

Эволюция псевдощелевого состояния в слабодопированных празеодимом монокристаллах $Y_{1-z}Pr_zBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ с заданной топологией плоских дефектов

М.А. Оболенский, Р.В. Вовк, А.В. Бондаренко

*Харьковский национальный университет им. В.Н. Каразина
пл. Свободы, 4, г. Харьков, 61077, Украина
E-mail: Ruslan.V.Vovk@univer.kharkov.ua*

Статья поступила в редакцию 4 апреля 2006 г., после переработки 27 апреля 2006 г.

Исследована проводимость в базисной плоскости монокристаллов $Y-Ba-Cu-O$ и $Y_{1-z}Pr_zBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ с системой однонаправленных двойниковых границ. Показано, что частичная замена Y на Pr приводит к образованию двух сверхпроводящих фаз с различными критическими температурами. Примеси Pr являются эффективными центрами рассеяния нормальных и флуктуационных носителей. При этом слабое (до $z \approx 0,05$) допирование празеодимом монокристаллов $Y-Ba-Cu-O$ способствует значительному сужению температурного интервала реализации псевдощелевого состояния в ab -плоскости.

Досліджено провідність в базисній площині монокристалів $Y-Ba-Cu-O$ та $Y_{1-z}Pr_zBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ з системою односпрямованих двійникових меж. Показано, що часткова заміна Y на Pr викликає утворення двох надпровідних фаз з різними критичними температурами. Домішки Pr є ефективними центрами розсіювання нормальних і флуктуаційних носіїв. При цьому незначне (до $z \approx 0,05$) допування празеодимом монокристалів $Y-Ba-Cu-O$ сприяє значному звуженню температурного інтервалу реалізації псевдощелевого стану в ab -площині.

PACS: 74.72.-h

Ключевые слова: допирование, монокристаллы $Y-Ba-Cu-O$, псевдощелевое состояние, кроссовер, длина когерентности.

Как известно, допирование соединения $Y-Ba-Cu-O$ замещающими элементами приводит к изменению плотности носителей тока, тепло- и электропроводности этого сверхпроводника. Особый интерес в этом аспекте представляет частичная замена Y на Pr , которая, с одной стороны, приводит к подавлению сверхпроводимости (в отличие от случаев замены Y на остальные редкоземельные элементы), а с другой — позволяет сохранять практически неизменными параметры решетки и кислородный индекс соединения [1,2]. В частности, исследование влияния примесей Pr на условия и режимы существования области псевдощелевого (ПЩ) состояния таких соединений [3] играет важную роль не только для прояснения природы высо-

котемпературной сверхпроводимости (ВТСП), но и для определения эмпирических путей повышения их критических параметров. Следует отметить, что до настоящего времени данные о степени влияния допирования Pr на проводящие свойства соединения $Y-Ba-Cu-O$ остаются в значительной степени противоречивыми. Очевидно, определенную роль здесь играет тот факт, что существенная часть экспериментального материала была получена на керамических и текстурированных образцах различной технологической предыстории, обладающих высоким содержанием межгранулярных связей. В тех работах, где измерения были проведены на монокристаллах (см., например, [3]), как правило, использовали образцы с относительно высокой кон-

центрацией Pr (более 15%). Помимо этого, определенное влияние оказывает наличие плоских дефектов — границ двойников (ТВ — twin boundary) [4], которые практически всегда присутствуют в таких соединениях. В настоящей работе исследовано влияние малых (до $z \approx 0,05$) добавок Pr на режим ПЩ в монокристаллах $Y_{1-z}Pr_zBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ с высокой критической температурой (T_c), обладающих однонаправленной системой ТВ при ориентации вектора транспортного тока $\mathbf{I} \parallel \text{ТВ}$, когда влияние двойников на процессы рассеяния носителей минимизировано.

Монокристаллы $Y_{1-z}Pr_zBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ выращивали раствор-расплавным методом в золотом тигле по технологии, аналогичной технологии синтеза монокристаллов $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ [4]. Для получения кристаллов с частичной заменой Y на Pr, $Y_{1-z}Pr_zBa_2Cu_3O_{7-\delta}$, в исходную шихту добавляли Pr_5O_{11} в атомном соотношении Y:Pr = 20:1. Режимы роста и насыщения кислородом кристаллов $Y_{1-z}Pr_zBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ были такими же, как и для нелегированных монокристаллов [4]. В качестве исходных компонент для роста кристаллов использовали соединения Y_2O_3 , $BaCO_3$, CuO и Pr_5O_{11} (все марки ОСЧ).

Для проведения резистивных измерений отбирали монокристаллы прямоугольной формы длиной 3 мм, шириной 3 мм и толщиной 0,02 мм. Электроконтакты создавались по стандартной 4-контактной схеме путем нанесения серебряной пасты на поверхность кристалла с последующим подсоединением серебряных проводников диаметром 0,05 мм и трехчасовым отжигом при температуре 200 °С в атмосфере кислорода. Такая процедура позволяла получать переходное сопротивление контактов менее одного Ома и проводить резистивные измерения при транспортных токах до 10 мА в ab -плоскости. Как известно, при насыщении кислородом в соединениях Y–Ba–Cu–O происходит тетра-орто структурный переход, который, в свою очередь, приводит к двойникованию кристалла, минимизирующему его упругую энергию. Для резистивных исследований отбирали кристаллы, в которых имелись области с проникающими однонаправленными ТВ размером 0,5×0,5 мм. Это позволяло вырезать из них мостики с однонаправленными ТВ шириной 0,2 мм и расстоянием между парами контактов 0,3 мм. При этом мостик вырезался таким образом, чтобы вектор транспортного тока \mathbf{I} был параллелен плоскостям двойников, как это схематически показано на вставке к рис. 1,а. Температуру измеряли медь-константановой термопарой, напряжение на образце и образцовом сопротивлении — нановольтметрами В2-38. Данные с вольтметров через интерфейс автоматиче-

ски передавались на компьютер. Измерения проводили в режиме дрейфа температуры, который составлял около 1 К/мин при измерениях вблизи T_c и около 5 К/мин при $T > T_c$. Критическую температуру определяли по максимуму на температурных зависимостях производной электросопротивления в ab -плоскости по температуре $d\rho_{ab}(T)/dT$ в области сверхпроводящего перехода, как это показано на рис. 1,з.

На рис. 1 приведены температурные зависимости удельного электросопротивления кристаллов Y–Ba–Cu–O (K1) и $Y_{1-z}Pr_zBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ (K2) в ab -плоскости $\rho_{ab}(T)$ и переходы в сверхпроводящее состояние этих же образцов, полученные из резистивных и магнитных измерений. Основные параметры исследованных образцов представлены в таблице. Используя литературные данные по зависимости T_c от концентрации празеодима [2], можно сделать вывод, что содержание Pr в кристалле K2 составляет $z \approx 0,05$. Ширина резистивных переходов кристалла K1 менее 0,3 К, а кристалла K2 — около 2,5 К. Узкая ширина переходов чистого кристалла свидетельствует об однородности исследуемого образца, а большая ширина резистивного перехода кристалла с примесью Pr, вероятно, может быть обусловлена неоднородным распределением Pr по объему кристалла [5].

На рисунке видно, что в обоих случаях зависимости $\rho_{ab}(T)$ металлические, однако отношение $\rho_{ab}(300 \text{ K})/\rho_{ab}(0 \text{ K})$ различно и составляет 40 и 22 для кристаллов K1 и K2 соответственно. При этом значение $\rho_{ab}(0 \text{ K})$ определялось интерполяцией линейного по температуре участка зависимости $\rho_{ab}(T)$, как показано на рис. 2,а. Удельное электросопротивление кристаллов K1 и K2 в ab -плоскости при комнатной температуре составляло около 155 и 255 мкОм·см соответственно. Поскольку в обоих кристаллах вектор \mathbf{I} ориентирован параллельно ТВ, увеличение электросопротивления не могло быть обусловлено модуляцией плотности ТВ или различиями в ориентации двойниковых блоков. Вероятно, наблюдаемое увеличение ρ_{ab} и изменение соотношения $\rho_{ab}(300 \text{ K})/\rho_{ab}(0 \text{ K})$ могло быть вызвано уменьшением плотности носителей тока или появлением эффективных центров рассеяния. В частности, такое поведение ρ_{ab} возможно в случае слабого рассеяния носителей тока на Pr либо при образовании макровключений с повышенным содержанием Pr при наличии перколяционных путей протекания тока по областям, в которых содержание Pr мало [5] и их вклад в электросопротивление невелик. В пользу последнего предположения свидетельствует наличие ступеньки на сверхпроводящем переходе (рис. 1,б и в) и небольшого дополнитель-

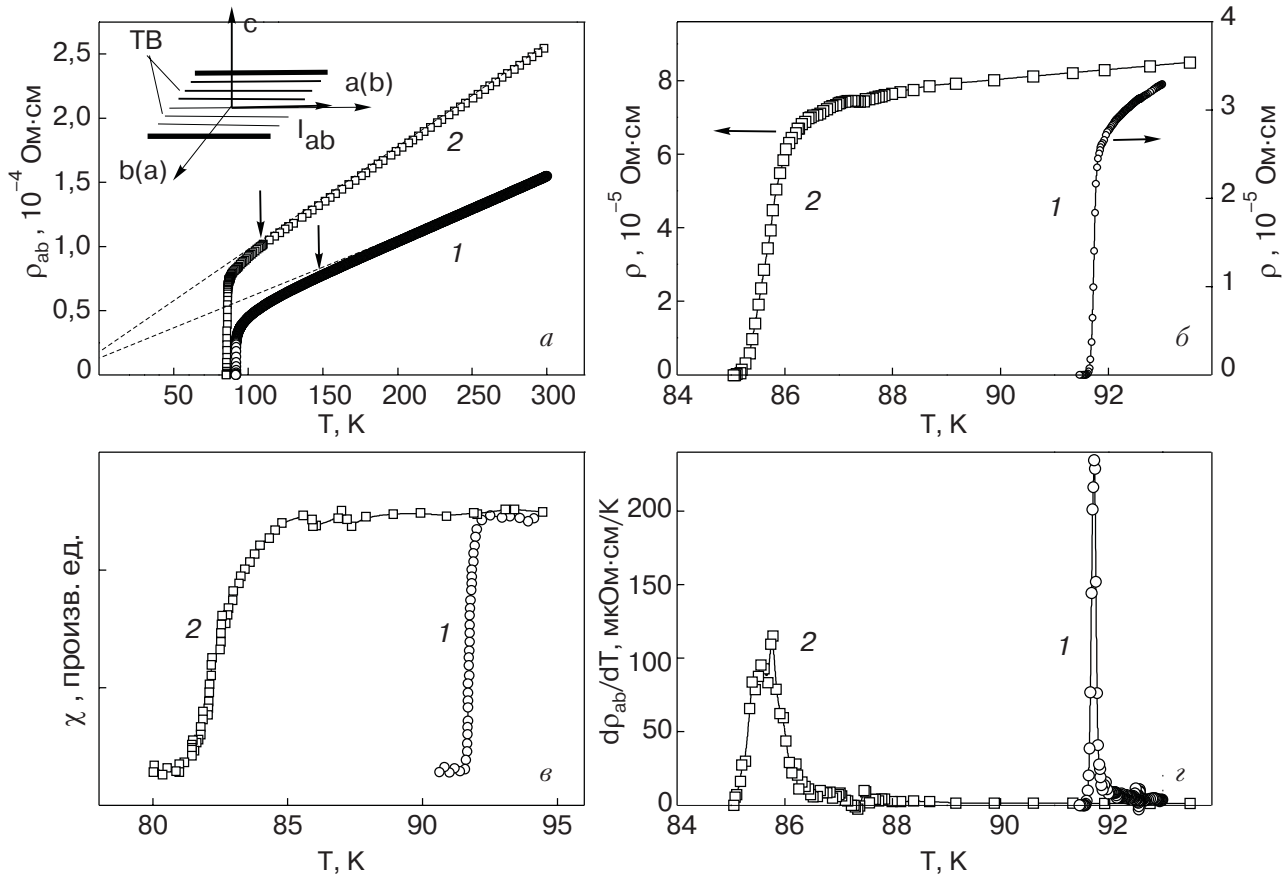


Рис. 1. а – Зависимости удельного электросопротивления $\rho_{ab}(T)$ монокристаллов К1 (1) и К2 (2); стрелками показаны точки отклонения от линейного хода зависимостей; на вставке – схематическое изображение мостика для резистивных исследований; б и в – переходы в сверхпроводящее состояние тех же кристаллов, полученные из резистивных (б) и магнитных (в) измерений; г – температурные зависимости $d\rho_{ab}/dT$ в области СП переходов тех же образцов.

ного пика на зависимости $d\rho_{ab}(T)/dT$ (рис. 1,г) при $T \approx 87$ К, что может быть обусловлено наличием двух фаз с различными критическими температурами, для которых $T_{c1} - T_{c2} \approx 1,5$ К. Такое предположение также подтверждается результатами измерений полевых зависимостей критического тока, проведенных в [6].

Как следует из рис. 1, при понижении температуры ниже некоторого характерного значения T^* происходит отклонение $\rho_{ab}(T)$ от линейной зависимости, что свидетельствует о появлении некоторой избыточной проводимости, которая, согласно современным представлениям, обусловлена переходом к псевдощелевому режиму [3,4,7–9]. В настоящее время в литературных источниках интенсивно дис-

кутируются два основных сценария возникновения псевдощелевой аномалии в ВТСП системах. Согласно первому, возникновение ПЩ связано с флуктуациями ближнего порядка «диэлектрического» типа, имеющими место у недодопированных составов (см., например, обзор [7]). Второй сценарий предполагает формирование куперовских пар уже при температурах существенно выше критической $T^* \gg T_c$ с последующим установлением их фазовой когерентности при $T < T_c$ [8,9].

Как видно из таблицы и рис. 2, для образца с добавкой празеодима область линейной зависимости $\rho_{ab}(T)$ существенно расширяется по сравнению с беспримесным кристаллом, а температура T^* смещается в область низких температур более чем на

Таблица. Параметры экспериментальных образцов

Кристалл	T_c , К	$\rho_{ab}(300\text{ К})$, мкОм·см	T^* , К	Δ_{ab}^* , мэВ	ϵ_0	$\text{tg } \alpha_{3D}$	$\text{tg } \alpha_{2D}$	$\xi_c(0)$, Å
К1	91,74	155	143	87,3	0,064	-0,499	-1,012	1,48
К2	85,78	255	110	98,1	0,067	-0,528	-1,039	1,51

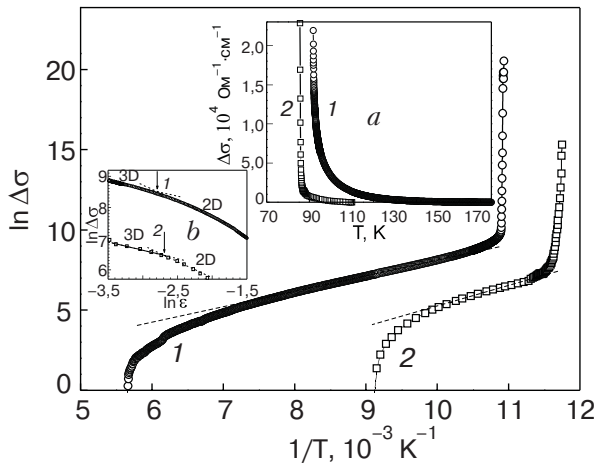


Рис. 2. Температурные зависимости избыточной проводимости в ab -плоскости для монокристаллов К1 (1) и К2 (2). Аппроксимация экспериментальных кривых уравнением (3) показана пунктирными линиями, а на вставке b — прямыми с углом наклона $\text{tg } \alpha_1 \approx -0,5$ (3D-режим) и $\text{tg } \alpha_2 \approx -1,0$ (2D-режим). Стрелки указывают точки 2D–3D-кроссовера.

30 К, что свидетельствует о соответствующем сужении температурного интервала существования избыточной проводимости. Следует отметить, что подобное поведение кривых $\rho_{ab}(T)$ достаточно необычно, поскольку до настоящего времени при допировании соединений Y–Ba–Cu–O празеодимом при концентрациях $z \geq 0,2$ наблюдался обратный эффект сдвига T^* в сторону более высоких температур [3].

Температурная зависимость избыточной проводимости обычно определяется из равенства

$$\Delta\sigma = \sigma - \sigma_0, \quad (1)$$

где $\sigma_0 = \rho_0^{-1} = (A + BT)^{-1}$ — проводимость, определяемая экстраполяцией линейного участка в нулевое значение температуры, а $\sigma = \rho^{-1}$ — экспериментально определяемое значение проводимости в нормальном состоянии. Полученные зависимости $\Delta\sigma(T)$ представлены на вставке a к рис. 2. На рис. 2 показаны те же кривые в координатах $\ln \Delta\sigma - 1/T$. Видно, что в достаточно широком температурном интервале эти зависимости имеют вид прямых, что соответствует их описанию экспоненциальной зависимостью вида

$$\Delta\sigma \sim \exp(\Delta_{ab}^*/T), \quad (2)$$

где Δ_{ab}^* — величина, определяющая некий термоактивационный процесс через энергетическую щель — «псевдощель».

Экспоненциальная зависимость $\Delta\sigma(T)$ уже наблюдалась ранее на пленочных образцах Y–Ba–Cu–O [9]. Как было показано в [9], аппроксимация экспериментальных данных может быть

существенно расширена посредством введения множителя $(1 - T/T^*)$. В этом случае избыточная проводимость пропорциональна плотности сверхпроводящих носителей $n_s \sim (1 - T/T^*)$ и обратно пропорциональна числу пар $\sim \exp(-\Delta^*/kT)$, разрушенных тепловым движением. При этом T^* рассматривается как среднеполевая температура сверхпроводящего перехода, а температурный интервал $T_c < T < T^*$, в котором существует псевдощелевое состояние, определяется жесткостью фазы параметра порядка, зависящего от дефицита кислорода или концентрации допирующего элемента. Величина Δ^* , полученная из (2) для наших экспериментальных образцов, приведена в таблице.

Как видно на рис. 2, по мере приближения к T_c происходит резкое возрастание величины $\Delta\sigma$. Из теории [10] известно, что вблизи T_c избыточная проводимость обусловлена процессами флуктуационного спаривания носителей, вклад которых в проводимость при $T > T_c$ для двумерного (2D) и трехмерного (3D) случаев определяется степенными зависимостями вида

$$\Delta\sigma_{2D} = \frac{e^2}{16\hbar d} \varepsilon^{-1}, \quad (3)$$

$$\Delta\sigma_{3D} = \frac{e^2}{32\hbar \xi_c(0)} \varepsilon^{-1/2}, \quad (4)$$

где $\varepsilon = (T - T_c)/T_c$, e — заряд электрона, $\xi_c(0)$ — длина когерентности вдоль оси c при $T \rightarrow 0$, d — характерный размер двумерного слоя. Как отмечено выше, T_c в нашем случае определялась в точке максимума на зависимостях $d\rho_{ab}(T)/dT$ в области сверхпроводящего перехода.

На вставке b к рис. 2 представлены температурные зависимости $\Delta\sigma(T)$ в координатах $\ln \Delta\sigma - \ln \varepsilon$. Видно, что вблизи T_c эти зависимости удовлетворительно аппроксимируются прямыми с углом наклона $\text{tg } \alpha_1 \approx -0,5$, соответствующим показателю степени $-1/2$ в уравнении (3), что свидетельствует о трехмерном характере флуктуационной сверхпроводимости в этом температурном интервале. При дальнейшем повышении температуры скорость уменьшения $\Delta\sigma$ существенно возрастает ($\text{tg } \alpha_2 \approx -1$), что можно рассматривать как указание на изменение размерности флуктуационной проводимости (ФП). Как следует из (3) и (4), в точке 2D–3D-кроссовера

$$\xi_c(0)\varepsilon_0^{-1/2} = d/2. \quad (5)$$

В этом случае, определив значение ε_0 и используя литературные данные о зависимости межплоскостного расстояния от δ [11] ($d \approx 11,7 \text{ \AA}$), можно вы-

числить значения $\xi_c(0)$. Проведенные расчеты показали, что при внесении добавки Pr происходит изменение величины длины когерентности от $\xi_c(0) = 1,48 \text{ \AA}$ (Y-Ba-Cu-O) до $\xi_c(0)_{Pr} = 1,51 \text{ \AA}$ ($Y_{1-z}Pr_zBa_2Cu_3O_{7-\delta}$), а также несколько смещается по температуре точка 3D-2D-кроссовера (рис. 2, вставка б). Следует также отметить, что если определять температуру перехода из ПЩ в ФП режим T_f по точке отклонения величины $\ln \Delta\sigma$ вверх от линейной зависимости $\ln \Delta\sigma(1/T)$ [9], можно оценить относительную протяженность существования ПЩ и ФП режимов как $t^* = (T^* - T_f)/T_f$ и $t_f = (T_f - T_c)/T_c$ соответственно. Результаты расчетов показывают, что при малом допировании празеодимом происходит общее относительное сужение температурной области реализации ПЩ более чем в два раза, от $t^* = 0,530$ до $0,243$, при одновременном относительном расширении области существования ФП — от $t_f = 0,0158$ до $0,0411$ для кристаллов K1 и K2 соответственно.

В заключение кратко просуммируем основные результаты, полученные в настоящей работе. Увеличение электросопротивления на линейном участке зависимостей $\rho_{ab}(T)$ в случае частичной замены Y на Pr свидетельствует об эффективности рассеяния нормальных носителей на примесях Pr. При этом в сверхпроводящем состоянии происходит образование двух фаз с различными T_c . Избыточная проводимость $\Delta\sigma(T)$ монокристаллов Y-Ba-Cu-O и $Y_{1-z}Pr_zBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ в интервале температур $T_f < T < T^*$ подчиняется экспоненциальной температурной зависимости, а в случае приближения к T_c удовлетворительно описывается в рамках теоретической модели Асламазова-Ларкина. Допирование монокристаллов Y-Ba-Cu-O малыми добавками празеодима $z \approx 0,05$ приводит к необычному эффекту сужения температурного интервала реализации ПЩ режима, тем самым удлиняя область линейной зависимости $\rho(T)$ в *ab*-плоскости.

1. A. Kebede et al., *Phys. Rev.* **B40**, 4453 (1991).
2. H.B. Radousky, *J. Mater. Res.* **7**, 1917 (1992).
3. V. Sandu, E. Cimpoiasu, T. Katuwal, S. Li, M.B. Maple, and C.C. Almasan, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 177005 (2004).
4. M.A. Obolenskii, R.V. Vovk, A.V. Bondarenko, and N.N. Chebotaev, *Fiz. Nizk. Temp.* **32**, 746 (2006).
5. M. Muroj and R. Street, *Physica* **C228**, 216 (1994).
6. M.A. Obolenskii et al., *Functional Material* **2**, 409 (1995).
7. М.В. Садовский, *УФН* **171**, 539 (2001).
8. P. Pieri, G.C. Strinati, and D. Moroni, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 127003 (2002).
9. Д.Д. Прокофьев, М.П. Волков, Ю.А. Бойко, *ФТТ* **45**, 1168 (2003).
10. Л.Г. Асламазов, А.И. Ларкин, *ФТТ* **10**, 1104 (1968).
11. G.D. Chryssikos et al., *Physica* **C254**, 44 (1995).

Evolution of pseudo-gap states in weakly Pr-doped single crystals of $Y_{1-z}Pr_zBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ with a given topology of planar defects

M.A. Obolenskii, R.V. Vovk, and A.V. Bondarenko

Conductivity is studied in the basal plane of Y-Ba-Cu-O and $Y_{1-z}Pr_zBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ single crystals with a system of unidirectional twin boundaries. It is shown that a partial replacement of Y with Pr gives rise to two superconducting phases with different critical temperatures. The Pr impurities are efficient centers of scattering for normal and fluctuation carriers. A weak Pr doping (up to $z \approx 0.05$) of Y-Ba-Cu-O single crystals involves a considerable decrease in the temperature range of realization of the pseudo-gap state in the *ab*-plane.

Keywords: doping, Y-Ba-Cu-O single crystals, pseudogap states, crossover, coherence length.