

# ГАЛЬВАНОМАГНИТНЫЕ СВОЙСТВА АТОМНО-РАЗУПОРЯДОЧЕННЫХ МОНОКРИСТАЛЛОВ $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$

*А. Е. Карькин\**, *С. В. Наумов*, *Б. Н. Гоцицкий*

*Институт физики металлов Уральского отделения Российской академии наук  
620219, Екатеринбург ГСП-170, Россия*

*А. М. Балбашов*

*Московский энергетический институт  
111250, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 9 сентября 2004 г.

Исследовано влияние индуцированного нейтронным облучением атомного разупорядочения на гальваномагнитные свойства монокристаллов  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  в интервале температур (1.7–380) К и магнитных полей до 13.6 Тл. Разупорядочение приводит к появлению в области низких температур отрицательных температурных коэффициентов электросопротивлений в плоскости ( $\rho_a$ ) и вдоль оси  $c$  ( $\rho_c$ ), а также сильно анизотропного по отношению к ориентации магнитного поля ( $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}$  и  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$ ) отрицательного магнитосопротивления  $\Delta\rho$  с легким направлением вдоль оси  $c$  и слабой зависимостью от направления измерительного тока. Показано, что экспериментальные зависимости  $\rho_a(T)$ ,  $\rho_c(T)$  для исходных и разупорядоченных образцов можно описать расчетными, полученными в рамках модели с двумя каналами проводимости. Первый канал соответствует носителям с увеличенной массой примерно  $10m_e$  и преобладающим электрон-электронным рассеянием, приводящим к квадратичным зависимостям  $\rho_a(T)$  и  $\rho_c(T)$ , второй — более легким носителям с преобладающим при низких температурах магнитным рассеянием с зависимостями типа  $\rho_{a,c}(T) \propto 1/T$ .

PACS: 72.15.Gd

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Для понимания механизма высокотемпературной сверхпроводимости (ВТСП) в купратах необходима, в первую очередь, теория, адекватно описывающая свойства нормального, или металлического, состояния. Электронный транспорт в ВТСП-соединениях имеет множество аномальных особенностей, не характерных для обычных металлов, которые, в частности, не позволяют описывать свойства этих соединений в рамках обычной ферми-жидкостной модели. Если температурные зависимости электросопротивления в плоскости  $\rho_a(T)$  в ВТСП-соединениях имеют «металлический» вид ( $d\rho_a/dT > 0$ ), то межплоскостные зависимости  $\rho_c(T)$  более характерны для полупроводников ( $d\rho_c/dT < 0$ ) [1, 2]. Кроме того,  $\rho_a$  имеет более слабую температурную зависимость

(приблизительно линейную), чем ожидаемое для соединений с сильными электронными корреляциями поведение типа  $\rho_a(T) \propto T^2$ . Неожиданными являются также сильные температурные зависимости коэффициента Холла [3] и отрицательные величины магнитосопротивления  $\Delta\rho < 0$  при  $T > T_C$  [4, 5]. Для разработки теории, адекватно описывающей свойства нормального состояния ВТСП-соединений, необходимо иметь достоверные экспериментальные данные об их гальваномагнитных свойствах в пределе низких температур  $T \rightarrow 0$ , которые позволяют получить достоверную информацию об особенностях электронных состояний вблизи уровня Ферми. Однако слишком высокие величины температур сверхпроводящего перехода  $T_C \sim 100$  К и вторых критических полей  $H_{C2} \sim 100$  Тл делают очень трудными такого рода эксперименты. Сами по себе «аномальные» свойства ВТСП-соединений не являются уникальными, похожие особенности

\*E-mail: karkin@uraltc.ru

транспортных свойств наблюдали также во многих других соединениях с сильными электронными корреляциями, таких как соединения с тяжелыми фермионами [6] или  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  [7, 8], хотя их механизмы могут быть, в принципе, различными. Например, «неметаллический» вид электросопротивления вдоль оси  $c$  в соединениях типа ВТСП обычно связывают с прыжковым механизмом проводимости [9], что представляется вполне обоснованным для этих практически квазидвумерных систем, тогда как в почти изотропных системах с тяжелыми фермионами — с магнитным рассеянием кондо-типа [6].

Системы с сильными электронными корреляциями чрезвычайно чувствительны к изовалентному легированию, так же как и к другим типам атомного беспорядка, что позволяет использовать методы разупорядочения для изучения особенностей электронного спектра вблизи уровня Ферми. В отличие от обычных металлов атомное разупорядочение ВТСП-соединений, возникающее, в частности, при облучении быстрыми нейтронами, приводит к кардинальной перестройке их электронного спектра, которая завершается электронным переходом типа металл — диэлектрик [10, 11]. Например, «полупроводниковый» характер проводимости в плоскости возникает в еще сверхпроводящих образцах [12]. Отметим, что радиационное разупорядочение в работах [10–12] использовалось как метод для направленного изменения электронных свойств с целью выявления «аномальных» особенностей электронного транспорта в исходном упорядоченном состоянии. Очевидными достоинствами этого метода являются однородное по объему образца распределение дефектов и неизменность стехиометрического состава. Индуцированный облучением беспорядок является обратимым — неравновесное разупорядоченное состояние одного и того же образца можно постепенно сдвигать в сторону большего порядка последовательными высокотемпературными отжигами вплоть до полного восстановления исходного (упорядоченного) состояния [13].

$\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  часто рассматривают как электронный аналог ВТСП-соединений. По опубликованным данным разных авторов высокое качество монокристаллических образцов  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  и низкие величины  $T_C < 2$  К и  $H_{C2} < 0.1$  Тл позволили, используя такие мощные экспериментальные методы как эффект Де Гааза — Ван Альфена [14, 15], циклотронный резонанс [16], фотоэмиссия с угловым разрешением [17] и другие [18–23], и численные расчеты зонной структуры [24], определить основные зонные параметры

и топологию поверхности Ферми, которые в настоящее время известны с гораздо большей достоверностью, чем для любого из ВТСП-соединений. Поверхность Ферми состоит из одного дырочного ( $\alpha$ ) и двух электронных ( $\beta$  и  $\gamma$ ) цилиндров с соответствующими волновыми векторами  $k_F = 0.3, 0.62, 0.75 \text{ \AA}^{-1}$  и электронными массами 3.4, 6.6 и 12.0 (в единицах  $m_e$ ), так что основной вклад в проводимость и эффект Холла дает поверхность  $\gamma$  с более тяжелыми электронами [14].

В исходном упорядоченном  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  при низких температурах  $T < 30$  К зависимости  $\rho_a(T)$  и  $\rho_c(T)$  описываются ожидаемой для ферми-жидкости функцией типа  $\rho \propto T^2$ . В области более высоких температур,  $T > 100$  К, характер проводимости качественно меняется:  $\rho_a(T)$  возрастает более медленно, чем в низкотемпературной области и, как показано в работе [25], может быть представлена суммой квадратичного и линейного вкладов;  $\rho_c(T)$  проходит через максимум при  $T \sim 100$  К, а  $d\rho_c/dT < 0$  вплоть до температур порядка 600 К [26]. Как показано в работе [27], межплоскостная проводимость в широком интервале температур может быть описана суммой двух вкладов, один из которых пропорционален проводимости в плоскости  $(\rho_a)^{-1}$ , а второй — температуре. Вследствие качественно различного поведения  $\rho_a(T)$  и  $\rho_c(T)$  анизотропия электросопротивления  $\rho_c/\rho_a$  уменьшается от величины порядка 2000 при низких температурах примерно до 20 при  $T \approx 1300$  К [27]. Коэффициент Холла  $R_H$  сильно зависит от температуры при  $T < 30$  К, положителен в интервале  $30 \text{ К} < T < 130 \text{ К}$  и отрицателен при  $T < 30$  К и  $T > 130$  К [25, 28]. Магнитосопротивление имеет довольно сложные полевые и температурные зависимости, его знак меняется с положительного при низких  $T$  на отрицательный при  $T \approx 80$  К; отрицательное магнитосопротивление, кроме того, заметно больше для ориентации поля  $H$  вдоль оси  $c$  [27, 28].

Такое поведение гальваномагнитных свойств в  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$ , так же как и в других соединениях типа ВТСП, часто интерпретируют как переход от когерентного механизма проводимости при низких  $T$  к некогерентному при высоких. Похожий механизм привлекался также и для описания транспорта в системах с тяжелыми фермионами (переход от кондо-решетки при низких  $T$  к разупорядоченной кондо-системе при высоких). Для сильно анизотропных систем типа ВТСП это означает, что режим межплоскостного транспорта меняется от металлического сильно анизотропного к прыжковому,

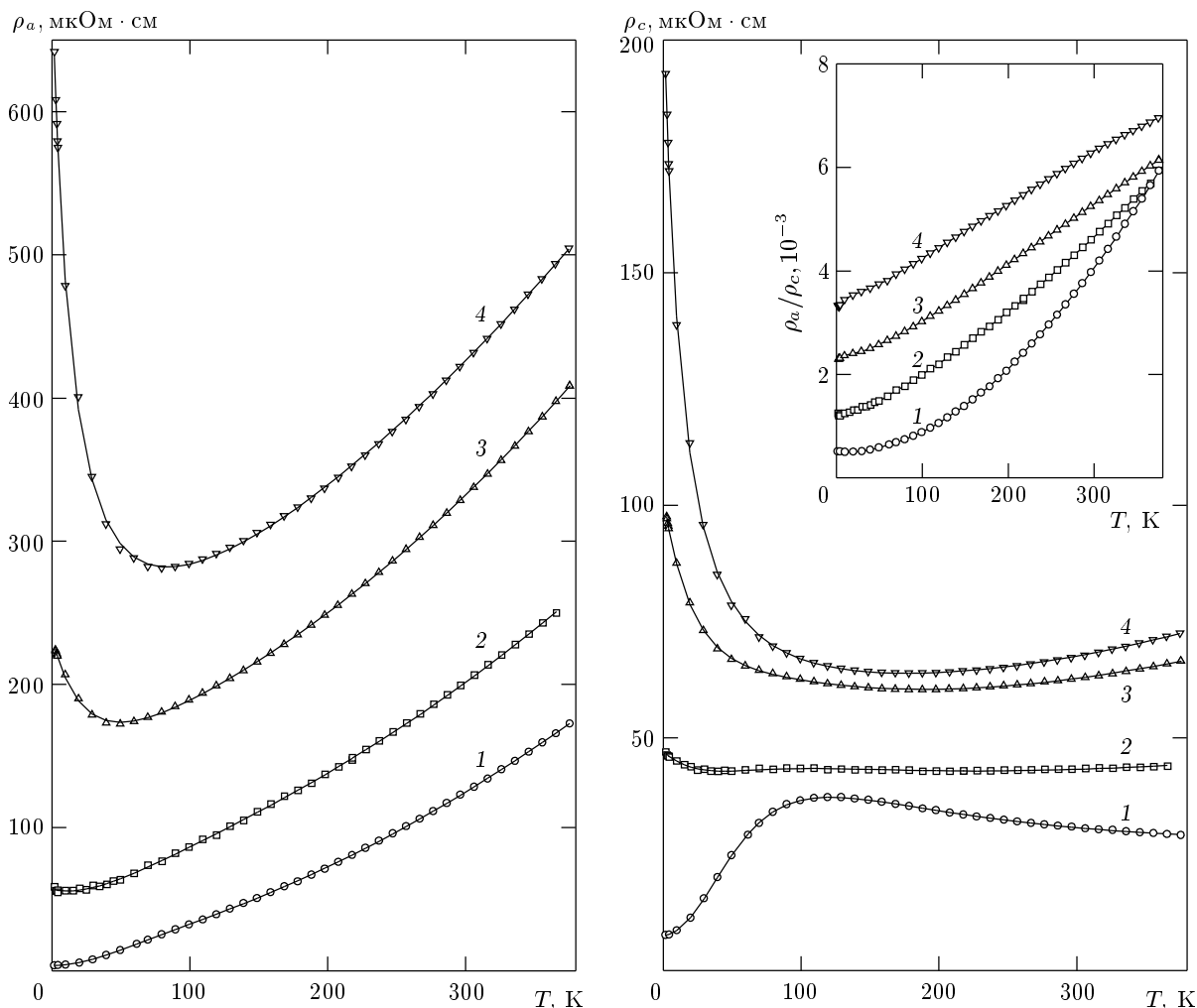


Рис. 1. Температурные зависимости электросопротивлений  $\rho_a(T)$  и  $\rho_c(T)$  для исходного (кривые 1) и облученных флюенсами  $1.5 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$  (2),  $3 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$  (3) и  $5 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$  (4) образцов  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$ . На вставке: температурная зависимость анизотропии ( $\rho_a/\rho_c$ ). Символы — эксперимент, сплошные линии — подгонка с помощью выражений (3)

связанному с одночастичным туннелированием, индуцированным магнонами или другими подходящими квазичастицами. В недавней работе Минаката и Маэно [29] изучалось влияние замещения ионов Ru изовалентными немагнитными ионами Ti (тип легирования, который наиболее близок по своему воздействию на электронные свойства к исследуемому нами радиационному разупорядочению). Как было показано, увеличение концентрации титана в  $\text{Sr}_2\text{Ru}_{1-x}\text{Ti}_x\text{O}_4$  приводит не только к постепенному уменьшению температуры «кроссовера», которая отделяет область  $d\rho_c/dT > 0$  от области  $d\rho_c/dT < 0$ , до полного его исчезновения при  $x \approx 5\%$ , но и к появлению при низких  $T$  области, где  $d\rho_a/dT < 0$  при вполне «металлических» величинах электросопротивления  $\rho_a < 100 \text{ мкОм} \cdot \text{см}$ . Такое поведение,

очевидно, не может быть интерпретировано как разновидность некогерентного (прыжкового) типа проводимости (во всяком случае, для однородной электронной системы). Таким образом, электронный транспорт в  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$ , так же как и в других соединениях типа ВТСП, пока еще не имеет вполне адекватного описания.

## 2. ЭКСПЕРИМЕНТ

В работе исследовались температурные зависимости электросопротивления монокристаллов  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  в магнитных полях до 13.6 Тл после облучения быстрыми нейтронами и последующих

изохронных (20 мин) отжигов в интервале температур  $T_{ann} = (100-1000)^\circ\text{C}$  в атмосфере воздуха. Монокристаллы  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  выращивались методом бесстигельной зонной плавки с радиационным нагревом в атмосфере воздуха из полученных методом стандартной твердофазной реакции керамических образцов цилиндрической формы. Для измерений отбирались кристаллы с зеркальной поверхностью и типичными размерами в плоскости  $1.5 \cdot 0.5 \text{ мм}^2$  и толщиной 50–100 мкм. Облучение флюенсами быстрых нейтронов  $\Phi = 0.5, 1.0, 1.5, 3$  и  $5 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$  (по два образца при каждом значении  $\Phi$ ) проводили в ядерном реакторе ИВВ-2М, температура образца в процессе облучения не превышала  $50^\circ\text{C}$ .

Электросопротивления  $\rho_a$  и  $\rho_c$  определяли стандартным четырехточечным методом Монтгомери [30] в интервале температур 1.7–380 К. Соответствующие продольные и поперечные компоненты магнитосопротивления измерялись при  $T = 4.2 \text{ К}$  в магнитных полях до 13.6 Тл (при этом изменялись направления измерительного тока, магнитного поля  $H$  и переключались токовые и потенциальные контакты). Результаты измерений на двух образцах для каждого флюенса практически совпадали. Использование метода Монтгомери дает хорошие результаты только при оптимальном  $d_a/d_c \approx (\rho_c/\rho_a)^{1/2}$  соотношении расстояний между контактами  $d_a, d_c$  в направлениях осей  $a$  и  $c$  [30]. Однако из-за значительного изменения анизотропии  $\rho_c/\rho_a$  (как при изменении температуры, так и при индуцированном облучением разупорядочении) в тех образцах, где отношения  $d_a/d_c$  были больше (меньше) оптимальных, точность измерений существенно снижалась при низких (высоких) температурах. Поэтому здесь мы подробно анализируем результаты, в основном, для облученного флюенсом  $\Phi = 3 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$  образца с наиболее близкими к оптимальным размерами  $d_a = 1.85 \text{ мм}$  и  $d_c = 0.10 \text{ мм}$ . Погрешность измерения абсолютных величин  $\rho_a$  и  $\rho_c$ , определяемая, в основном, погрешностью определения геометрических размеров, для этого образца составляла величину порядка 10%. Воспроизводимость значений  $\rho_a$  и  $\rho_c$  была порядка (0.05–0.2) %.

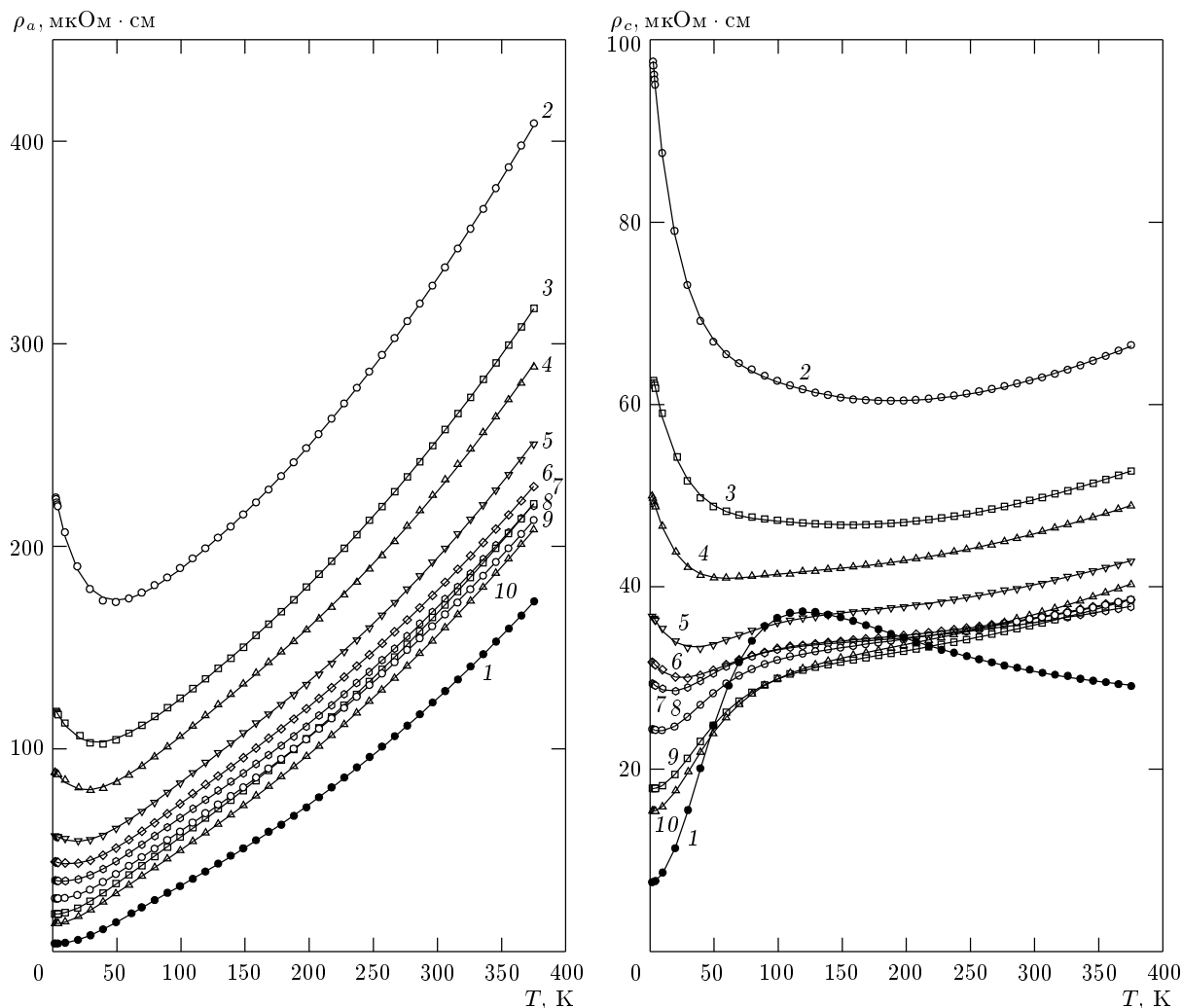
### 3. РЕЗУЛЬТАТЫ

На рис. 1 показаны температурные зависимости  $\rho_a(T)$  и  $\rho_c(T)$  исходного и облученных флюенсами  $1.5, 3$  и  $5 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$  образцов  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$ . Разупорядочение приводит к качественному изменению этих за-

висимостей в области низких температур  $T < 30 \text{ К}$ : уже при  $\Phi = 1.5 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$  появляется отрицательный температурный наклон  $d\rho/dT < 0$ , который быстро увеличивается с ростом беспорядка. В области высоких температур  $T > 100 \text{ К}$  изменения  $\rho_a(T)$  и  $\rho_c(T)$  не столь значительны: с ростом беспорядка  $d\rho_a/dT$  немного увеличивается, а  $d\rho_c/dT$  постепенно меняется от небольшой отрицательной к небольшой положительной величине. Температурная зависимость анизотропии ( $\rho_a/\rho_c$ ) также испытывает значительные изменения (см. вставку на рис. 1): она меняется от почти квадратичной зависимости для исходного образца до приблизительно линейной для облученного максимальным флюенсом. Эти зависимости качественно очень похожи на данные работы [29] для легированных Ti образцов  $\text{Sr}_2\text{Ru}_{1-x}\text{Ti}_x\text{O}_4$ , однако облучение флюенсом  $\Phi = 5 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$  приводит к значительно более сильным изменениям  $\rho_a(T)$  и  $\rho_c(T)$  по сравнению с исследованной в [29] максимальной концентрацией титана  $x = 0.09$ .

Отжиг образца, облученного флюенсом  $\Phi = 3 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$  (рис. 2), приводит к практически полному восстановлению исходной зависимости  $\rho_a(T)$  при температуре отжига  $T_{ann} = 1000^\circ\text{C}$ . Зависимость  $\rho_c(T)$  восстанавливается не полностью: если низкотемпературные участки кривых  $\rho_c(T)$  при отжиге демонстрируют тенденцию к восстановлению исходного состояния (остаточное электросопротивление уменьшается, отрицательный наклон электросопротивления исчезает), то исходное высокотемпературное поведение  $\rho_c(T)$  не восстанавливается при отжиге — наклон  $d\rho_c/dT$  остается положительным и даже слегка увеличивается при  $T_{ann} = (800-1000)^\circ\text{C}$ .

На рис. 3 показаны величины относительных магнитосопротивлений  $\Delta\rho/\rho$  для направлений тока в плоскости ( $\Delta\rho_a/\rho_a$ ) и вдоль оси  $c$  ( $\Delta\rho_c/\rho_c$ ) при  $T = 4.2 \text{ К}$  для образцов с различной степенью беспорядка (остаточное электросопротивление в плоскости  $\rho_{a0}$ , которое может служить мерой беспорядка, меняется в широких пределах 50–220 мкОм·см). В исходном образце в соответствии с поведением, характерным для обычных металлов, все компоненты магнитосопротивления положительны [4, 5, 26]. В разупорядоченных образцах при  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$  магнитосопротивления  $\Delta\rho_a/\rho_a$  и  $\Delta\rho_c/\rho_c$  отрицательны во всем интервале приложенных полей  $H$  и практически не зависят от направления измерительного тока. При  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}$  магнитосопротивления значительно меньше по абсолютной величине, чем в случае  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$ , отрицательны в полях  $H > (2-3) \text{ Тл}$  и также практиче-



**Рис. 2.** Температурные зависимости электросопротивлений  $\rho_a(T)$  и  $\rho_c(T)$  образца  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$ : в исходном состоянии (1); после облучения флюенсом  $3 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$  (2); после отжига при температурах 300 °C (3), 400 °C (4), 500 °C (5), 600 °C (6), 700 °C (7), 800 °C (8), 900 °C (9) и 1000 °C (10). Символы — эксперимент, сплошные линии — подгонка с помощью выражений (3)

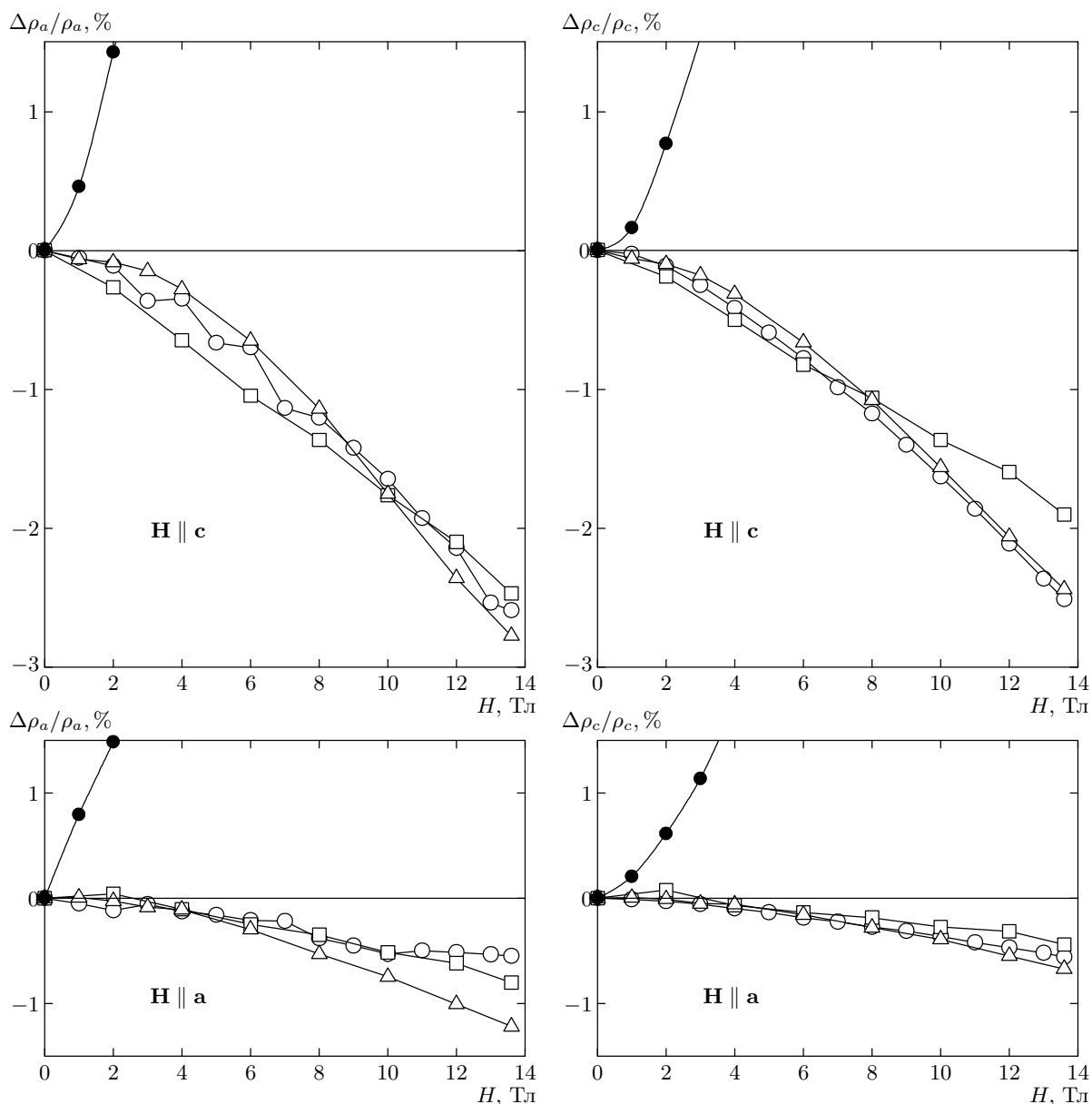
ски не зависят от направления измерительного тока. Величины  $\Delta\rho_a/\rho_a$  и  $\Delta\rho_c/\rho_c$  при ориентациях  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}$ ,  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$  практически не меняются при уменьшении температуры от 4.2 до 1.5 К.

На рис. 4 показано изменение  $\Delta\rho_c/\rho_c$  при отжиге образца, облученного флюенсом  $\Phi = 3 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$ . После отжига при  $T_{ann} = (300\text{--}800)^\circ\text{C}$  ( $\rho_{a0}$  уменьшается от 220 до 25 мкОм·см) величина  $\Delta\rho_c/\rho_c$  остается почти постоянной для  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}$  и  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$ , и только при  $T_{ann} = 900^\circ\text{C}$  ( $\rho_{a0} \approx 20$  мкОм·см) в области высоких полей  $H > 6$  Тл появляется заметная положительная добавка. Отметим, что исходное состояние не восстанавливается после отжига, как и  $\rho_c(T)$  (см. рис. 2). Таким образом, все компонен-

ты магнитосопротивления, как  $\Delta\rho_c/\rho_c$ , так и  $\Delta\rho_a/\rho_a$  (не показаны на рис. 4) при  $T = 4.2$  К отрицательны при  $\rho_{a0} > 20$  мкОм·см.

#### 4. ОБСУЖДЕНИЕ

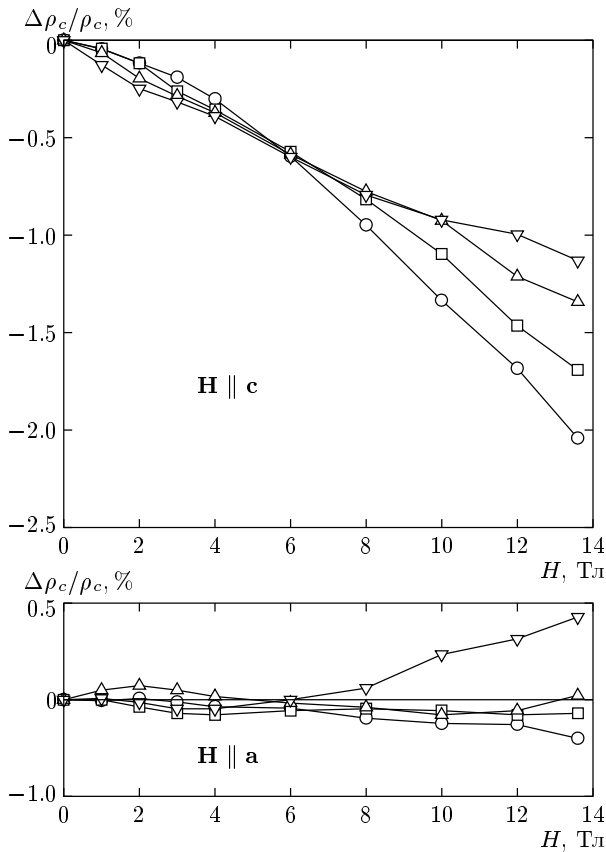
Для анализа температурных зависимостей  $\rho_a(T)$  и  $\rho_c(T)$  (рис. 1 и 2) рассмотрим поведение полученных численным дифференцированием производных  $d\rho_a/dT$  и  $d\rho_c/dT$  (рис. 5). В области температур  $T > 150$  К производные  $d\rho_a/dT$  можно описать суммой линейного по температуре и постоянного членов и представить  $\rho_a(T)$  в виде  $\rho_a(T) = a_0 + a_1T + a_2T^2$ . С ростом беспорядка  $a_0$  быстро возрастает,  $a_1$  сла-



**Рис. 3.** Относительные магнитосопротивления ( $\Delta\rho_a/\rho_a$ ) и ( $\Delta\rho_c/\rho_c$ ) при  $T = 4.2$  К при двух ориентациях магнитного поля ( $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}$  и  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$ ) как функции магнитного поля  $H$  для исходного ( $\bullet$ ) и облученных флюенсами  $1 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$  ( $\circ$ ),  $1.5 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$  ( $\square$ ),  $3 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$  ( $\triangle$ ) образцов  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$ . Сплошные линии проведены через экспериментальные точки

бо изменяется в пределах  $(0.3-0.5) \text{ мкОм} \cdot \text{см/К}$ , а параметр  $a_2$  медленно увеличивается примерно от  $0.5$  до  $1 \text{ нОм} \cdot \text{см/К}^2$ . Зависимость  $\rho_c(T)$  в этой области температур также можно представить в виде  $\rho_c(T) = c_0 + c_1T + c_2T^2$ . С ростом беспорядка  $c_0$  быстро возрастает,  $c_1$  и  $c_2$  практически не изменяются. Отметим, что относительные величины параметров  $c_1, c_2$  существенно меньше ( $c_1 \approx 0, c_2 \approx 0.02 \text{ мкОм} \cdot \text{см/К}^2$ ), чем  $a_1, a_2$ . В области темпе-

ратур  $T < 30 \text{ К}$  кривые  $d\rho_a/dT$  и  $d\rho_c/dT$  снова могут быть грубо описаны суммой постоянного и линейного членов. Линейный член, однако, значительно больше, чем при высоких температурах, а постоянный уменьшается от нуля для исходного образца до большого отрицательного значения для облученного. В промежуточной области  $30 \text{ К} < T < 150 \text{ К}$  наблюдается более ( $d\rho_c/dT$ ) или менее ( $d\rho_a/dT$ ) выраженный максимум в температурных зависимостях



**Рис. 4.** Относительное магнитосопротивление  $\Delta\rho_c/\rho_c$  как функция магнитного поля  $H$  для облученного флюенсом  $3 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$  и последовательно отожженного при температурах  $300^\circ\text{C}$  ( $\circ$ ),  $700^\circ\text{C}$  ( $\square$ ),  $800^\circ\text{C}$  ( $\triangle$ ) и  $900^\circ\text{C}$  ( $\nabla$ ) образца  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$ . Сплошные линии проведены через экспериментальные точки

производных.

Для описания экспериментальных данных представим проводимости  $1/\rho_i(T)$  в виде суммы проводимостей по двум каналам, обозначенных индексами I, II соответственно для тяжелых и легких носителей:

$$\frac{1}{\rho_i(T)} = \frac{1}{\rho_{iI}(T)} + \frac{1}{\rho_{iII}(T)}, \quad i = a, c \quad (1)$$

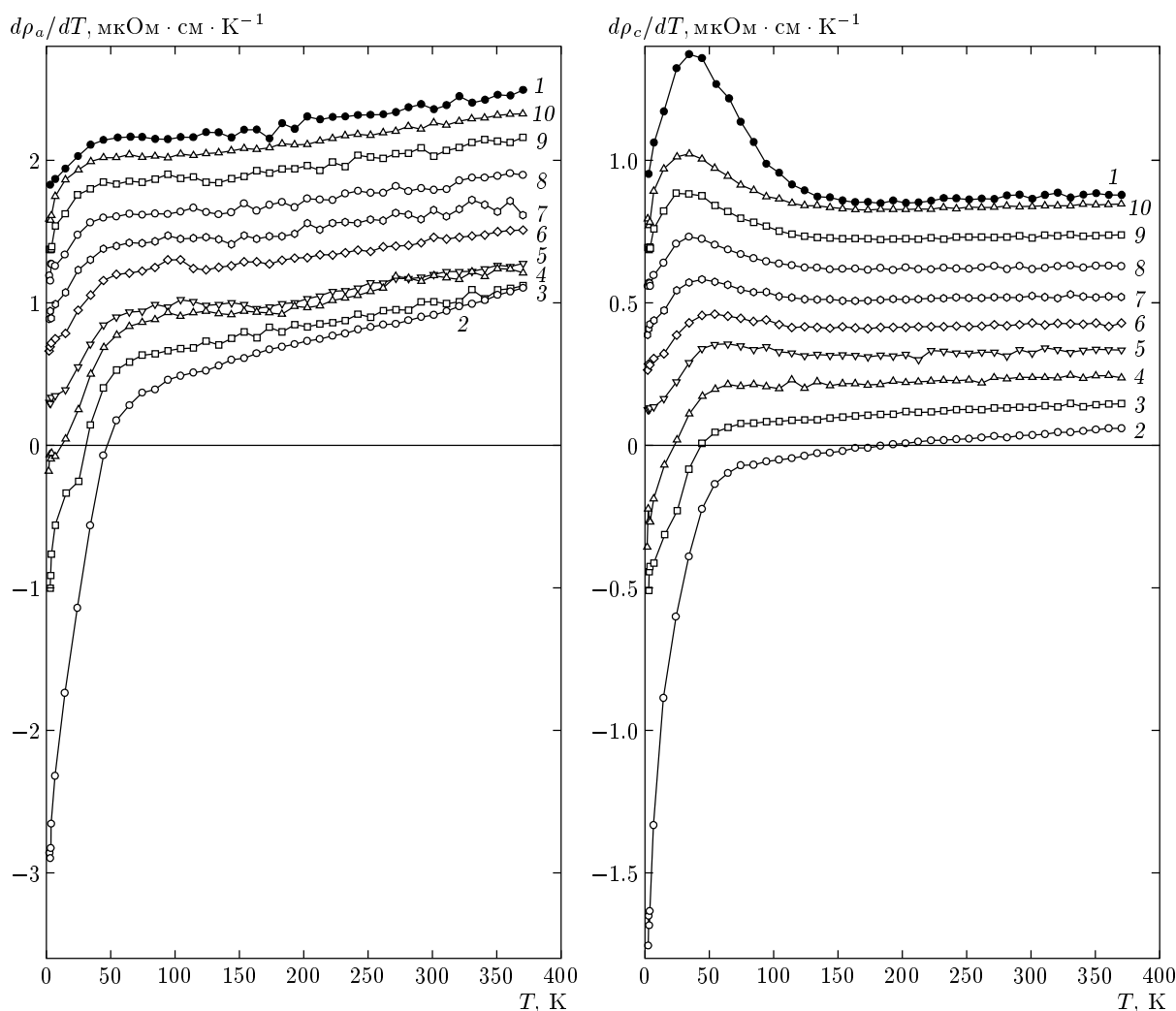
при условии, что  $\rho_{iI} \ll \rho_{iII}$  при низких температурах и  $\rho_{iI} \gg \rho_{iII}$  при высоких, т. е. в случае, когда  $\rho_{iI}(T)$  и  $\rho_{iII}(T)$  имеют качественно различные температурные зависимости «металлического» и «полупроводникового» типа, как это предполагалось, например, в работе [27].

Для канала проводимости I запишем электросопротивление в ожидаемом для металлов с сильными электронными корреляциями виде:

$$\rho_{iI}(T) = A_{i0}^I + A_{i2}^I T^2. \quad (2)$$

Как уже отмечалось, второй канал проводимости не может быть связан с проводимостью прыжкового типа. Наиболее непротиворечивое, на наш взгляд, объяснение наблюдаемого поведения электросопротивления (возрастающего при уменьшении температуры) — это сильное магнитное рассеяние носителей. В этом случае естественное объяснение получают как отрицательный знак всех компонент магнитосопротивления  $\Delta\rho/\rho$ , так и их сильное (в 3–5 раз) различие для различных кристаллографических направлений. По данным работы [29] в магнитной восприимчивости  $\text{Sr}_2\text{Ru}_{1-x}\text{Ti}_x\text{O}_4$  присутствует возрастающий с увеличением  $x$  вклад типа Кюри–Вейсса с сильной (порядка 5) анизотропией по отношению к ориентации магнитного поля ( $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}$  и  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$ ), так что появление отрицательного анизотропного магнитосопротивления в разупорядоченных монокристаллах неудивительно. Отметим, что кроме отрицательного магнитного вклада в магнитосопротивлении всегда присутствует обычный положительный вклад, связанный с отклонением электронных траекторий магнитным полем. Последний должен преобладать в упорядоченных системах при низких температурах и быстро уменьшаться как при разупорядочении (увеличении  $\rho_0$ ), так и при повышении температуры. Смена знака  $\Delta\rho/\rho$  при  $T = 4.2 \text{ K}$  в разупорядоченных образцах наблюдается (рис. 3) при  $\rho_0 \approx (15\text{--}20) \text{ мкОм} \cdot \text{см}$ , а в упорядоченных [27] — при  $T \sim 80 \text{ K}$  ( $\rho_{80} \approx 15 \text{ мкОм} \cdot \text{см}$ ).

Возможный механизм магнитного рассеяния — это эффект Кондо, который, как известно, приводит к появлению в  $\rho(T)$  дополнительного логарифмического члена  $\rho_m \sim -\ln T$ . Однако, как показано в [31], логарифмическая форма магнитного рассеяния справедлива только для разбавленных систем, тогда как для более концентрированных систем при низких температурах в  $\rho(T)$  должен появляться дополнительный приблизительно линейный член  $\rho_m \sim -T$ , как это часто наблюдают в разупорядоченных системах с тяжелыми фермионами типа  $(\text{La-Ce})\text{Cu}_2\text{Si}_2$  [32]. В нашем случае (см. рис. 1) существует явно линейная низкотемпературная зависимость  $\rho_a(T)$  и  $\rho_c(T)$ . В широком интервале температур более реалистичная форма магнитного вклада может иметь «кюри-вейссовский» вид  $\rho_m \sim 1/(T + T_0)$ , который правильно описывает как низкотемпературное (линейное) поведение, так и затухание при высоких температурах, хотя может быть использована и любая другая интерполяционная зависимость с похожим поведением в пределах



**Рис. 5.** Температурные зависимости производных  $d\rho_a/dT$  и  $d\rho_c/dT$  образца  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$ : в исходном состоянии (1); после облучения флюенсом  $3 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$  (2); после отжига при температурах 300 °С (3), 400 °С (4), 500 °С (5), 600 °С (6), 700 °С (7), 800 °С (8), 900 °С (9) и 1000 °С (10). Кривые  $d\rho_a/dT$  сдвинуты одна относительно другой на величину 0.2 мкОм · см/К,  $d\rho_c/dT$  — на 0.1 мкОм · см/К. Сплошные линии проведены через экспериментальные точки

высоких и низких температур.

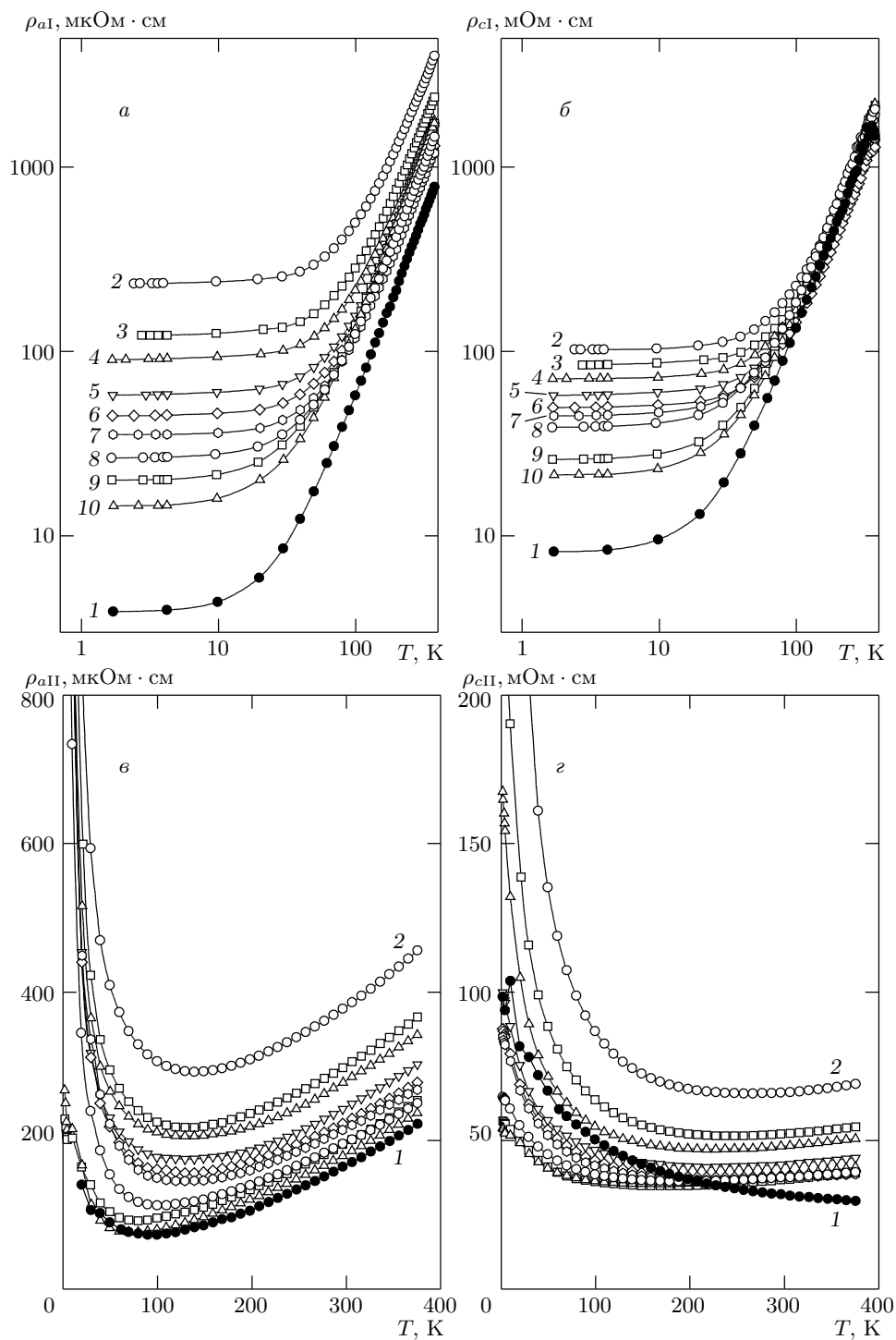
По аналогии с работой [27] (в случае, когда измерительный ток и поле направлены вдоль оси  $c$ ) отнесем магнитное рассеяние только ко второму каналу проводимости (отметим, что в [27] отрицательное магнитосопротивление связывали не с магнитным рассеянием, а с зеемановским расщеплением локализованных уровней, участвующих в некогерентном прыжковом процессе). Учтем также, что согласно наблюдаемому поведению производных  $d\rho_a/dT$  (рис. 5) в расчетной зависимости  $\rho_a(T)$  в области высоких температур кроме квадратичного члена должен присутствовать еще и линейный член. Оконча-

тельные выражения, которые мы использовали для описания экспериментальных данных (сплошные линии на рис. 1 и 2), имеют вид

$$\begin{aligned} \frac{1}{\rho_i(T)} &= \frac{1}{\rho_{iI}(T)} + \frac{1}{\rho_{iII}(T)}, \\ \rho_{iI}(T) &= A_{i0}^I + A_{i2}^I T^2, \\ \rho_{iII}(T) &= A_{i0}^{II} + A_{i1}^{II} + A_{i2}^{II} T^2 + \rho_{im}, \\ \rho_{im} &= \frac{B_{im}}{T + T_{i0}}, \\ i &= a, c. \end{aligned} \tag{3}$$

Как видно на рис. 1 и 2, варьируя подгоночные параметры  $A_{i0}^I, A_{i2}^I, A_{i0}^{II}, A_{i1}^{II}, A_{i2}^{II}, B_{im}$  и  $T_{i0}$ , удается с





**Рис. 6.** Температурные зависимости электросопротивлений  $\rho_{aI}(T)$ ,  $\rho_{cI}(T)$ ,  $\rho_{aII}(T)$  и  $\rho_{cII}(T)$  образца Sr<sub>2</sub>RuO<sub>4</sub>: в исходном состоянии (1); после облучения флюенсом  $3 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$  (2); после отжига при температурах 300 °C (3), 400 °C (4), 500 °C (5), 600 °C (6), 700 °C (7), 800 °C (8), 900 °C (9) и 1000 °C (10). Сплошные линии проведены по соответствующим значениям символов

высокой точностью описать экспериментальные зависимости  $\rho_a(T)$  и  $\rho_c(T)$  для образцов с разной степенью беспорядка. При этом подгоночные параметры показывают монотонные изменения с ростом беспорядка.

На рис. 6 показаны зависимости  $\rho_{aI}(T)$ ,  $\rho_{cI}(T)$ ,  $\rho_{aII}(T)$  и  $\rho_{cII}(T)$ , полученные вычитанием из экспериментальных проводимостей  $1/\rho_a(T)$  и  $1/\rho_c(T)$  соответствующих вычисленных для каждого из двух каналов проводимости: например,

$$\rho_{aI}(T) = \left\{ \frac{1}{\rho_a(T)} - \left( A_{a0}^{II} + A_{a1}^{II}T + A_{a2}^{II}T^2 + \frac{B_{am}}{T + T_{a0}} \right) \right\}^{-1},$$

$$\rho_{aII}(T) = \left\{ \frac{1}{\rho_a(T)} - \frac{1}{A_{a0}^I - A_{a2}^I T^2} \right\}^{-1}.$$

На рис. 7 для облученного флюенсом  $\Phi = 3 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$  образца показаны магнитные вклады  $\rho_{am}$  и  $\rho_{cm}$  во втором канале проводимости, определенные (аналогично данным на рис. 6) как

$$\rho_{im}(T) = \left\{ \frac{1}{\rho_i(T)} - \frac{1}{A_{i0}^I + A_{i2}^I T^2} \right\}^{-1} - (A_{i0}^{II} + A_{i1}^{II}T + A_{i2}^{II}T^2),$$

где  $\rho_i(T)$  — экспериментальные зависимости;  $A_{i0}^I$ ,  $A_{i2}^I$ ,  $A_{i0}^{II}$ ,  $A_{i1}^{II}$  и  $A_{i2}^{II}$  — подгоночные параметры. Как видно, в широком интервале температур от 1.7 до 380 К магнитные вклады с хорошей точностью описываются зависимостями  $\rho_{im}(T) \propto T^{-1}$ .

Для первого канала проводимости (верхняя часть рис. 6, двойной логарифмический масштаб) квадратичная зависимость  $\rho_{iI}(T) = A_{i0}^I + A_{i2}^I T^2$  хорошо воспроизводится во всей области температур даже для образцов с большим беспорядком при высоких температурах, где относительный вклад  $1/\rho_{iI}(T)$  в полную проводимость составляет всего (5–10)%. Коэффициент при квадратичном члене  $A_{i2}^I \approx (10\text{--}15) \text{ мкОм} \cdot \text{см}/\text{К}^2$ , связанный с электрон-электронным рассеянием, слабо изменяется при разупорядочении. Остаточное электросопротивление  $A_{c0}^I$  увеличивается примерно от 8 мОм · см для исходного образца до 100 мОм · см для облученного. Коэффициент  $A_{a2}^I$  увеличивается примерно от 5 нОм · см/К<sup>2</sup> для исходного образца до 25 нОм · см/К<sup>2</sup> для облученного. Остаточное электросопротивление  $A_{a0}^I$  увеличивается примерно от 4 мкОм · см для исходного образца до 230 мкОм · см для облученного. Поскольку первый канал дает

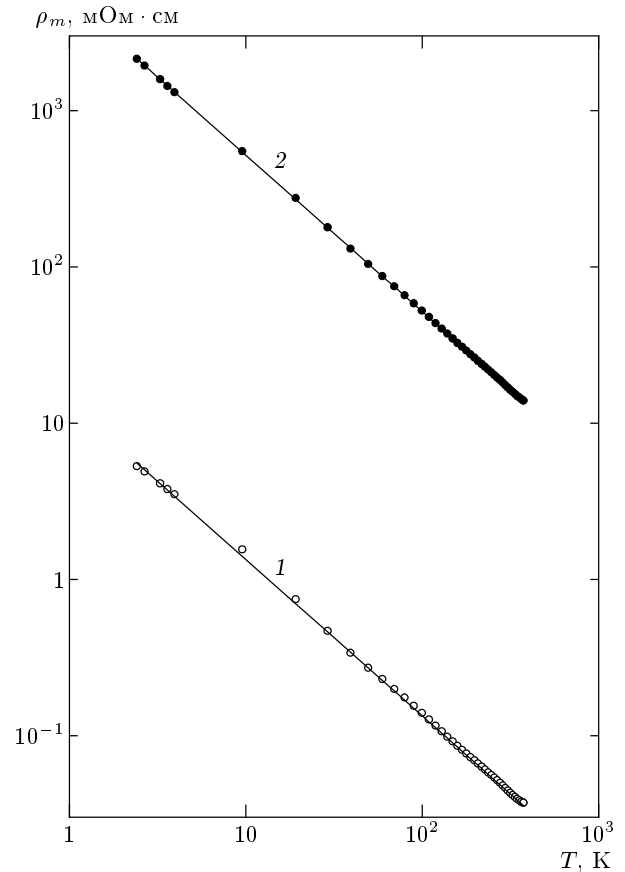


Рис. 7. Магнитный вклад в электросопротивление  $\rho_m$  для направлений измерительного тока в плоскости (1) и вдоль оси  $c$  (2). Сплошные линии проведены по соответствующим значениям символов

основной вклад в полную проводимость при низких температурах, именно более сильное увеличение  $A_{a0}^I$  и  $A_{a2}^I$  по сравнению с  $A_{c0}^I$  и  $A_{c2}^I$  при разупорядочении приводит, в основном, к увеличению низкотемпературной величины анизотропии  $\rho_a/\rho_c$  (см. вставку на рис. 1). Наблюдаемые изменения параметров  $A_{i0}^I$  и  $A_{i2}^I$  при увеличении беспорядка для первого канала проводимости могут быть интерпретированы как увеличение электронной массы для транспорта в плоскости ( $m_a$ ) при более слабом изменении электронной массы вдоль оси  $c$  ( $m_c$ ).

Зависимости  $\rho_{aII}(T)$  и  $\rho_{cII}(T)$  для второго канала проводимости показаны в нижней части рис. 6 (линейный масштаб). Изменения параметров  $B_{im}$ ,  $A_{i0}^{II}$ ,  $A_{i1}^{II}$  и  $A_{i2}^{II}$  в зависимости от величины беспорядка относительно невелики в полном соответствии с наблюдаемым высокотемпературным поведением производных  $d\rho_a/dT$  и  $d\rho_c/dT$  (рис. 5). Главное отличие транспорта вдоль оси  $c$  от транспорта в плоскости во

втором канале проводимости состоит в относительной малости параметра  $A_{c2}^{\text{II}}$ . Вследствие этого отношение  $A_{c2}^{\text{I}}/A_{c2}^{\text{II}}$  оказывается примерно на два порядка больше отношения  $A_{a2}^{\text{I}}/A_{a2}^{\text{II}}$ . Это приводит к тому, что область отрицательного наклона  $d\rho_c/dT$  расширена до более низких температур. Как видно на рисунке, из общей тенденции изменения температурных зависимостей электросопротивлений выпадает  $\rho_{c\text{II}}(T)$  для исходного образца, что связано, главным образом, с малостью подгоночного параметра  $A_{c2}^{\text{II}}$  по сравнению с соответствующими величинами для облученного и отожженных образцов.

Физический смысл членов  $A_{i1}^{\text{II}}T$  и  $A_{i2}^{\text{II}}T^2$  во втором канале проводимости, однако, не столь очевиден. Для транспорта в плоскости параметр  $A_{a2}^{\text{II}}$ , вероятно, также связан с процессами электрон-электронного рассеяния, в котором принимают участие носители заряда с относительно малой электронной массой  $m_a$  в соответствии с эмпирическим соотношением  $A_{a2}^{\text{II}} \propto m_a^2$  [33]. Присутствие линейного члена  $A_{i1}^{\text{II}}T$ , однако, можно трактовать различным образом. Конечно, его можно связать с электрон-фононным рассеянием, линейным при высоких температурах, однако в системах с сильными электронными корреляциями этот тип рассеяния, как правило, не наблюдался. В системах типа ВТСП линейное поведение  $\rho_a(T)$ , наблюдаемое в широком интервале температур (например, для соединения  $(\text{La-Sr})_2\text{CuO}_4$  — в области от 30 до 1300 К), интерпретируют как «нефермиевское» поведение элементарных возбуждений с учетом того, что температурная зависимость электросопротивления ближе к линейной, чем к ожидаемой для ферми-жидкости квадратичной. Подобное поведение наблюдалось также во многих системах с тяжелыми фермионами, например, в  $\text{CeNi}_2\text{Ge}_2$  [34], а также в  $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$  [35], двухслойном аналоге  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$ .

Еще более неопределенным выглядит физический смысл параметров  $A_{c1}^{\text{II}}$  и  $A_{c2}^{\text{II}}$ . Хотя величины эффективных масс вдоль оси  $c$  могут, в принципе, сильно различаться для различных участков поверхности Ферми, определяющих транспорт для первого и второго каналов проводимости, несистематическое поведение  $A_{c2}^{\text{II}}$  при облучении и отжигах (необратимость) вызывает некоторые сомнения в том, что член  $A_{c2}^{\text{II}}T^2$  может описывать электрон-электронное рассеяние. Отметим, что в менее совершенных кристаллах, выращенных не в «оптимальных» условиях, или выращенных методом из раствора в расплаве [36], также наблюдают положительный наклон  $d\rho_c/dT > 0$  при высоких температурах. Поэтому

вполне возможно, что необратимость  $\rho_c(T)$  при отжиге связана или с какими-то крупномасштабными дефектами (не точечными), возникающими в процессе высокотемпературного отжига при рекомбинации радиационных дефектов, или с диффузией кислорода при температурах выше 800 °С. Хотя отжижки образцов проводили в атмосфере воздуха в условиях, совпадающих с условиями синтеза, тем не менее трудно ожидать полного совпадения параметров охлаждения и, соответственно, стехиометрического состава в этих двух процессах.

Главный результат выполненного выше анализа состоит в том, что даже в исходных (упорядоченных) образцах присутствует канал проводимости, в котором  $d\rho/dT < 0$  не только для транспорта вдоль оси  $c$ , но и для внутриплоскостного транспорта, а не появляется, например, только при облучении или легировании [29]. Таким образом, здесь нет какого-либо электронного перехода: беспорядок (радиационное разупорядочение атомного масштаба или легирование) из-за роста остаточного электросопротивления  $A_{i0}^{\text{I}}$  приводит лишь к постепенному уменьшению относительного вклада первого канала в полную проводимость, так что рано или поздно начинает проявляться область отрицательного наклона  $d\rho/dT < 0$ . Отметим, что для исходного образца только первый канал проводимости может давать вклад, например, в эффект де Гааза – Ван Альфена, тогда как второй канал проводимости из-за сильного магнитного рассеяния при низких температурах и, соответственно, малой длины свободного пробега носителей заряда не может быть наблюдаем с помощью экспериментальных методов, использующих эффект квантовых осцилляций.

Предложенная нами модель — два канала проводимости с резко различающимися температурными зависимостями электросопротивлений — позволяет качественно правильно описать поведение  $\rho_a(T)$  и  $\rho_c(T)$  для исходного упорядоченного образца при более высоких температурах  $T = (400-1300)$  К, в частности, при  $T = 1000$  К расчет с помощью выражений (3) дает  $\rho_a \approx 850$  мкОм·см и  $\rho_c \approx 30$  мОм·см по сравнению с экспериментально наблюдаемыми, равными примерно соответственно 900 мкОм·см и 27 мОм·см [26]. Отметим, что соотношения (3) — это только один из вариантов описания экспериментальных кривых (рис. 1, 2) с помощью двух каналов (зон) проводимости. Выражение для  $\rho_{i\text{II}}(T)$  внешне выглядит просто как разложение по степеням  $T$  (при  $T_{i0} \sim 0$ ). Однако преобладающими являются члены  $B_{im}/(T+T_{i0})$  и  $A_{i2}^{\text{II}}T^2$  при соответственно низких и высоких температурах, тогда как вклад двух

других не столь существен. По-видимому, выражения (3) — это наилучший вариант описания экспериментальных данных с помощью модели с двумя каналами проводимости при разумном числе подгонных параметров.

Мы показали, что радиационное разупорядочение атомного масштаба, возникающее в монокристаллах  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  при облучении быстрыми нейтронами, приводит к появлению отрицательных температурных коэффициентов электросопротивления  $d\rho_a/dT < 0$ ,  $d\rho_c/dT < 0$  и отрицательных магнитосопротивлений  $\Delta\rho_a < 0$  и  $\Delta\rho_c < 0$  при низких температурах. Магнитосопротивление слабо зависит от направления тока ( $d\rho_a/dH \approx d\rho_c/dH$ ), но сильно анизотропно по отношению к ориентации магнитного поля ( $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}$  и  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$ ). Зависимости  $\rho_a(T)$  и  $\rho_c(T)$  как в исходных (упорядоченных) образцах, так и в образцах с различной степенью беспорядка могут быть описаны моделью с двумя каналами проводимости с резко различающимися температурными зависимостями электросопротивлений; даже в исходных (упорядоченных) образцах присутствует канал проводимости, в котором  $d\rho/dT < 0$  не только для транспорта вдоль оси  $c$ , но и для внутриплоскостного транспорта. Основной вклад в первый канал проводимости дают электроны ( $\gamma$ ) с электрон-электронным и примесным типами рассеяния, что приводит к квадратичным зависимостям  $\rho_a(T)$  и  $\rho_c(T)$ . Второй канал соответствует более легким носителям с преобладающим при низких температурах магнитным вкладом в электросопротивление типа  $\rho_{im}(T) \sim T^{-1}$ .

Работа выполнена при финансовой поддержке Минпромнауки РФ (Гос. контракты № 40.012.1.1.1150, № 40.012.1.1.1356/Договор № 12/04), Программы государственной поддержки ведущих научных школ РФ (грант № НШ-639.2003.2), РФФИ (грант № 04-2-16053) и Программы фундаментальных исследований Президиума РАН «Квантовая макрофизика» (Гос. контракт № 1000-251/П-03/040-348-11054-269, грант № 3 УрО РАН).

## ЛИТЕРАТУРА

1. S. L. Cooper and K. E. Gray, in: *Physical Properties of High Temperature Superconductors IV*, ed. by D. M. Ginsberg, World Scientific, Singapore (1994).
2. Y. Ando, G. S. Boebinger, A. Passner et al., *Phys. Rev. Lett.* **77**, 2065 (1996).
3. O. Laborde, M. Potel, P. Gougeon et al., *Phys. Lett. A* **147**, 525 (1990).
4. T. Kimura, S. Miyasaka, H. Takagi et al., *Phys. Rev. B* **53**, 8733 (1996).
5. Y. F. Yan, P. Matl, J. M. Harris, and N. P. Ong, *Phys. Rev. B* **52**, R751 (1995).
6. G. R. Stewart, *Rev. Mod. Phys.* **73**, 797 (2001).
7. F. Lichtenberg, A. Catana, J. Mannhart, and D. G. Schholm, *Appl. Phys. Lett.* **60**, 1138 (1991).
8. Y. Maeno, H. Hashimoto, K. Yoshida et al., *Nature Lett.* **372**, 532 (1994).
9. Y. Zha, S. L. Cooper, and D. Pines, *Phys. Rev. B* **53**, 8253 (1996).
10. B. A. Aleksashin, I. F. Berger, S. V. Verkhovskii et al, *Physica C* **153–155**, 339 (1988).
11. B. N. Goshichitskii, S. A. Davydov, A. E. Karkin et al., *Physica C* **162–164**, 1019 (1989).
12. Б. А. Алексаши, В. И. Воронин, С. В. Верховский и др., *ЖЭТФ* **95**, 678 (1989).
13. А. Е. Карькин, В. В. Шенников, Б. Н. Гоцицкий и др., *ФТТ* **45**, 2147 (2003).
14. A. P. Mackenzie, S. R. Julian, A. J. Diver et al., *Phys. Rev. Lett.* **76**, 3786 (1996).
15. C. Bergemann, S. R. Julian, A. P. Mackenzie et al., *Phys. Rev. Lett.* **84**, 2662 (2000).
16. S. Hill, J. S. Brooks, Z. Q. Mao, and Y. Maeno, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 3374 (2000).
17. T. Yokoya, A. Chainani, T. Takahashi et al., *Phys. Rev. Lett.* **76**, 3009 (1996).
18. H. Yoshino, K. Murata, N. Shirakawa et al., *J. Phys. Soc. Jpn.* **65**, 1548 (1996).
19. M. A. Tanatar, M. Suzuki, S. Nagai, and T. Ishiguro, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 2649 (2001).
20. V. G. Hildebrand, M. Reedyk, T. Katsufuji, and Y. Tokura, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 227002 (2001).
21. T. Imai, A. W. Hunt, K. R. Thurber, and F. C. Chou, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 3006 (1998).
22. T. Katsufuji, M. Kasai, and Y. Tokura, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 126 (1996).
23. S. Sakita, S. Nimori, Z. Q. Mao, Y. Maeno et al., *Phys. Rev. B* **63**, 134520 (2001).
24. T. Oguchi, *Phys. Rev. B* **51**, 1385 (1995); D. J. Singh, *Phys. Rev. B* **52**, 1358 (1995).

25. A. P. Mackenzie, N. E. Hussey, A. J. Diver et al., *Phys. Rev. B* **54**, 7425 (1996).
26. A. W. Tyler, A. P. Mackenzie, S. Nishizaki, and Y. Maeno, *Phys. Rev. B* **58**, R10107 (1998).
27. N. E. Hussey, A. P. Mackenzie, J. R. Cooper et al., *Phys. Rev. B* **57**, 5505 (1997).
28. R. Jin, Y. Liu, and F. Lichtenberg, *Phys. Rev. B* **60**, 10418 (1999).
29. M. Minakata and Y. Maeno, *Phys. Rev. B* **63**, 180504 (2001).
30. H. C. Montgomery, *J. Appl. Phys.* **42**, 2971 (1971).
31. E. Miranda, V. Dobrosavljevic, and G. Kotliar, *J. Phys.: Condens. Matter* **8**, 9871 (1996).
32. B. Andraka, *Phys. Rev. B* **49**, 3589 (1994).
33. Y. Maeno, K. Yoshida, H. Hashimoto et al., *J. Phys. Soc. Jpn.* **66**, 1405 (1997).
34. S. R. Julian, C. Pfleiderer, F. M. Groshe et al., *J. Phys.: Condens. Matter* **8**, 9675 (1996).
35. Y. Liu, R. Jin, Q. Mao et al., *Phys. Rev. B* **63**, 174435 (2001).
36. H. Berger, L. Forro, and D. Pavuna, *Europhys. Lett.* **41**, 531 (1998).