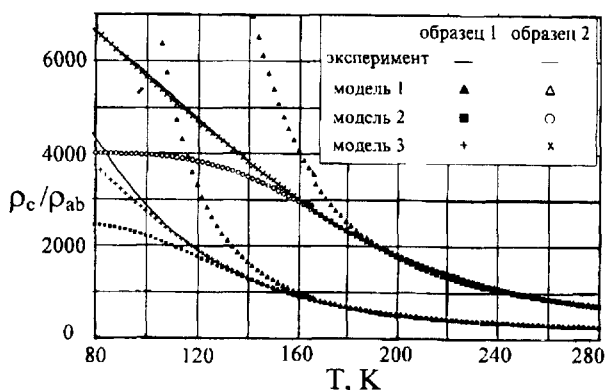


Рис.2. Температурные зависимости отношения  $\rho_c/\rho_{ab}$  для образцов 1 и 2 в закаленном состоянии

В заключение обсудим поведение анизотропии сопротивления при низких температурах. Как уже говорилось, в области 80–120 К имеют место заметные расхождения между теорией и экспериментом. Для образца 1 эти расхождения оказываются приблизительно одинаковыми в закаленном и отожженном состояниях. Для второго же образца закалка существенно меняет картину низкотемпературного поведения. То обстоятельство, что согласие теории с экспериментом отсутствует в низкотемпературной части диапазона, может быть связано с рядом причин. Одной из таких причин может быть эффект сверхпроводящих флуктуаций. В частности, увеличение наблюдаемой анизотропии по отношению к расчетной при приближении к  $T_c$  могло бы быть качественно объяснено нарастающим влиянием сверхпроводящих флуктуаций на проводимость в  $ab$ -плоскости. Вместе с тем, эта причина не является доминирующей, поскольку большой вклад нерезонансного туннелирования в  $c$ -проводимость в значительной мере маскирует этот эффект (действительно, в пределе  $A = 0$  расчетная анизотропия сопротивления  $\rho_c/\rho_{ab}(T)$  ведет себя как  $1/\rho_{ab}$ , то есть влияние сверхпроводящих флуктуаций на  $\rho_{ab}$  не приведет к расхождению теоретической и экспериментальной кривых). Другой, на наш взгляд, более реальной причиной является принципиальная неприменимость формулы (1) для описания  $\rho_c/\rho_{ab}(T)$  в низкотемпературном диапазоне. Действительно, согласно [1], условием применимости (1) служит неравенство

$$(T/T_0)^4 \exp(T_0/T) \ll T/T_1 \alpha^3, \quad (4)$$

где  $\alpha$  – температурный коэффициент обратного времени релаксации в  $ab$ -плоскости  $1/\tau \approx \alpha T$ . Проводя оценки для образца 1 в отожженном состоянии ( $\alpha \approx 0.25$ ,  $T_0 = 1206$  К и  $T_1 = 477$  К), находим, что левая часть неравенства (4)

составляет от правой 10% при  $T \approx 130$  К и 100% при  $T \approx 100$  К. Из рис.1 видно, что полученная оценка хорошо согласуется с положением граничной температуры, ниже которой наблюдается расхождение экспериментальной и расчетной кривых.

Резюмируя полученные результаты, можно сказать, что для системы  $TmBaCuO$  с содержанием кислорода  $x = 6.71$  возможно количественное описание температурной зависимости анизотропии сопротивления в рамках теории [1], если учесть в аппроксимирующем выражении вклад нерезонансного туннелирования в  $\rho_c$ . При этом значения модельных параметров близки к полученным в [1] для иттриевой системы той же кислородной концентрации. Низкотемпературный выравнивающий отжиг образца улучшает согласие теории с экспериментом. Для образца с меньшим содержанием кислорода,  $x = 6.47$ , это согласие ухудшается и перестает быть количественным.

Авторы глубоко признательны Е.Б.Амитину за полезные обсуждения. Работа поддерживается Российским министерством науки и технической политики в рамках Программы "Актуальные проблемы физики конденсированного состояния", проект 93037 и Российским фондом фундаментальных исследований (проекты 96-02-19249а и 96-02-19227).

- 
1. A.A.Abrikosov, *Physica C* **258**, 53 (1996).
  2. I.M.Lifshitz and V.Ya.Kirpichenkov, *Soviet Phys. JETP* **50**, 499 (1979).
  3. A.N.Lavrov and L.P.Kozeeva, *Phys. Lett. A* **194**, 215 (1994).
  4. C.I.Lin, *J. Cryst. Growth* **143**, 110 (1994).
  5. A.N.Lavrov and L.P.Kozeeva, *Physica C* **248**, 365 (1995); *Ibid.* **253**, 313 (1995).