

### ЭЛЕКТРОННЫЕ СВОЙСТВА СИСТЕМЫ $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$

Н.Е.Алексеевский,<sup>1)</sup> И.А.Гарифуллин, Н.Н.Гарифьянов,  
 Б.И.Кочелав<sup>2)</sup>, А.В.Митин<sup>1)</sup>, В.И.Нижанковский<sup>1)</sup>,  
 Л.Р.Тагиров<sup>2)</sup>, Г.Г.Халиуллин, Е.П.Хлыбов<sup>3)</sup>

На основании данных по измерениям ЭПР, электросопротивления и магнитной восприимчивости установлено, что система  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  при  $0,15 < \delta < 0,5$  является гетерогенной и состоит из металлических и антиферромагнитно упорядоченных диэлектрических областей.

В работе<sup>1</sup> было показано, что система  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  при  $0,6 \leq \delta \leq 1$  является антиферромагнетиком с температурой Нееля  $T_N$ , уменьшающейся при увеличении содержания кислорода. Целью данной работы явилось изучение эволюции свойств иттрий–бариевой керамики при изменении дефицита кислорода в области  $0,15 \leq \delta \leq 0,15$ .

Поликристаллические образцы с малым дефицитом кислорода готовились по стандартной методике из окислов исходных элементов. Параметры кристаллической решетки в образцах  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  оказались равными:  $a = 3,812 \text{ \AA}$ ,  $b = 3,874 \text{ \AA}$ ,  $c = 11,635 \text{ \AA}$ . Для создания большого дефицита кислорода образцы прогревались при температуре  $900^\circ\text{C}$  в течение 3 часов при малом давлении кислорода ( $\sim 5 \text{ мм рт. ст.}$ ), а затем быстро охлаждались до комнатной температуры. В результате этой процедуры получались образцы с тетрагональной структурой с постоянными решетки  $a = 3,84 \text{ \AA}$  и  $c = 11,73 \text{ \AA}$ . Для образцов, содержащих гадолиний, относительные изменения параметра решетки  $c$  были аналогичными. Исходя из корреляции параметров структуры с содержанием кислорода в образцах<sup>2</sup>, можно предположить, что в первом случае  $\delta \approx 0,15$ , во втором —  $\delta \approx 0,5$ . Для исследования ЭПР в образцы вводился гадолиний, который частично или полностью замещал иттрий.

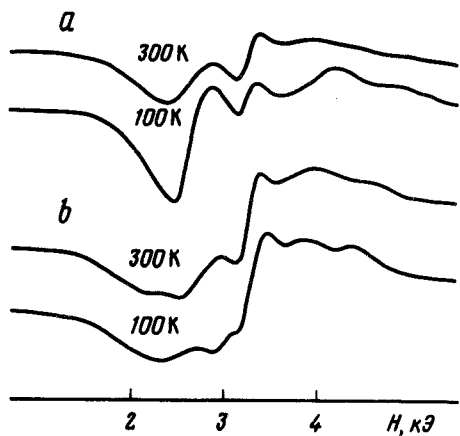


Рис. 1

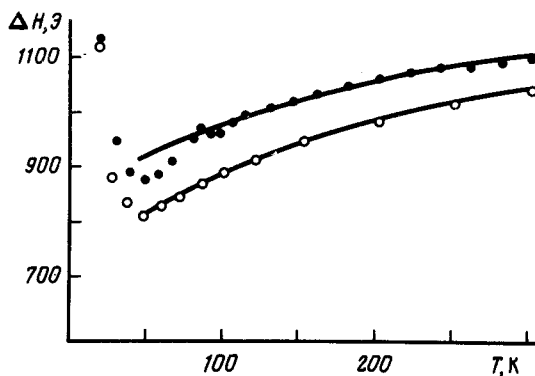


Рис. 2

Рис. 1. Спектры ЭПР образцов  $Y_{0,99}Gd_{0,01}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ : а —  $\delta = 0,15$ ; б —  $\delta = 0,5$

Рис. 2. Температурные зависимости ширины линии  $Gd^{3+}$  в образцах  $GdBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ : ● —  $\delta = 0,15$ ; ○ —  $\delta = 0,5$ . Сплошными линиями показаны результаты, полученные при моделировании спектров

1) Институт физических проблем АН СССР

2) Казанский государственный университет

3) Институт физики высоких давлений АН СССР

На рис. 1 приведены спектры ЭПР образцов  $Y_{0,99}Gd_{0,01}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$  с  $\delta = 0,15$  и  $0,5$  на частоте  $\nu = 9200$  МГц. Наблюдаемая тонкая структура спектра является типичной для порошковых образцов, содержащих небольшое количество ионов  $Gd^{3+}$ . В обоих образцах с повышением температуры спектр ЭПР одинаковым образом видоизменяется: относительная амплитуда центральной линии с  $g \approx 2,00$  растет с повышением температуры, а интенсивность боковых компонент падает. Такая трансформация спектра ЭПР обычно происходит в металлах вследствие увеличения линейно зависящей от температуры корринговской релаксации локализованных моментов <sup>3</sup>.

На образцах  $GdBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  наблюдалась "одионочная" линия ЭПР от ионов  $Gd^{3+}$ . Тонкая структура сужена обменными взаимодействиями между спинами гадолиния <sup>4</sup>. На рис. 2 представлены результаты измерений ширины линии ЭПР  $\Delta H$ . В обоих образцах при температурах  $T \geq 50$  К наблюдается рост  $\Delta H$  с температурой, характерный для металлических образцов.

Измерения электросопротивления этих образцов показали, что при  $\delta = 0,15$  температурный ход  $\rho$  имеет "металлический" характер, а в образцах с  $\delta = 0,5$  — "полупроводниковый". Такое поведение  $\rho$  и металлический характер ЭПР можно согласовать, если предположить, что образцы при  $\delta = 0,15$  и  $0,5$  представляют собой гетерогенную систему, состоящую из металлической и диэлектрической компонент, причем в первом случае имеется перколяция, а во втором — нет. На такую возможность указывает и закон изменения электросопротивления  $\rho(T) \sim \exp(A/T^{1/2})$  в образце с  $\delta = 0,5$ , который обычно наблюдается в гранулярных системах. Более определенные выводы можно сделать на основе анализа формы линии ЭПР в образцах  $GdBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  с различным дефицитом кислорода. Оказывается, что наблюдаемый сигнал состоит из двух линий с близкими  $g$ -факторами ( $g \approx 1,99$ ), но с различными ширинами. Ширина одной из них линейно зависит от температуры по закону  $\Delta H = a + bT$  с  $a = 580$  Э и  $b = 0,9$  Э/К, ширина другой оказывается практически независимой от температуры и равной  $1000$  Э. Мы полагаем, что эти сигналы обусловлены соответственно металлическими и диэлектрическими областями. Заметная нелинейность в температурном поведении  $\Delta H$  (см. рис. 2) оказывается результатом суперпозиции этих двух сигналов. В образце с  $\delta = 0,5$  вклады от диэлектрических и металлических областей в ЭПР оказались равными. Отсутствие примеси дисперсии в сигнал ЭПР означает, что размеры металлических включений в этом образце много меньше глубины скин-слоя. Вследствие этого доля металла может быть оценена в  $50\%$ . В образце с  $\delta = 0,15$  интегральная интенсивность сигнала ЭПР оказалась в три раза меньшей, а для описания формы линии понадобилась примесь сигнала дисперсии. Это означает, что доля металлической фазы увеличилась, однако ее вклад сильно подавлен скин-эффектом. Учитывая, что вклады диэлектрических и металлических областей в моделированный спектр относятся как  $7:3$ , объемную долю металла при  $\delta = 0,15$  можно оценить в  $80\%$ .

Поскольку ширина "диэлектрической" компоненты сигнала ЭПР в образцах  $GdBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  ( $\Delta H = 1000$  Э) намного больше остаточной ширины линии ( $a = 580$  Э) от металлических областей, можно сделать вывод о наличии магнетизма в ближайшем окружении ионов  $Gd^{3+}$  в диэлектрических областях. Для исследования магнитного состояния этой гетерогенной системы нами были проведены измерения магнитной восприимчивости  $\chi$  образцов  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  без специальных добавок парамагнитных ионов  $Gd^{3+}$ , а также измерения интегральной интенсивности сигнала ЭПР, который в этих образцах, как и в <sup>4</sup>, обуславливается локализованными моментами  $Cu^{2+}$ . Последняя величина определяет вклад этих локализованных моментов в магнитную восприимчивость  $\chi^{ЭПР}$ . Результаты этих измерений показаны на рис. 3. Разность  $\Delta\chi = \chi - \chi^{ЭПР}$  слабо зависит от температуры и растет с увеличением доли диэлектрика в образце. При  $\delta = 0,15$  она равна  $0,9 \cdot 10^{-6}$  см<sup>3</sup>/г, а при  $\delta = 0,5$  —  $2 \cdot 10^{-6}$  см<sup>3</sup>/г. Отсюда можно заключить, что  $\Delta\chi$  в основном определяется вкладом диэлектрических областей, находящихся в мотт-халбардовском антиферромагнитном состоянии с  $\chi_{эф} \sim C/T_N$ . С

учетом относительной доли диэлектрика при различных  $\delta$  можно оценить температуру Нее-ля этих областей  $T_N \approx 300$  К. Вплоть до  $T = 1,5$  К мы не обнаружили следов диамагнетизма в  $YBa_2Cu_3O_{6,5}$ . Если полагать, что длина когерентности в сверхпроводящих образцах  $\xi = 10 \div 20 \text{ \AA}$ , то минимальные размеры металлических включений, имеющих, по-видимому, форму пластинок, не должны сильно превышать  $30 \text{ \AA}$ .

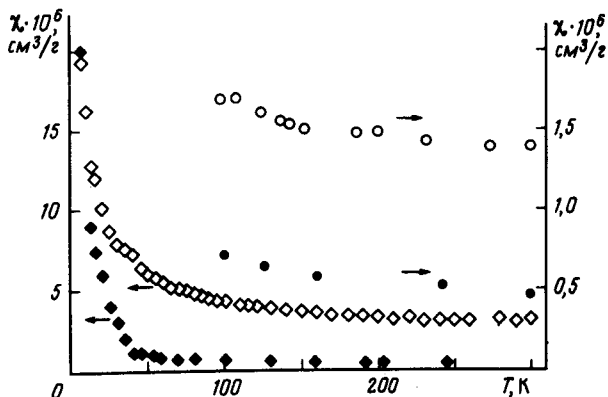


Рис. 3. Температурные зависимости полной магнитной восприимчивости  $\chi$  (O и  $\diamond$ ) и восприимчивости локализованных моментов  $Cu^{2+}$  в положении  $Cu1$   $\chi^{ЭПР}$  (● и ◆) в образцах с  $\delta = 0,15$  и  $0,5$ , соответст-венно

На основании вышеизложенного можно предположить, что система  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  при  $\delta \neq 0$  является неоднородной и состоит из металлических и диэлектрических областей. При увеличении дефицита кислорода до  $\delta = 0,5$  металлические области толщиной  $\sim 30 \text{ \AA}$  оказываются окруженными хорошо изолирующими диэлектрическими областями. Таким образом, вопрос (см., например, <sup>1</sup>) о том, сосуществуют ли сверхпроводимость и антиферромагнетизм в иттриевых керамиках или они разделены пространственно, может быть решен в пользу второй версии.

#### Литература

1. Brewer J.H. et al. Phys. Rev. Lett., 1988, 60, 1073.
2. Kwok W.K. et al. Phys. Rev. B., 1988, 37, 106.
3. Barnes S.E. Adv. Phys., 1981, 30, 801.
4. Алексеевский Н.Е., Гарифуллин И.А., Гарифьянов Н.Н. и др. Письма в ЖЭТФ, 1987, 46, 292.
5. Алексеевский Н.Н., Хлыбов Е.П., Кузьмичева Г.М. и др. ЖЭТФ, 1988, 94, 281.