

АНОМАЛЬНАЯ ТЕМПЕРАТУРНАЯ ЗАВИСИМОСТЬ МАГНИТНОЙ РЕЛАКСАЦИИ В МОНОКРИСТАЛЛАХ YBa₂Cu₃O_{7-δ} С КИСЛОРОДНЫМ ДЕФИЦИТОМ

И. Ф. Волошин^а, А. В. Калинов^а, Л. М. Фишер^{а*}, В. А. Ямпольский^б

^а ФГУП «Всероссийский электротехнический институт»
111250, Москва, Россия

^б Институт радиофизики и электроники им. А. Я. Усикова Национальной академии наук Украины
61085, Харьков, Украина

Поступила в редакцию 24 сентября 2008 г.

Измерена зависимость скорости релаксации намагниченности $S = -d \ln M / d \ln t$ от температуры T в образцах YBa₂Cu₃O_{7-δ} с различным содержанием кислорода. Обнаружено качественное изменение кривой $S(T)$ в условиях, когда дефицит кислорода δ превышает пороговую величину $\delta_{th} \approx 0.37$. Для $\delta < \delta_{th}$ ($T_c > 60$ К, T_c — критическая температура сверхпроводящего перехода) функция $S(T)$ имеет хорошо известный максимум при $T/T_c \approx 0.4$. Для $\delta > \delta_{th}$ (при $T_c < 51$ К) этот максимум трансформируется в плато и появляется новый резкий максимум при $T/T_c \approx 0.1$. Пороговое значение кислородного дефицита δ_{th} соответствует переходу образца из неупорядоченного в упорядоченное состояние кислородных вакансий. Мы рассматриваем изменение формы кривой $S(T)$ как макроскопическое проявление этого перехода.

PACS: 74.25.Na, 74.25.Qt, 74.62.Dh

1. ВВЕДЕНИЕ

Вскоре после открытия высокотемпературных сверхпроводников началось интенсивное изучение динамики вихревой системы в этих материалах. Большое количество экспериментальных [1–11] и теоретических [12–15] работ было посвящено проблеме релаксации намагниченности в неравновесном состоянии. Измеренная логарифмическая скорость релаксации намагниченности $S = -d \ln M / d \ln t$ дает важную информацию об эффективной высоте энергетического барьера U , связанного со взаимодействием магнитных вихрей с неоднородностями (центрами пиннинга),

$$S = -d \ln M / d \ln t \approx kT / U(T). \quad (1)$$

Во многих из перечисленных экспериментов наблюдался ярко выраженный максимум в температурной зависимости скорости релаксации $S(T)$. Одна из возможных причин существования этого максимума связывается с наличием различных типов энергетических барьеров [12, 13], т. е. с совместным

существованием сильных и слабых центров пиннинга. Сильные центры играют определяющую роль в релаксации при высоких температурах и обеспечивают относительно малую скорость релаксации. Если образец намагничен при низких температурах, слабые центры также участвуют в пиннинге. Поэтому даже при низких температурах отношение $kT / U(T)$ в уравнении (1) может оказаться не слишком малым, что соответствует относительно высокой скорости релаксации. Сказанное выше означает, что скорость релаксации $S(T)$ должна быть чувствительна к внутренней структуре образца и ее изменению вследствие возможного фазового расслоения.

Проблема фазового расслоения и зарождения различных суперструктур в сильно коррелированных системах, в частности, в оксидных сверхпроводниках [16–21] привлекает внимание многих исследовательских групп. Фазовое расслоение играет ключевую роль в явлении колоссального магнетосопротивления в новых оксидных магнитных материалах (манганитах, кобальтитах и др.) [22, 23]. Фазовое сосуществование и кислородное упорядочение важны и для многих физических свойств вы-

*E-mail: fisher@vei.ru

сокотемпературных сверхпроводников. Даже природа самого высокотемпературного сверхпроводящего состояния связывается [20] с существованием оксидных суперструктур. Фазовое расслоение в компаундах $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ может управляться концентрацией кислорода. Согласно работам [24–29], переход кислородных вакансий в иттриевой системе в упорядоченное состояние происходит при $\delta \geq \delta_{th} \approx 0.37$.

Хорошо известно, что содержание кислорода определяет концентрацию свободных носителей и, следовательно, влияет на основные сверхпроводящие свойства оксидных сверхпроводников. В частности, дефицит кислорода приводит к понижению критической температуры T_c сверхпроводящего перехода. Детальное изучение зависимости T_c от δ было выполнено в работах [30–32]. В соответствии с полученными результатами на кривой $T_c(\delta)$ имеется плато при $T_c \approx 60$ К для $\delta = 0.3–0.4$ (см. ниже рис. 2, построенный по данным [32]). Это плато соответствует области перехода от состояния с неупорядоченным кислородом к упорядоченному состоянию, возможно в форме различных суперструктур [33–44].

Для поиска и изучения сверхструктур в высокотемпературных сверхпроводниках с дефицитом кислорода используются разнообразные новейшие методы, такие как малоугловое рассеяние нейтронов, туннельная и силовая спектроскопия, рентгеновская спектроскопия высокого разрешения. Представляет интерес изучить возможное влияние формирующихся сверхструктур на макроскопические свойства сверхпроводящих оксидов.

В настоящей работе мы обращаем внимание на то, что изучение скорости релаксации $S(T)$ может оказаться эффективным макроскопическим методом для детектирования перехода кислородных вакансий в ВТСП-образце в упорядоченное состояние. Мы измерили скорость $S(T)$ для образцов с различными значениями δ , которые указаны на диаграмме рис. 2. Полученные результаты свидетельствуют о том, что содержание кислорода не оказывает существенного влияния на форму кривой $S(T)$ при $\delta < \delta_{th}$ — на кривой присутствует одиночный максимум, наблюдавшийся ранее во многих экспериментах. Однако при $\delta > \delta_{th}$ кривая $S(T)$ претерпевает качественные изменения, которые мы связываем с возникновением фазового расслоения.

2. ЭКСПЕРИМЕНТ

В эксперименте изучалась релаксация намагниченности на трех монокристаллах YBCO : S1, S2, S3 и плавленом монодоменном текстурированном

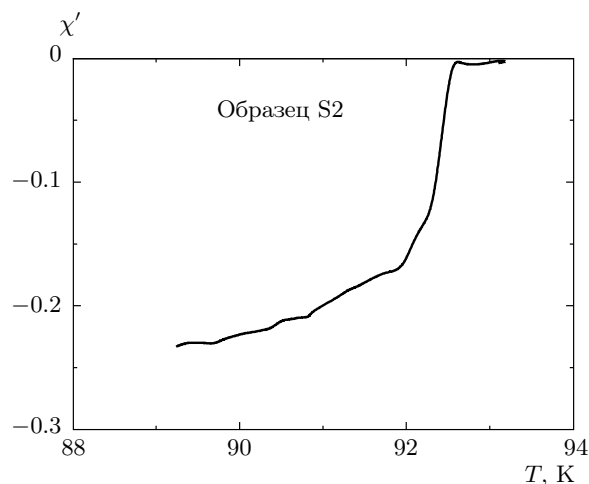


Рис. 1. Зависимость вещественной части динамической магнитной восприимчивости χ' от температуры в окрестности сверхпроводящего перехода для оптимально допированного кристалла S2. Измерения проведены в переменном магнитном поле частотой 130 Гц и амплитудой 1 Э

образце MTG1. Монокристаллы $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ были выращены с помощью технологии, описанной в работе [45]. Синтез кристаллов выполнялся из смеси, включающей исходные компоненты CuO , Y_2O_3 , и BaCO_3 чистотой 99.99%. Смесь металлических элементов $\text{Cu}:\text{Ba}:\text{Y}$ в соотношении 73:24.5:1.5 хорошо перемешивалась и предварительно отжигалась при температуре 1130 К в течение четырех суток в потоке кислорода. Кристаллы синтезировались в золотом тигле при температурах в диапазоне 1130–1250 К и температурном градиенте 2–4 К/см. Температура тигля медленно понижалась со скоростью 4 К/ч. После выращивания кристаллы отжигались в потоке кислорода при атмосферном давлении и температуре 700 К в течение четырех суток. Все монокристаллы имели критическую температуру $T_c \approx 92.5$ К, ширина перехода составляла примерно 0.5 К. Переход определялся по измерениям динамической магнитной восприимчивости и статической намагниченности. Пример зависимости вещественной части динамической магнитной восприимчивости χ' от температуры для оптимально допированного кристалла S2 приведен на рис. 1. Расстояние между границами двойникования, измеренное с помощью оптического микроскопа в поляризованном свете, составило примерно 2 мкм.

Один из монокристаллов, S2, который имел размеры $2 \times 1.5 \times 0.02$ мм³, подвергался нескольким циклам термообработки с целью уменьшения содержа-

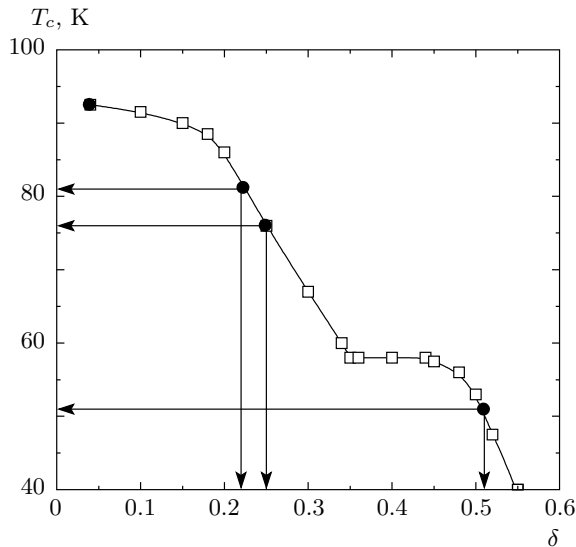


Рис. 2. Температура сверхпроводящего перехода как функция дефицита кислорода, δ , для системы $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$. Темные точки соответствуют критической температуре в образцах, использованных в нашем эксперименте (данные для кривой взяты из работы [32])

ния кислорода ($7 - \delta$). Термообработка проводилась в контролируемой газовой смеси кислорода и гелия. Отжиг проводился в течение 72 часов при температуре 615°C . Процесс отжига завершался быстрым охлаждением до комнатной температуры в той же газовой смеси. Парциальное давление кислорода выбиралось из условия получения требуемого кислородного дефицита δ . Дефицит кислорода определялся по измерениям критической температуры T_c и известной зависимости $T_c(\delta)$ (см. рис. 2) для образцов того же состава. Он также контролировался по изменениям массы образца. В процессе работы температурная обработка кристалла S2 проводилась как в сторону увеличения дефицита кислорода, так и в сторону увеличения его концентрации.

Плавленый образец MTG1 — пластина размерами $14.5 \times 8.5 \times 0.5 \text{ мм}^3$ — был вырезан из однородной части текстурированного монолита, выращенного с помощью кристаллической затравки. Ось c была перпендикулярна большей грани образца. Критическая температура составляла около 91 К, а ширина перехода — около 0.5 К.

В эксперименте измерялась релаксация статической намагниченности образцов. На первый взгляд, нет принципиального различия между измерениями релаксации намагниченности M и магнитной ин-

дукции $B = H + 4\pi M$, где H — внешнее магнитное поле. Однако, чтобы выделить малый сигнал сверхпроводящего образца и увеличить разрешающую способность измерений, удобно измерять отдельно нормальную компоненту магнитной индукции в центральной зоне поверхности образца и поле H_e . Для измерений скорости релаксации в нашем случае было достаточно использовать два датчика Холла. Мы поместили один из них непосредственно на поверхность образца, а второй, который применялся для измерений внешнего поля H_e , был сдвинут от образца примерно на 2 см. Оба датчика Холла питались переменным током от одного стабилизатора тока. Это позволило увеличить отношение сигнал-шум.

Чтобы достичь хорошей температурной стабильности, был спроектирован специальный продувной криостат. Платиновый RTD- и полупроводниковый термометры использовались для стабилизации температуры соответственно выше и ниже 40 К. Достигнутая стабильность температуры была не хуже 0.01 К. Абсолютная величина температуры измерялась термопарой и полупроводниковым сенсором, смонтированным на держателе образца.

3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Релаксация измерялась для различных магнитных предысторий образца. Основные результаты были получены для образцов с остаточной намагниченностью: внешнее магнитное поле H_e включалось, затем увеличивалось до величины около 1 Тл, а затем уменьшалось до нуля. Поле H изменялось линейно со временем со скоростью около 0.2 Тл/мин. Предварительно мы оценили температурную зависимость критической плотности тока $J_c(T)$ в исследуемых образцах по измерениям ширины кривой намагничивания $B(H)$ при $H = 0$. Кривые $B(H)$ для образца S2 с различным содержанием кислорода показаны на рис. 3. Основное качественное различие кривых на рис. 3а и 3б состоит в том, что в образце с пониженным содержанием кислорода (рис. 3б) на кривых $B(H)$ практически не проявляется пик-эффект, тогда как на рис. 3а этот эффект отчетливо виден. Рассчитанные зависимости критической плотности тока от температуры $J_c(T)$ показаны на рис. 4 в полупологарифмическом масштабе.

Как видно, величина $J_c(T)$ уменьшается почти экспоненциально при увеличении температуры, $J_c \propto \exp(-\gamma T)$, с близким показателем γ для всех

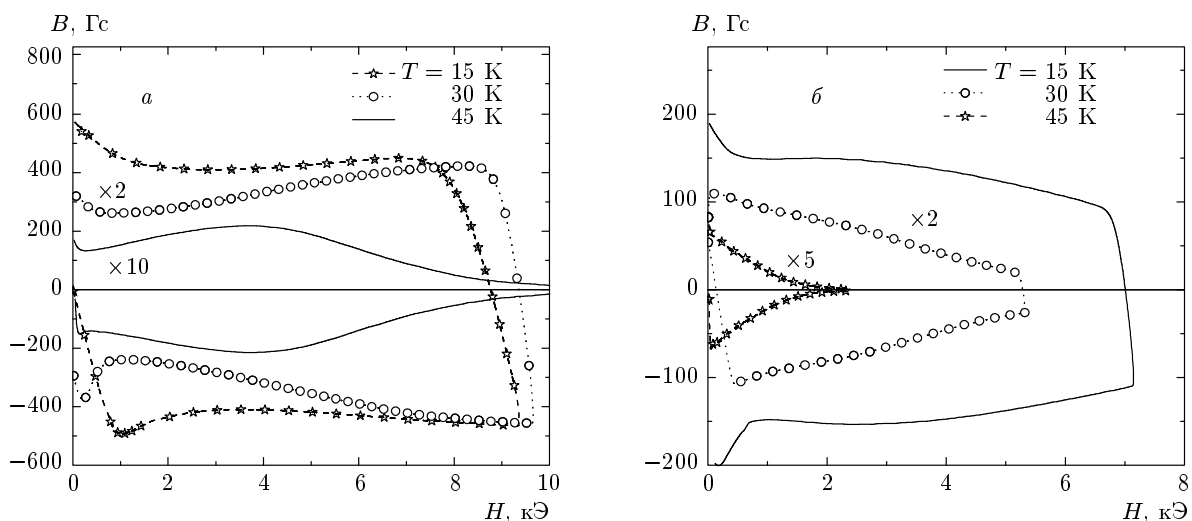


Рис. 3. Кривые намагничивания для образца S2 при различных температурах. Кривые получены для образца с критической температурой $T_c = 76$ (а), 51 (б) К. Знаки « $\times 2$ », « $\times 5$ », « $\times 10$ » соответствуют увеличению коэффициента усиления установки при записи соответствующих кривых

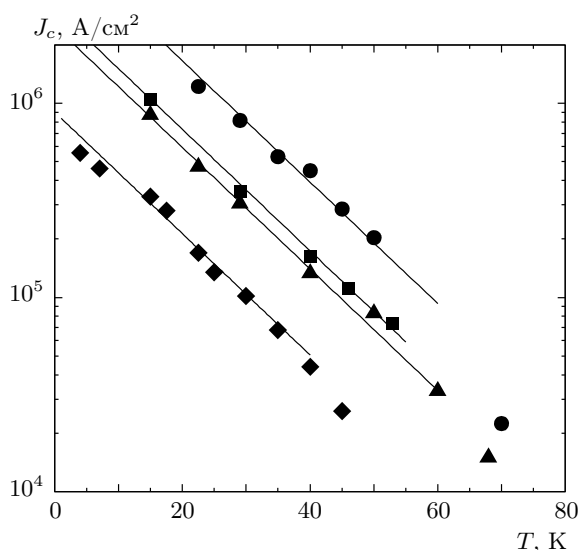


Рис. 4. Температурные зависимости критической плотности тока для образца S2 с различной критической температурой $T_c = 92$ (•), 81 (■), 76 (▲), 51 (◆) К. Сплошные линии соответствуют лучшей экспоненциальной аппроксимации

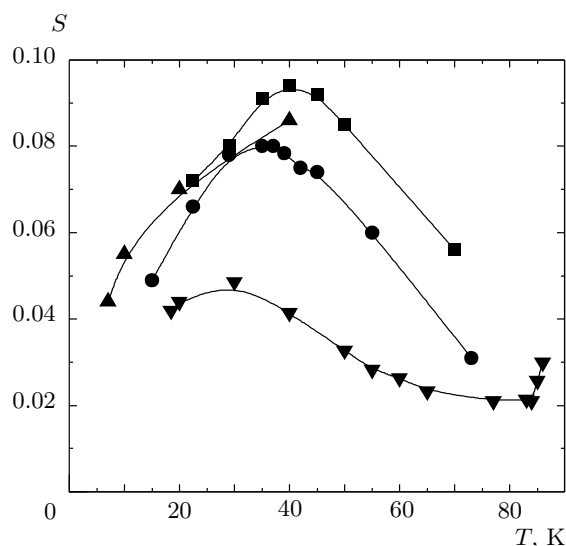


Рис. 5. Температурные зависимости скорости релаксации $S(T)$ для различных образцов: S1 (•), S2 (■), S3 (▲), MTG1 (▼). Соединительные линии приведены для удобства просмотра

концентраций кислорода. В отличие от γ , предэкспоненциальный множитель уменьшается при увеличении δ . Это означает, что концентрация кислорода влияет на крутизну потенциального барьера, определяющего пиннинг, но не оказывает существенного влияния на ее температурную зависимость.

Измерения релаксации намагниченности M проводились в течение 1500 с, спустя 10 с после выключения поля H . Мы обнаружили, что зависимость $\ln M(\ln t)$ является почти линейной (отклонение не превышает 2%) для всех типов образцов при всех температурах. Скорость релаксации S как функция температуры T для насыщенных кислородом моно-

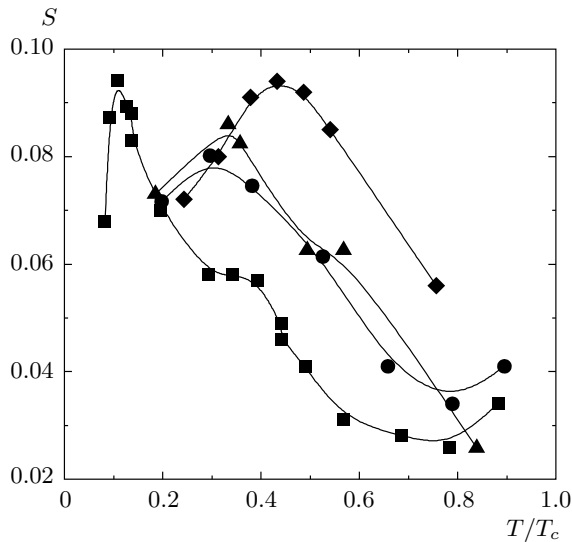


Рис. 6. Скорость релаксации для образца S2 с различным содержанием кислорода, $T_c = 51$ (■), 76 (●), 81 (▲), 92 (◆) К. Соединительные линии приведены для удобства просмотра

кристаллов S1, S2 и плавленого образца MTG1 показана на рис. 5. Кривые демонстрируют выраженный максимум функции $S(T)$. Положения максимумов T_m для различных монокристаллов наблюдаются при близких температурах вблизи $T = 40$ К, тогда как для плавленого образца положение максимума близко к $T = 30$ К. Высота максимума для этого образца примерно вдвое меньше, чем для монокристаллов.

Наиболее интересные результаты были получены для образца S2 с различным содержанием кислорода. Эти результаты представлены на рис. 6, где по оси абсцисс отложена приведенная температура T/T_c .

Можно видеть, что кривые $S(T/T_c)$ для $T_c > 51$ К имеют максимумы, подобные представленным на рис. 5. Все максимумы наблюдаются практически при близкой приведенной температуре T/T_c в интервале 0.3–0.45. Это означает, что изменение концентрации кислорода не оказывает существенного влияния на распределение по энергии центров пиннинга в образце с $T_c > 51$ К. Неожиданно для нас оказалось, что кривая $S(T/T_c)$ претерпевает кардинальное изменение при кислородном дефиците, соответствующем $T_c = 51$ К: максимум при $T/T_c \approx 0.4$ трансформируется в плато и появляется новый резкий максимум при $T_m = T/T_c \approx 0.1$. Следует обратить внимание, что такой низкотемпературный максимум отсутствует

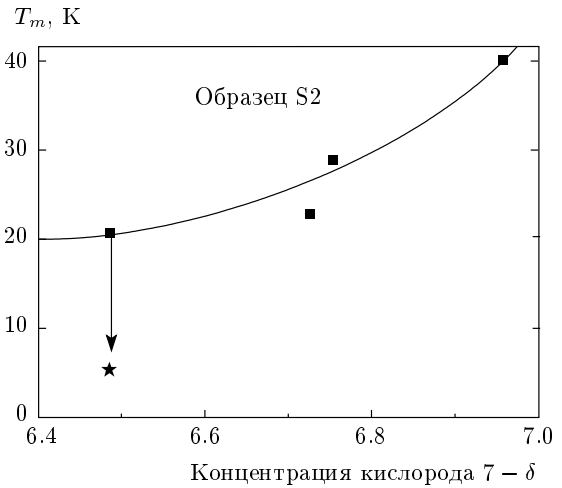


Рис. 7. Зависимость положения максимума T_m от концентрации кислорода. Соединительная линия приведена для удобства просмотра

при большем содержании кислорода (см. кривую для образца S3 на рис. 5).

На первый взгляд, такое поведение скорости релаксации достаточно необычно. В самом деле, скорость релаксации значительно увеличивается в области гелиевых температур (новый максимум наблюдается при $T = 5.6$ К). Мы полагаем, что этот результат не случаен. Он отражает существенную перестройку в распределении кислородных вакансий. Именно для той области концентраций $\delta > \delta_{th} \approx 0.37$ (или $T_c < 60$ К), где наблюдается новый максимум, образец $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ переходит от неупорядоченного состояния кислорода к упорядоченному. На рис. 7 приведены результаты измерений положения T_m максимума $S(T)$ в зависимости от концентрации кислорода $7-\delta$. Видно, что по мере уменьшения концентрации значение T_m уменьшается, а при достижении значения $\delta_{th} \approx 0.37$ наблюдается резкое уменьшение T_m . Положение появляющегося нового максимума показано на рис. 7 звездочкой. Такое поведение функции T_m , по-видимому, отражает фазовый переход в системе $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$. Базируясь на интерпретации максимума T_m в зависимости $S(T)$, данной в работе [12], мы полагаем, что появление нового максимума связано с возникновением в образце новых слабых центров пиннинга. Роль таких центров могут играть границы раздела фаз, образующихся в результате кислородного упорядочения при $\delta > \delta_{th} \approx 0.37$, или других суперструктур, наличие которых активно обсуждается в литературе [33–44]. Кислородное упорядочение может сопровождаться упорядочением вихревой ре-

шетки. В пользу такого предположения свидетельствует ослабление пик-эффекта в образцах с большим кислородным дефицитом (см. рис. 3).

Таким образом, мы экспериментально изучили зависимость скорости релаксации намагниченности $S = -d \ln M / d \ln t$ от температуры в образцах YBCO с различным содержанием кислорода. Наиболее важный результат состоит в обнаружении качественного изменения формы кривой $S(T)$ в том случае, когда дефицит кислорода δ превосходит пороговую величину δ_{th} . Для $\delta < \delta_{th}$ ($T_c > 60$ К) функция $S(T)$ содержит хорошо известный максимум $S(T)$ при $T/T_c \approx 0.4$. В случае $\delta > \delta_{th}$ (в нашем эксперименте для $T_c = 51$ К) этот максимум трансформируется в плато и появляется новый резкий максимум при $T/T_c \approx 0.1$. Пороговое значение дефицита кислорода δ_{th} соответствует переходу системы из неупорядоченного в упорядоченное состояние кислородных вакансий. Мы рассматриваем изменение формы кривой $S(T)$ как макроскопическое проявление этого фазового перехода.

Авторы признательны А. Л. Рахманову за полезные дискуссии.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (гранты №№ 06-02-16774а, 05-08-50012, 05-08-01439).

ЛИТЕРАТУРА

1. K. A. Muller, M. Takashige, and J. G. Bednorz, Phys. Rev. Lett. **58**, 1143 (1987).
2. J. F. Carolan, W. N. Hardy, R. Krahn et al., Sol. St. Comm. **64**, 717 (1987).
3. M. Tuominen, A. M. Goldman, and M. L. Mecartney, Phys. Rev. B **37**, 548 (1988).
4. Y. Yeshurun and A. P. Malozemoff, Phys. Rev. Lett. **60**, 2202 (1988).
5. M. Tuominen, A. M. Goldman, and M. L. Mecartney, Physica (Amsterdam) **153C-155C**, 324 (1988).
6. C. Rossel and P. Chauhari, Physica (Amsterdam) **153C-155C**, 306 (1988).
7. J. Vanacken, S. Libbrecht, M. Maenhoudt et al., Physica C **197**, 9 (1992).
8. A. A. Zhukov, D. A. Komarkov, and J. Mirkovic, Cryogenics **32**, 1056 (1992).
9. M. Reissner and J. Lorenz, Phys. Rev. B **56**, 6273 (1997).
10. E. V. Matizen, P. P. Bezverkhy, V. G. Martynets, and S. M. Ishikaev, Phys. Rev. B **59**, 9649 (1999).
11. P. Chowdhury, Heon-Jung Kim, In-Sun Jo, and Sung-Ik Lee, Phys. Rev. B **66**, 184509 (2002).
12. C. W. Hagen and R. Griessen, Phys. Rev. Lett. **62**, 2857 (1989).
13. H. D. Schnack, R. Griessen, J. G. Lensink, and WenHai-Hu, Phys. Rev. B **48**, 13178 (1993).
14. A. P. Malozemoff and M. P. A. Fisher, Phys. Rev. B **42**, 6784 (1990).
15. D. S. Fisher, M. P. A. Fisher, and D. A. Huse, Phys. Rev. B **43**, 130 (1991).
16. P. W. Anderson, *The Theory of Superconductivity in the High- T_c Cuprates*, Princeton Univ. Press, Princeton, NJ (1997).
17. S. Sachdev, Rev. Mod. Phys. **75**, 913 (2003).
18. S. A. Kivelson, I. P. Bindloss, E. Fradkin et al., Rev. Mod. Phys. **76**, 1201 (2004).
19. E. Demler, W. Hanke, and Shou-Cheng Zhang, Rev. Mod. Phys. **76**, 909 (2004).
20. P. A. Lee, N. Nagaosa, and Xiao-Gang Wen, Rev. Mod. Phys. **78**, 17 (2006).
21. B. Lake, H. M. Runnow, N. B. Christensen et al., Nature (London) **415**, 299 (2002).
22. E. Dagotto, *Nanoscale Phase Separation and Colossal Magnetoresistance. The Physics of Manganites and Related Compounds*, Springer-Verlag, Berlin (2002).
23. E. Dagotto, T. Hotta, and A. Moreo, Phys. Rep. **78**, 17 (2006).
24. R. J. Cava, B. Batlogg, C. H. Chen et al., Nature (London) **329**, 423 (1987).
25. R. Beyers, B. T. Ahn, G. Gorman et al., Nature (London) **340**, 619 (1989).
26. H. A. Mook, Pengcheng Dai, and F. Dogan, Phys. Rev. Lett. **88**, 097004 (2002).
27. T. Frello, N. H. Andersen, M. Baziljevich et al., Phys. Rev. B **67**, 024509 (2003).
28. D. de Fontaine, V. Ozolins, Z. Islam, and S. C. Moss, Phys. Rev. B **71**, 212504 (2005).
29. T. A. Zaleski and T. K. Kopec, Phys. Rev. B **74**, 014504 (2006).
30. R. J. Cava, B. Batlogg, C. H. Chen et al., Phys. Rev. B **36**, 5719 (1987).

31. R. J. Cava, A. W. Hewat, E. A. Hewat et al., *Physica C* **165**, 419 (1990).
32. J. D. Jorgensen, B. W. Veal, A. P. Paulikas et al., *Phys. Rev. B* **41**, 1863 (1990).
33. E. Dagotto, *Science* **309**, 257 (2005).
34. K. M. Lang, V. Madhavan, J. E. Hoffman et al., *Nature (London)* **415**, 412 (2002).
35. J. E. Hoffman, E. W. Hudson, K. M. Lang et al., *Science* **295**, 466 (2002).
36. M. Vershinin, S. Misra, S. Ono et al., *Science* **303**, 1995 (2004).
37. H. Ding, T. Yokoya, J. C. Campuzano et al., *Nature (London)* **382**, 51 (1996).
38. C. Stock, W. J. L. Buyers, R. Liang et al., *Phys. Rev. B* **69**, 014502 (2004).
39. S. Sanna, G. Allodi, G. Concas et al., *Phys. Rev. Lett.* **93**, 207001 (2004).
40. C. Stock, W. J. L. Buyers, R. A. Cowley et al., *Phys. Rev. B* **71**, 024522 (2005).
41. E. Bascones and T. M. Rice, *Phys. Rev. B* **74**, 134501 (2006).
42. B. M. Andersen and Per Hedegard, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 037002 (2005).
43. M. Vojta, T. Vojta, and Ribhu K. Kaul, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 097001 (2006).
44. Tao Zhou and Z. D. Wang, *Phys. Rev. B* **76**, 094510 (2007).
45. М. А. Оболенский, А. В. Бондаренко, В. И. Белецкий и др., *ФНТ* **16**, 1103 (1990).