Физика низких температур, 1996, т. 22, № 11, с. 1260–1264

Квадратичная температурная зависимость электросопротивления в нормальном состоянии пленок $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4-\delta}$ и магнитное рассеяние носителей

Н. А. Бабушкина, Л. М. Белова, А. П. Жернов, В. И. Трубицын

Российский научный центр «Курчатовский Институт», Россия, 123182, г. Москва, пл. И. В. Курчатова, 1
E-mail:ovi@ozhogin.kiae.su

А. А. Иванов, О. А. Чуркин

Московский государственный инженерно-физический институт (Технический университет), Россия, 115409, г. Москва

Исследована температурная зависимость электросопротивления $\rho(T)$ в нормальном состоянии для электронных сверхпроводников $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4-\delta}$ в интервале концентраций церия $x = 0,12–0,20$. Для всех исследованных образцов зависимость $\rho(T)$ имеет вид $\rho(T) = \rho_0 + AT^2$. С увеличением содержания церия величина квадратичного члена $\rho(T)$ и значения остаточного сопротивления уменьшаются. Поведение $\rho(T)$ качественно объясняется магнитным рассеянием носителей на спиновых корреляциях.

Досліджено температурну залежність електроопору $\rho(T)$ у нормальному стані для електронних надпровідників $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4-\delta}$ в інтервалі концентрацій церія $x = 0,12–0,20$. Для усіх досліджених зразків залежність $\rho(T)$ має вигляд $\rho(T) = \rho_0 + AT^2$. Із збільшенням концентрації церія величина квадратичного члена $\rho(T)$ и значення залишкового опору зменшуються. Поведінка $\rho(T)$ якісно з'ясується магнітним розсіянням носіїв на спінових кореляціях.

1. Введение

Один из наиболее интригующих вопросов в проблеме высокотемпературной сверхпроводимости (ВТСП) связан с выяснением природы температурной зависимости электросопротивления $\rho(T)$ в нормальном состоянии.

Установлено, что линейная зависимость $\rho(T)$, обнаруженная ранее для дырочных сверхпроводников (ВТСП p-типа) [1], не является универсальным свойством нормального состояния ВТСП. Отклонения от линейного закона для $\rho(T)$ обнаружены в электрон-допированных (n-типа) сверхпроводниках $Ln_{2-x}Ce_xCuO_{4-\delta}$ (LCCO), где Ln = Nd, Pr, Sm. В этих системах в интервале температур $T = 50–200$ K наблюдалась квадратичная зависимость $\rho(T) = \rho_0 + AT^2$. Анализу такой зависимости были посвящены работы [2–7]. Однако вопрос о природе механизма, обусловливающего квадратичную зависимость $\rho(T)$, остается невыясненным.

В большинстве работ, в которых обнаружена квадратичная зависимость $\rho(T)$, исследовались системы NCCO с оптимальным содержанием церия. Известно, что при изменении состава должны меняться электронные свойства и магнитное состояние системы. Для того чтобы выяснить, как эти изменения в спектре квазичастиц влияют на электросопротивление, мы предприняли систематические измерения $\rho(T)$ для системы $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4-\delta}$ с различным содержанием Ce. Опираясь на полученные результаты мы качественно проанализировали ситуацию с целью выявить доминирующий релаксационный механизм.

2. Экспериментальные результаты

Образцы

Нами были проведены измерения электросопротивления в нормальном состоянии на эпитаксиальных пленках $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4-\delta}$ с различным содержанием церия, включая составы с оптимальным содержанием ($x = 0,15$), меньше ($x = 0,12; 0,14$) и больше оптимального ($x = 0{,}17$; 0,18; 0,20). Использование эпитаксиальных пленок дает достоверные сведения о поведении электросопротивления в плоскости *ab*.

Для изготовления эпитаксиальных пленок была использована технология лазерного напыления на (100) $SrTiO_3$ подложки и последующего вакуумного отжига. Детали этого процесса и основные характеристики изготовленных пленок опубликованы ранее [12]. Пленки для измерения электросопротивления, напыленные на оптически полированные подложки (001) $SrTiO_3$, выдерживались при 780 °C при $P \sim 10^{-2}$ торр в течение 40 мин для создания кислородного дефицита и формирования сверхпроводящей фазы. Рентгенофазовый анализ указывает, что пленки всех составов выращены эпитаксиально с осью *c*, перпендикулярной к плоскости пленки, и ориентированы вдоль (001). Угловые положения дифракционных пиков находятся в хорошем согласии с T'-фазой $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4-\delta}$ [13]. Электросопротивление $\rho(T)$ эпитаксиальных пленок измерялось по стандартной четырехконтактной методике на переменном токе с амплитудой измеряемого тока ~ 200 мкА.

Результаты измерений

В результате проведенных измерений $\rho(T)$ для пленок $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4-\delta}$ в интервале от 4 до 300 К было установлено, что с увеличением содержания церия наблюдается изменение характера поведения $\rho(T)$ от несверхпроводящего ($x = 0{,}12$) к сверхпроводящему ($x = 0{,}14$–$0{,}18$) и снова к несверхпроводящему ($x = 0{,}20$). Максимальная критическая температура T_c равна 23 К при $x = 0{,}15$. Переход в сверхпроводящее состояние коррелирует с переходом, который происходит в нормальном состоянии этих соединений от полупроводникового вида $\rho(T)$ к металлическому. Металлический характер поведения $\rho(T)$ сохраняется и для несверхпроводящих составов NCCO при $x = 0{,}20$. Наблюдается также тенденция к уменьшению электросопротивления в нормальном состоянии с увеличением *x* от 0,15 до 0,20.

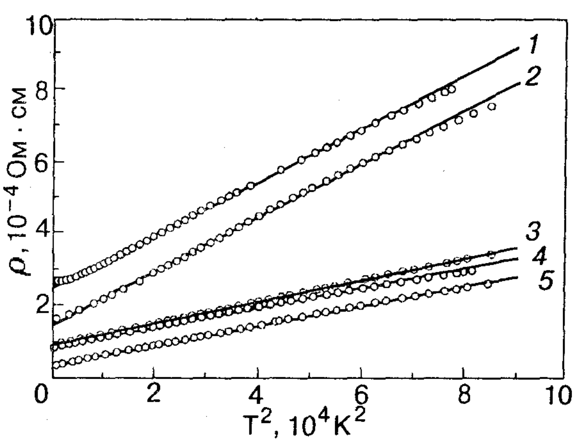

Рис. 1. Зависимость электросопротивления ρ от T^2 в эпитаксиальных пленках $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4-\delta}$ при различном содержании церия *x*: 0,12 (*1*); 0,14 (*2*); 0,15 (*3*); 0,17 (*4*); 0,18 (*5*); 0,20 (*6*). Точки — экспериментальные данные, сплошная прямая — зависимость $\rho(T)$, рассчитанная по формуле (1).

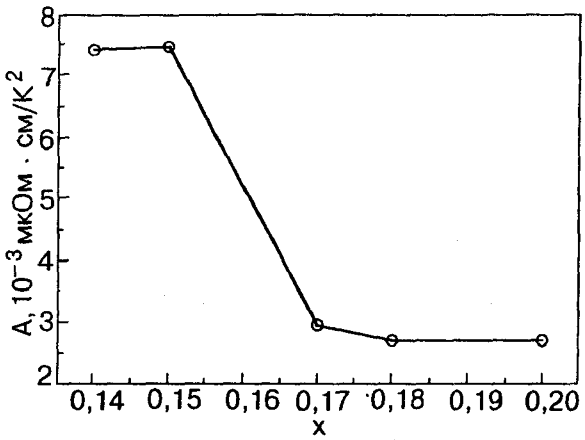

Рис. 2. Зависимость коэффициента *A* при квадратичном члене в $\rho(T)$ (1) от концентрации церия.

Для всех исследованных нами образцов зависимость $\rho(T)$ нелинейна. Приближенно она описывается соотношением

$$\rho(T) = \rho_0 + AT^2, \tag{1}$$

как показано на рис. 1. При этом для всех *x* с повышением температуры при $T > 250$ К наблюдается ослабление квадратичной зависимости. Детальные сведения о поведении коэффициента $A(x)$ дает рис. 2. Видно, что для $x = 0{,}14$ и 0,15 коэффициент *A* практически одинаков, при $x = 0{,}17$ он резко падает и далее почти не зависит от концентрации церия, хотя при $x = 0{,}17$ и 0,18 система является сверхпроводящей, а при $x = 0{,}20$ — несверхпроводящей. Кроме того, обнаружено, что с увеличением содержания церия в образцах значения остаточного сопротивления ρ_0 уменьшаются.

3. Обсуждение результатов

Наблюдаемую для всех исследованных составов $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4-\delta}$ квадратичную зависимость $\rho(T)$ нельзя объяснить электрон-фононным механизмом рассеяния. Оценки, выполненные с использованием результатов туннельных экспериментов о спектре электрон-фононного взаимодействия, показали, что соответствующие значения A много выше, чем экспериментальные [4]. Не удается также количественно описать зависимость $\rho(T)$, основываясь на электрон-электронном механизме рассеяния [3,5]. Дело в том, что в этом случае стандартные теоретические значения для коэффициентов A при квадратичном члене в $\rho(T)$ оказываются значительно меньшими ($A \sim 10^{-12}$ мкОм·см·К$^{-2}$) по сравнению с экспериментальными.

Отметим, что большая величина квадратичного члена в $\rho(T)$ ($A \sim 10^{-3}$ мкОм·см·К$^{-2}$) наблюдалась в переходных и редкоземельных металлах [15], в которых было установлено преобладание в сопротивлении магнитного рассеяния электронов проводимости на магнитных моментах $3d$- и $4f$-электронов. Принимая во внимание все сказанное, можно предположить, что квадратичная зависимость $\rho(T)$ для NCCO также определяется магнитным рассеянием электронов.

Особенности магнитных свойств электронных сверхпроводников n-типа $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4-\delta}$ ярко проявляются при сравнении с аналогичной системой сверхпроводников p-типа $La_{2-x}Sr_xCuO_{4-\delta}$. Напомним, что эти две группы ВТСП обладают рядом общих черт. А именно, Nd_2CuO_4 и La_2CuO_4 — несверхпроводящие прототипы этих семейств — являются антиферромагнетиками с температурами Нееля T_N соответственно 250 и 280 К. В результате изучения спектров рамановского и нейтронного рассеяния [16–19] в LSCO и NCCO установлено, что при допировании нарушается дальний порядок между плоскостями. Вместе с тем допирование оказывает слабое влияние на ближний порядок во взаимодействии между атомами меди в плоскостях CuO_2. В слоях CuO_2 сохраняются двумерные спиновые корреляции антиферромагнитного типа.

При более детальном сравнении результатов исследования нейтронных и рамановских спектров рассеяния для NCCO [18,19] с результатами для LSCO [16,17] было выяснено, что существуют специфические особенности в проявлении антиферромагнитных спиновых корреляций в сверхпроводниках n-типа по сравнению с p-типом, которые связаны с разной эффективностью носителей n- и p-типа в разрушении магнитного порядка в электронных и дырочных системах.

Причина разного магнитного поведения этих двух групп сверхпроводников состоит в том, что при допировании церием в Nd_2CuO_4 электроны локализуются преимущественно на медных позициях, а дырки, возникающие при допировании стронцием в La_2CuO_4, локализуются на кислороде. Допирование электронами соединения Nd_2CuO_4, меняет эффективный заряд на атоме меди ($Cu^{2+} \rightarrow Cu^{1+}$) [13], в результате чего происходит разбавление магнитной подсистемы Cu^{2+} вследствие появления немагнитных ионов Cu^{+1}. При этом антиферромагнитный порядок может сохраняться и при достаточно высоких температурах, и при относительно высоких концентрациях Се. Что же касается дырочного допирования La_2CuO_4, то оно меняет заряд на ионе кислорода ($O^{-2} \rightarrow O^{-1}$) [21]. Присутствие магнитного кислородного иона между двумя соседними ионами меди способствует возникновению эффективного ферромагнитного взаимодействия между этими ионами и тем самым образованию фрустрации антиферромагнитного типа в решетке CuO_2. При дырочном допировании магнитная фрустрация приводит к быстрому уменьшению спиновых корреляций и соответственно к потере дальнего антиферромагнитного порядка при очень низких концентрациях допанта $x = 0{,}027$. В результате длина спиновых корреляций в системе $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4-\delta}$ оказывается больше, чем в $La_{2-x}Sr_xCuO_{4-\delta}$ [18]. Различие в эффективности разрушения магнитного порядка между фрустрацией и просто разбавлением спиновой подсистемы подтверждают измерения мюонной спиновой релаксации в NCCO [20]. Наличие в NCCO локальных моментов, скоррелированных на больших длинах, которые сравнимы с длиной свободного пробега электронов, должно оказать сильное влияние на рассеяние электронов в сверхпроводниках n-типа.

Перечисленные выше особенности магнитного состояния рассматриваемых систем NCCO, по нашему мнению, возможно, являются причиной, которая определяет значительную роль магнитного рассеяния в проводимости электронных сверхпроводников и отвечает за различие в характере температурных зависимостей нормального сопротивления ВТСП n- и p-типов. Роль спиновых флуктуаций в температурной зависимости $\rho(T)$ ВТСП довольно широко обсуждается в теоретических работах, в которых используются различные феноменологические модели [8–11].

Далее мы считаем, что не только квадратичная зависимость $\rho(T)$, но и другие особенности поведения сопротивления в NCCO определяются магнитным рассеянием на спиновых флуктуациях. А именно, магнитным рассеянием можно объяснить ослабление квадратичной зависимости $\rho(T)$ с ростом температуры. Причина в том, что с увеличением температуры спиновые корреляции подавляются и, следовательно, уменьшается влияние магнитного рассеяния. Кроме того, обнаруженное уменьшение остаточного сопротивления ρ_0 и величины A с ростом концентрации церия также свидетельствует о связи обеих величин с магнитным рассеянием.

Дело в том, что по мере допирования частично подавляются магнитные возбуждения и должно уменьшаться ρ_0 как мера беспорядка в спиновой подсистеме. Заметим, что, если бы величина ρ_0 определялась структурным беспорядком, то она должна была бы увеличиваться с концентрацией церия, так как беспорядок в расположении атомов церия или кислорода в решетке NCCO растет с допированием [14].

При анализе зависимости $A(x)$ обратим внимание на работу [18], в которой методом рамановского рассеяния получены результаты по изменению характера магнитных возбуждений в $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4-\delta}$ вследствие допирования. Установлено, что при слабом допировании сохраняется дальний порядок и эффективный магнитный момент системы достаточно большой. При этом в области $0 < x < 0,13$, хотя величина T_N и уменьшается, обменное взаимодействие в плоскости CuO_2 практически не чувствительно к концентрации церия. Согласно [18], при дальнейшем увеличении концентрации церия, когда происходит переход в сверхпроводящее и далее металлическое состояния, магнитные возбуждения в значительной степени подавляются, но по-прежнему сохраняется локальный характер моментов ионов Cu^{2+}. При этом магнитные возбуждения снова слабо зависят от концентрации церия. В этой области допирования длина магнитных корреляций медленно уменьшается с увеличением концентрации церия.

Подобное поведение магнитных возбуждений при допировании коррелирует с зависимостью коэффициента A от концентрации церия, представленной на рис. 2. Из рисунка видно, что значение коэффициента A является максимальным при $x = 0,15$. Оно практически такое же и при $x = 0,14$. Вместе с тем величина A резко уменьшается при $x = 0,17$ и затем почти не меняется при дальнейшем изменении x вплоть до 0,10.

4. Выводы

Исследована температурная зависимость электросопротивления $\rho(T)$ в нормальном состоянии для системы $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4-\delta}$ в широком интервале концентраций церия. Анализ экспериментальных данных привел нас к выводу о том, что поведение $\rho(T)$ качественно можно объяснить магнитным рассеянием носителей на спиновых флуктуациях.

Авторы выражают благодарность Н. К. Чумакову за помощь в проведении эксперимента, искреннюю признательность А. П. Менушенкову и А. В. Кузнецову за интерес к работе и М. А. Бондаренко за изготовление лазерных мишеней состава $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4-\delta}$, необходимых для изготовления эпитаксиальных пленок.

Настоящая работа выполнена в рамках программы, поддержанной Международным научным фондом (грант N95000). Один из авторов, А. П. Жернов, работает в рамках программы МНФ (N93000).

1. H. E. Fischer, S. K. Watson, and D. J. Cahill, *Comments Cond. Matt. Phys.* **14**, 65 (1988).
2. Y. Hidaka and M. Suzuki, *Nature (London)* **338**, 635 (1989).
3. C. C. Tsuei, A. Gupta, and G. Koren, *Physica* **C161**, 415 (1989); C. C. Tsuei, *Physica* **A168**, 238 (1990).
4. N. Tralshawala, J. F. Zasadzinski, L. Coffey, and Quang Huang, *Phys. Rev.* **B44**, 12102 (1991).
5. M. A. Crusellas, J. Fontcuberta, and S. Pinol, *Physica* **C180**, 313 (1991).
6. Wu. Jiang, S. N. Mao, X. X. Xi, Xinguang Jiang, J. L. Peng, T. Venkatesan, C. J. Lobb, and R. L. Greene, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 1291 (1994).
7. M. Suzuki, Shugo Kubo, Ken-ichi Ishiguro, and Katsuji Haruna, *Phys. Rev.* **B50**, 9434 (1994).
8. O. Beom-hoan and J. Markert, *Phys. Rev.* **B47**, 8373 (1993).
9. T. Moriya, Y. Takahashi, and K. Ueda, *J. Phys. Soc. Jpn.* **59**, 2905 (1990).
10. D. Ihle, M. Kasuer, and N. M. Plakida, *Z. Phys.* **B83**, 193 (1991); D. Ihle and N. M. Plakida, *Physica* **C185–189**, 1637 (1991).
11. D. Ihle and N. M. Plakida, *Z. Phys.* **B96**, 159 (1994).
12. A. A. Ivanov, S. G. Galkin, A. V. Kuznetsov, and A. P. Menushenkov, *Physica* **C180**, 69 (1991).
13. M. Tranquada, S. M. Heald, A. R. Moodenbaugh, G. Liang, and M. Croft, *Natura (London)* **337**, 720 (1989).
14. M. C. de Andrade, Y. Dalichaouch, and M. B. Maple, *Phys. Rev.* **B48**, 16737 (1993).
15. E. P. Wohlfarth, in: *Ferromagnetic Materiales*, vol. 1, E. P. Wohlfarth (ed.), p. 121.
16. S. Sugai, T. Ido, H. Takagi, S. Uchida, M. Sato, and S. Shamoto, *Solid State Commun.* **76**, 365 (1990).
17. R. J. Birgeneau, D. R. Gable, H. P. Jensen, M. A. Kastner, P. G. Picone, T. R. Thurston, G. Shirane, Y. Endoh, M. Sato, K. Yamatto, Y. Hidaka, M. Oda, Y. Enomoto, M. Suzuki, and T. Murakami, *Phys. Rev.* **B38**, 6614 (1988).
18. I. Tomeno, M. Yoshida, K. Ikeda, K. Tai, K. Takamuku, N. Koshizuka, and S. Tanaka, *Phys. Rev.* **B43**, 3009 (1991).
19. M. Matsuda, Y. Endoch, K. Yamada, H. Kojima, R. J. Birgeneau, M. A. Kastner, and G. Shirane, *Phys. Rev.* **B45**, 12548 (1992); T. R. Thurston, M. Matsuda, K. Kakurai, K. Yamada Y. Endoh, R. J. Birgeneau, P. M. Gehring, Y. Hidaka, M. A. Kastner, T. Murakami, and G. Shirane, *Phys. Rev. Lett.* **65**, 263 (1990).
20. G. M. Luke, L. P. Le, B. J. Sternlieb, Y. J. Uemura, J. H. Brewer, R. Kadono, R. F. Kiefl, S. R. Kreirzman, T. M. Riseman, S. Uchida, H. Takagi, Y. Tokura, E. A. Early, J. T. Markert, M. B. Maple, and C. L. Seaman, *Phys. Rev.* **B65**, 7981 (1990).
21. T. Takahasi, S. Maeda, H. Katayama-Yoshida, Y. Okade, T. Suzuki, A. Fujimori, S. Hosoya, S. Shamoto, and M. Sato, *Phys. Rev.* B37, 9788 (1988).

Quadratic temperature dependence of resistivity in $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4-\delta}$ thin films in normal state and magnetic scattering

N. A. Babushkina, L. M. Belova, A. P. Zhernov, V. I. Trubitsyn, A. A. Ivanov, and O. A. Churkin

Temperature dependence of resistivity $\rho(T)$ in normal state was studied for electron superconductors $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4-\delta}$ in the cerium concentration range $x = 0.12$–0.20. For each of the investigated samples the $\rho(T)$ dependence is of the form: $\rho(T) = \rho_0 + AT^2$. With increasing the cerium content the contribution of the quadratic term in $\rho(T)$ and the values of residual resistivity ρ_0 decrease. The behavior of $\rho(T)$ is qualitatively explained by the magnetic scattering of carriers by spin correlations, which is responsible for the quadratic dependence of $\rho(T)$.