

УДК 538.945+537.312.62

PACS: 74.72.-h

Влияние отжига на температурную зависимость псевдощели в монокристаллах $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ с большим дефицитом кислорода

А.А. Завгородний, Р.В. Вовк, М.А. Оболенский, З.Ф. Назиров, Е.И. Чурюкова

Харьковский национальный университет им. В.Н. Каразина

Украина 61077 г. Харьков-77 пл. Свободы 4

email: Ruslan.Vovk@univer.kharkov.ua

В работе исследовано влияние отжига при комнатных температурах на избыточную проводимость монокристаллов $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ с большим отклонением от стехиометрии по кислороду. Обнаружено, что в процессе отжига при комнатных температурах в течение около четырех суток происходит общее относительное расширение линейного участка температурной зависимости $\rho_{ab}(T)$. При этом избыточная проводимость подчиняется экспоненциальной температурной зависимости в широком интервале температур, а температурная зависимость псевдощели - удовлетворительно описывается в рамках теории кроссовера БКШ-БЭК.

Ключевые слова: отжиг, лабильный кислород, перераспределение, монокристаллы $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, псевдощелевое состояние.

У роботі досліджено вплив відпалювання при кімнатних температурах на надлишкову провідність бездвійникового монокристалла $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ з великим відхиленням від стехіометрії по кисню. Виявлено, що у процесі відпалювання при кімнатних температурах на протязі чотирьох діб відбувається загальне відносне розширення лінійного ділянки температурної залежності $\rho_{ab}(T)$. При цьому надлишкова провідність підкоряється експоненціальній температурній залежності у широкому інтервалі температур, а температурна залежність псевдощелини - задовільно описується в рамках теорії кроссовера БКШ-БЕК.

Ключові слова: відпалювання, лабільний кисень, перерозподіл, монокристали $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, псевдощелинний стан.

Effect of annealing at room temperatures on excess conductivity of untwined $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ single crystal with big deviation from oxygen stehiometry are investigated. It is shown, that in the process of annealing at room temperatures about four days are results to the significant expansion of the linear site of temperature dependence $\rho_{ab}(T)$. The excess conductivity submits exponential temperature dependence in the wide temperature interval. The temperature dependence of pseudogap satisfactorily described by BCSH-BEK theoretical model

Keywords: annealing, labile oxygen, redistribution, $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ single crystals, pseudogap states.

Изучение псевдощелевой аномалии (ПЩ) продолжает оставаться одним из наиболее актуальных направлений физики высокотемпературной сверхпроводимости (ВТСП) [1]. В настоящее время в литературе интенсивно дискутируются два основных сценария возникновения ПЩ в ВТСП-системах. Согласно первому, возникновение ПЩ связано с флуктуациями ближнего порядка «дielekтрического» типа, имеющими место у недодопированных составов (см. например обзор [2]). Второй сценарий предполагает формирование куперовских пар уже при температурах существенно выше критической $T^* \gg T_c$ с последующим установлением их фазовой когерентности при $T < T_c$ [3-5]. При измерениях электросопротивления переход к ПЩ-режиму проявляется в более быстром чем линейное падении величины электросопротивления в базисной плоскости

$\rho_{ab}(T)$ (появлению так называемой избыточной проводимости), при понижении температуры ниже некоторого характерного значения T^* (температуры открытия псевдощели), которое, как правило, наблюдается в образцах нестехиометрического состава [1-5].

Среди теоретических работ, отстаивающих вторую точку зрения, следует отметить теорию кроссовера от механизма БКШ к механизму бозе-эйнштейновской конденсации (БЭК) [3], в которой были получены температурные зависимости псевдощели для случая слабого

и сильного спаривания. В общем виде эти зависимости описываются уравнением

$$\Delta(T) = \Delta(0) - \Delta(0) \sqrt{\frac{\pi}{2}} \sqrt{\frac{T}{\Delta(0)}} \times \exp\left[-\frac{\Delta(0)}{T}\right] \times \left[1 + \operatorname{erf}\left(\sqrt{\frac{\sqrt{x_0^2 + 1} - 1}{T/\Delta(0)}}\right)\right], \quad (1)$$

где $x_0 = \mu/\Delta(0)$ (μ - химический потенциал системы носителей; $\Delta(0)$ - величина энергетической щели при $T=0$), а $\operatorname{erf}(x)$ - функция ошибок.

В предельном случае $x_0 \rightarrow \infty$ (слабого спаривания) аналитическое выражение (1) принимает вид:

$$\Delta(T) = \Delta(0) - \Delta(0) \sqrt{2\pi\Delta(0)T} \times \exp\left[-\frac{\Delta(0)}{T}\right], \quad (2)$$

хорошо известный в теории БКШ. В то же время для предела сильных взаимодействий в 3-х мерном случае ($x_0 < -1$) формула (1) преобразуется в

$$\Delta(T) = \Delta(0) - \frac{8}{\sqrt{\pi}} \sqrt{-x_0} \times \left(\frac{\Delta(0)}{T}\right)^{3/2} \exp\left[-\frac{\sqrt{\mu^2 + \Delta^2(0)}}{T}\right] \quad (3)$$

При этом, как было показано в работе [3], при достаточно высокой точности измерений значения псевдощели в широком интервале температур можно определить из зависимостей $\rho_{\text{аб}}(T)$ (электросопротивления в базисной плоскости).

Одним из представителей ВТСП является соединение $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ (система 1-2-3), отличительной особенностью которого есть сильная зависимость его физических свойств, и, в частности, электропроводности от содержания кислорода [1,3,5]. Совокупность исследований различных физических свойств этих соединений [1,5], показывает наличие в них неравновесного состояния при некоторой степени недостатка кислорода. Так, например, оптические исследования показали [6], что в процессе отжига при комнатной температуре наблюдается увеличение отражательной способности кристаллов, которое авторы объясняли ростом концентрации носителей тока. Это, в свою очередь, должно отражаться на температурных зависимостях электросопротивления. Насколько нам известно, до настоящего времени в литературе не публиковались

результаты экспериментальных исследований влияния перераспределения лабильного кислорода в неравновесном состоянии (при фиксированной концентрации кислорода в образце) на ПШ-аномалию в системе 1-2-3. Учитывая вышесказанное, в настоящей работе были проведены исследования влияния отжига при комнатных температурах на избыточную проводимость монокристаллов $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ с большим отклонением от кислородной стехиометрии.

Экспериментальные методики

Монокристаллы $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ выращивали по раствор-расплавной технологии в золотом тигле, согласно методике [1,5]. Для проведения резистивных измерений были отобраны два кристалла К1 и К2 размерами соответственно $1.2 \times 1.8 \times 0.04$ и $1.1 \times 1.6 \times 0.03$ мм³.

Электрические контакты создавали по стандартной 4-х контактной схеме путем нанесения серебряной пасты на поверхность кристалла с последующим подсоединением серебряных проводников диаметром 0.05мм и трехчасовым отжигом при температуре 200°C в атмосфере кислорода. Такая процедура позволяла получить переходное сопротивление контактов менее 1 Ω и проводить резистивные измерения при транспортных токах до 10 мА в аб-плоскости.

Измерения проводили в режиме дрейфа температуры при двух противоположных направлениях транспортного тока для исключения влияния паразитного сигнала. Температуру измеряли платиновым терморезистором, напряжение на образце и образцовом сопротивлении - нановольметрами В2-38. Данные с вольтметров через интерфейс автоматически передавались на компьютер. Критическую температуру, определялась в точке максимума на зависимостях $d\rho_{\text{аб}}(T)/dT$ в области сверхпроводящего перехода.

Для уменьшения содержания кислорода образцы К1 и К2 отжигали в течение суток при температуре 680 и 690 °С в атмосфере воздуха, соответственно. После отжига кристаллы охлаждали до комнатной температуры в течение 2-3 мин., монтировали в измерительной ячейке и охлаждали до температуры жидкого азота в течение 10-15 мин. Все измерения проводили на отогреве образцов. Для исследования влияния отжига при комнатной температуре образцы, после первого измерения $\rho(T)$, выдерживали в течение 20 ч. при комнатной температуре и проводили повторные измерения. Следующая серия измерений была проведена после дополнительной выдержки образцов при комнатной температуре в течение 3-5 суток.

Экспериментальные результаты и обсуждение

Температурные зависимости удельного сопротивления монокристаллов К1 и К2 с $T_c \approx 40$ К и 45 К, соответственно, имели S-образную форму, с характерным термоактивационным прогибом и наличием при $T > 270$ К достаточно протяженного линейного участка, отвечающего нормальному состоянию системы [1]. Ниже характеристической температуры T^* измеряемое $\rho_{ab}(T)$ отклоняется от линейной зависимости в сторону меньших значений, что приводит к возникновению избыточной проводимости:

$$\Delta\sigma = [\rho(T) - \rho_N(T)] / [\rho(T) \cdot \rho_N(T)] \quad (4)$$

где $\rho_N(T) = \alpha T + b$ - сопротивление образца в нормальном состоянии, экстраполированное в область низких температур.

Как было показано в [3], аппроксимация экспериментальных зависимостей $\Delta\sigma(T)$ может быть осуществлена посредством соотношения:

$$\Delta\sigma \sim (1 - T/T^*) \exp(\Delta^*_{ab}/T), \quad (5)$$

где Δ^*_{ab} - величина, определяющая некоторый термоактивационный процесс через энергетическую щель - «псевдощель». В этом случае, избыточная проводимость оказывается пропорциональной плотности сверхпроводящих носителей $n_s \sim (1 - T/T^*)$ и обратно пропорциональной числу пар $\sim \exp(-\Delta^*/kT)$, разрушенных тепловым движением.

На рис.1 показаны температурные зависимости

псевдощели в приведенных координатах $\Delta^*(T)/\Delta^*_{lin} - T/T^*$ (Δ^*_{lin} - значение Δ^* на плато вдали от T^* [3]) полученные непосредственно после понижения содержания кислорода (кривая 1), а также после поэтапного отжига экспериментальных образцов при комнатных температурах без изменения содержания кислорода в объеме кристалла (кривые 2,3). Часть кривых на рисунке не приведена, чтобы не усложнять общую картину. Зависимости $\Delta^*(T)/\Delta(0)$ от T/T^* , рассчитанные согласно (2), (3) в приближении среднего поля в рамках теории кроссовера БКШ-БЭК [4] для значений параметра кроссовера $\mu/\Delta(0)=10$ (предел БКШ), -2, -5, -10 (предел БЭК) показаны на рис.1 пунктирными линиями.

Видно, что в случае кривых 1, полученных непосредственно после понижения содержания кислорода температурные зависимости псевдощели показывают достаточно значительное расхождение с теорией [4]. При этом характерный максимум, который наблюдается для этих двух образцов, может быть обусловлен переходом, так называемому, SDW-режиму, как это уже наблюдалось в [7] для недодопированных образцов новых ВТСП-соединений системы SmFeAsO. Согласно [7], все вышеперечисленные особенности могут быть обусловлены общим смещением проводящей подсистемы в область фазовой диаграммы, в которой свойства нормального состояния определяются антиферромагнитными корреляциями. Здесь следует отметить, что использованная нами в настоящей работе экспериментальная методика, связанная с измерением такой интегральной характеристики как

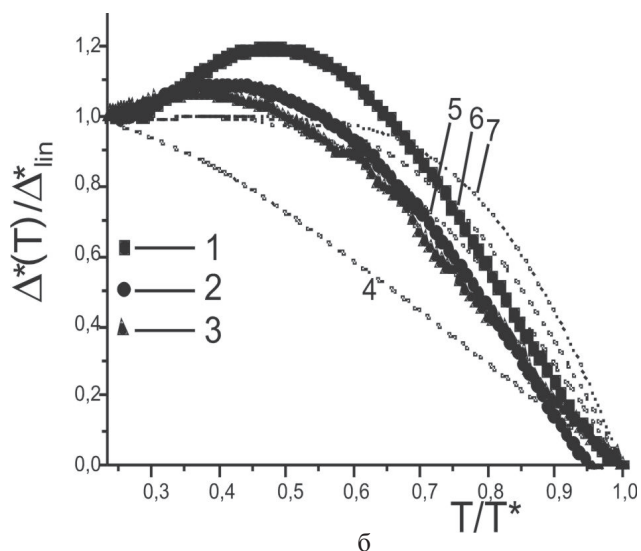
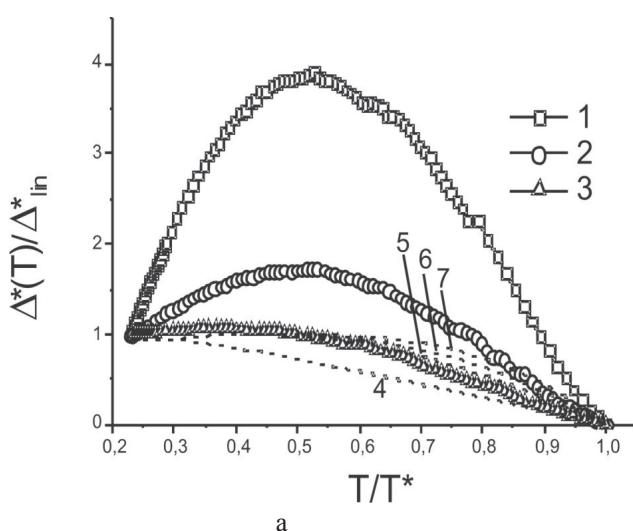


Рис.1. Температурные зависимости псевдощели монокристаллов К1 (а) и К2(б) в приведенных координатах $\Delta^*(T)/\Delta^*_{lin} - T/T^*$. Кривые 1 измерены непосредственно после понижения температуры, а кривые 2 и 3 - после поэтапного отжига при комнатных температурах в течение 20 часов и 5 суток, соответственно. Часть кривых на рисунке не показана, чтобы не усложнять общую картину. Пунктирными линиями показаны зависимости $\Delta^*(T)/\Delta(0)$ от T/T^* , рассчитанные согласно [4] для значений параметра кроссовера $\mu/\Delta(0)=10$ (предел БКШ), -2, -5, -10 (предел БЭК) -показаны на рис.1 (а) и (б) пунктирными линиями (4-7).

электросопротивление, не позволяет с достаточной степенью достоверности напрямую определять степень влияния антиферромагнитных корреляций на избыточную проводимость и псевдощель. С другой стороны, как отмечалось выше, согласно современным представлениям, антиферромагнитные переходы спинов обычно приводят к появлению отчетливо выраженных максимумов на зависимостях $\Delta^*_{ab}(T)$ [7], что наблюдается на наших экспериментальных кривых, полученных непосредственно после понижения содержания кислорода.

Видно, что по мере возрастания времени отжига при комнатной температуре, происходит смещение экспериментальных кривых от зависимостей вида (2) к (3). При этом следует отметить, что температура открытия псевдощели T^* существенно смещается в сторону низких температур (см. рис.2), что соответствует расширению линейного участка зависимости $\rho_{ab}(T)$. Такое поведение оказывается качественно подобным, эффекту трансформации температурных зависимостей псевдощели образцов $YBaCuO$, наблюдаемому в случае приложения высокого гидростатического давления [5,8]. Очевидно, что упомянутые корреляции в поведении кривых $\Delta^*(T)$ являются не случайными. Действительно, как хорошо известно из литературы (см., например [8]), приложение высокого давления к образцам ВТСП-системы 1-2-3, равно как и перераспределение кислорода в процессе отжига, приводит к улучшению проводящих характеристик, которое выражается в увеличении абсолютной величины T_c и существенном понижении удельного электросопротивления. Таким образом, учитывая некоторую условность определения величины открытия псевдощели T^* по отклонению зависимости $\rho_{ab}(T)$ от линейного поведения, согласие эксперимента с теорией в нашем случае можно считать вполне удовлетворительным.

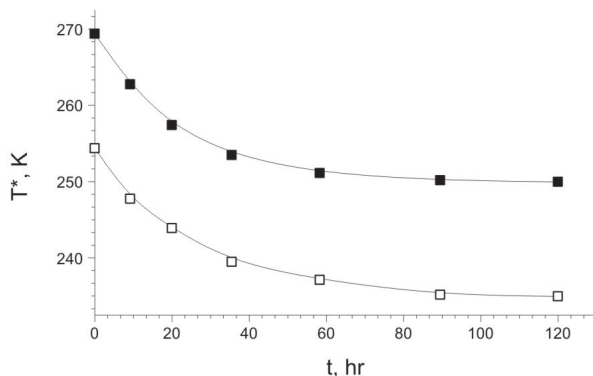


Рис.2. Временные зависимости релаксации температуры открытия псевдощели T^* , измеренные в процессе поэтапного отжига при комнатных температурах для монокристаллов K1 и K2 (темные и светлые символы, соответственно).

Выводы

Отжиг при комнатной температуре монокристаллов $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ с большим дефицитом кислорода приводит к существенному расширению интервала линейной зависимости $\rho_{ab}(T)$ и сужению температурного участка реализации псевдощелевого режима. При этом избыточная проводимость подчиняется экспоненциальной температурной зависимости в широком интервале температур, а температурная зависимость псевдощели - удовлетворительно описывается в рамках теории кроссовера БКШ-БЭК.

1. R.V. Vovk, M.A. Obolenskii, A.A. Zavgorodniy, I.L. Goulatis, V.I. Beletskii, A. Chroneos / Structural relaxation, metal-to-insulator transition and pseudo-gap in oxygen deficient $HoBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ single crystals // *Physica C*. – 2009. – Vol.469. – 203-206.
2. Садовский М.В. Псевдощель в высокотемпературных сверхпроводниках // *УФН*. -2001. -Т.171, №5. - С.539-564.
3. Прокофьев Д.Д., Волков М.П., Бойков Ю.А. Величина и температурная зависимость псевдощели в $YBaCuO$, полученные из резистивных измерений // *ФТТ*. - 2003. – Т.45, №7. - С.1168-1176.
4. Babaev E., Kleinert H. Nonperturbative XY-model approach to strong coupling superconductivity in two and three dimensions // *Phys. Rev. B*. – 1999. - Vol.59. – P.12083-12089.
5. Vovk R.V., Obolenskii M.A., Zavgorodniy A.A., Bondarenko A.V., Goulatis I.L., Samoilov A.V., Chroneos A.I. Effect of high pressure on the fluctuation conductivity and the charge transfer of $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ single crystals // *Journal of Alloys and Compounds*. – 2008. - Vol.453. - P.69-74.
6. K. Widder, A. Zibold, M. Merz et al. / Optical investigations of single-domain crystals // *Physica C*. -1994. -V.232, №1,2. -P.82-88.
7. Ю. А. Изюмов, Э. З. Курмаев. Новый класс высокотемпературных сверхпроводников в FeAs-системах // *УФН*. -178, №12. – С. 1307-1334 (2008).
8. Sadewasser S., Schilling J.S., Paulicas A.P., Veal B.M. Pressure dependence of T_c to 17 GPa with and without relaxation effects in superconducting $Y_1Ba_2Cu_3O_x$ // *Phys. Rev. B*. -2000. -Vol.61, №1. -P.741-749.