### 05.4

# Управляемый по величине магниторезистивный эффект в композитах $Y_{3/4}Lu_{1/4}Ba_2Cu_3O_7 + CuO$ при 77 К

# © Д.А. Балаев, К.А. Шайхутдинов, С.И. Попков, М.И. Петров

Институт физики им. Л.В. Киренского СО РАН, Красноярск E-mail:smp@iph.krasn.ru

#### Поступило в Редакцию 28 января 2003 г.

Исследован магниторезистивный эффект в композитах  $Y_{3/4}Lu_{1/4}Ba_2Cu_3O_7+$ +CuO, приготовленных методом быстрого спекания. Установлена зависимость между отношением величин измерительного тока *j* к критическому *j/jc* и видом характеристики  $\rho(H)$ . При *j/jc* < 1 электросопротивление возникает при пороговом значении магнитного поля  $H_c$ . При *j/jc* ≥ 1 путем варьирования содержания CuO в композите (15 ÷ 30 vol.%) и значений *j*(0.003 ÷ 0.2 A/cm<sup>2</sup>) можно получить линейную зависимость  $\rho(H)$  в диапазоне 0 ÷ 14 Oe при 77 K. Чувствительность электросопротивления композитов по магнитному полю  $d\rho/dH$  в этом диапазоне составляет  $\sim 1 \div 20 \text{ m}\Omega \cdot \text{сm/Oe}$ . Величина  $\rho_0 = (\rho(H) - \rho(H = 0))/\rho(H = 0)$  составляет 1320% при H = 200 Oe и 685% при H = 35 Oe. Такие композиты, обладающие магниторезистивным эффектом, перспективны для использования в качестве активных элементов датчиков магнитных полей, работающих при технически удобной температуре жидкого азота.

В работе [1] были приведены предварительные результаты исследования магниторезистивного (МР) эффекта в композитах на основе ВТСП. Такие материалы представляют собой сеть искусственно созданных джозефсоновских переходов, в качестве барьеров между ВТСПкристаллитами выступает несверхпроводящий ингредиент. Композиты демонстрируют значительный МР эффект в широком интервале температур и слабых (до 200 Ое) магнитных полях ниже температуры перехода  $T_c$  сверхпроводника. Это обстоятельство делает возможным применение ВТСП-композитов в качестве датчиков магнитных полей, работающих при технически удобной температуре жидкого азота.

15

МР эффект в чистых ВТСП-керамиках исследовался вскоре после открытия высокотемпературной сверхпроводимости [2-10]. Сильная чувствительность электросопротивления р ВТСП к слабым магнитным полям наблюдается только в очень узком температурном интервале ниже  $T_c$ . Поэтому для получения заметного сигнала при  $T = 77 \, \text{K}$ необходимо использование больших плотностей транспортного тока  $(\sim 10^2 \div 10^3 \,\text{A/cm}^2)$ , что представляет отдельную техническую задачу из-за выделения тепла на токоподводящих контактах к ВТСП) [3,5], и сильных магнитных полей ( $H \sim 10 \div 60 \,\mathrm{kOe}$ ). Более того, полевой гистерезис сопротивления [4,6,7,9-11], а также нелинейность зависимости  $\rho(H)$  [3–7,11] ограничивают круг использования ВТСП-керамик. В данной работе приведены подробные результаты исследования зависимостей  $\rho(H)$  при различных плотностях транспортного тока iкомпозитов на основе иттриевой керамики и оксида меди. Полученные параметры MP эффекта в композитах  $BTC\Pi + CuO$  при T = 77 K позволяют более оптимистично смотреть на практическое использование этих материалов в качестве датчиков магнитных полей.

Приготовление композитных образцов методом быстрого спекания на основе ВТСП  $Y_{3/4}Lu_{1/4}Ba_2Cu_3O_7$  (ниже для обозначения будет использована маркировка YBCO) и оксида меди CuO описано в работах [1,12]. Температурный режим отжига: 2 min при 910°C, затем 3 h при 350°C. Охлаждение от температуры 350°C — вместе с печью. Отсутствие посторонних фаз в композите было подтверждено рентгеноструктурным анализом. Обозначим композиты согласно объемному содержанию CuO в них: YBCO + 15 vol.% CuO и YBCO + 30 vol.% CuO (содержание ВТСП соответственно 85 и 70 vol.%).

Измерения электросопротивления от температуры  $\rho(T)$  и магнитного поля  $\rho(H)$  проводились стандартным четырехзондовым методом. Типичные размеры образца —  $1 \times 2 \times 12$  mm, расстояние между потенциальными контактами ~ 10 mm. Плотность измерительного тока *j* выбиралась в диапазоне  $0.002 \div 0.2$  A/cm<sup>2</sup> (что соответствует току ~  $0.1 \div 10$  mA). Сверхпроводящее состояние ("R = 0") регистрировалось с точностью ~  $10^{-6} \Omega \cdot$  сm. Критический ток *j<sub>c</sub>* определялся из начального участка вольт-амперных характеристик (BAX) по стандартному критерию  $10^{-6}$  V/cm [13]. Магнитное поле прикладывалось перпендикулярно направлению тока. Специальных мер по экранированию поля Земли не предпринималось. Измерения намагниченности *M*(*H*) проводились на вибрационном магнетометре [14].



Рис. 1. Зависимости электросопротивления от магнитного поля композитов YBCO + 15 vol.% CuO (*a*) и YBCO + 30 vol.% CuO (*b*) при T = 77 K. *a*: измерительный ток j = 0.037 A/cm<sup>2</sup> ( $j < j_c$ ) — зависимость 1, j = 0.12 A/cm<sup>2</sup> ( $j \approx j_c$ ) — 2, j = 0.37 A/cm<sup>2</sup> ( $j > j_c$ ) — 3. *b*: j = 0.0032 A/cm<sup>2</sup> — 1, j = 0.032 A/cm<sup>2</sup> — 2.

На рис. 1 приведены экспериментальные зависимости  $\rho(H)$  композитов YBCO + 15 vol.% CuO и YBCO + 30 vol.% CuO, измеренные при различных значениях транспортного тока *j* при *T* = 77 K. Все многообразие зависимостей  $\rho(H)$  условно можно разделить на три области по величине транспортного тока при данной температуре. Если измерительный ток меньше критического  $j < j_c$ , то существует участок, на котором  $\rho \leq 10^{-6}\Omega \cdot \text{сm}$ . Только начиная с некоторой величины  $H_c$  (для образца YBCO + 15 vol.% CuO  $j = 0.12 \text{ A/cm}^2$  и T = 77 K  $H_c \approx 10 \text{ Oe}$ ), для которой значение *j* является критическим, имеет место нелинейная зависимость сопротивления от магнитного поля (кривая *I* на рис. 1, *a*). В случае  $j \approx j_c$  (кривая 2 на рис. 1, *a*) зависимость  $\rho(H)$ начинает возрастать из начала координат. А при  $j > j_c$  (кривая *3* на рис. 1, *a*) магнитосопротивление начинает изменяться с некоторого значения  $\rho(H = 0)$ , и в диапазоне  $0 \div 14$  Oe зависимость  $\rho(H)$  линейна с наклоном  $d\rho/dH \approx 2.5 \text{ m}\Omega \cdot \text{сm}/\text{Oe}$ .

Для образца YBCO + 30 vol.% CuO значение  $j_c$  (77 K) составляет менее 0.001 A/cm<sup>2</sup>. По этой причине зависимости  $\rho(H)$  для этого образца для всех использованных значений j (см. рис. 1, b) подобны зависимости 3 на рис. 1, a. В диапазоне 0 ÷ 14 Ое зависимости  $\rho(H)$  линейны с наклоном  $d\rho/dH \approx 17.5 \text{ m}\Omega \cdot \text{сm/Oe}.$ 

Для исследованных композитов наблюдалось совпадение прямого и обратного хода зависимостей  $\rho(H)$  для всех использованных плотностей транспортного тока в полях  $|H| \leq 37$  Ое. Для значений H, больших этой величины, зависимость  $\rho(H)$  имеет гистерезис (см. рис. 2), на котором приведены зависимости  $\rho(H)$ , и для сопоставления M(H), измеренные на одном и том же образце композита YBCO + 30 vol.% CuO в диапазоне  $-210 \text{ Oe} \leq H \leq 210 \text{ Oe}$ . Отметим, что вид M(H) типичен для ВТСП керамик [11]. Петли  $\rho(H)$  композитов надежно повторяются при многократном циклировании поля до постоянной величины. Термомагнитная предыстория снимается нагреванием образца выше  $T_c$  и охлаждением его в нулевом поле. Из сопоставления зависимостей  $\rho(H)$  и M(H) можно заключить, что сопротивление сложным образом зависит от намагниченности образца.

Измерения  $\rho(H, j)$  при других температурах показали результаты, подобные приведенным на рис. 1, 2. Соотношение транспортного тока к его критическому значению является основным параметром и определяет тип зависимости  $\rho(H)$ . На рис. 3 приведены температурные зависимости плотности критического тока  $j_c(T)$  композитов вблизи  $T_c$ .



**Рис. 2.** Зависимости электросопротивления (a) и намагниченности (b) от магнитного поля композита YBCO + 30 vol.% CuO при T = 77 K. Стрелки показывают направление изменения поля. a — измерительный ток j = 0.0032 A/cm<sup>2</sup>.



**Рис. 3.** Зависимости критического тока композитов YBCO + 15 vol.% CuO (1) и YBCO + 30 vol.% CuO (2).

Исходя из данных рис. 3, выбирая значение плотности транспортного тока j, можно качественно предсказать вид зависимости  $\rho(H)$  сенсора при каждой температуре. В керамиках с "естественными" межгранульными границами значения  $j_c(77 \text{ K})$  достигают  $10 \div 250 \text{ A/cm}^2$  [5,6,15]. Поэтому все три типа: I, 2 и 3 из рис. 1, a для чистых керамик экспериментально реализовать при 77 K технически гораздо сложнее, чем в композитах.

Причина МР эффекта в поликристаллических ВТСП (включая композиты) заключается в том, что эти материалы представляют собой сеть переходов джозефсоновского типа. Границы между ВТСП-кристаллитами являются джозефсоновскими слабыми связями, электросопротивление которых очень чувствительно к магнитным полям [13]. Количество слабых связей на единицу длины образца огромно — составляет величину порядка  $10^3$  на 1 mm (при типичных размерах сверхпроводящих гранул ~  $1.5 \,\mu$ m по данным SEM). Соответственно на эту величину умножается сигнал отклика одного перехода ВТСП–граница–ВТСП. В исследованных композитах оксид меди формирует ди-

электрические прослойки между кристаллитами ВТСП [12]. Объемным содержанием ингредиентов мы можем целенаправленно варьировать "силу" джозефсоновской связи так, чтобы полный сверхпроводящий переход начинался при заданной температуре (в данном случае ~ 80 К для YBCO + 15 vol.% CuO и ~ 76 K для YBCO + 30 vol.% CuO). Тогда при температуре 77 К значительный МР эффект достигается в слабых магнитных полях при низких значениях транспортного тока. Кроме того, CuO можно считать диэлектриком в низких (<100 K) температурах [16], что приводит к росту удельного электросопротивления в нормальном состоянии композитов YBCO + CuO по сравнению с чистыми ВТСП керамиками [12]. Поэтому значения чувствительности по магнитному полю  $d\rho/dH$ , полученные на композитах —  $2 \div 20 \,\mathrm{m\Omega \cdot cm/Oe}$ , по крайней мере, на два порядка больше, чем для ВТСП поликристаллов  $0.01 \div 0.15 \,\mathrm{m}\Omega \cdot \mathrm{cm}/\mathrm{Oe}$  (оцененным из работ [2,3,5,6]).

Важным параметром, характеризующим МР эффект, является величина  $\rho_0 = (\rho(H) - \rho(H = 0)) / \rho(H = 0)$ , характеризующая, во сколько раз увеличилось электросопротивление в поле Н. Ясно, что отсчитанная относительно состояния "R = 0" величина  $ho_0$  будет иметь огромное значение. На практике важен рост электросопротивления относительно некоторого, не слишком низкого значения  $\rho(H=0)$ . Для образца YBCO + 15 vol.% CuO в случае  $j > j_c$  (зависимость 3 на рис. 1, *a*), значение  $\rho_0$  составляет 1320% при  $H = 200 \,\text{Oe}$  и 685% при H = 35 Ое (в обратимой области). Величина  $\rho(H = 0,$  $T = 77 \,\mathrm{K}$ ) при  $j = 0.37 \,\mathrm{A/cm^2}$  составляет  $8 \,\mathrm{m\Omega} \cdot \mathrm{cm}$ . Для композита YBCO + 30 vol.% CuO при  $j = 0.0032 \text{ A/cm}^2$  значение  $\rho_0$  составляет 140% при H = 200 Ое и 78% при H = 35 Ое соответственно;  $\rho(H = 0,$  $T = 77 \,\mathrm{K}) = 725 \,\mathrm{m}\Omega \cdot \mathrm{cm}.$ 

С другой стороны, поведение  $\rho(H)$ , подобное зависимости типа 1 на рис. 1, a, также может быть полезным в устройствах, в которых нужен отклик на пороговое значение магнитного поля  $H_c$ . В работе [5] ВТСП-материал, работающий таким образом, был назван "супермагниторезистор". В композитах путем варьирования объемной концентрации несверхпроводящего ингредиента и плотности транспортного тока мы можем выбрать необходимое для конкретного применения значение  $H_c$ .

Таким образом, зависимость  $\rho(H)$  определяется отношением рабочего (транспортного) тока к критическому  $j/j_c$ . Если  $j/j_c < 1$ , у композита появляется сопротивление при пороговом поле  $H_c$ , если  $j/j_c \ge 1$ , можно подобрать рабочий ток, при котором существует участок с

линейной зависимостью  $\rho(H)$  и высоким значением чувствительности по магнитному полю  $d\rho/dH \sim 1 \div 20 \,\mathrm{m\Omega} \cdot \mathrm{cm/Oe}$ , а величина  $\rho_0$  будет составлять сотни процентов в обратимой области при  $T = 77 \,\mathrm{K}$ . Отклик электросопротивления композитов  $Y_{3/4} \mathrm{Lu}_{1/4} \mathrm{Ba}_2 \mathrm{Cu}_3 \mathrm{O}_7 + \mathrm{CuO}$ (при сравнительно низких значениях  $j \sim 1 \,\mathrm{mA/cm^2}$ ) на 2 порядка больше, чем в чистых ВТСП-поликристаллах. Перечисленные факты говорят о перспективности использования исследованных композитов в качестве активных элементов датчиков магнитных полей, работающих при технически удобной температуре жидкого азота. По крайней мере, в области обратимого MP эффекта ( $|H| \leq 37 \,\mathrm{Oe}$ ) их параметры ( $\rho_0$ ,  $d\rho/dH$ ,  $\rho(H)$ ) не уступают лучшим образцам оксидов марганца [17].

Авторы благодарят А.Ф. Бовину за рентгеноструктурный анализ композитов, А.Д. Балаева за помощь в проведении магнитных измерений и обсуждение результатов, Д.М. Гохфельда за помощь в работе и обсуждение результатов, С.В. Комогорцева за полезные дискуссии.

Работа выполнена при поддержке совместной программы Красноярского краевого фонда науки и РФФИ "Енисей", грант № 02–02– 97711, а также частично СО РАН в рамках Лаврентьевского конкурса молодежных проектов 2002 г.

## Список литературы

- Балаев Д.А., Гохфельд Д.М., Попков С.И. и др. // Письма в ЖТФ. 2001. Т. 27 (22). С. 45–51.
- [2] Dubson M.A., Herbet S.T., Calabrese J.J. et al. // Phys. Rev. Lett. 1988. V. 60. N 11. P. 1061–1064.
- [3] Ohnuma T., Kuroko T., Ishii M. // Proc. of ISEC-89. Tokio, 1989. P. 206-209.
- [4] Shifang S., Yong Z., Guoquiang P. et al. // Europhys. Lett. 1988. V. 6. N 4. P. 359–362.
- [5] Nojima H., Tsuchimoto S., Kataoka S. // Jap. Journ. of Appl. Phys. 1988. V. 27. N 5. P. 746–750.
- [6] Копелевич Я.В., Леманов В.В., Сонин Э.Б. и др. // ФТТ. 1988. Т. 30. В. 8. С. 2432–2436.
- [7] Васютин М.А., Головашкин А.И., Кузьмичев Н.Д. и др. // Препринт 85. Москва, 1990. ФИАН им. П.Н. Лебедева.
- [8] Wright A.C., Zhang K., Erbil A. // Phys. Rev. B. 1991. V. 44. N 2. P. 863-866.
- [9] Mitin A.V. // Physica C. 1994. V. 235–240. P. 3311–3312.
- [10] Митин А.В. // СФХТ. 1994. Т. 7. № 1. С. 62–79.

- [11] Кузьмичев Н.Д. // Письма в ЖТФ. 2001. Т. 74. В. 5. С. 291–295.
- [12] Petrov M.I., Balaev D.A., Shaihutdinov K.A. et al. // Supercond. Sci. Technol. 2001. V. 14. P. 798–805.
- [13] Бароне А., Патерно Дж. // Физика и применение эффекта Джозефсона. М.: Мир, 1984. 639 с.
- [14] Балаев А.Д., Бояршинов Ю.В., Карпенко М.М. и др. // ПТЭ. 1985. Т. 3. С. 167–168.
- [15] Petrov M.I., Balaev D.A., Khrustalev B.P. et al. // Physica C. 1994. V. 235–240.
  P. 3043–3044.
- [16] Гижевский Б.А., Самохвалов А.А., Чеботаев Н.М. и др. // СФХТ. 1991. Т. 4. № 4. С. 827–830.
- [17] Нагаев Э.Л. // УФН. 1996. Т. 166. № 8. С. 833–858.