

Вольт-амперные характеристики пенообразного высокотемпературного сверхпроводника $\text{Bi}_{1.8}\text{Pb}_{0.3}\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ с фрактальной кластерной структурой

© Д.А. Балаев*, И.Л. Белозерова**, Д.М. Гохфельд*, Л.В. Кашкина***, Ю.И. Кузьмин****, К.Р. Мигель*****, М.И. Петров*, С.И. Попков****, К.А. Шайхутдинов*

* Институт физики им. Л.В. Киренского Сибирского отделения Российской академии наук, 660036 Красноярск, Россия

** Сибирский государственный аэрокосмический университет им. М.Ф. Решетнева, 660014 Красноярск, Россия

*** Красноярский государственный университет, 660041 Красноярск, Россия

**** Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук, 194021 Санкт-Петербург, Россия

***** CUCEI Universidad de Guadalajara, 44430 Guadalajara, Jalisco, Mexico

E-mail: smp@iph.krasn.ru, yurk@mail.ioffe.ru

(Поступила в Редакцию 28 апреля 2005 г.)

Изучено влияние структуры на критические токи и вольт-амперные характеристики пенообразных поликристаллических сверхпроводников на основе висмута. Обнаружена фрактальная кластерная структура сверхпроводящих пен и определена фрактальная размерность границ раздела между нормальной и сверхпроводящей фазами. Изучены магнитные и транспортные свойства, а также получены вольт-амперные характеристики сверхпроводящих пен в широком диапазоне токов. Рассмотрено влияние перколяционных эффектов на пиннинг вихрей в пенообразном сверхпроводнике. Показано, что вольт-амперные характеристики сверхпроводящих пен на начальной стадии резистивного перехода хорошо описываются моделью, в которой происходит захват магнитного потока в фрактальных кластерах нормальной фазы.

Работа выполнена при частичной поддержке президентской программы для молодых ученых и ведущих научных школ (грант МК 1682.2004.2), Красноярского краевого фонда науки (грант № 12F0033С) и научной программы Санкт-Петербургского научного центра РАН.

PACS: 74.72.Hs, 74.81Bd, 74.25.Fy, 61.43.Hv

1. Введение

Недавно открытые сверхпроводящие пены [1,2] являются сверхпроводящими материалами нового типа, которые обладают интересными физическими свойствами [3–5]. Сверхпроводник с пенообразной структурой представляет собой перколяционную систему, в которой существуют бесконечный сверхпроводящий кластер, поддерживающий протекание транспортного тока, и поры различной геометрии (открытые и закрытые). Поры также формируют кластеры. В определенном диапазоне плотностей материала перколяционный сверхпроводящий кластер может сосуществовать с перколяционным кластером открытых пор. Подобная система представляет собой интересный пример полихроматической перколяции [6], когда одновременно происходят перколяция электрического тока по сверхпроводящему кластеру и перколяция магнитного потока, проникающего в кластер пор. При изучении магнитных и транспортных свойств сверхпроводящих пен актуален вопрос о влиянии топологии перколяционного кластера, представляющего собой многосвязную сверхпроводящую область, на пиннинг и транспорт вихрей. С практической точки зрения важной особенностью сверхпроводящей пены является

высокая удельная площадь поверхности сверхпроводника, обеспечивающая эффективный теплоотвод за счет проникновения хладагента (жидкого азота или гелия) в открытые поры. Вследствие этого, а также из-за еще не выясненных до конца особенностей пиннинга и транспорта вихрей [4,5] пенообразные высокотемпературные сверхпроводники (ВТСП) имеют высокие значения критических токов намагничивания, что делает эти материалы перспективными для практического применения.

2. Фрактальная структура сверхпроводящих пен

Образцы $\text{Bi}_{1.8}\text{Pb}_{0.3}\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ (BPSCCO) низкой плотности были приготовлены методом твердофазного синтеза. Продолжительность синтеза составляла порядка 400 h. Была использована технология, аналогичная технологии синтеза висмутовой керамики, описанной в работе [7], но с измененным режимом конечного отжига, обеспечивающим преимущественный рост сверхпроводящих микрокристаллитов в ab -плоскости. Из-за хаотичной ориентации кристаллитов такой рост приводит к увеличению объема материала. Особенностью синтеза являлось также и то, что в прекурсор с дефицитом

кальция был добавлен карбонат кальция, окончательное разложение которого происходило во время финального отжига. Избыточное давление углекислого газа при этом также способствовало увеличению объема образца.

Микрофотографии трех естественных сколов пенообразного BPSCCO, полученные при помощи сканирующего электронного микроскопа (SEM), представлены на рис. 1. Подобный вид имели SEM-фотографии большого числа естественных сколов различных образцов. Плотность полученного материала равна 2.26 g/cm^3 , что составляет 38% от теоретической плотности для монолитной керамики BPSCCO. Объемное содержание сверхпроводящей фазы превосходило порог протекания, обеспечивая существование достаточно плотного перколяционного кластера. Из-за пластинчатой формы микрокристаллитов BPSCCO сверхпроводящая пена на основе висмута имеет специфическую хлопьеобразную структуру, значительно более разветвленную по сравнению с пенами на основе YBCO (см. фотографии в работах [2,4]). Результаты SEM, приведенные на рис. 1, подтверждают существование в сверхпроводящей пене BPSCCO трехмерного перколяционного сверхпроводящего кластера. Возможные траектории протекания тока показаны на рис. 1, *b*. Сверхпроводящий кластер образован конгломератом хаотически ориентированных микрокристаллитов BPSCCO, которые имеют форму пластинок шириной $10\text{--}20 \mu\text{m}$ и толщиной $1\text{--}2 \mu\text{m}$. На рис. 1 также отчетливо видны поры между скоплениями кристаллитов.

Вследствие сильной разветвленности поверхности раздела между сверхпроводящей и нормальной фазами (рис. 1) в сверхпроводящих пенах можно ожидать наличия фрактальных кластеров. В ходе анализа микрофотографий действительно была обнаружена фрактальная кластерная структура пенообразных сверхпроводников. Для определения фрактальной размерности границ кластеров нормальной фазы был использован метод покрытия квадратами границ сечений этих кластеров, которые видны на электронных микрофотографиях.

Изображения сколов сверхпроводящей пены (рис. 1), полученные в результате сканирования SEM-микрофотографий, покрывались квадратными сетками с ячейками размером $L \times L$. Размеры ячеек были достаточно малыми (величина L лежала в диапазоне от 75 до 1200 nm) для того, чтобы обмерить все изломы границ микрокристаллитов. Если фрактальная кривая (фрагмент границы сечения кластера плоскостью фотографии) полностью умещается в квадрате со стороной L_{max} , то каждое из $N(L)$ самоподобных подмножеств этой кривой поместится в квадрате со стороной $L = L_{\text{max}}/r$, где r — масштабный множитель [8]. Минимальное число квадратов со стороной L , охватывающее исследуемый фрагмент границы, равно

$$N(L) = r^D = \left(\frac{L_{\text{max}}}{L}\right)^D \propto L^{-D}, \quad (1)$$

где D — фрактальная размерность [8]. Отсюда следует формула для определения фрактальной размерности

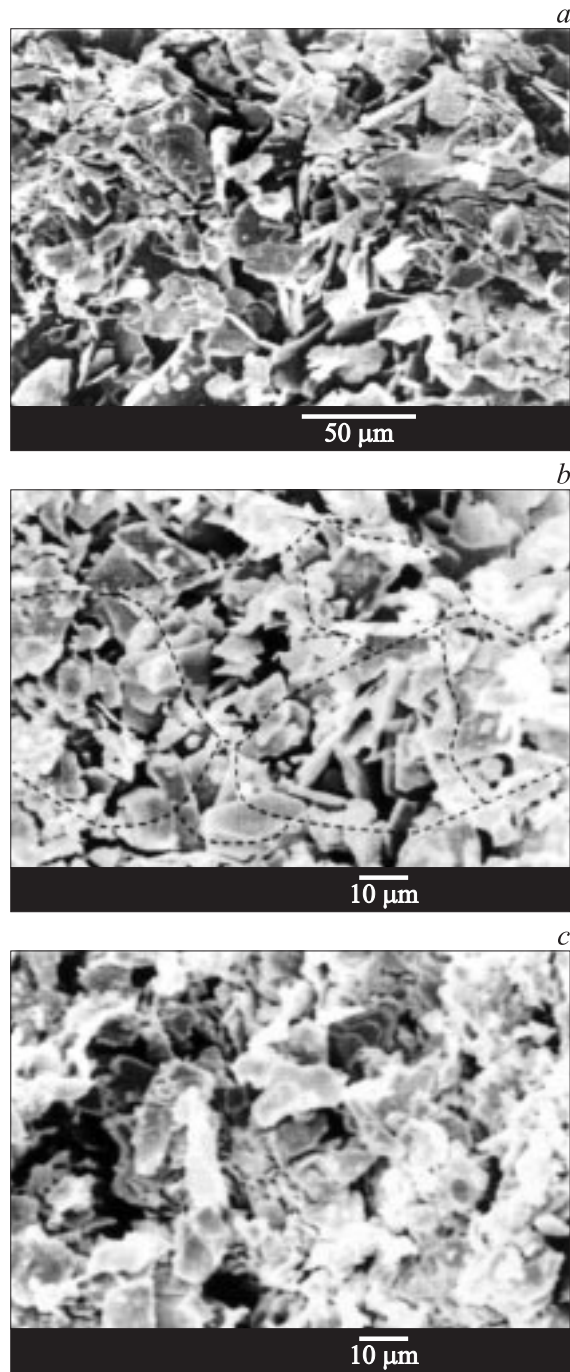


Рис. 1. SEM-микрофотографии трех различных сколов одного образца сверхпроводящей пены BPSCCO. Увеличение: *a* — 500, *b, c* — 1000. Штриховыми линиями (*b*) показаны возможные траектории протекания тока по перколяционному сверхпроводящему кластеру.

границы раздела между сверхпроводящей и нормальной фазами

$$D = \frac{\ln N(L)}{\ln(L_{\text{max}}/L)}. \quad (2)$$

Очевидно, что значение D не может превосходить топологическую размерность плоскости, равную двум.

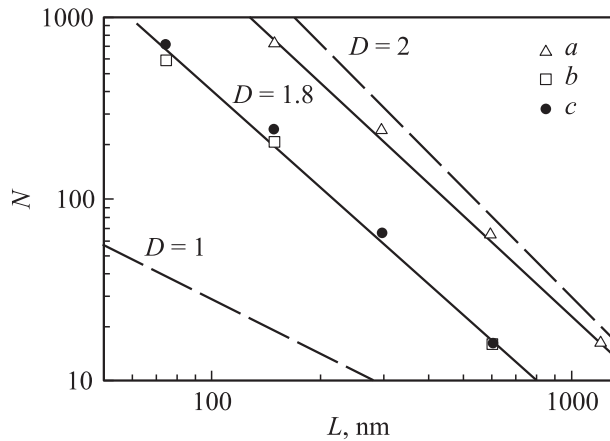


Рис. 2. Определение фрактальной размерности границ раздела между нормальной и сверхпроводящей фазами в пенообразном BPSCCO. *a* — данные, полученные в результате цифровой обработки SEM-микрофотографии, показанной на рис. 1, *a* (увеличение 500), *b, c* — данные для микрофотографий на рис. 1, *b* и *c* (увеличение 1000). Наклоны штриховых линий показывают диапазон возможных значений фрактальной размерности от $D = 1$ для евклидовых границ до $D = 2$ для границ с максимальной степенью фрактальности.

Соотношение между стороной измерительной ячейки L и стороной большого квадрата L_{\max} задает выбор единиц измерений длины. При $L_{\max} = 1$ выражение (2) для фрактальной размерности примет вид [9] $D = -\ln(N(L))/\ln(L)$.

Таким образом, подсчет числа $N(L)$ непустых квадратов площадью L^2 , покрывающих измеряемый фрагмент границы кластера, позволяет определить величину ее фрактальной размерности. Для повышения точности оценки необходимо взять максимально широкий диапазон в области малых значений L и усреднить величину D по всем конфигурациям. Проще всего это можно сделать, построив зависимость $N(L)$ в двойном логарифмическом масштабе: согласно (1), этот график должен быть линейным с наклоном, равным фрактальной размерности границы кластера. Анализировались микрофотографии различных сколов пен BPSCCO, сделанные с увеличением 500 и 1000. Размеры измерительных ячеек составляли $L = 150, 300, 600, 1200$ nm для микрофотографий с увеличением 500 и $L = 75, 150, 300, 600$ nm для микрофотографий с увеличением 1000. Результаты измерений фрактальной размерности представлены на рис. 2. Точки *a* получены в результате сканирования и цифровой обработки микрофотографии, показанной на рис. 1, *a*; точки *b* и *c* — двух других микрофотографий (рис. 1, *b* и *c* соответственно). Зависимости $N(L)$ для различных сколов, представленные на рис. 2 в двойном логарифмическом масштабе, хорошо (с коэффициентом корреляции 0.99) ложатся на прямые, наклон которых совпадает и дает значение фрактальной размерности $D = 1.80 \pm 0.06$. Найденное значение фрактальной размерности существенно отличается от единицы. Это означает, что фрактальные свойства границ кластеров

играют заметную роль. На рис. 2 наклон штриховых линий показывают предельные случаи, возможные для евклидовых границ кластеров ($D = 1$) и для кластеров с максимально фрактальными границами ($D = 2$).

3. Сверхпроводящие свойства пенообразных BPSCCO

Вольт-амперные характеристики (ВАХ) образцов измерялись стандартным четырехзондовым методом в режиме заданного тока. Образцы изготавливались в форме параллелепипедов размером $10 \times 4 \times 4$ mm, средняя часть которых сошлифовывалась до толщины 1–1.5 mm. Длина сошлифованной области составляла 6 mm. Для создания контактов с малым омическим сопротивлением использовалась методика вжигания ультрадисперсного серебра в область токовых контактов образца. Полученное значение контактного сопротивления не превышало $10^{-4} \Omega \cdot \text{cm}^2$. Использовались прижимные токовые и потенциальные контакты из немагнитного позолоченного материала. Расстояние между потенциальными контактами составляло 5 mm. Для улучшения теплообмена образец во время измерений погружался непосредственно в хладагент (в жидкий азот или жидкий гелий). Об отсутствии саморазогрева свидетельствует совпадение прямого и обратного хода ВАХ при различных скоростях сканирования по току. Магнитные измерения проводились на вибрационном магнитометре со сверхпроводящим соленоидом [10]. Образцы для магнитных измерений имели форму цилиндров диаметром 0.5 mm и длиной 4 mm. Магнитное поле прикладывалось параллельно оси образца.

Переход в сверхпроводящее состояние в пенообразном BPSCCO происходит при 107 K (рис. 3). На вставке также представлена кривая намагничивания образца при $T = 4.2$ K. Для сравнения там же приведена зависимость

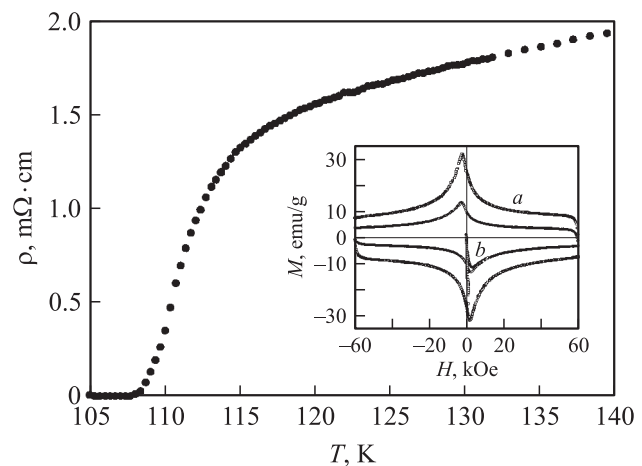


Рис. 3. Температурная зависимость сопротивления сверхпроводящей пены BPSCCO. На вставке показаны кривые намагниченности пенообразного (*a*) и монолитного (*b*) образцов BPSCCO при $T = 4.2$ K.

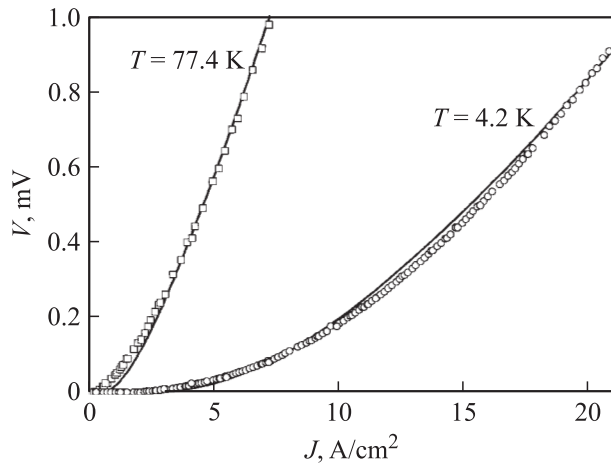


Рис. 4. ВАХ сверхпроводящей пены BPSCCO. Точки — экспериментальные данные, полученные при температурах жидкого гелия и азота, линии — теоретические зависимости при фрактальной размерности границ кластеров нормальной фазы $D = 1.8$.

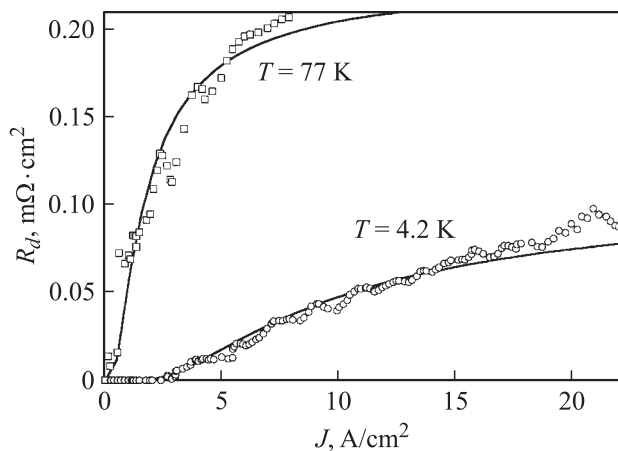


Рис. 5. Зависимость дифференциального сопротивления от тока для сверхпроводящей пены BPSCCO. Точки — эксперимент, линии — теоретические кривые для фрактальной размерности границ кластеров нормальной фазы $D = 1.8$.

намагниченности от магнитного поля $M(H)$ для монолитной керамики BPSCCO. При одинаковом виде кривых намагничивания величина удельного диамагнитного отклика (в единицах emu/g) пенообразного материала в 2.4 раза больше, чем для монолитного. Без нормировки на массу (т.е. при одинаковом объеме) диамагнитный отклик сверхпроводящей пены в 1.6 раза превосходит отклик монолитного материала. Эквивалентный магнитный критический ток пенообразного материала, найденный по остаточной намагниченности в соответствии с моделью Бина, составляет 340 kA/cm^2 при $T = 4.2 \text{ K}$, что также в 1.6 раза больше, чем у монолитной керамики BPSCCO.

На рис. 4 показаны ВАХ пенообразного BPSCCO при температурах $T = 4.2$ и 77 K . Они имеют харак-

терный для поликристаллических ВТСП нелинейный вид. Дополнительную информацию о динамике вихрей дают зависимости дифференциального сопротивления от транспортного тока, которые представлены на рис. 5. Дифференциальное сопротивление является малосигнальным параметром, который в наибольшей степени подходит для описания нелинейной ВАХ сверхпроводника. Изучение особенностей ВАХ позволяет получить новую информацию о природе вихревого состояния в перколяционных материалах [11,12]. Особый интерес представляет окрестность резистивного перехода, прежде всего начальный участок ВАХ, где становится заметным падение напряжения на образце, свидетельствующее о начале диссипации. Именно здесь начинается срыв вихрей с центров пиннинга, который в итоге приводит к разрушению сверхпроводимости. Движение магнитного потока, переносимого вихрями, индуцирует электрическое поле, что ведет к рассеянию энергии. Для ВТСП движение вихрей играет особенно важную роль из-за больших тепловых флуктуаций и малых энергий пиннинга [11]. Сверхпроводники, содержащие изолированные кластеры нормальной фазы, обеспечивают эффективный пиннинг, поскольку магнитный поток захватывается в этих кластерах и вихри не могут их покинуть, не пересекая при этом окружающее сверхпроводящее пространство. Такие кластеры представляют собой включения нормальной фазы, объединенные общим захваченным потоком и окруженные сверхпроводящей фазой [13,14]. При возрастании тока вихри начинают срывать с кластеров, сила пиннинга которых слабее силы Лоренца, создаваемой транспортным током. При этом депиннинг имеет перколяционный характер [12,15,16], при котором вихри движутся по случайно возникающим каналам транспорта.

Кластеры нормальной фазы оказывают существенное влияние на динамику захваченного магнитного потока, особенно когда они имеют фрактальные границы [14,17]. В этом случае периметр поперечного сечения кластера P и охватываемая им площадь A подчиняются скейлинговому закону: $P^{1/D} \propto A^{1/2}$ [8]. Особенность фрактальных кластеров состоит в том, что нерегулярности их структуры лежат в очень широком диапазоне геометрических размеров, в который попадают диаметры вихрей. Это обеспечивает сильное взаимодействие вихрей с такими кластерами, эффективно захватывающими магнитный поток. Фрактальные кластеры нормальной фазы были обнаружены в сверхпроводящих пленках YBCO [13]. Режим фрактальной диссипации наблюдался в композитах BSCCO и BPSCCO, содержащих нормальные включения серебра, а также в поликристаллических объемных образцах YBCO и GdBCO [18]. Существование фрактальных кластеров в сверхпроводящих пенах BPSCCO подтверждается рис. 2. В отсутствие внешнего подмагничивания (в режиме „self-field“) магнитный поток концентрируется вдоль замкнутых контуров неправильной формы, в максимальной степени проникающих в поры между сверхпроводящими кристаллитами. При депиннинге вихри будут преодолевать барьер, пересекая

границу сечения кластера нормальной фазы плоскостью, в которой течет ток. Геометрические свойства этой границы оказывают влияние на динамику захваченного магнитного потока и, следовательно, на вид ВАХ.

Анализ влияния фрактальных кластеров нормальной фазы на магнитные и транспортные свойства перколяционных сверхпроводников выполнен в работах [14,17,19,20]. В этих работах рассчитаны ВАХ сверхпроводников для различных распределений токов депиннинга и показано, что с ростом фрактальной размерности границ кластеров нормальной фазы можно ожидать усиления пиннинга. В случае экспоненциально-гиперболического распределения токов депиннинга ВАХ сверхпроводника с фрактальными кластерами нормальной фазы имеет вид [20]

$$u = r_f \left[i \exp \left(- \left(\frac{2+D}{D} \right)^{2/D+1} i^{-2/D} \right) - \left(\frac{2+D}{D} \right)^{(2+D)/2} \times \Gamma \left(1 - \frac{D}{2}, \left(\frac{2+D}{D} \right)^{2/D+1} i^{-2/D} \right) \right], \quad (3)$$

где u — безразмерное напряжение; r_f — безразмерное сопротивление течения потока; $i \equiv I/I_c$ — безразмерный электрический ток, нормированный относительно критического тока перехода в резистивное состояние I_c ; $\Gamma(\nu, z)$ — дополнительная неполная гамма-функция. Значение критического тока резистивного перехода I_c задается по точке пересечения оси абсцисс и касательной, проведенной через точку перегиба к кривой зависимости дифференциального сопротивления от тока. Определяемое таким образом значение критического тока превосходит величину критического тока начала диссипации, задаваемую по критерию фиксированного напряжения, индуцируемого движущимися вихрями („voltage criterion“). Безразмерное напряжение u и безразмерное сопротивление течения потока r_f связаны с соответствующими размерными величинами U и R_f соотношением $U/R_f = I_c(u/r_f)$.

Теоретические ВАХ, рассчитанные для исследуемых образцов по формуле (3), представлены на рис. 4 (сплошные линии). При расчетах использовалось найденное ранее значение фрактальной размерности границ кластеров нормальной фазы. Подгоночными параметрами служили критический ток резистивного перехода и сопротивление течения потока. Хорошее согласие с экспериментальными ВАХ в области резистивного перехода достигается при следующих значениях параметров: $D = 1.8$, $J_c(4.2 \text{ К}) = 2.5 \text{ А/см}^2$, $R_f(4.2 \text{ К}) = 0.11 \text{ м}\Omega \cdot \text{см}^2$, $J_c(77 \text{ К}) = 0.4 \text{ А/см}^2$, $R_f(77 \text{ К}) = 0.228 \text{ м}\Omega \cdot \text{см}^2$. Используемые при расчетах значения сопротивления соответствуют зависимости сопротивления течения потока от температуры вида $R_f(T) = R_{f0}/(1 - (T/T_c)^2)$ [21]. Данное выражение является аппроксимацией температурной зависимости сопротивления $R_f(T)$, полученной в работах [22,23]. Из рисунка видно, что теоретические зависимости удовлетворительно описывают экспериментальные ВАХ пенообразных BPSCCO на начальном участке резистивного перехода.

Зависимость дифференциального сопротивления от транспортного тока имеет вид [24]

$$R_d = R_f \exp \left(- \left(\frac{2+D}{2} \right)^{\frac{2}{b}+1} i^{-\frac{2}{b}} \right). \quad (4)$$

На рис. 5 показаны теоретические кривые, рассчитанные по формуле (4) при тех же значениях параметров, что и ВАХ. Сопротивление пропорционально плотности свободных вихрей n : $R_d = R_f(\Phi_0/B)n$, где $\Phi_0 \equiv hc/(2e)$ — квант магнитного потока, B — магнитное поле, h — константа Планка, c — скорость света, e — заряд электрона. Сравнение с формулой (4) показывает, что плотность свободных вихрей зависит от фрактальной размерности кластеров нормальной фазы. Сопротивление сверхпроводника определяется количеством вихрей, сорванных с центров пиннинга, поскольку они переносят магнитный поток, индуцирующей электрическое поле. Чем больше вихрей может двигаться, тем большее электрическое поле создается и тем больше становится напряжение на образце при фиксированном транспортном токе.

Теоретическая модель сверхпроводника с фрактальными кластерами нормальной фазы удовлетворительно описывает экспериментальные ВАХ в окрестности резистивного перехода. При больших значениях транспортного тока наблюдается расхождение расчетных и экспериментальных зависимостей. Причинами такого расхождения могут быть изменение фрактальной размерности границ кластеров при увеличении тока и развивающаяся термомагнитная неустойчивость.

4. Заключение

Следует отметить, что, хотя экспериментальные ВАХ поликристаллических ВТСП можно описывать с помощью других моделей [21,25,26], модель сверхпроводника с фрактальными кластерами нормальной фазы наиболее подходит для описания транспортных свойств сверхпроводящих пен, поскольку она отражает особенности реальной структуры этих материалов и позволяет учесть влияние параметров структуры на критический ток депиннинга и ВАХ.

Авторы благодарят А.Д. Балаева за обсуждение результатов работы и С.А. Сацук за техническую помощь.

Список литературы

- [1] E.S. Reddy, G.J. Schmitz. Supercond. Sci. Technol. **15**, 21 (2002).
- [2] E.S. Reddy, M. Herweg, G.J. Schmitz. Supercond. Sci. Technol. **16**, 608 (2003).
- [3] М.И. Петров, Т.Н. Тетюева, Л.И. Квеглис, А.А. Ефремов, Г.М. Зеер, К.А. Шайхутдинов, Д.А. Балаев, С.И. Попков, С.Г. Овчинников. Письма в ЖТФ **29**, 40 (2003).
- [4] E. Bartolomé, X. Granados, T. Puig, X. Obradors, E.S. Reddy, G.J. Schmitz. Phys. Rev. B **70**, 144 514 (2004).

- [5] E. Bartolomé, X. Granados, T. Puig, X. Obradors, S. Reddy, J. Noudem. In: Proc. 2004 Int. Applied Superconductivity Conf. „ASC’2004“. Material Session. Jacksonville, FL, USA (2004). P. 52.
- [6] R. Zallen. Phys. Rev. B **16**, 1426 (1977).
- [7] В.С. Кравченко, А.И. Романенко, О.Г. Потапова, О.В. Разлевинская, И.Н. Куропятник. Изв. СО АН СССР. Сер. хим. наук *1*, 85 (1990).
- [8] B.B. Mandelbrot. Fractals: Form, Chance, and Dimension. Freeman, San Francisco (1977). 365 p.
- [9] Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц, Гидродинамика. Наука, М. (1986). 736 с.
- [10] А.Д. Балаев, Ю.В. Бояршинов, М.М. Карпенко, Б.П. Хрусталев. ПТЭ *3*, 167 (1985).
- [11] G. Blatter, M.V. Feigelman, V.B. Geshkenbein, A.I. Larkin, V.M. Vinokur. Rev. Mod. Phys. **66**, 1125 (1994).
- [12] K. Yamafuji, T. Kiss. Physica C **258**, 197 (1996).
- [13] Yu.I. Kuzmin. Phys. Lett. A **267**, 66 (2000).
- [14] Yu.I. Kuzmin. Phys. Rev. B **64**, 094 519 (2001).
- [15] M. Ziese. Physica C **269**, 35 (1996).
- [16] M. Ziese. Phys. Rev. B **53**, 12 422 (1996).
- [17] Yu.I. Kuzmin. Phys. Lett. A **281**, 39 (2001).
- [18] M. Prester. Phys. Rev. B **60**, 3100 (1999).
- [19] Yu.I. Kuzmin. Phys. Lett. A **300**, 510 (2002).
- [20] Yu.I. Kuzmin. J. Low Temp. Phys. **130**, 261 (2003).
- [21] A. Kilic. Supercond. Sci. Technol. **8**, 497 (1995).
- [22] J. Bardeen, M.J. Stephen. Phys. Rev. **140**, A 1197 (1965).
- [23] J. Clem. Phys. Rev. Lett. **20**, 735 (1968).
- [24] Ю.И. Кузьмин. Письма в ЖТФ **30**, 29 (2004).
- [25] R. Kümmel, U. Günsheimer, R. Nicolsky. Phys. Rev. B **42**, 3992 (1990).
- [26] M.I. Petrov, D.M. Gokhfeld, D.A. Balaev, K.A. Shaihtudinov, R. Kümmel. Physica C **408**, 620 (2004).