

СИНГУЛЯРНОСТИ КОМПЛЕКСНОЙ МАГНИТНОЙ ВОСПРИИМЧИВОСТИ $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ В НУЛЕВОМ И ЗАМОРОЖЕННОМ МАГНИТНЫХ ПОЛЯХ

© В.Г.Флейшер, Ю.П.Степанов, К.Б.Трайто, М.Г.Семенченко

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,
194021 Санкт-Петербург, Россия
(Поступила в Редакцию 29 декабря 1995 г.)

Аномальное увеличение экранирования и падение ВЧ-потерь энергии с ростом постоянного поля в окрестности нулевого поля (< 1 Ое) сравниваются для двух наборов частиц, приготовленных измельчением стандартных керамических образцов (тип А) и низкотемпературным (850°C) синтезом (тип В). Этот эффект в случае образцов типа А наблюдается в широком интервале температур, в то время как в случае образцов типа В характерно его затухание в области низких температур. Предложена модель подавления постоянным полем ВЧ-переходов в системе вихрей, спонтанно возникающих на дефектах. Различие дефектов (поверхностные в случае А и объемные в случае В) определяет характер температурных зависимостей. Обнаруженная в окрестности замороженного поля в образцах В узкая «нормальная» линия трактуется на основе известных свойств сетки сверхпроводящих нитей, включающей слабые связи.

В ряде работ, посвященных изучению нерезонансного магнитозависимого поглощения энергии переменного поля в ВТСП, в узком диапазоне полей (< 1 Ое) вблизи нулевого поля наблюдалась аномальная сингулярность (см. например, [1-5]). Этот эффект заключается, в частности, в парадоксальном уменьшении потерь энергии переменного поля с ростом постоянного поля. В последнее время аномальная линия поглощения привлекла внимание в связи с ее объяснением вкладом π -контактов.

Возможность доказательства существования джозефсоновских π -контактов, обеспечивающих наличие спонтанных орбитальных мометнов, приобрела особую актуальность в связи с обнаружением парамагнитного эффекта Мейснера [3] и теорией d -спаривания [6]. Так, в частности, возникновение джозефсоновского контакта на двойниковой границе в случае d -спаривания должно приводить к сдвигу фазы тока через контакт на $\pm\pi$ [7]. Другой механизм возникновения π -контактов, предложенный в работе [8], объясняет сдвиг фазы на $\pm\pi$ наличием парамагнитных примесей в контакте. В [5] была продемонстрирована корреляция аномального поглощения с содержанием кислорода x . Аномальное поглощение наблюдалось только в образцах, в которых регистрировался также ЭПР-сигнал, отнесенный к вкладу ионов Cu^{2+} в $\text{Cu}(\text{I})\text{O}$ -цепях базальной плоскости кислородно-дефицитных образцов.

При всей привлекательности объяснения аномального поглощения вкладом π -контактов следует искать альтернативные объяснения, поскольку проблема приобретает принципиальный характер, в то время как факт наблюдения подобных эффектов и в экспериментах с низкотемпературными сверхпроводниками не обсуждается. Ссылки на такие эксперименты можно найти, например, в работе [9]. Следует отметить, что и тогда аномальное поглощение не нашло адекватного объяснения. Среди альтернативных гипотез можно отметить, например, гипотезу о вкладе состояний вблизи поверхности Ферми, возникающих в узком интервале магнитных полей и увеличивающих поверхностную проводимость нормальных электронов [9].

Таким образом, выяснение специфики аномального поглощения в ВТСП, его связи с особенностями структуры и внешних условий, а также анализ возможности однозначной трактовки экспериментальных результатов на основе модели джозефсоновских контактов делают весьма актуальным дальнейшее экспериментальное исследование этого нетривиального эффекта. В частности, сравнение различных экспериментальных ситуаций должно дать ответ на вопрос об универсальности физической природы аномального поглощения в высоко- и низкотемпературных сверхпроводниках.

Далее мы приводим результаты исследования комплексной магнитной восприимчивости $\chi = \chi' - i\chi''$ микронных и субмикронных частиц $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$, полученных по различной технологии и демонстрирующих резкое различие проявлений как аномального, так и нормального поглощений.

1. Образцы и методика эксперимента

Эксперименты проводились на двух существенно различных наборах образцов.

Образцы типа *A* были приготовлены путем размалывания керамических образцов, синтезированных по стандартной технологии при температуре 940°C . Поликристаллические частицы с характерным размером $5\text{--}10\ \mu\text{m}$ после размалывания исходного материала отжигались в атмосфере кислорода при температуре 750°C в течение $20\ \text{h}$ для уменьшения роли кислородного дефицита, образующегося в процессе приготовления порошка.

Образцы типа *B* были получены методом низкотемпературного (850°C) синтеза на основе золь-гельной технологии с последующим стандартным насыщением кислородом. Золь-гельная технология обеспечивает соблюдение локальной стехиометрии в исходной смеси, а низкотемпературный синтез — отсутствие спекания и возможность получения субмикронных частиц YBaCuO . Однако, несмотря на насыщение кислородом до значений, соответствующих стандартной, полностью синтезированной уже после $5\ \text{h}$ сверхпроводящей фазе (по данным рентгеновского анализа), фаза 1–2–3 оказывается тетрагональной и несверхпроводящей (так называемая *X*-фаза). Сохранение тетрафазы объясняется беспорядком в кислородной подсистеме базальной Cu(I)O -плоскости. Сохранение беспорядка при больших значениях x ($x > 0.85$) обусловлено влиянием O-O -связей из-за конечной вероятности образования пероксида при низкой температуре синтеза. Увеличение времени синтеза t_s сопровождается постепенным распадом пер-

оксида, упорядочением кислорода в цепях и переходом в сверхпроводящую фазу. Начало задержанного тетра-ортоперехода соответствует $t_s \approx 10$ h. Переход практически завершается для $t_s \geq 20$ h.

Далее приводятся данные для образцов группы В, полученных при $t_s = 15$ h и соответствующих промежуточной стадии тетра-ортоперехода.

Модель частиц в образцах В соответствует перколяционной среде сверхпроводящих кластеров, в то время как образцы А состоят из частиц гранулированного сверхпроводника.

В отличие от подавляющего большинства работ, в которых изучалась рассматриваемая аномалия, где исследовалось только поглощение в микроволновой области, мы изучали как поглощение $\chi''(H)$, так и экранирование $\chi'(H)$ переменного поля. Для этого использовался автодинный генератор, в катушку индуктивности L которого помещался исследуемый образец. Автодинный генератор работал в режиме постоянной амплитуды колебаний, что позволило разделить вклады нелинейности образца и магнитного поля в наблюдаемые эффекты. Выходным сигналом такого генератора является напряжение U_c обратной связи, стабилизирующей амплитуду. $U_c = U_c(\sigma)$, где σ — активная составляющая проводимости контура генератора, зависящая от χ'' помещенного в контур образца. Экранирование χ' в свою очередь влияет на частоту колебаний генератора. Экспериментально измерялись сдвиги частоты колебаний и изменения U_c , вызванные магнитным полем. Частота генератора изменялась в пределах 9–20 МГц. Рассмотрим зависимости относительного сдвига частоты $\delta f = \Delta f/f$ и абсолютного изменения проводимости $\Delta\sigma$ от изменений $\Delta\chi'$ и $\Delta\chi''$ соответственно.

Сдвиг частоты вызывается изменением индуктивности L катушки с образцом. При этом $\delta f = \delta L/2$, где $\delta L = (L - L_0)/L_0$ — относительное изменение индуктивности, L_0 — индуктивность пустой катушки, L — индуктивность катушки с образцом. Как нетрудно показать (см., например, [10]), δL равно отношению усредненных по времени энергий образца и пустой катушки

$$\delta L = 8\pi \langle M H_1 \rangle / (V H_1^2).$$

Здесь M — магнитный момент образца, H_1 — амплитуда ВЧ-поля, V — эффективный объем катушки. Учитывая, что и $\langle M H_1 \rangle = \chi' H_1^2/2$, получим для δf

$$\delta f = 2\pi \Delta\chi'(v/V),$$

где v — суммарный объем частиц. Поскольку в общем случае наблюдается нелинейная зависимость $M(H_1)$, под χ' следует понимать некоторый эффективный параметр, характеризующий экранирование.

Изменение напряжения обратной связи ΔU_c связано с магнитозависимым изменением активной проводимости контура $\Delta\sigma$ калибровочной зависимостью $U_c(\sigma)$. Обычно использовался режим генератора в области приближительной линейности функции $U_c(\sigma)$. Для $\Delta\sigma$ имеем

$$\Delta\sigma = 2\Delta P/H_1^2 = (H_1^2/U_1^2)\Delta\chi'',$$

где U_1 — амплитуда напряжения на контуре с образцом.

В дальнейшем мы приводим экспериментально определяемые величины $\delta f(H)$ и $\Delta\sigma(H)$, полагая в линейном приближении $\delta f(H) \propto \Delta\chi'(H)$ и $\Delta\sigma(H) \propto \Delta\chi''(H)$.

Характерные величины δf , соответствующие помещению образца (~ 55 мг) в контур генератора при 30 К и $H = 0$, составляют примерно 10^{-1} для образцов типа А и 10^{-2} для образцов типа В. Изменение H в диапазоне до 200 Ое сопровождается полным относительным сдвигом частоты δf порядка $2 \cdot 10^{-3} - 5 \cdot 10^{-3}$ ($T = 30$ К). Сдвиги $\delta f_s(H)$ в области сингулярности χ измерялись в диапазоне $10^{-6} - 3 \cdot 10^{-4}$ в зависимости от температуры. Стабильность генератора обеспечивала возможность регистрации частотных сдвигов δf с точностью до 10^{-6} .

2. Результаты эксперимента

Рис. 1 иллюстрирует эффект «аномального» увеличения экранирования (а) и снижения потерь (б) с ростом постоянного магнитного поля $H \parallel H_1$ для одного из образцов типа А (размолотая керамика) при различных амплитудах поля H_1 в катушке L колебательного контура генератора. Как видно из приведенных данных, увеличение H_1 незначительно снижает интенсивность линии $\delta f(H) \propto \Delta\chi'$ и расширяет ее. При этом аномальная линия $\Delta\sigma(H) \propto \Delta\chi''$ заметно увеличивается с ростом H_1 . На рис. 1, а приведена также зависимость $\delta f(H)$ для взаимно перпендикулярной ориентации полей H и H_1 (кривая 4) при $H_1 \approx 0.2$ Ое. Как видно, в этой геометрии эффект значительно меньше, чем при $H \parallel H_1$.

Эффект аномального экранирования и поглощения нарастает с понижением температуры. Это нарастание замедляется в области низких температур, как показано на рис. 2, где представлены максимальные изменения $\delta f_a(H)$ и $\Delta\sigma_a(H)$, определяемые по экстремумам соответствующих линий при различных температурах.

Существенно отличное поведение сингулярностей χ с температурой наблюдается в экспериментах с образцами типа В (низкотемператур-

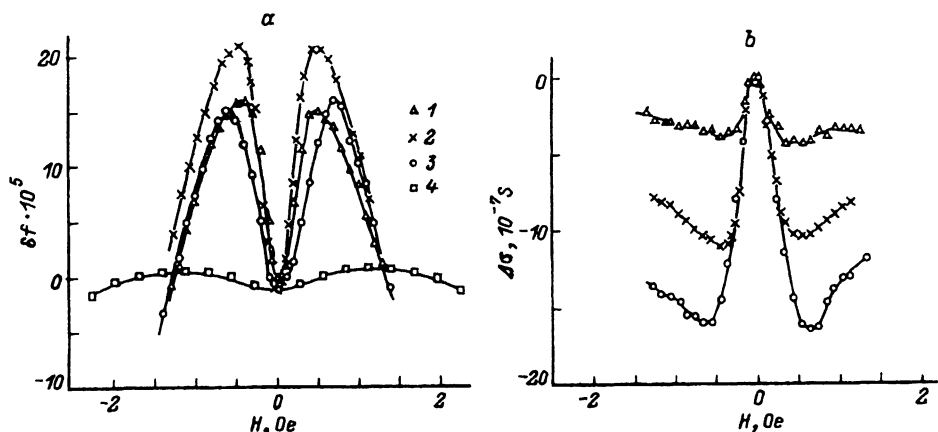


Рис. 1. Линии аномального экранирования $\delta f(H)$ (а) и поглощения $\Delta\sigma(H)$ (б) для образца А при $T = 32$ К и $U_1 = 30$ (1), 100 (2), 300 мВ (3), H_1 (Ое): 1 — ≈ 0.02 , 2 — 0.065, 3 — 0.2, $H \parallel H_1$. 4 — аномальное экранирование $\delta f(H)$ при $H \perp H_1$, $H_1 = 0.2$ Ое.

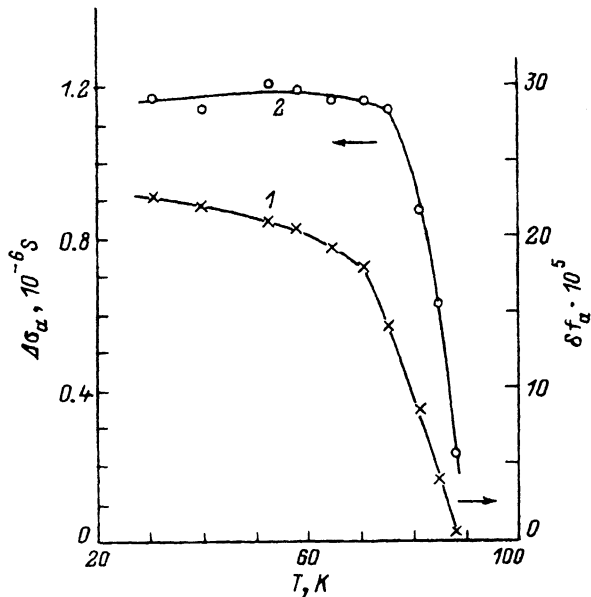


Рис. 2. Температурные зависимости максимальных аномальных отклонений $\delta f_a(H)$ (1) и $\Delta\sigma_a(H)$ (2) при $H_1 = 0.065$ Ое для образца А.

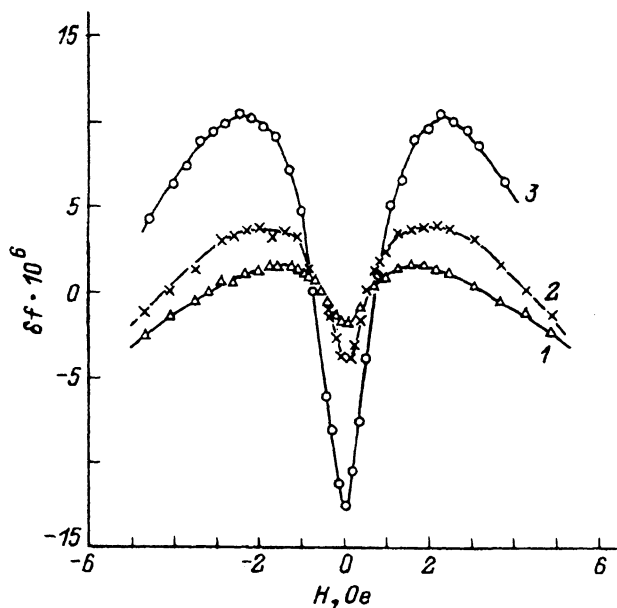


Рис. 3. Линии аномального экранирования для образца В при $T = 82.5$ (1), 80 (2) и 71 К (3). $H_1 = 0.065$ Ое.

ный синтез). В этом случае аномальные изменения χ с полем в окрестности нулевого поля наблюдаются только в ограниченном диапазоне температур ниже T_c . Эффект максимален при 65–70 К и исчезает в области низких температур.

Рис. 3 иллюстрирует нарастание аномальной линии $\delta f_a(H)$ при понижении температуры. При регистрации эффекта вблизи порога при $T = 82.5$ и 80 К была реализована точность измерения δf лучше 10^{-6} .

При $T < 65$ К $\delta f_a(H)$ уменьшается, становится практически незаметной при $T \approx 45$ –50 К, а затем инвертируется с дальнейшим понижением температуры, превращаясь в узкую линию, но с «нормальной» зависимостью $\Delta\chi'$ от H .

На рис. 4 сравниваются зависимости $\delta f(H)$ при $T = 66$ и 30 К, наглядно иллюстрирующие качественное изменение влияния постоянного поля при изменении температуры. Более широкий диапазон изменения H по сравнению с предыдущими рисунками дает представление о масштабе сингулярностей на фоне хорошо известного по магнитозависимому поглощению влияния магнитного поля на χ .

Эффект инверсии, представленный на рис. 4, в действительности оказывается результатом наложения двух различных по физической природе сингулярностей, приводящих к противоположным по знаку изменениям $\delta f(H)$. Прямое экспериментальное доказательство этого утверждения можно получить с помощью «замороженного» поля, используя процедуру ФС-охлаждения в полях $H_{fc} \geq 2$ Ое.

На рис. 5 представлены результаты таких экспериментов, выполненных при температурах 56 (кривая 1) и 30 К (кривая 2), после охлаждения до этих температур в поле 6.8 Ое. Этот рисунок отчетливо демонстрирует наличие двух линий: «нормальной» в окрестности «замороженного» поля и «аномальной» в окрестности нулевого поля при 56 К. Зависимости $\delta f(H)$ получены при сканировании поля H от $H = H_{fc}$ в сторону больших полей, а затем в обратном направлении в окрестность нулевого поля. При обратном проходе величина $\delta f(H)$ при $H = H_{fc}$ оказывается меньше начальной $\delta f(H)$. При 30 К линия, соответствующая аномальному экранированию, не наблюдается.

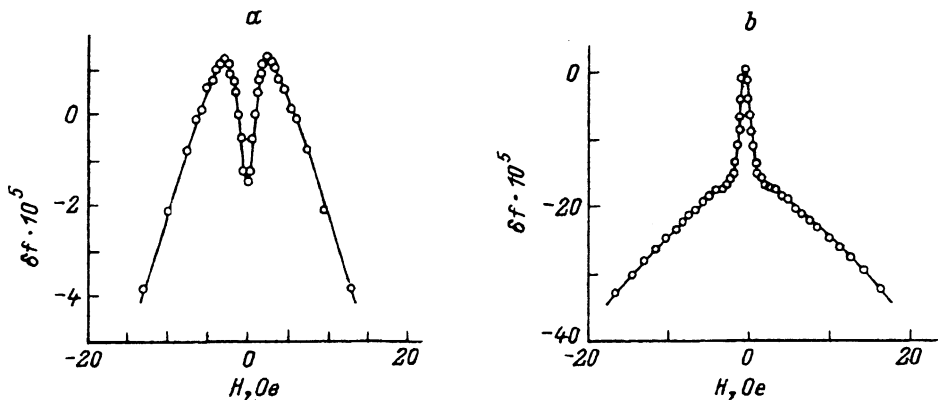


Рис. 4. Температурная инверсия узкой линии $\delta f(H)$ в окрестности нулевого поля.

a — аномальная линия при 66 К, *b* — нормальная линия при 30 К. $H_1 = 0.065$ Ое.

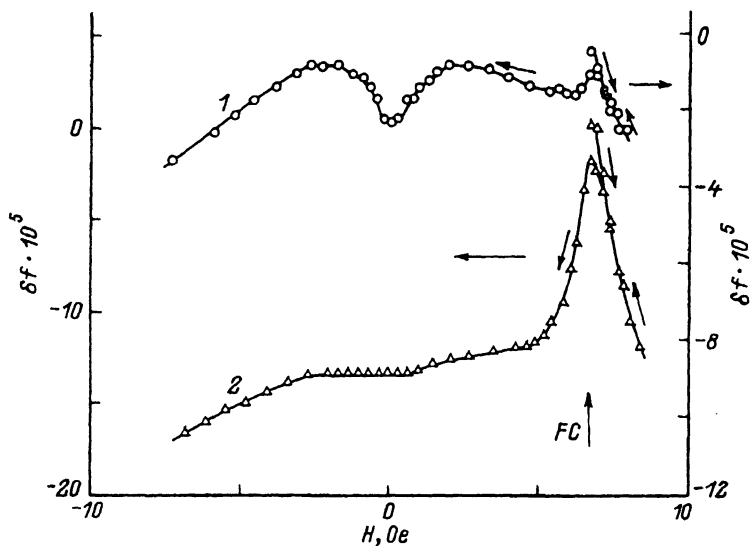


Рис. 5. Разделение линий аномального и нормального (в окрестности замороженного поля) экранирования в образце *B* при процедуре FC в поле 6.8 Oe при $T = 56$ (1) и 30 K (2). $H_1 = 0.065$ Oe.

Таким образом, в экспериментах с образцами типа *B* наблюдаются две различные по физической природе сингулярности, одна из которых движется вместе с «замораживаемым» полем, а вторая жестко связана с нулевым полем. И только в случае охлаждения в нулевом поле (ZFC) обе линии накладываются друг на друга. Поскольку «аномальная» сингулярность затухает с понижением T в области низких температур, а «нормальная», наоборот, нарастает, их суперпозиция при процедуре ZFC приводит к инверсии узкой линии в нулевом поле (рис. 4).

Следует также обратить внимание на большую ширину «аномальной» линии, наблюдаемой в случае образцов типа *B*, по сравнению с приведенными выше данными для образцов *A*.

3. Обсуждение результатов

Существующие модели механизмов аномального поглощения основаны на представлении сверхпроводника сеткой слабых связей, соединяющих сверхпроводящие блоки.

Популярная в настоящее время модель петли с π -контактом [7] дает для ширины линии величину порядка $(\Phi_0/\pi S)(\beta - 1)$, где $\beta = 2\pi L|I_c|/\Phi_0 > 1$ соответствует гистерезисному режиму, обеспечивающему появление спонтанной намагниченности и максимум потерь в нулевом поле. Здесь L — индуктивность контура и I_c — критический ток контакта. Фактически, в этой модели роль постоянного поля сводится к подавлению индуцируемых переменным полем переворотов спонтанной намагниченности между двумя устойчивыми состояниями. Аналогичный эффект переворота вихрей, спонтанно возникающих в петлях с π -контактом, рассматривался при исследовании магнитной релаксации в постоянном магнитном поле [11]. Особая привлекательность

этой модели связана с объяснением парамагнитного эффекта Мейснера наличием орбитальных токов в нулевом поле [3].

Однако эта модель не объясняет некоторых особенностей в ходе температурных зависимостей рассматриваемых эффектов. Так, например, она не объясняет затухания аномальных линий при низких температурах, наблюдавшегося как ранее [12], так и в наших экспериментах с образцом *B*. Тем не менее, относя эффекты аномального экранирования и аномальной диссипации к проявлению спонтанно возникающих вихрей, мы рассмотрим общую постановку вопроса о влиянии постоянного поля как фактора, эквивалентного пиннингу. Очевидно, что в области малых полей $H < H_{c1}$ внешнее поле не создает новых вихрей, но может препятствовать движению спонтанно возникших вихрей. Это приводит к снижению диссипации энергии в переменном поле.

При этом мы полагаем, что причиной возникновения спонтанных вихрей в нулевом поле могут быть не только π -контакты. Как показано в [13], локальные деформации приводят к локальным нарушениям симметрии относительно инверсии времени и появлению пар вихрь-антивихрь. В этих условиях магнитный поток вихрей-антивихрей определяется величиной деформации и может отличаться от квантованных значений. Естественно предположить наличие деформаций как в образцах типа *A*, где дислокации и дефекты возникают в результате механической обработки, так и в образцах типа *B*, где локальные деформации возникают в результате затрудненного упорядочения кислорода. Очевидно, что различие источников деформаций, приводящих к возникновению спонтанных вихрей и антивихрей, будет определять и различие характеристик их пиннинга. Мы предполагаем, что при определенных условиях пиннинг не препятствует изменению ориентации вихрей в переменном магнитном поле. В то же время включение постоянного поля затрудняет такие ориентационные переходы, что и приводит к появлению аномальных линий поглощения и экранирования. Можно представить два различных случая.

1) Случай изотропного пиннинга. Этому случаю соответствуют короткие вихри на точечных дефектах. Такие вихри могут совершать ориентационные переходы при любых температурах, и эффект отсутствует только при высоких температурах, когда происходит депиннинг.

2) Наличие многоямного потенциала пиннинга, соответствующего различным ориентациям вихря. Такому потенциалу соответствуют протяженные участки пиннинга, например, на линейных дефектах или на многочисленных точечных дефектах. В этом случае аномальные линии, обусловленные переориентацией вихрей, не будут наблюдаться при низких температурах из-за вымораживания вихрей в одной из ориентаций, а при высоких — из-за депиннинга. Наблюдение аномальных линий только в промежуточной области температур соответствует случаю, когда отношение тепловой энергии $k_B T$ к величине энергетического барьера между состояниями с различной ориентацией порядка единицы. Эта ситуация подобна стохастическому резонансу в суперпарамагнитных частицах [14], который происходит в диапазоне тепловых энергий, сопоставимых с энергией анизотропии ориентации магнитных моментов.

Поскольку для образцов типа *A* измеренная величина $\chi' \approx -1/4\pi$ (т.е. близка к полному экранированию), глубина проникновения пе-

ременного поля много меньше характерного размера частиц, в интерпретации аномальных линий следует учитывать преобладающий вклад поверхности. Мы относим случай изотропного пиннинга к образцам типа *A*, предполагая, что центрами пиннинга служат поверхностные дефекты, возникающие при механической обработке.

В то же время в образцах типа *B* с высокой концентрацией дефектов, обусловленных неупорядоченным кислородом, естественно предположить преобладание объемного пиннинга, соответствующего многомяному потенциалу. Наличие энергетических барьеров между состояниями с различной ориентацией вихрей затрудняет ее изменение под действием переменного поля в области низких температур. Этот эффект замораживания ориентации нивелирует действие постоянного поля, приводя к исчезновению аномальных линий при низких температурах.

Рассмотренный механизм естественным образом объясняет резкое уменьшение интенсивности аномальных линий при взаимно перпендикулярной ориентации постоянного и переменного полей. В этом случае подавление ориентационных переходов постоянным полем оказывается менее выраженным.

В образцах типа *B* с не полностью упорядоченным кислородом можно ожидать существенного вклада слабых связей. В этом случае можно также ожидать особенностей, присущих модели спинового стекла. Как было показано в [3], сетка сверхпроводящих проволок в магнитном поле переходит в состояние спинового стекла при некоторой температуре $T_{cc} < T_{co}$. Причем T_{cc} может быть существенно меньше T_{co} . Например, результаты работы [15] соответствуют реализации модели спинового стекла только при $T < 45$ К. Фазовая когерентность волновой функции будет сопровождаться увеличенным экранированием и уменьшенными потерями. Разрушение этой когерентности уже в слабом поле может объяснить «нормальную» сингулярность χ в замороженном поле. Действительно, поле в контакте и его берегах одинаково после FC-процедуры. Изменение же внешнего поля после охлаждения изменяет фазы тока в контактах. Снижение высоты «замороженной» линии при повторных ее прохождениях после изменения внешнего поля и появление этой сингулярности в области низких температур $T \leq 50$ К делают вероятным объяснение ее природы на основе модели спинового стекла.

Следует отметить, что модель одиночных несвязанных джозефсоновских контуров также может объяснить «нормальные» линии в замороженном поле падением критического тока контактов при отклонении внешнего поля от замороженного [16]. Однако эта модель не объясняет наличия низкотемпературного порога возникновения «нормальной» сингулярности.

Таким образом, уменьшение диссипации энергии переменного поля и усиление его экранирования с ростом постоянного магнитного поля в окрестности нулевого поля объясняются затруднением ориентационных переходов вихрей, спонтанно возникающих на структурных дефектах. Дефекты различной природы в объеме (образцы *B*) и на поверхности (образцы *A*) сверхпроводника определяют характер температурных зависимостей аномальных линий. Узкая «нормальная» линия в окрестности замороженного поля в образцах типа *B* трактуется на основании модели сверхпроводящего стекла.

Работа поддержана Российским фондом фундаментальных исследований (проект № 95-02-04101) и частично Научным советом по проблеме ВТСП (проект № 93108).

Список литературы

- [1] Афанасьев М.М., Блинов Е.В., Власенко Л.С., Власенко М.П., Степанов Ю.П., Флейшер В.Г. Письма в ЖЭТФ **51**, 10, 529 (1990)
- [2] Harris E.A., Loftus D.J., McLeich T.C.B., Ward P.J. Supercond. Sci. Technol. **4**, 359 (1991).
- [3] Braunisch W., Knauf N., Kataev V., Neuhausen S., Gruitz A., Kock A., Roden B., Khomskii D., Wohleben D. Phys. Rev. Lett. **68**, 1908 (1992).
- [4] Катаев В., Кнауф Н., Брауних В., Мюллер Р., Боровский Р., Роден Б., Хомский Д. Письма в ЖЭТФ **58**, 8, 656 (1993).
- [5] Bhat S.V., Rastogi A., Kumar N., Nagarajan R., Rao C.N.R. Physica **C219**, 87 (1994).
- [6] Annet J., Goldenfeld N., Reun S.R. Phys. Rev. **B43**, 2778 (1991).
- [7] Sigrist H., Rice T.M. J. Phys. Soc. Jpn. **61**, 4283 (1992).
- [8] Булаевский Л.Н., Кузий В.В., Собянин А.А. Письма в ЖЭТФ **25**, 314 (1977).
- [9] Говорков С.А., Тулин В.А. ЖЭТФ **70**, 3, 1044 (1976).
- [10] Mikheenko P.N., Kuzovlev Yu.E. Physica **C204**, 229 (1993).
- [11] Magnusson J., Andersson J.-O., Bjornander M., Nordblad P., Svedlindh P. Phys. Rev. **B51**, 18, 12776 (1995).
- [12] Karim R., How H., Seed R., Widom A., Vittoria C., Balestrino G., Paroli P. Solid State Commun. **71**, 11, 983 (1989).
- [13] Kuklov A.V. Phys. Rev. **B52**, 10, R7002 (1995).
- [14] Raikher Yu.L., Stepanov V.I. Phys. Rev. **B52**, 5, 3493 (1995).
- [15] Винокур М.В., Иоффе Л.Б., Ларкин А.И., Фейгельман М.В. ЖЭТФ **93**, 343 (1987).
- [16] Блинов Е.В., Совин Э.Б., Таганцев А.К., Трайто К.Б. СФХТ **4**, 3, 501 (1991).