## 02,12

# Анизотропия эффекта Холла в квазидвумерном электронно-легированном сверхпроводнике Nd<sub>2-x</sub>Ce<sub>x</sub>CuO<sub>4+δ</sub>

© А.С. Клепикова<sup>1</sup>, Т.Б. Чарикова<sup>1,2</sup>, Н.Г. Шелушинина<sup>1</sup>, Д.С. Петухов<sup>1</sup>, А.А. Иванов<sup>3</sup>

<sup>1</sup> Институт физики металлов им. М.Н. Михеева УрО РАН,

Екатеринбург, Россия

<sup>2</sup> Уральский федеральный университет им. Б.Н. Ельцина,

Екатеринбург, Россия

<sup>3</sup> Национальный исследовательский ядерный университет "МИФИ",

Москва, Россия

E-mail: klepikova@imp.uran.ru

Представлены результаты исследования температурных зависимостей эффекта Холла электроннолегированного сверхпроводника  $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4+\delta}$  на границе квантового фазового перехода антиферромагнетик — сверхпроводник (0.135  $\leq x \leq 0.15$ ) в проводящих плоскостях CuO<sub>2</sub> и в направлении, перпендикулярном плоскостям CuO<sub>2</sub>. Экспериментально обнаружено, что величина коэффициента Холла между проводящими плоскостями на два порядка больше, чем в проводящих плоскостях во всем диапазоне температур, что обусловлено некогерентным характером переноса носителей заряда в направлении оси *с*.

Работа выполнена в рамках государственного задания по теме "Электрон" AAAA-A18-118020190098-5 и проекту № 18-10-2-6 Программы УрО РАН при поддержке РФФИ (грант № 18-02-00192).

DOI: 10.21883/FTT.2018.11.46650.14NN

### 1. Введение

Соединение  $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4+\delta}$  — это сверхпроводник с электронным типом проводимости, имеет объемноцентрированную кристаллическую решетку и соответствует тетрагональной T'-фазе. Параметры решетки: a = b = 0.394 nm, c = 1.208 nm. В результате оптимального легирования (x = 0.15) и отжига ( $\delta \rightarrow 0$ ) кристаллическая структура представляет собой набор проводящих плоскостей CuO<sub>2</sub>, отделенных расстоянием 0.6 nm в направлении оси c [1]. Соединение обладает ярко выраженными двумерными свойствами — в том числе, квазидвумерным характером переноса носителей заряда.

Исследованное соединение  $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4+\delta}$  характеризуется способностью обратимо поглощать и выделять кислород. Оптимальное содержание кислорода в элементарной ячейке, а, следовательно, и максимальная  $T_c$  наблюдается, когда  $\delta \rightarrow 0$ . Проблема анизотропии удельного сопротивления в нормальном состоянии систем оксидов меди давно привлекает внимание исследователей. Сопротивление в разных направлениях отличается не только величиной, но и характером температурной зависимости. Изучение металлического поведения  $(d\rho_{ab}/dT > 0)$  в проводящих CuO<sub>2</sub> — плоскостях и неметаллического поведения  $(d\rho_c/dT < 0)$  в с-направлении являются ключевым моментом в теоретическом и экспериментальном анализе системы носителей зарядов купратных высокотемпературных сверхпроводников (ВТСП) [2,3].

Неметаллическая проводимость вдоль оси c в сочетании с металлической проводимостью в  $CuO_2$  — плоскости при сильной анизотропии проводящих свойств неоднократно наблюдалась в дырочных [4] и электронно-

легированных [5] ВТСП, что является экспериментальным свидетельством квазидвумерности оксидных систем. В данной работе проведено исследование сопротивления Холла,  $\rho_{xy}$ , в плоскости CuO<sub>2</sub> и между плоскостями CuO<sub>2</sub> в электронно-легированном ВТСП Nd<sub>2-x</sub>Ce<sub>x</sub>CuO<sub>4+ $\delta$ </sub> в области перехода от фазы сосуществования антиферромагнитного (АФМ) и сверхпроводящего (СП) упорядочения в сверхпроводящую — фазу с целью анализа анизотропии переноса носителей заряда.

#### 2. Методика эксперимента

Методом импульсного лазерного осаждения [6,7] были синтезированы эпитаксиальные пленки  $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4+\delta}/SrTiO_3$  с x = 0.135, 0.145 и 0.15 трех типов:

1. Ориентация пленки (001) — c-ось решетки  $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4+\delta}$  перпендикулярна плоскости подложки SrTiO<sub>3</sub>.

2. Ориентация пленки  $(1\overline{1}0)$  — ось *с* решетки  $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4+\delta}$  направлена вдоль длинной стороны подложки SrTiO<sub>3</sub>.

3. Ориентация пленки  $(1\overline{10})$  — ось *с* решетки  $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4+\delta}$  направлена вдоль короткой стороны подложки SrTiO<sub>3</sub>. Такая конфигурация пленки была выбрана для измерения температурной зависимости эффекта Холла между плоскостями CuO<sub>2</sub>.

В процессе импульсного лазерного осаждения был использован эксимерный лазер KrF с длиной волны 248 nm, с энергией 80 mJ/imp и плотностью энергии на поверхности мишени 1.5 J/cm<sup>2</sup>. Длительность импульса составляла 15 ns, частота следования импульсов от 5 до 20 Hz. Далее синтезированные пленки были подвергнуты термообработке (отжигу) при различных условиях для получения образцов с разным содержанием кислорода. Рентгеноструктурный анализ (Со-Ка излучение) показал, что все пленки имели высокое качество и являлись монокристаллическими. Для измерений были отобраны пленки  $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4+\delta}/SrTiO_3$  с оптимальным отжигом — это подразумевает образцы с максимальным значением температуры сверхпроводящего перехода для данного содержания церия (x). Условия оптимального отжига были следующие:

— для состава x = 0.15 ( $T_c^{onset} = 23.5 \text{ K}, T_c = 22 \text{ K}$ )  $t = 60 \min, T = 780^{\circ} C, p = 10^{-5} \min Hg;$ 

 $(T_c^{onset} = 15.7 \,\mathrm{K},$ состава x = 0.145для  $T_c = 10.7 \,\mathrm{K}) - t = 60 \,\mathrm{min}, T = 600^{\circ}\mathrm{C} \ p = 10^{-5} \,\mathrm{mm \, Hg};$  $(T_c^{onset} = 13.7 \,\mathrm{K})$ x = 0.135\_\_\_\_ для состава  $T_c = 9.6 \text{ K}$ ) —  $t = 60 \text{ min.}, T = 600^{\circ} \text{C}, p = 10^{-5} \text{ mm Hg}.$ Толщина пленок составляла d = 140-520 nm.

Температурные зависимости продольного сопротивления  $\rho_{xx}(T)$  и сопротивления Холла  $\rho_{xy}(T)$  для всех исследованных типов пленок Nd<sub>2-x</sub>Ce<sub>x</sub>CuO<sub>4+δ</sub>/SrTiO<sub>3</sub> были проведены на установке Quantum Design PPMS 9 и в соленоиде "Oxford Instruments" (ЦКП "Испытательный центр нанотехнологий и перспективных материалов" ИФМ УрО РАН). Электрическое поле было приложено всегда параллельно плоскости подложки SrTiO<sub>3</sub>. Внешнее магнитное поле В всегда было направлено перпендикулярно плоскости подложки SrTiO<sub>3</sub>. В зависимости от типа измеряемых образцов мы получили возможность измерить температурные зависимости сопротивления в проводящих плоскостях CuO2 и между плоскостями (вдоль оси с). В скрещенных электрическом и магнитном полях на разных типах образцов были измерены температурные зависимости сопротивления Холла: в проводящих плоскостях CuO2 и между плоскостями (вдоль оси c).

#### 3. Результаты и обсуждение

Проведенное в [8] исследование температурных зависимостей сопротивления  $ho_{ab}(T)$  и  $ho_c(T)$  в стехиометрических (оптимально отожженных) соединениях  $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4+\delta}$  на границе перехода  $A\Phi M-C\Pi$  $(0.135 \le x \le 0.15)$  указывает на наличие некогерентного переноса носителей заряда в направлении оси с некогерентное туннелирование между проводящими плоскостями. Удельное сопротивление  $\rho_c$  в направлении оси с, поперек проводящих плоскостей CuO<sub>2</sub>, является большим по сравнению с сопротивлением  $\rho_{ab}$  в проводящих плоскостях и имеет неметаллическую температурную зависимость в исследованных образцах. Таким образом имеет место квазидвумерный характер переноса носителей заряда в пленках с  $0.135 \le x \le 0.15$  вблизи квантового фазового перехода АФМ-СП.

 $\sigma_c/\rho_{ab}$ 800 400 0 0 100 200 300 *T*, K

Рис. 1. Температурная зависимость коэффициента анизотропии сопротивления для оптимально отожженных пленок  $Nd_{2-x}Ce_{x}CuO_{4+\delta}/SrTiO_{3}$ .

На рис. 1 представлена температурная зависимость коэффициента анизотропии сопротивления в проводящих плоскостях CuO<sub>2</sub> и в направлении, перпендикулярном этим плоскостям. Из рис. 1 видно, что коэффициент анизотропии удельного сопротивления велик даже при комнатной температуре:  $\rho_c / \rho_{ab} \approx 10 - 10^2$  для всех исследованных пленок. Этот параметр существенно возрастает с понижением температуры, достигая значений  $ho_c/
ho_{ab} \sim 10^3$  для соединений с x = 0.145 и 0.135 и  $\rho_c/\rho_{ab} \approx 10^2$  для оптимально легированного соединения с x = 0.15 из-за резкого роста удельного сопротивления  $\rho_c$  при низких температурах.

Сильная анизотропия сопротивления в слоистой системе Nd<sub>2-x</sub>Ce<sub>x</sub>O<sub>4+δ</sub> может быть объяснена некогерентным переносом носителей заряда в направлении с [9,10] при хорошей металлической проводимости в СиО2-плоскостях. В области нормального состояния, при температурах  $T > T^* > T_c$   $(T^*$  — температура перехода в псевдощелевое состояние, Т<sub>с</sub> — критическая температура сверхпроводящего перехода), когда сильные электронные корреляции не столь существенны и не приводят к возникновению фазы страйпового упорядочения, появлению волн зарядовой и спиновой плотности и к возникновению псевдощелевого состояния, эффектами электрон-электронного взаимодействия можно пренебречь [11]. Тогда если вероятность рассеяния носителя в плоскости,  $\hbar/\tau$ , много больше, чем интеграл переноса, t<sub>c</sub>, между плоскостями, т. е. электрон испытывает много столкновений прежде, чем перейти в другую плоскость, то последовательные процессы туннелирования между плоскостями не коррелированы (некогерентный перенос — неметаллическая проводимость вдоль оси c).

Согласно [9,10], в модели некогерентного переноса носителей заряда коэффициент диффузии квазидвумерной системы вдоль, и поперек, слоев описывается выра-





**Рис. 2.** Температурные зависимости удельного сопротивления в CuO<sub>2</sub>-плоскости,  $\rho_{ab}$  (*a*) и коэффициента Холла при B = 1 Т в CuO<sub>2</sub>-плоскости,  $R_H^{ab}$  (*b*) в пленках Nd<sub>2-x</sub>Ce<sub>x</sub>CuO<sub>4+ $\delta$ </sub>/SrTiO<sub>3</sub> для 0.135  $\leq x \leq 0.15$  и оптимальном отжиге.



**Рис. 3.** Температурные зависимости удельного сопротивления вдоль оси c,  $\rho_c$  (a) и коэффициента Холла при B = 1 Т между плоскостями,  $R_H^c$  (b) в пленках Nd<sub>2-x</sub>Ce<sub>x</sub>CuO<sub>4+ $\delta$ </sub>/SrTiO<sub>3</sub> для 0.135  $\leq x \leq$  0.15 и оптимальном отжиге.

жениями:

$$D_{\parallel} = \frac{1}{2} \frac{l^2}{\tau}; \qquad D_{\perp} = \frac{1}{2} c^2 \left(\frac{t_c}{\hbar}\right)^2 \tau,$$
 (1)

где l — длина свободного пробега, а  $\tau$  — время релаксации носителей в CuO<sub>2</sub>-плоскости, c = 0.6 nm — расстояние между соседними CuO<sub>2</sub>-плоскостями.

Из (1) находим

$$\frac{\rho_c}{\rho_{ab}} = \frac{D_{\parallel}}{D_{\perp}} = \left(\frac{l}{c}\right)^2 \left(\frac{\hbar}{t_c \tau}\right)^2,\tag{2}$$

и  $\rho_c/\rho_{ab} \gg 1$ , так как  $l/c \gg 1$  и в условиях некогерентного туннелирования  $t_c \tau \ll \hbar$ .

Температурная зависимость коэффициента Холла в пленках с ориентацией оси c (001) и (110), в сопоставлении с поведением удельного сопротивления для тех же ориентаций, представлена на рис. 2 и 3. Коэффициент Холла  $R_H^{ab}$ , соответствующий движению носителей в плоскости CuO<sub>2</sub>, отрицателен в температурном интервале T = (1.8-300) К для всех исследованных пленок, а его модуль увеличивается с ростом температуры (рис. 2, *b*). Более того,  $|R_H^{ab}|$  уменьшается с увеличением уровня легирования, и в рамках однозонной модели ( $n = 1/eR_H$ ) при T = 77 К находим:

$$n_{x=0.135} = 3.05 \cdot 10^{21} \, 1/\text{cm}^3;$$
  
 $n_{x=0.145} = 6.25 \cdot 10^{21} \, 1/\text{cm}^3;$   
 $n_{x=0.15} = 2.16 \cdot 10^{22} \, 1/\text{cm}^3.$ 

Уменьшение  $|R_H^{ab}|$  с увеличением уровня легирования сильнее, чем 1/x, указывает на дополнительный вклад носителей заряда второго типа (дырок) за счет реконструкции поверхности Ферми (см. работу [12] и ссылки в ней). Экспериментально обнаружено, что величина коэффициента Холла между проводящими плоскостями  $|R_H^c|$  на два порядка больше, чем  $|R_H^{ab}|$  в проводящих плоскостях во всем диапазоне температур (рис. 3, *b*).

В модели некогерентного переноса [9,10] (см. также [13]) можно показать, что коэффициент Холла для движения электронов поперек проводящих плоскостей,  $R_{H}^{c}$ , не дает информации о концентрации носителей, а отношение коэффициентов  $R_{H}^{c}$  и  $R_{H}^{ab}$  описывается выражением:

$$\frac{R_H^c}{R_H^{ab}} = \frac{1}{\omega_c \tau} \cdot \frac{\hbar}{t_c \tau} \cdot \frac{\rho_{ab}}{\rho_c},\tag{3}$$

где  $\omega_c = eB/m$  — циклотронная частота. При B = 1 Т для исследованных образцов  $\omega_c \tau \simeq 10^{-3}$ . Тогда, если  $\frac{\rho_{ab}}{\rho_c} \simeq (10^{-2} - 10^{-3})$  и  $\frac{\hbar}{t_c \tau}$  (см. оценки в [8]), то из (3) находим  $R_H^c/R_H^{ab} \simeq (10 - 10^2)$  в достаточно хорошем соответствии с экспериментальными данными.

#### 4. Заключение

Впервые экспериментально измерено и исследовано поведение температурных зависимостей эффекта Холла электронно-легированного сверхпроводника  $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4+\delta}$  на границе квантового фазового перехода антиферромагнетик—сверхпроводник (0.135  $\leq x \leq 0.15$ ) в проводящих плоскостях CuO<sub>2</sub> и в направлении, перпендикулярном плоскостям CuO<sub>2</sub>, на монокристаллических пленках  $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4+\delta}$ /SrTiO<sub>3</sub> с различной ориентацией оси с относительно плоскости подложки. Было установлено, что коэффициент Холла между проводящими плоскостями CuO<sub>2</sub> на два порядка больше, чем коэффициент Холла в плоскостях CuO<sub>2</sub>, что может быть связано с особенностями некогерентного туннелирования носителей заряда между проводящими плоскостями.

# Список литературы

- H. Takagi, S. Ushida, Y. Tokura. Phys. Rev. Lett. 62, 1197 (1089).
- [2] M.V. Sadovskii. Superconductivity and Localization. World Scientific, Singapore (2000). 261 p.
- [3] N. Plakida. High-Temperature Cuprate Superconductors, Experiment, Theory and Applications. Springer-Verlag Berlin-Heidelberg (2010). 569 p.
- [4] T. Ito, H. Takagi, S. Ishibashi, T. Ido, S. Uchida. Nature 350, 596 (1991).
- [5] Т.Б. Чарикова, А.И. Пономарев, Г.И. Харус, Н.Г. Шелушинина, А.О. Ташлыков, А.В. Ткач, А.И. Иванов. ЖЭТФ 132, 712 (2007).
- [6] A.A. Ivanov, S.G. Galkin, A.V. Kuznetsov, A.P. Menushenkov. Physica C 180, 69 (1991).
- [7] T.B. Charikova, N.G. Shelushinina, G.I. Harus, D.S. Petukhov, A.I. Ivanov. Solid State Phenomena 215, 77 (2014).
- [8] N.G. Shelushinina, A.S. Klepikova, D.S. Petukhov. O.E. Petukhova, T.B. Charikova, A.A. Ivanov. J. Phys.: Conf. Ser. (2018). In press.
- [9] A. Cassam-Chenai, D. Maily. Phys. Rev. B 52, 1984 (1995).
- [10] R.H. McKenzie, P. Moses. Phys. Rev. Lett. 81, 4492 (1998).
- [11] P.W. Anderson. Science 235, 1195 (1987).
- [12] T.B. Charikova. N.G. Shelushinina, G.I. Harus, D.S. Petukhov, V.N. Neverov, A.A. Ivanov. Physica C 488, 25 (2013).
- [13] Задачи по термодинамике и статистической физике / Под. ред. П. Ландсберга, Мир, М. (1974). гл. 19.

Редактор Т.Н. Василевская