

УДК 538.945+537.312.62

## ВПЛИВ ДЕФІЦИТУ КИСНЮ НА АНІЗОТРОПІЮ НОРМАЛЬНОГО ТРАНСПОРТУ В МОНОКРИСТАЛАХ $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$

**Р.В. Вовк, М.О. Оболенський, А.А. Завгородній, О.В. Бондаренко, М.Г. Ревякіна,  
 Н.Н. Чеботаєв**

Харківський національний університет ім. В.Н. Каразіна

Україна 61077 р. Харків-77 пл. Свободи 4

email: [Ruslan.V.Vovk@univer.kharkov.ua](mailto:Ruslan.V.Vovk@univer.kharkov.ua)

Поступила до редакції 18 вересня 2006 р.

У роботі досліджено температурні залежності поздовжнього й поперечного електроопору монокристалів  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$  у міру поетапного зниження вмісту кисню шляхом термообробки. Виявлено, що анізотропія нормального електричного опору  $\rho_c/\rho_{ab}(T)$  добре описується за допомогою універсального «закону  $\frac{1}{2}$ » для термоактиваційної стрибкової провідності. Отримано концентраційну залежність енергії активації, що зростає при зниженні вмісту кисню.

**КЛЮЧОВІ СЛОВА:** анізотропія, монокристали  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ , енергія активації, поздовжня і поперечна провідність.

Як відомо, характерною рисою високотемпературних надпровідних сполук (ВТНП) є шарувата структура [1-3], що зумовлює істотну анізотропію їхніх властивостей у нормальному й надпровідному станах. Одним із представників ВТНП є сполука  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ , відмінною рисою якої є сильна залежність її фізичних властивостей, і, зокрема, електропровідності, від концентрації кисню [1-4]. Незважаючи на значну кількість робіт присвячених вивченням поздовжнього й поперечного транспорту в системі 1-2-3, багато аспектів цього питання залишаються дотепер остаточно нез'ясованими. Так, наприклад, у теоретичній роботі [5] був запропонований механізм резонансного тунелювання носіїв заряду між провідними  $\text{CuO}_2$  - площинами через локалізовані стани в  $\text{CuO}$  – ланцюжках. Згідно [5], температурна залежність анізотропії питомого електричного опору  $\rho_c/\rho_{ab}(T)$  повинна описуватись співвідношенням:

$$\rho_c / \rho_{ab} \sim T \cosh^2(k_B T_0 / k_B T), \quad (1)$$

де  $k_B T_0$  – деяка енергія активації процесу. Експериментальна перевірка цієї моделі була проведена в [2,3] на монокристалічних зразках  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ . При цьому, однак, було показано, що хоча теорія [5] якісно узгоджується з експериментом, найкраще описание експериментальних даних отримано для експоненціальної залежності виду:

$$\rho_c / \rho_{ab} \sim \exp(\Delta / k_B T). \quad (2)$$

При цьому слід зазначити, що в роботі [2,3] всі вимірювання проводились на зразках з досить великим дефіцитом кисню ( $x > 0,3$ ), у той час як найбільшу цікавість представляє вивчення монокристалів з малим відхиленням від стехіометрії, у яких найбільш яскраво проявляються особливості, так званого «псевдощілинного стану» [2,4]. З огляду на вищесказане, у цій роботі було проведено дослідження поздовжнього й поперечного електроопору монокристалічних зразків системи  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$  з різним вмістом кисню  $0,1 \leq x \leq 0,35$ .

### ЕКСПЕРИМЕНТАЛЬНІ МЕТОДИКИ

Монокристали  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$  вирощували розчин-роздавливальним методом у золотому тиглі при температурах 850–970°C, відповідно до методики [1]. Для вимірювання електричного опору в  $ab$  - площині й уздовж  $c$  - вісі з однієї ростової партії були відіbrane два монокристала розміром  $2 \times 0,3 \times 0,02 \text{ mm}^3$  (зразок №1) і  $0,3 \times 0,5 \times 0,1 \text{ mm}^3$  (зразок №2), відповідно. Найменші розміри кристалів відповідали напрямку  $c$  - вісі. Для одержання зразків з оптимальним вмістом кисню кристали відпаливали в потоці кисню при температурі 400°C на протязі п'яти діб. Для зменшення вмісту кисню зразки відпаливали протягом трьох - п'яти діб в потоці кисню при більш високих температурах, позначеніх на рис. 1. Вміст кисню ( $7-x$ ) визначали по концентраційним залежностям критичної температури [1,4]. Електричні контакти виготовляли зі срібних провідників, які приєднували до кристалів за допомогою срібної пасті. Вимірювання електроопору проводили чотирьохконтактним методом на постійному струмі 1 mA при двох протилежних напрямках струму. Температуру вимірювали мідь-константановою термопарою, напругу на зразку й зразковому опорі - нановольтметрами В2-38. Дані з вольтметрів через інтерфейс автоматично передавалися на комп'ютер. Вимірювання проводили в режимі дрейфу температури, що становив близько 0,1 K/h при вимірюваннях поблизу  $T_c$ , і близько 5 K/h при  $T > T_c$ .

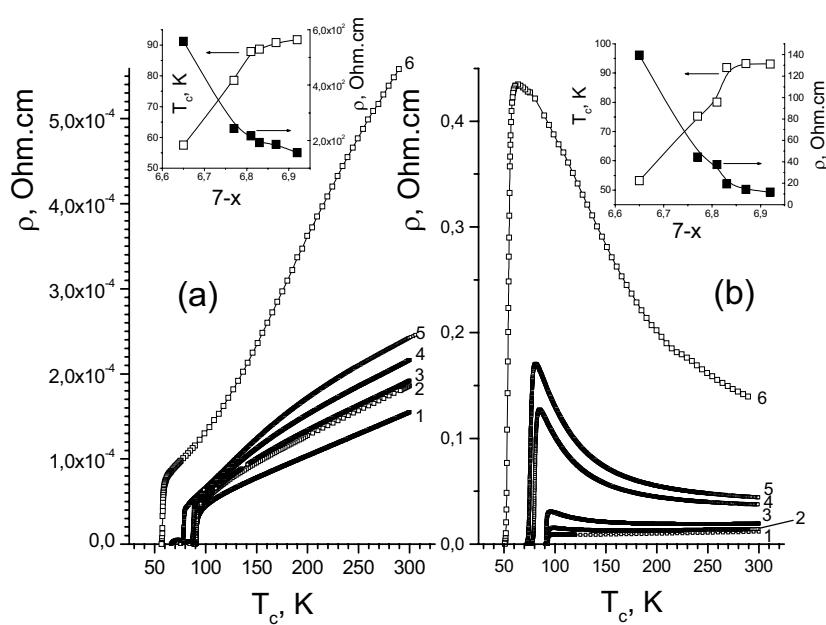


Рис.1. Температурні залежності електричного опору: (а) - в ab-площині  $\rho_{ab}(T)$  монокристала №1; (б) - уздовж осі  $c$   $\rho_c(T)$  монокристала №2. Криві 1-6 виміряні після відпаливання зразків при температурах 670; 720; 760; 790; 810 і 890 К, відповідно. На відповідних вставках показані концентраційні залежності  $T_c(7-x)$  (світлі символи) і  $\rho_{300}(7-x)$  (темні символи) для кожного зразка.

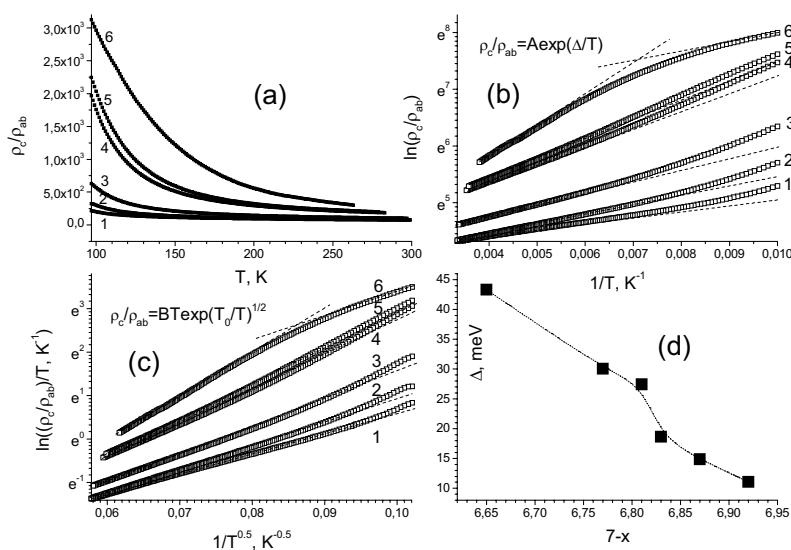


Рис.2. Температурні залежності анізотропії електричного опору  $\rho_c/\rho_{ab}(T)$ : (а) - в координатах  $\rho_c/\rho_{ab}$  -  $T$ ; (б) - в координатах  $\ln(\rho_c/\rho_{ab})$  -  $1/T$ ; (с) - в координатах  $\ln[(\rho_c/\rho_{ab})/T]$  -  $1/T^{0.5}$ . Позначення кривих відповідає позначенням на рис.1. Пунктирними лініями на рисунку показана апроксимація кривих співвідношеннями (2) і (3). На рис.2 (д) показана концентраційна залежність енергії активації  $\Delta$  ( $7-x$ ).

співвідношення (3) характерне для стрибкової провідності зі зміною довжиною стрибка - «закон 1/2» [6]. Видно, що зниження вмісту кисню приводить до значного зростання абсолютної величини анізотропії  $\rho_c/\rho_{ab}$ . При цьому, з рис. 2 (б) і (с) слідує, що хоча рівняння (2) і дозволяє якісно описати експериментальну залежність

## ЕКСПЕРИМЕНТАЛЬНІ РЕЗУЛЬТАТИ Й ОБГОВОРЕННЯ

На рис. 1 а і б показані температурні залежності електроопору  $\rho(T)$ , виміряні вздовж і поперек базисної площини, відповідно, до і після відпаливання зразків при різних температурах. Видно, що зниження вмісту кисню приводить до збільшення питомого електроопору й зниження критичної температури ( $T_c$ ) всіх зразків. Концентраційні залежності  $\rho(7-x)$  і  $T_c(7-x)$  для обох зразків наведені на відповідних вставках. Як можна бачити з рис. 1, існує принципова відмінність у поводженні залежностей  $\rho_{ab}(T)$  від  $\rho_c(T)$ , вимірюваних паралельно і перпендикулярно базисній площині. У той час як відхилення від стехіометрії по кисню приводить до яскраво вираженої напівпровідникової поведінки кривих  $\rho_c(T)$ , у базисній площині, на залежностях  $\rho_{ab}(T)$ , в області досить високих температур, зберігається широка ( $\approx 30$ К) лінійна ділянка, що слугує достовірною ознакою нормального стану системи [4].

Температурні залежності анізотропії електричного опору  $\rho_c/\rho_{ab}(T)$  показані на рис. 2 у координатах  $\rho_c/\rho_{ab}$  -  $T$  (а);  $\ln(\rho_c/\rho_{ab}) - 1/T$  (б) і  $\ln[(\rho_c/\rho_{ab})/T] - 1/T^{1/2}$  (с), що відповідає описанню функції  $\rho_c/\rho_{ab}(T)$  за допомогою співвідношення (2) у другому випадку і аналітичного виразу:

$$\rho_c/\rho_{ab} = BT \exp(T_o/T)^{1/2}, \quad (3)$$

у третьому. Тут  $B$ ,  $T_0$  – константи. Як відомо,

в області відносно високих температур, але робить це помітно гірше, ніж співвідношення (3) для стрибкової провідності. З теорії відомо, що «закон 1/2» звичайно трактується як прояв кулонівської щілини в енергетичному спектрі носіїв, більше характерному для напівпровідникових сполук. З іншого боку, як було показано в роботі [6], співвідношення (3) носить набагато більш універсальний характер, і може виконуватися для широкого класу провідних сполук при досить великому ступені структурного розупорядкування. Зокрема, подібна ситуація реалізується для випадку гранульованих металів (нанокомпозитів) – сукупності малих металевих гранул у діелектричній матриці [6]. У той же час відомо, що допування ВТНП-купратів шляхом іновалентного заміщення або зміни вмісту кисню, приводить до розпаду системи на електрично нейтральні області двох типів – металеві, з високою концентрацією носіїв, і діелектричні [7]. При цьому вид доменів може "нав'язуватися" і впорядковуваним допантами. Очевидно, що при досить малому розмірі включень із металевою провідністю система може набувати ознак характерних для гранульованих металів. Як видно з рис. 2, у міру збільшення дефіциту кисню, кут нахилу залежностей зростає, що, у свою чергу, свідчить про зростання енергії активації. Концентраційна залежність  $\Delta(7-x)$  наведена на рис. 2 (d) з якого видно, що величина енергії активації зростає із збільшенням дефіциту кисню. Слід також зазначити, що для кривих з найбільш низькою  $T_c$  при температурах поблизу 135 K спостерігається зміна кута нахилу більш ніж у два рази, що, у свою чергу, свідчить про зменшення енергії активації, і відображає наявність фазових переходів, які спостерігалися раніше в роботі [1] для монокристалів YBaCuO. Згідно [1], переходи такого типу впливають на кінетику переносу заряду.

## ВИСНОВКИ

Таким чином, аналіз отриманих експериментальних даних дає підстави припустити, що зменшення вмісту кисню в монокристалах  $YBa_2Cu_3O_{7-x}$  приводить до виникнення локалізації носіїв у напрямку осі  $c$  і зміни міжшарової взаємодії. При цьому температурна залежність анізотропії питомого електричного опору  $\rho_c/\rho_{ab}(T)$ , добре описується за допомогою універсального «закону 1/2» для термоактиваційної стрибкової провідності.

## СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ

1. М.А. Оболенский и др. Синтез и физические свойства монокристаллов  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  // ФНТ. - 1990. - Т.16, №9. - С.1103-1127.
2. В.Н. Зверев, Д.В. Шовкун Анизотропия нормального сопротивления монокристаллов  $YBa_2Cu_3O_{7-x}$  с дефицитом кислорода // Письма в ЖЭТФ. - 2000. - Т.72, №2. - С.103-108.
3. V.N. Zverev, D.V. Shovkun Pseudogap behavior of the normal state out-of-plane resistance in underdoped single crystals // Physica C. -2003. -Vol.391 - P.315-318.
4. М.А. Оболенский, Р.В. Вовк, А.В. Бондаренко О влиянии высокого давления на флуктуационную проводимость монокристаллов  $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$  с дефицитом кислорода // ФНТ. - 2006. -Т.32, №6. - С.802-805.
5. А.А. Абрикосов Резонансное туннелирование в высокотемпературных сверхпроводниках // УФН. - 1998. – Т.168, №6. - С.683-695.
6. М.З. Мейлихов Термоактивационная проводимость и вольт-амперная характеристика диэлектрической фазы гранулированных металлов // ЖЭТФ. - 1999. - Т.115, №4. - С.1484-1496.
7. M.A. Obolenskii, A.V. Bondarenko, R.V. Vovk, A.A. Prodan Resistive relaxation processes in oxygen-deficient single crystals of  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  // Low Temp. Phys. - 1997. – Vol.23, №11. - P.882-885.

## EFFECT OF OXYGEN DEFICIT ON ANISOTROPY OF NORMAL TRANSPORT IN $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ SINGLE CRYSTALS

**R.V. Vovk, M.A. Obolenskii, A.A. Zavgorodny, A.V. Bondarenko, M.G. Revyakina, N.N. Chebotaev**

V.N. Karazin Kharkov National University, 4, Svoboda sq., 61077, Kharkiv, Ukraine.

e-mail: [ruslan.v.vovk@univer.kharkov.ua](mailto:ruslan.v.vovk@univer.kharkov.ua)

The temperature dependence of the longitudinal and transversal electrical resistivity of  $YBa_2Cu_3O_{7-x}$  single crystals have been investigated on a step-by-step decrease in the oxygen contents in the process of thermal treatment. It is found that the anisotropy of the normal electric resistance  $\rho_c/\rho_{ab}(T)$  is well described by the universal “law ½” of the thermally activated hopping conduction. The conception dependence of the activation energy has been obtained, which increases as the oxygen contents decrease.

**KEY WORDS:** anisotropy,  $YBa_2Cu_3O_{7-x}$  single crystals, activation energy, longitudinal and transversal conductivities.