

PACS: 74. 72.-h

Влияние всестороннего сжатия на проводимость монокристаллов $Y_{0.95}Pr_{0.05}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ с системой однонаправленных двойниковых границ

Г.Я. Хаджай¹, А.Н. Соколов¹, С.В. Савич¹, В.В. Скляр¹,
Р.В. Вовк¹, К.А. Котвицкая², В.С. Морозов², Я.Г. Ленив²

¹Харьковский национальный университет имени В.Н. Каразина, 61022, пл. Свободы 4, Харьков, Украина

²Украинская государственная академия железнодорожного транспорта, пл. Феербаха 7, Харьков, Украина

В работе исследовано влияние высокого гидростатического давления до 17 кбар на проводимость в базисной ab-плоскости слабо допированных празеодимом ($x \approx 0.05$) монокристаллических образцов $Y_{1-x}Pr_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ с системой однонаправленных двойниковых границ. Обнаружено, что, в отличие от беспримесных образцов $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ с оптимальным содержанием кислорода, приложение высокого давления приводит к двойному возрастанию величины барической производной dT_c/dP . Обсуждаются возможные механизмы влияния высокого давления на критическую температуру и фазовое расслоение в объеме экспериментального образца.

Ключевые слова: монокристаллы YBaCuO, допирование, гидростатическое давление, фазовое расслоение, восходящая диффузия.

В роботі досліджено вплив високого гідростатичного тиску до 17 кбар на провідність в базисній ab-площині слабо допованих празеодимом ($x \approx 0.05$) монокристалічних зразків $Y_{1-x}Pr_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ з системою односпрямованих двійникових меж. Встановлено, що, на відміну від бездомішкових зразків $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ з оптимальним вмістом кисню, прикладання високого тиску призводить до збільшення вдвічі величини баричної похідної dT_c/dP . Обговорюються можливі механізми впливу високого тиску на T_c і фазу розшарування в об'ємі експериментального зразка.

Ключові слова: монокристали YBaCuO, допування, гідростатичний тиск, фазове розшарування, висхідна дифузія

In the present work we investigate the influence of high hydrostatic pressure up to 17 kbar on the conductivity in the basal ab-plane of lightly doped praseodymium ($x \approx 0.05$) $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ single-crystals with unidirectional twin boundaries. It is determined that, in contrast to the undoped $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ samples with optimal oxygen content, the application of high pressure leads to a doubling of the pressure derivative value dT_c/dP . The possible mechanisms explaining the high pressure influence on critical temperature (T_c) and the phase segregation in the sample volume are discussed.

Keywords: YBaCuO single crystals, doping, hydrostatic pressure, phase segregation, ascending diffusion.

В условиях отсутствия полноценной микроскопической теории высокотемпературной сверхпроводимости (ВТСП) [1] применение высоких давлений продолжает оставаться одним из важнейших инструментов не только определения адекватности многочисленных теоретических моделей, но и поиска эмпирических путей улучшения критических параметров ВТСП-материалов [2,3]. Одними из наиболее перспективных для исследований, в этом аспекте, являются соединения так называемой системы 1-2-3 ($Y_{1-x}Pr_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$), с частичной заменой иттрия на празеодим [4]. Как известно, замена в этом соединении иттрия на другие редкоземельные элементы не приводит к существенному изменению его резистивных характеристик [5]. Исключение представляет только случай замены иттрия на празеодим (так называемая аномалия празеодима), способствующий подавлению

резистивных параметров [3-6]. Это, в свою очередь, дает возможность относительно просто варьировать сверхпроводящие характеристики соединения путем изменения концентрации празеодима в конкретном экспериментальном образце. При этом практически не изменяется структура кристаллической решетки и кислородный индекс соединения [4,5]. Последнее является особенно важным, поскольку позволяет исключить возможность возникновения неравновесного состояния, которое может быть индуцировано, в беспримесных, нестехиометрических по кислороду образцах, посредством приложения давления [2,3] или скачкообразного изменения температуры [7]. Несмотря на то, что в литературе имеется несколько сообщений, посвященных исследованию влияния давления на критическую температуру (T_c) соединений $Y_{1-x}Pr_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ (см., например, обзор [4]), данные,

приводимые в этих работах, зачастую являются достаточно противоречивыми. При этом сообщается о регистрации как положительной, так и отрицательной барической производной dT_c/dP , а в отдельных случаях и об изменении знака dT_c/dP [4], о чем более подробно будет сказано ниже. Важное значение здесь имеет тот факт, что значительная часть экспериментальных данных была получена на керамических, пленочных и текстурированных образцах весьма различной технологической предистории [4,5]. В случае же монокристаллических образцов определенные сложности может создавать присутствие в системе достаточно разупорядоченной структуры двойниковых границ (ДГ) [8,9]. Последние, являясь протяженными двумерными дефектами, а также местом стока дефектов более низкой размерности, в свою очередь, сами представляют собой мощные центры рассеяния нормальных и флуктуационных носителей [10], тем самым оказывая заметное влияние на процессы переноса заряда в конкретном экспериментальном образце. Следует так же отметить, что в литературе практически отсутствуют экспериментальные данные, полученные при исследовании влияния давления в соединениях с концентрацией празеодима $x < 0.1$. При этом именно в образцах слабо допированных празеодимом зачастую

наблюдаются интересные явления подавления псевдощелевого состояния и аномального расширения температурного участка линейной зависимости [11,12]. Учитывая вышесказанное, в настоящей работе были проведены исследования влияния давления на резистивные характеристики слабо допированных празеодимом ($x \approx 0.05$) монокристаллических образцов $Y_{1-x}Pr_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ геометрии протекания транспортного тока ШДГ, позволяющей минимизировать эффекты рассеяния на двойниковых границах [13,14].

ВТСП-монокристаллы соединений $Y_{1-x}Pr_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ выращивали по раствор-расплавной технологии в золотом тигле, согласно методике [6,10,12]. Для проведения резистивных исследований отбирали кристаллы прямоугольной формы размером $3 \times 0.5 \times 0.03 \text{ мм}^3$. Наименьший размер кристалла соответствовал направлению c -оси. Электрические контакты создавали по стандартной 4-х контактной схеме путем нанесения серебряной пасты на поверхность кристалла с последующим подсоединением серебряных проводников диаметром 0.05 мм и трехчасовым отжигом при температуре 200°C в атмосфере кислорода. Такая процедура позволяла получить переходное сопротивление контактов менее одного Ома и проводить резистивные измерения при

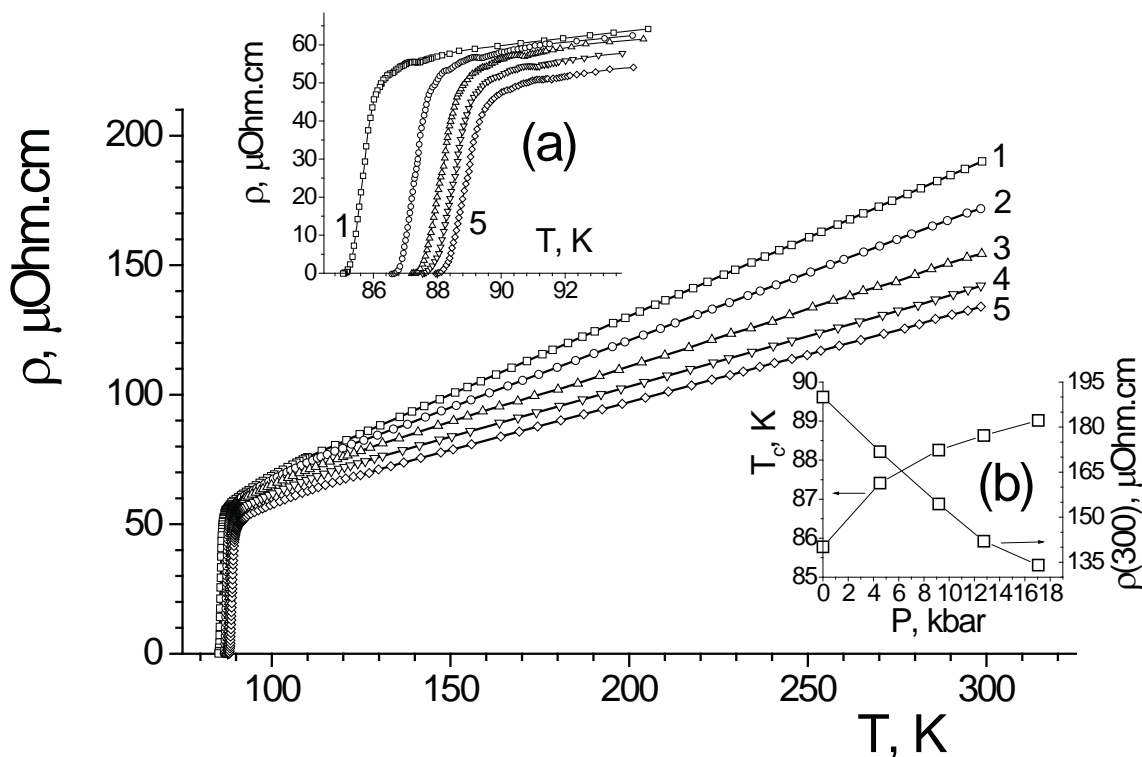


Рис. 1. Температурные зависимости электросопротивления в базисной плоскости $\rho_{ab}(T)$ монокристалла $Y_{1-x}Pr_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$, измеренные при давлениях 0;4,52;9,17;12,74;17,05 – кривые 1-5, соответственно. Вставка (а): резистивные переходы в сверхпроводящее состояние. Вставка (а): барические зависимости T_c и $\rho_{ab}(300)$.

транспортных токах до 10 мА в ab-плоскости. Как известно, при насыщении кислородом в соединениях YBaCuO происходит тетра-орто структурный переход, который, в свою очередь, приводит к двойникованию кристалла, минимизирующего его упругую энергию. Для получения образцов с однонаправленными границами двойников из кристалла вырезался мостик шириной 0.2 мм и расстоянием между парами контактов 0.3 мм. При этом геометрия эксперимента выбиралась таким образом, чтобы вектор транспортного тока \mathbf{I} был параллелен плоскостям двойникования [14]. Гидростатическое давление создавали в мультипликаторе типа поршень-цилиндр [3]. Величину давления определяли с помощью манганинового манометра, температуру - медь-константановой термопарой, вмонтированной в наружную поверхность камеры на уровне положения образца.

На рисунке 1 показаны температурные зависимости электросопротивления в базисной плоскости $\rho_{ab}(T)$ монокристалла $Y_{1-x}Pr_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$, измеренные при различных давлениях. На вставке (а) показаны резистивные переходы в сверхпроводящее состояние. Как следует из рисунка 1 значения T_c и $\rho_{ab}(300)$ при атмосферном давлении составили 86 К и 195 мкОм·см, соответственно. Таким образом, по сравнению с беспримесными монокристаллическими образцами $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$, критическая температура уменьшилась на $5 \div 7$ К при одновременном увеличении $\rho_{ab}(300)$ на $30 \div 40$ мкОм·см, что в целом согласуется с литературными данными [4,5]. При этом на резистивных переходах в сверхпроводящее состояние наблюдается ступенчатая форма, что может свидетельствовать о проявлении признаков фазового расслоения [7] в объеме экспериментального образца.

В настоящее время существует целый ряд теоретических моделей, посвященных исследованию причин деградации сверхпроводящих и нормальных характеристик соединений $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ под влиянием примеси празеодима. Наиболее известными среди них являются, так называемые, “hole filling model”, “pair breaking phenomena”, а также модели, предполагающие локализацию дырочных носителей и, обусловленные взаимодействием с ионами празеодима, различные механизмы перестройки зонных состояний (обзор [4]). Учитывая ограниченный объем нашего сообщения, мы не проводим здесь подробный анализ этих явлений, оставляя его для отдельной работы.

Как следует из вставки (б), для нашего образца $dT_c/dP \approx 0.18$ К/кбар, что несколько меньше чем у соединений с $x \geq 0.1$ [4], но больше чем у беспримесных монокристаллов $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ [13]. Вообще говоря, такое значение барической производной dT_c/dP можно объяснить посредством традиционного использования для качественного анализа зависимостей $T_c(P)$

известной формулы Макмиллана [15,16]:

$$T_c = \frac{\theta_D}{1.45} \exp \left[- \frac{1.04(1 + \lambda)}{\lambda - \mu^*(1 + 0.62\lambda)} \right], \quad (1)$$

где θ_D – температура Дебая, μ^* – экранированный кулоновский псевдопотенциал, характеризующий отталкивание электронов, λ – константа электрон-фононного взаимодействия, которая, в свою очередь, зависит от параметров электронного и фононного спектра сверхпроводника:

$$\lambda = \frac{N(\varepsilon_F) \langle I^2 (\vec{k} - \vec{k}') \rangle}{M \theta_D^2}, \quad (2)$$

где $N(\varepsilon_F)$ – плотность состояний на уровне Ферми, I – усредненный по поверхности Ферми матричный элемент электрон-фононного взаимодействия, M – масса иона.

В предположении, что при сжатии образца, наряду с ростом температуры Дебая увеличивается и матричный элемент электрон-фононного взаимодействия [17], значения $dT_c/dP < 0.2$ К/кбар представляются вполне разумными. При этом, однако, следует отметить, что у образцов с концентрацией примеси празеодима $x > 0.3$ величина абсолютного значения барической производной dT_c/dP может достигать значений больше 0.6 К/кбар [4]. Кроме того, как отмечалось выше, в некоторых работах наблюдалось изменение знака dT_c/dP . Все вышесказанное не позволяет однозначно интерпретировать полученные данные в рамках теории БКШ.

Относительно слабое влияние давления на величину T_c слабо допированных празеодимом образцов может быть объяснено в рамках модели, предполагающей наличие сингулярности Ван Хофа в спектре носителей заряда [18,19], которая характерна для решеток с сильной связью. Как известно, для кристаллов с высокой $T_c \approx 90$ К уровень Ферми лежит в долине между двумя пиками плотности состояний, при этом плотность состояний на уровне Ферми $N(E_F)$ существенно зависит от величины, так называемой, орторомбической дисторсии $(a-b)/a$ [18]. Увеличение отношения $(a-b)/a$ приводит к увеличению расстояния между пиками плотности состояний и, соответственно, к уменьшению $N(E_F)$ и T_c . Уменьшение же отношения $(a-b)/a$ приводит к сближению пиков плотности состояний, что приводит к росту $N(E_F)$ и T_c . Такая закономерность изменения T_c наблюдалась при исследовании влияния одноосного сжатия вдоль осей \mathbf{a} и \mathbf{b} на критическую температуру монокристаллов с $T_c \approx 90$ К [20]: при приложении нагрузки вдоль оси \mathbf{a} критическая температура повышалась, а при приложении нагрузки вдоль оси \mathbf{b} она уменьшалась.

При воздействии гидростатического давления величина отношения $(a-b)/a$ изменяется слабо, поскольку она определяется только различием модулей сжатия вдоль осей **a** и **b**. Поэтому изменение критической температуры у образцов с высокой T_c при воздействии гидростатического давления относительно мало.

Для кристаллов с пониженной $T_c \approx 60$ К уровень Ферми может быть сдвинут с середины зоны (в том числе, вследствие допирования замещающими элементами [21]) и расположен в стороне от пика плотности состояний. Поэтому, если величина критической температуры, в первую очередь, определяется плотностью электронных состояний, то смещение уровня Ферми в сторону пика плотности состояний при воздействии гидростатического давления может, тем самым, приводить к значительному возрастанию абсолютного значения dT_c/dP .

На рисунке 2 показаны резистивные переходы в сверхпроводящее состояние в координатах $d\rho/dT - T$, измеренные при разных давлениях. Видно, что на этих кривых наблюдается несколько отчетливо выраженных пиков, отвечающих ступенькам на соответствующих зависимостях, показанных на вставке (а) к рисунку 1. Как было установлено в работах [3], подобная форма сверхпроводящих переходов свидетельствует о присутствии в объеме экспериментального образца нескольких фаз с различными критическими температурами (T_{c1} и T_{c2}), которые, в свою очередь, соответствуют точке максимума на каждом из пиков. При этом, согласно известной параболической зависимости [1], каждая из таких фаз характеризуется соответствующей концентрацией носителей тока.

Как следует из рисунка 2 и вставки (а), увеличение величины приложенного давления приводит к некоторому уширению сверхпроводящих переходов и изменению высоты и формы ступенек, а также смещению

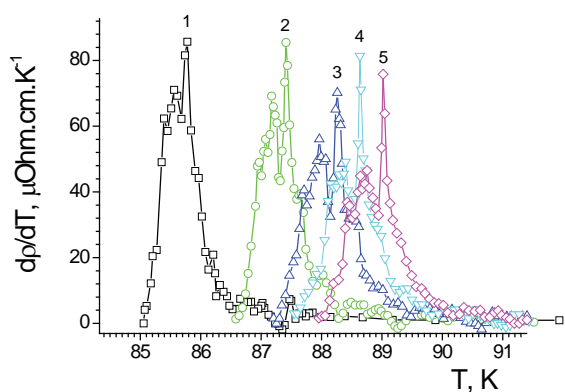


Рис. 2. Резистивные переходы в сверхпроводящее состояние в координатах $d\rho/dT - T$, измеренные при разных давлениях. Нумерация кривых соответствует рис.1.

по температуре точек максимума. Это, в свою очередь, может свидетельствовать о существенном изменении путей протекания транспортного тока, обусловленного изменением размеров и состава кластеров с различной T_c . В случае беспримесных образцов $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$, нестехиометрического по кислороду состава, такого рода явления могут наблюдаться вследствие реализации в системе процесса восходящей диффузии [3].

Как видно из рисунка 2, возрастание величины приложенного давления приводит к увеличению разности ($T_{c1} - T_{c2}$), что может свидетельствовать о наличии фазового расслоения в нашем образце. В тоже время следует отметить, что, как отмечалось выше, содержание кислорода в нашем случае было близко к стехиометрическому, что должно минимизировать влияние перераспределения лабильного кислорода на вышеописанные процессы. Действительно, как было показано в работах [2,13], приложение высокого давления в случае образцов $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ стехиометрического состава, как правило, не приводит к возникновению процессов структурной релаксации, которые обычно происходят вследствие диффузии лабильного кислорода в объеме образца.

По-видимому, фазовое расслоение под давлением, наблюдаемое в нашем случае может быть обусловлено изменением размера и состава кластеров, характеризующихся различным содержанием празеодима [12]. В тоже время, следует отметить, что увеличение содержания празеодима в локальном элементе объема экспериментального образца, как правило, приводит к эффекту диаметрально противоположному эффекту увеличения содержания кислорода. В то время как увеличение концентрации кислорода приводит к возрастанию T_c и улучшению проводящих характеристик отдельно взятой фазы [7,10,14], увеличение содержания празеодима способствует подавлению и проводимости и понижению T_c [4,12]. Таким образом, можно предположить, что фазовое расслоение, наблюдаемое в соединении $Y_{1-x}Pr_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$, под действием высокого давления, в отличие от случая беспримесных образцов $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$, представляет собой более сложный и неоднозначный процесс. Однако проверка справедливости этого предположения требует проведения дополнительных исследований влияния всестороннего сжатия на критическую температуру соединений $Y_{1-x}Pr_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$, в том числе в более широком интервале концентраций празеодима, в том числе с применением структурных измерений на образцах с более высокой степенью допирования празеодимом.

1. J. Ashkenazi, J. Supercond. Nov. Magn. **24**, 1281 (2011).
2. S. Sadewasser, J.S. Schilling, A.P. Paulicas, B.M. Veal // Phys. Rev. B. -2000. -V.61, №1. -P.741-749.

3. R. V. Vovk, G.Ya. Khadzhai, Z. F. Nazyrov, I. L. Goulatis, A. Chroneos, *Physica B* **407**, 4470 (2012).
4. Akhavan M. / *Physica B* 321, 265 (2002).
5. D. M. Ginsberg (ed), *Physical properties high temperature superconductors I*. – Singapore: World Scientific, 1989.
6. R. V. Vovk, Z. F. Nazyrov, I. L. Goulatis, A. Chroneos // *Physica C* 485 (2013) p. 89-91 <http://dx.doi.org/10.1016/j.physc.2012.09.017>.
7. M. A. Obolenskii, A. V. Bondarenko, R. V. Vovk, and A. A. Prodan, *Low Temp. Phys.* **23**, 882 (1997) [*Fizika Nizkikh Temperatur (Kharkov)* **23**, 1178 (1997)].
8. G. Lacaуc, R. Hermann, G. Kaestener // *Physica C*. -1992. -V.192. -P.207-214.
9. R. V. Vovk, M. A. Obolenskii, A. A. Zavgorodniy, I. L. Goulatis, and A. I. Chroneos, *J. Mater. Sci.: Mater. Electron.* **20**, 858 (2009).
10. R.V. Vovk, M.A. Obolenskii, Z.F. Nazyrov, I.L. Goulatis, A. Chroneos, and V.M. Pinto Simoes, *J. Mater. Sci.: Mater. Electron.*, **23**, 1255 (2012).
11. A.L. Solovyev, V.M. Dmitriev, *Low Temp. Phys.* **32** (2006) 753.
12. R. V. Vovk, N. R. Vovk, O. V. Shekhovtsov, I. L. Goulatis, A. Chroneos, *Supercond. Sci. Technol.* **26**, 085017 (2013).
13. R.V. Vovk, N.R. Vovk, G.Ya. Khadzhai, I.L. Goulatis, A. Chroneos / *Physica B* V. 422 (2013), P.P. 33–35 <http://dx.doi.org/10.1016/j.physb.2013.04.032>.
14. R.V. Vovk, N.R. Vovk, A.V. Samoilov, I.L. Goulatis, A. Chroneos / *Solid State Communications* 170 (2013) 6-9.
15. W. L. McMillan. *Phys. Rev.* **167**, 331 (1968).
16. M.A. Obolenskiy, D.D. Balla, A.A. Zavgorodniy, R.V. Vovk, Z.F. Nazyrov, I.L. Goulatis, M.Januszczyk, J.N.Latosińska / *Acta Physica Polonica A* Vol.122 (2012) №1 p.1111-1113.
17. Evan S.R., Ratti V.K., Gyorffy B.L. / *J. Phys. F* **3**, №10 (1973) p. 199-202).
18. V.M. Gvozdicov, *Physica C*, 235-240, 2127 (1994).
19. A.Perali and G.Varelogiannis, *Phys. Rev. B* **61**, 3672 (2000).]
20. U.Welp, M.Grimsditch, S.Flesher, W.Nessler, J.Downey, G.W.Crabtree, and J.Guimpel, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 2130 (1992).
21. U. Schwingensclogl and C. Schuster / *Appl. Phys. Lett.* **100**, 253111 (2012).