

УДК 538.945 : 548.736

© 1991

**КОРРЕЛЯЦИЯ НЕОДНОРОДНОСТЕЙ
СВЕРХПРОВОДЯЩИХ СВОЙСТВ
С ВАРИАЦИЕЙ ПАРАМЕТРА РЕШЕТКИ c
В БЕЗДВОЙНИКОВЫХ МОНОКРИСТАЛЛАХ СИСТЕМЫ
 $\text{YBa}_2\text{Cu}_{3-x}\text{Al}_y\text{O}_{6+x}$**

*А. И. Беляева, В. П. Юрьев, А. Л. Фоцан, Е. И. Головенщик,
Н. В. Морозов, И. Л. Шульпина, М. П. Щеглов*

Проведены рентгеновское топографирование и визуализация динамики структуры магнитного потока с помощью Vi -содержащей феррогранитовой пленки для бездвойниковых монокристаллов $\text{YBa}_2\text{Cu}_{3-x}\text{Al}_y\text{O}_{6+x}$ в широком интервале температур и магнитных полей. Установлена корреляция пространственных неоднородностей сверхпроводящих свойств с вариацией параметра решетки c по монокристаллу. Анализ особенностей определения критических параметров монокристаллов локальными магнитооптическими методами и из данных по намагниченности и динамической магнитной восприимчивости показал, что интегральные методы дают значения критических величин, которые в значительной мере являются характеристиками исследуемого образца и не могут служить фундаментальными параметрами материала.

Результаты многочисленных электронно-микроскопических, рентгеновских и оптических исследований, проведенных к настоящему времени, свидетельствуют о том, что ВТСП-монокристаллы, синтезируемые по современным технологиям, обладают большим количеством и разнообразием дефектов структуры и микроструктуры (двойники, точечные дефекты, неоднородности распределения кислорода и др.). Качественно понятно, что из-за малой длины когерентности (~ 1 нм) критические параметры ВТСП будут сильно зависеть даже от дефектов атомного масштаба. Однако до настоящего времени не решен вопрос о том, какие дефекты и при каких условиях оказывают определяющее влияние на те или иные равновесные и транспортные свойства. Одна из возникающих здесь трудностей связана с неоднородностью распределения дефектов по объему исследуемых образцов (причем в одном и том же месте образца могут сосуществовать различные типы дефектов), что влечет за собой пространственную неоднородность их сверхпроводящих (СП) свойств. Очевидно, что для установления достоверной взаимосвязи СП-свойств со структурными параметрами и дефектами необходимо использовать локальные методики контроля СП-свойств и структурного совершенства монокристаллов, а также разрабатывать технологические процедуры, позволяющие получать монокристаллы, свободные от тех или иных дефектов. До недавнего времени, однако, эффективные локальные методики исследования СП-свойств практически отсутствовали и неоднородность критических СП-параметров по кристаллу не принималась во внимание.

В настоящее время широко обсуждается роль двойниковых границ (наиболее явных и типичных дефектов монокристаллов) в формировании СП-свойств. Бытовало мнение [1], что они ответственны за наличие слабых связей и пиннинг в монокристаллах. В последнее время появляется все больше работ, свидетельствующих о том, что двойники не ухудшают

СП-свойств и не являются сильными центрами пиннинга [3-4]. Для исключения фактора влияния двойников на СП-свойства кристаллы для настоящего исследования выращивались модифицированным методом спонганной кристаллизации (из раствора в расплаве) в тиглях из Al_2O_3 , при котором они вырастают бездвойниковыми [5].

Для исследования пространственного распределения сверхпроводящих свойств монокристаллов использовалась высококонтрастная магнитооптическая методика [6, 7] на основе феррогранатовой пленки. Выявление неоднородностей структуры по образцу проводилось рентгенопографическим методом [8]. Оба метода наряду с достаточно высоким разрешением позволяли контролировать сверхпроводящее и структурное состояние всего образца (в отличие от разрушающих электронно-микроскопических методов, с помощью которых можно изучать лишь отдельные фрагменты монокристаллов).

В настоящей работе проведено сравнение результатов магнитооптических и рентгенодифракционных исследований бездвойниковых ВТСП-монокристаллов, а также значений критических сверхпроводящих параметров H_{c1} , T_c , j_c , полученных из анализа магнитооптических картин, с их значениями, найденными из кривых магнитного гистерезиса и динамической магнитной восприимчивости, которые измерялись интегральными индукционными методами.

1. Технология выращивания, кристаллическая структура и СП-свойства монокристаллов системы $YBa_2Cu_3-xAl_yO_{6+x}$

Монокристаллы $YBa_2Cu_3-xAl_yO_{6+x}$ выращивались из раствора в расплаве (растворитель $BaO-CuO$) в тиглях из чистого Al_2O_3 с разделением фаз плавления (растворения) и кристаллизации [5]. При этой технологии ионы Al^{3+} из тигля входят в состав кристаллов, замещая ионы Cu^{2+} и Cu^{1+} в слоях CuO_3 и CuO_x соответственно, что приводит к увеличению парциальных зарядов слоев и, следовательно, расстояний между ними, т. е. параметра решетки c , при одинаковом содержании кислорода в слоях CuO_x [9]. Наряду с этим в слое CuO_x возникают катионные вакансии, число которых коррелирует с содержанием Al^{3+} в слое CuO_3 , а суммарное заполнение позиций ионами Cu и Al коррелирует с заполнением кислородом вершин координационных полиэдров $Cu2$. Возможно, это связано с тем, что Al^{3+} имеет тенденцию располагаться в слое CuO_3 над катионными вакансиями в слое CuO_x , а под этими катионными вакансиями (в слое $Ba-O$) образуются вакансии по кислороду. Помимо этого внедрение Al^{3+} приводит к стабилизации тетрагональной фазы даже при больших заполнениях слоев CuO_x кислородом [9]. В то же время большое заполнение слоев CuO_x кислородом стимулируется увеличением парциального заряда слоев CuO_x при внедрении ионов Al^{3+} .

Таким образом, по существу на сегодняшний день представлениям процесс образования катионных и анионных вакансий, внедрение ионов Al^{3+} и заполнение кислородом слоев CuO_x являются взаимообусловленными. Внедрение небольшого количества ионов Al^{3+} (6—8 %) в катионную подрешетку при обеспечении доступа кислорода в процессе кристаллизации способствует получению квазитетрагональных ($a \cong b$) и, следовательно, бездвойниковых монокристаллов, практически не снижая их температуры перехода T_c (по сравнению с $YBa_2Cu_3O_{6+x}$) [9]. С другой стороны, введение большего количества ионов Al^{3+} (12—15 %) приводит к большой дефектности катионной подрешетки, превышающей порог протекания, вследствие чего СП-состояние не реализуется.

Несмотря на отсутствие двойников, динамическая магнитная восприимчивость большинства таких образцов обнаруживает значительную нелинейность при малых амплитудах и частотную дисперсию обратного по отношению к спин-стекольным системам знака, что свидетельствует о на-

личий в этих кристаллах слабых связей, обладающих аномально малым пиннингом [5]. Возникновение слабых связей такого типа связывалось [5, 9] с химической неэквивалентностью цепочек $\text{Cu}-\text{O}-\text{Cu}$ в слое CuO_3 , индуцированной наличием в соседнем слое CuO_x атомов Cu разной валентности, что обусловлено недостаточной концентрацией атомов кислорода в нем, а также с наличием одиночных дефектов в Cu -подрешетке и кислородных вакансий в слое CuO_3 .

Результаты, приведенные в настоящей работе, получены на трех монокристаллах: 1) $\text{Y}-\text{Ba}-\text{Cu}-\text{O}$, размеры $1.3 \times 1.8 \times 0.05$ мм, вес 0.2 мГ; 2) $\text{Y}-\text{Ba}-\text{Cu}-\text{O}$, размеры $1.7 \times 1.4 \times 0.1$ мм, вес 0.5 мГ; 3) $\text{Bi}-\text{Sr}-\text{Ca}-\text{Cu}-\text{O}$, размеры $2.1 \times 1.5 \times 0.2$ мм, вес 3.5 мГ.

2. Методы исследования монокристаллов

Пространственные неоднородности СП-свойств монокристаллов исследовались с помощью эффекта Фарадея в Bi -содержащей эпитаксиальной феррогранатовой пленке [6, 7]. При этом доменная структура феррогранатовой пленки, совмещенной с поверхностью ВТСП, перестраивается в соответствии со структурой магнитного потока на поверхности и вокруг образца ВТСП. Это позволяет визуализировать процессы проникновения, захвата и вытеснения потока при перемагничивании образца в полях до 25 кЭ в диапазоне температур $5 \text{ K} < T < T_c$. На основе анализа визуальных картин могут быть найдены пространственные распределения критических СП-параметров (H_{c1} , T_c , j_c) по монокристаллу, а также их температурные зависимости. Изменения амплитуды колебаний доменных границ размагниченого индикатора над заданными участками образца в низкочастотном магнитном поле при СП-переходе, регистрируемые фотометрически, отражают изменения локальной магнитной проницаемости (или восприимчивости) и могут быть использованы для надежной оценки положения T_c и ширины ΔT диамагнитного перехода в различных точках образца, а также определения чувствительности слабых связей к магнитному полю.

Степень совершенства структуры по поверхности ВТСП-монокристаллов контролировалась методами рентгеновской топографии при комнатной температуре [8]. Топограммы снимались на отражение (рефлексы типа 006) в CuK_α -излучении методом Берга—Барретта—Ньюкирка [8]. Измерение параметра решетки вдоль оси c проводилось методом трехкристалльной рентгеновской дифрактометрии с использованием излучения CuK_α и рефлекса типа (006) по схеме с незначительной дисперсией.

Интегральные диамагнитные свойства ВТСП-монокристаллов в диапазоне температур $4.2 < T < 100 \text{ K}$ изучались путем измерения динамической магнитной восприимчивости $\chi'_m(T)$ индукционным методом [5, 10] на частотах 0.1—20 кГц при амплитудах переменного магнитного поля 0.1—10 Э. Две встречно-включенные, скомпенсированные измерительные катушки, в одной из которых располагались образец и эталон, помещались внутрь соленоида, создающего переменное магнитное поле. Измерялись температурные изменения эдс индукции, пропорциональные восприимчивости образца. Сигнал раскомпенсации, возникающий при переходе образца в СП-состояние, сравнивался с сигналом от эталона, в качестве которого использовалась пластина Nb толщиной 20 мкм и площадью, близкой к площади образца. При этом диамагнитная восприимчивость Nb принималась равной единице.

Кривые намагничивания монокристаллов снимались с помощью стандартного вибрационного магнитометра в интервале полей ± 15 кЭ и диапазоне температур $4.2 < T < 100 \text{ K}$.

На рис. 1, 1 представлена фотография исследуемого монокристалла $Y-Ba-Cu-O$ (№ 1). Изменение картины доменов в индикаторной пленке на поверхности и вокруг этого ВТСП-монокристалла при его перемагничивании во внешнем поле, перпендикулярном развитой поверхности, при температуре 20 К показано на рис. 1, 2—7. После охлаждения (в отсутствие магнитного поля) монокристалла и находящейся в хорошем тепловом контакте с ним индикаторной пленки до температуры 20 К в последней реализуется доменная структура с размером доменов ~ 10 мкм, типичная для одноосных пленок с перпендикулярной намагниченностью.

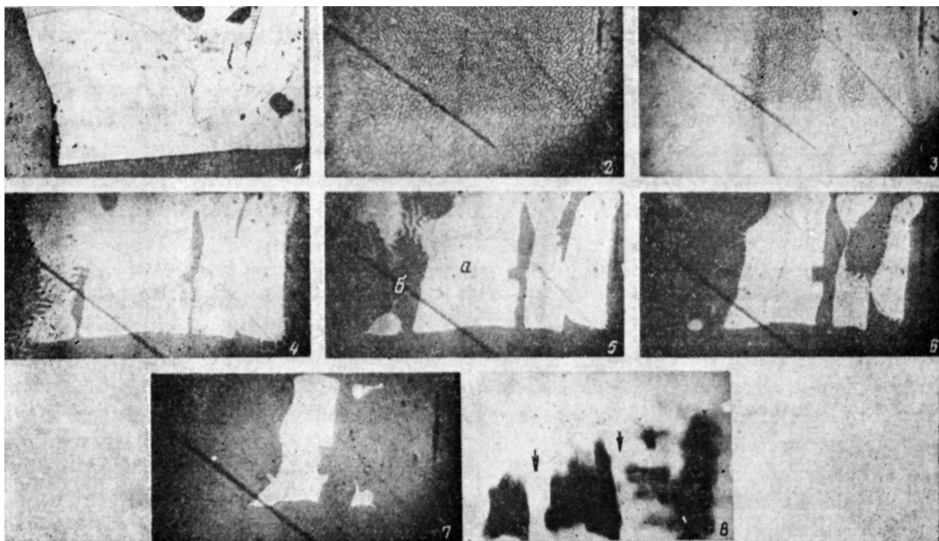


Рис. 1. Фотография (1), магнитооптические картины первоначального проникновения поля (2, 3) и вытеснение захваченного (после приложения поля $+9$ кЭ) потока при $T=20$ К (4—7), а также рентгеновская топограмма (8) при T_{0MB} для монокристалла $Y-Ba-Cu-O$ (№ 1).

$$H=43 (2), 190 (3), 90 (4), 0 (5), -100 (6), -300 \text{ Э} (7).$$

При приложении и увеличении поля во всей пленке, за исключением области, экранируемой ВТСП, происходит процесс намагничивания доменной структуры, в результате чего вырисовываются контуры образца (рис. 1, 2). Магнитный поток входит в образец начиная с краев, но неоднородно, выявляя участки с меньшими значениями полей проникновения и сил пиннинга (рис. 1, 3).

Характерной чертой процесса намагничивания индикатора над монокристаллом ВТСП является его двухступенчатый характер, выраженный более или менее ярко на различных участках монокристалла. Первый этап представляет собой небольшое подмагничивание индикатора, начинающееся от краев монокристалла и достигающее его центра в полях, меньших 100 Э. Согласно современным представлениям [4], этот процесс можно интерпретировать как проникновение магнитного потока в среду слабых связей. Ввиду малости критического поля проникновения $H_{c1}^{(j)}$ по сравнению с намагниченностью насыщения индикаторной пленки $4\pi M_s$, а также вследствие огибания сверхпроводника силовыми линиями магнитного поля магнитооптическое изображение начала этого процесса не имеет ярко выраженного порогового характера, что затрудняет определение $H_{c1}^{(j)}$.

Поскольку в слабых полях монокристалл можно считать однородным сверхпроводником, к которому применима модель Бина [11], то по глубине проникновения l процесса подмагничивания во внешнем поле H может быть оценена критическая плотность транспортного тока

$$j_c^{(j)} = \frac{c}{4\pi} \frac{H}{l}.$$

При этом необходимо учитывать эффект усиления внешнего поля вблизи краев образца экранирующими токами, что приведет к замене H на $H_{\text{eff}} \sim \sim H/(1-N_{\text{eff}})$, где N_{eff} — эффективный размагничивающий фактор образца, зависящий не только от формы образца и его краев, но и глубины проникновения потока в образец. Аппроксимируя форму образца эллипсоидом, что, однако, является очень грубым приближением, получаем выражение $N_{\text{eff}} \sim 1-h/L$ (где h , L — толщина и средний линейный размер развитой поверхности монокристалла), которым можно пользоваться при небольших глубинах проникновения и отсутствии острых краев у образца. При небольших глубинах проникновения ($l \ll L$) можно также использовать значение N_{eff} , определяемое экспериментально путем сравнения картины доменов индикатора во внешнем поле вблизи от краев образца и вдали от образца. Исходя из этого, получаем оценку критической плотности транспортного тока $j_c^{(j)} \sim 4 \cdot 10^4$ А/см².

Процесс начального подмагничивания обратим, т. е. после приложения и снятия небольших магнитных полей магнитный поток выходит из образца под действием магнитных моментов магнитной индукции и доменная структура практически восстанавливается (с точностью до эффектов, связанных с коэрцитивностью доменных границ).

Вторая стадия процесса намагничивания начинается в полях, составляющих десятки эрстед, и характеризуется интенсивным намагничиванием доменной структуры индикатора, сопровождающимся прогрессирующей необратимостью этого процесса (рис. 1, 3). Этот этап соответствует проникновению магнитного потока в «жесткую» СП-среду зерен или гранул, на которые разбивается ВТСП-монокристалл в сильных магнитных полях. Величину эффективного внешнего поля (с учетом эффекта усиления), в котором процессы намагничивания становятся существенно необратимыми, можно использовать для оценки критического поля проникновения $H_{c1}^{(A)}$ в «сильную» СП-среду. В данном случае $H_{c1}^{(A)}$ составляло $\sim 300 \div 500$ Э. Еще раз подчеркнем, что две стадии процесса намагничивания не всегда и не во всех участках монокристалла могут быть четко разделены, что затрудняет определение критических полей и токов с помощью описанной процедуры.

На рис. 1, 4, 5 показан выход магнитного потока из монокристалла при уменьшении магнитного поля от значения $+9$ кЭ, превышающего, по оценкам, поле полного проникновения в гранулы $H_p^{(A)}$, до нуля. При этом в кристалле захватывается магнитный поток, намагничивающий индикатор над монокристаллом в направлении прикладываемого поля (белые участки на рис. 1, 4, 5). Поток, захваченный в участках кристалла с сильным пиннингом, замыкается вокруг образца, а также через участки с более слабым пиннингом, предварительно вытесняя из них захваченный магнитный поток. В этих местах индикатор перемагничивается в направлении, противоположном прикладываемому полю (черные участки на рис. 1, 4, 5). Заметим, что в эти же участки легко проникало магнитное поле при первоначальном намагничивании (ср. рис. 1, 3 с рис. 1, 4 и 5). Кроме того, следует отметить, что захваченный поток не выходил в первую очередь из краев образца и наблюдался весь комплекс визуальных эффектов [4], свидетельствующих о наличии джозефсоновской среды в исследуемых монокристаллах.

При приложении и увеличении поля в направлении, противоположном захваченному потоку, последний вытесняется из образца также неоднородно (рис. 1, 6, 7), в последнюю очередь из участков, характеризующихся большими значениями полей первоначального проникновения и сил пиннинга (ср. рис. 1, 3 и 5). Полное исчезновение участков с захваченным потоком происходит в поле ≈ -1750 Э. Поскольку величина первоначально прикладываемого поля ($+9$ кЭ) превышала поле полного проникновения в гранулы $H_p^{(A)}$, то поле, в котором происходит вытеснение

захваченного потока, и по порядку величины должно совпадать с $H_p^{(A)}$ и его можно использовать для оценки этой величины. Полагая, что в таких высоких полях образец разбивается на отдельные сверхпроводящие гранулы с типичными значениями средних радиусов $r_{cp} \sim 1 \div 10$ мкм, получаем оценку для максимальной величины критической плотности тока на участке с максимальным пиннингом

$$J_c^{(1)} = \frac{c}{4\pi} \frac{H_p^{(A)}}{r_{cp}} \sim 1.3 \cdot 10^6 \div 1.3 \cdot 10^7 \text{ A/cm}^2.$$

На рис. 2 приведены температурные зависимости нормированного магнитооптического фотоотклика доменной структуры индикатора на проникающее поле над wybranными участками монокристалла (*a*, *b* на рис. 1, 5) при амплитудах 6 и 10 Э внешнего возбуждающего поля частотой 182 Гц.

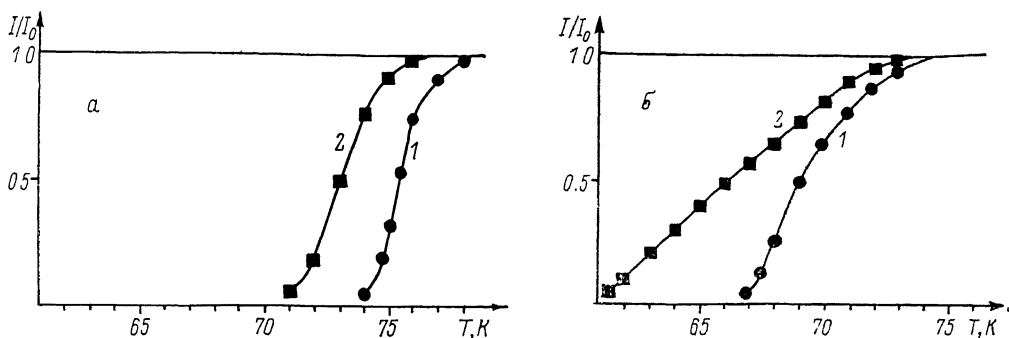


Рис. 2. Температурные зависимости нормированного фотоотклика размагниченной гранатовой пленки, пропорционального амплитуде колебаний доменных границ над участками *a* и *b* монокристалла соответственно, положение которых указано на рис. 1, 5, при амплитудах 6 (1) и 10 Э (2) возбуждающего поля частотой 182 Гц.

Зависимость от частоты в исследованном интервале частот (20—600 Гц) отсутствовала. Положения участков выбраны так, чтобы один из них (*a*) находился в области, выделяющейся максимальными значениями полей проникновения и сил пиннинга. Диаметр зондируемых участков ~ 150 мкм. Из рис. 2 видно, что при минимальной в данном эксперименте амплитуде возбуждающего поля диамагнитный переход на участке *a*, регистрируемый по уменьшению фотоотклика, начинается при температуре $T_c \sim 78$ К и имеет ширину $\Delta T_c \sim 3$ К. На участке *b* диамагнитный переход начинается при более низкой температуре и происходит в более широком интервале температур. При увеличении амплитуды возбуждающего поля от 6 до 10 Э наблюдаются смещение диамагнитного перехода вниз по температуре и его уширение. Это свидетельствует о том, что наблюдаемая диамагнитная экранировка обусловлена в основном установлением слабых связей, чувствительных к магнитному полю. Слабые связи в исследуемом монокристалле, как упоминалось выше, могут быть следствием недостаточного заполнения кислородом базисной плоскости или наличия структурных дефектов в Cu-подрешетке и кислородных вакансий в слоях CuO_2 . Одиночные дефекты указанного типа не приводят к существенным структурным искажениям и не являются сильными центрами пиннинга.

На рис. 1, 8 приведена рентгеновская топограмма монокристалла при комнатной температуре, из которой видно, что он не является однородным и состоит из трех фрагментов практически одной кристаллографической ориентации (черные участки на рис. 1, 8). Измерение параметра c в этих фрагментах дало среднее значение $c = 11.6924 \pm 0.008$ Å. Фрагменты разделены параллельными белыми прослойками (указаны стрелками на рис. 1, 8), в которых параметр c отличается от указанного значения. При сравнении рис. 1, 8 с рис. 1, 2—7 очевидна корреляция между пространственной неоднородностью СП-свойств и вариацией параметра решетки c , а именно

положение участков, отличающихся высокими значениями полей проникновения и сил пиннинга, совпадает с положениями фрагментов монокристалла со средним значением $c=11.6924 \text{ \AA}$. Участки, в которых параметр c отклоняется от этого значения, характеризуются более слабыми СП-свойствами (при сравнении следует учитывать возможность небольшого искажения топографического изображения на фотопластинке).

Можно предположить, что неоднородность структуры обусловлена неоднородностью состава, в частности пространственной неоднородностью вхождения Al, заполнения кислородом базисной плоскости и т. д. Среднее значение параметра c на участках с сильным пиннингом и достаточно высокой $T_c \sim 80 \text{ K}$ свидетельствует о 7–8%-ном замещении атомов Cu атомами Al и достаточной насыщенности базисной плоскости кислородом

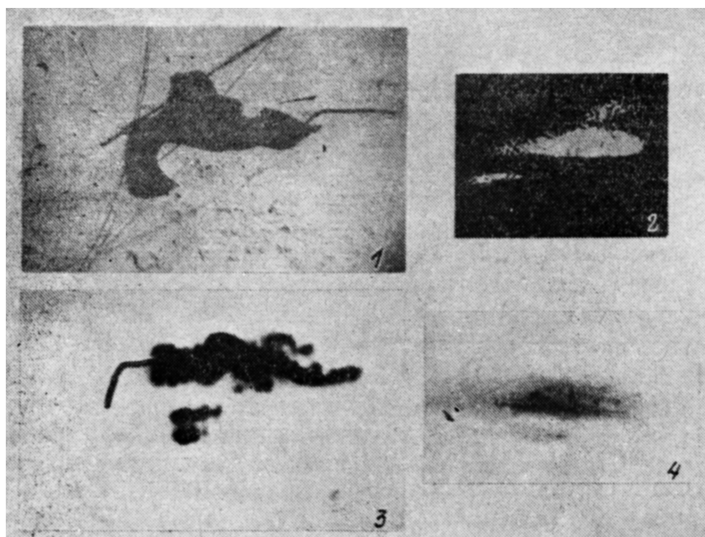


Рис. 3. Структура областей сильного пиннинга потока в монокристаллах Y-Ba-Cu-O (№ 2) и Bi-Sr-Ca-Cu-O (№ 3) (1, 2), выявленных после снятия поля +9 кВ и приложения поля -500 \AA ($T=20 \text{ K}$), а также соответствующие рентгеновские топограммы этих монокристаллов при $T_{\text{комн}}$ (3, 4).

(в частности, монокристалл состава $\text{YBa}_2\text{Cu}_{2.83}\text{Al}_{0.23}\text{O}_{8.64}$ в [9] имел значение $c=11.694 \text{ \AA}$). Это позволяет предположить, что в отсутствие двойников эффективными центрами пиннинга могут служить комплексы «внедрение Al^{3+} в слое CuO_3 +катионная вакансия в слое CuO_x +кислородная вакансия в вершине координационного полиэдра $\text{Cu}2$ », создающие локальные структурные напряжения в решетке. В прослойках же, которые по магнитооптическим данным также обладают СП-свойствами, концентрация Al^{3+} и заполнение кислородом базисной плоскости меньше, следствием чего является большая плотность слабых связей, обладающих слабым пиннингом.

Для демонстрации универсальности обнаруженной корреляции между распределением параметра решетки c и силой СП-свойств на рис. 3 показаны структуры областей сильного пиннинга в монокристаллах № 2 и 3, а также соответствующие рентгеновские топограммы при комнатной температуре.

4. Результаты измерений намагниченности и динамической магнитной восприимчивости интегральными индукционными методами

На рис. 4 приведена температурная зависимость динамической магнитной восприимчивости $\chi'_d(T)$ монокристалла Y-Ba-Cu-O (№ 1) в переменном магнитном поле частотой 10 кГц и амплитудой 0.5 Э. Обычно со-

противление монокристалла обращается в нуль при температуре, когда χ'_{-} составляет $\sim 5\div 10\%$ от максимальной величины [10]. Тогда, согласно кривой $\chi'_{-}(T)$ на рис. 4, $T_c \sim 80$ К. Значительная ширина перехода $\Delta T \sim 10$ К указывает на существенную неоднородность образца. Сравнение с кривыми нормированного фотоотклика (рис. 2), отражающими температурную зависимость локальной магнитной проницаемости $\mu(T)$,

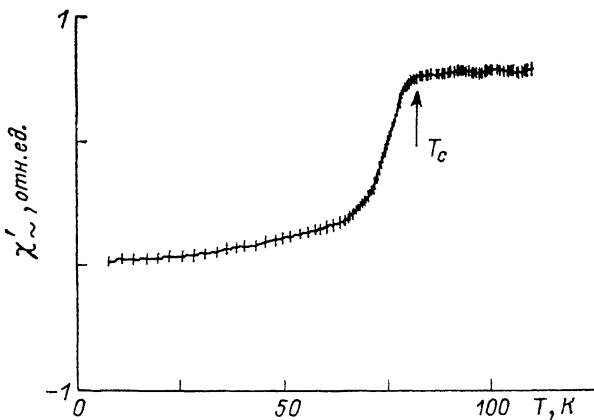


Рис. 4. Температурная зависимость динамической магнитной восприимчивости монокристалла Y—Ba—Cu—O (№ 1; см. рис. 1) в переменном поле частотой 10 кГц и амплитудой 0.5 Э.

показывает, что интегральная кривая $\chi'_{-}(T)$ действительно является суперпозицией локальных кривых типа представленных на рис. 2, а и б. Незначительное смещение последних в область низких температур по сравнению с $\chi'_{-}(T)$ объясняется значительно большей амплитудой возбуждающего поля при измерении фотоотклика. Сравнение с эталоном Nb позволяет оценить долю мейсснеровского состояния $\sim 90\%$ при $T \sim 20$ К.

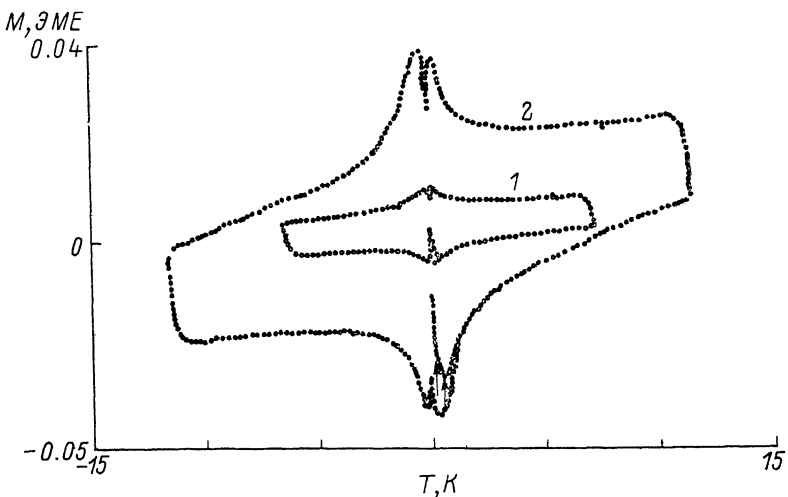


Рис. 5. Зависимость намагниченности от магнитного поля, перпендикулярного развинутой поверхности и базисной плоскости кристалла, при $T=20$ К для образцов Y—Ba—Cu—O (№ 1) и Bi—Sr—Ca—Cu—O (№ 3) (кривые 1, 2 соответственно).

Стрелки на кривой 2 начального намагничивания указывают положения точек перегиба.

При измерениях динамической магнитной восприимчивости наблюдались значительная нелинейность $\chi'_{-}(h)$ при малых амплитудах поля и частотная дисперсия $\chi'_{-}(\nu)$, свидетельствующие о наличии слабых связей при отсутствии двойников.

На рис. 5 представлены петли магнитного гистерезиса образцов № 1 и 3 в диапазонах полей соответственно ± 9.2 и ± 11.5 кЭ при температуре 20 К. Первое критическое поле H_{c1} может быть определено [12] по началу отклонения кривой первоначального намагничивания от так называемой «мейсснеровской линии», показывающему начало проникновения магнитного поля в образец. В образцах № 1 и 3 отклонение начиналось в полях $\sim 10 \div 15$ и ~ 130 Э соответственно, что с учетом эффектов усиления дает $H_{c1} \sim 60 \div 100$ и $H_{c1} \sim 370$ Э.

Следует отметить, что подобные оценки H_{c1} весьма приблизительны. Из рис. 5 видно, что на кривых первоначального намагничивания наблюдается несколько перегибов (на кривой 2 указаны стрелками), что соответствует наличию нескольких сверхпроводящих сред в монокристалле. Кроме того, образцы неоднородны по СП-свойствам и имеют сложную, неконтролируемую в процессе роста форму, учет которой с помощью приблизительной оценки размагничивающего фактора является неэффективным. Это существенно усложняет зависимость $M(H)$ и приводит

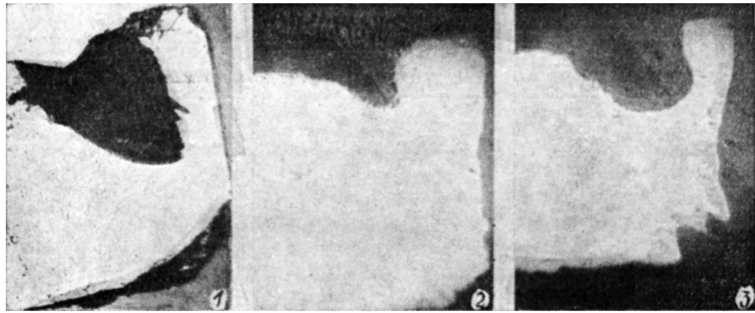


Рис. 6. Вхождение вихрей в монокристалл ВТСП через острые края.

1 — фотография фрагмента монокристалла (черные области — выемки, заостряющие края); 2, 3 — магнитооптические картины захваченного потока соответственно после снятия поля $+9$ кЭ и при приложении поля -130 Э в противоположном направлении.

к тому, что определяемое описанным способом критическое поле H_{c1} в значительной мере будет не фундаментальным параметром материала, а характеристикой данного образца, которая не может служить объективным критерием качества материала всего образца и использоваться для сравнения с материалом других образцов. Например, наличие клинообразного края у пластины низкотемпературного сверхпроводника облегчает вхождение вихрей в образец и соответственно понижает критическое поле и критический ток [13].

Рис. 6 иллюстрирует эффект острых краев в монокристалле ВТСП. На рис. 6, 1 приведена фотография монокристалла, в котором имеется конусообразная выемка (вершиной в глубину кристалла). Вследствие наклонного падения света она не освещена и на фотографии выглядит черной. Противоположный край кристалла также имеет клинообразную форму. На рис. 6, 2 представлено магнитооптическое изображение области, в которой захвачен магнитный поток после снятия поля $+9$ кЭ. При приложении поля в противоположном направлении вихри начинают входить в образец преимущественно через острые края (рис. 6, 3). Такая же картина наблюдается при первоначальном намагничивании, что приводит к отклонению от «мейсснеровской линии», обусловленному в данном случае наличием острого края. Аналогичный эффект возникает при наличии в кристалле участка с более слабыми СП-свойствами. В этом случае измеренная величина H_{c1} будет определяться наиболее «мягким» участком ВТСП-монокристалла.

Другим способом измерения H_{c1} является определение минимального поля, при котором появляется необратимость кривых намагничивания [13].

Основной особенностью измеренных петель магнитного гистерезиса (рис. 5) является заметный наклон восходящих ветвей в полях $H \gg H_{c1}$ (в образце № 3, например, M даже обращается в нуль при $H \sim 8.5$ кЭ), соответствующий парамагнитному вкладу в восприимчивость. Это могло бы быть связано с наличием редкоземельных ионов, фаз с низкой температурой СП-перехода и т. д., дающих при $T=20$ К парамагнитный отклик. Однако оценки показывают, что величина этого вклада недостаточна для объяснения наблюдаемого эффекта. Все остальные особенности кривых $M(H)$, включая заметное подавление сигнала вблизи $H=0$, подобны ранее наблюдавшимся в ВТСП-монокристаллах [14].

Величину критической плотности тока j_c можно оценить из магнитных измерений, используя предложенную Бином модель [11]. Согласно этой модели, в достаточно больших полях $H \gg H_p \gg H_{c1}$, когда образец находится в состоянии полного проникновения,

$$j_c = \frac{3}{2} c \Delta M(H)/r,$$

где c — скорость света; $\Delta M(H)$ — разность намагниченностей в поле H на восходящей и нисходящей ветвях магнитной петли, т. е. ширина петли при $H > H_p \gg H_c$; r — радиус образца в виде длинного цилиндра, находящегося в однородном СП-состоянии, ось которого параллельна полю. Это же соотношение обычно применяют для диска радиусом r . Если предположить, что количество структурных дефектов недостаточно велико для разбиения на независимые гранулы в прикладываемых полях, то в качестве r следует взять средний радиус монокристалла. Тогда для образца № 1 получим $j_c \sim 1.6 \cdot 10^4$ А/см², а для образца № 3 — $5.9 \cdot 10^3$ А/см². В противном случае, т. е. когда образец разбивается на отдельные гранулы, полученные оценки будут давать нижний предел для действительной величины j_c . Оценку сверху можно получить, полагая r равным предполагаемому размеру гранул (1—10 мкм), откуда получим $j_c \sim 8 \cdot 10^6 \div 8 \cdot 10^5$ А/см² для кристалла № 1 и $j_c \sim 5.3 \cdot 10^6 \div 5.3 \cdot 10^5$ А/см² для кристалла № 3. Заметим, что оценки критической плотности тока, полученные из петли гистерезиса и на основе магнитооптических данных о вытеснении захваченного потока из участков с максимальным пиннингом, довольно близки. Это обусловлено тем, что петли гистерезиса также дают информацию о наиболее «магнитно-жестких» участках неоднородного монокристалла.

Итак, приведенные в настоящей работе результаты позволяют сделать следующие заключения.

Монокристаллы системы $YBa_2Cu_{3-x}Al_yO_{6+x}$, несмотря на отсутствие двойников, согласно магнитооптическим исследованиям, существенно неоднородны по СП-свойствам, а характер их взаимодействия с магнитным полем свидетельствует о наличии в них джозефсоновской среды. Пространственное распределение СП-свойств в исследованных кристаллах коррелирует с вариацией параметра решетки c , зарегистрированной рентгеновской топографией. Неоднородность структуры может быть обусловлена неоднородностью состава — распределением кислорода, концентрации Al и т. д. Области с высокими значениями СП-параметров имеют значение параметра решетки c , соответствующее 7—8%-ному замещению ионов Cu^{2+} , Cu^{1+} ионами Al^{3+} . Это позволяет предположить, что эффективными центрами пиннинга могут быть комплексы « Al^{3+} + вакансии Cu + вакансии O », создающие локальные структурные напряжения в решетке. Области со слабыми СП-свойствами, по-видимому, имеют меньшую концентрацию Al^{3+} и, как следствие, меньшее заполнение кислородом базисной плоскости и большую плотность слабых связей с аномально малым пиннингом.

Анализ особенностей определения критических параметров (H_{c1} , j_c , T_c) в различных участках монокристаллов на основе визуализации процессов проникновения, захвата и вытеснения магнитного потока, а также изме

рения амплитуды колебаний доменных границ индикатора в переменном поле при изменении температуры, с одной стороны, и оценка критических параметров из данных по намагниченности и динамической магнитной восприимчивости, согласно данным интегральных индукционных методов, с другой стороны. показали, что интегральные методы отражают усредненные СП-свойства образца. При этом H_{c1} определяется самой «мягкой» фазой образца или наличием заостренного края, а в величину j_c наибольший вклад вносят самые «жесткие» участки образца. Это делает невозможным сравнение фундаментальных параметров образцов по определенным таким образом характеристикам. Локальные магнитооптические и индукционные интегральные методы определения критических параметров требуют привлечения модельных представлений и учета эффектов усиления внешнего поля, что в случае неоднородных образцов сложной неконтролируемой формы наталкивается на значительные трудности. В этом смысле критические параметры, определяемые как тем, так и другим методами, существенно зависят от выбора модели и учета размагничивания. Однако локальные магнитооптические методы позволяют в большей мере учесть влияние неоднородностей свойств и формы образца на критические параметры, создавая адекватное представление о качестве материала. Кроме того, локальные методы дают возможность прямыми методами убедиться в том, насколько отличается система протекания токов в образце от используемых моделей. Локальные магнитооптические методы позволяют проводить отбор образцов по их однородности и правильности формы. В принципе только на таких образцах правомерно проводить исследования фундаментальных параметров монокристаллов.

Авторы считают своим приятным долгом выразить искреннюю благодарность В. А. Саниной за участие в обсуждении результатов работы.

Работа поддерживается Научным советом по проблеме ВТСП и выполнена в рамках проекта 90054 Госпрограммы «Высокотемпературная сверхпроводимость».

С п и с о к л и т е р а т у р ы

- [1] Пан В. М. // ЖВХО им. Д. И. Менделеева. 1989. Т. 34. № 4. С. 509—518.
- [2] Мацущита Т., Ни Б., Ямафуджи К., Мураками М. и др. // СФХТ. 1990. Т. 3. № 5. С. 872—880.
- [3] Koblichka M. R., Moser N., Gegenheimer B., Kronmüller H. // Physica C. 1990. V. 166. N 1. P. 36—48.
- [4] Беляева А. И., Войцеля С. В., Юрьев В. П. // СФХТ. 1991. Т. 4. № 4. С. 925—930.
- [5] Головенчик Е. И., Морозов Н. В., Рувимов С. С., Санина В. А. и др. // СФХТ. 1990. Т. 3. № 5. С. 810—818.
- [6] Беляева А. И., Войцеля С. В., Потакова В. А., Юрьев В. П. // СФХТ. 1990. Т. 3. № 6. Ч. 2. С. 1189—1198.
- [7] Беляева А. И., Войцеля С. В., Сиренко В. А., Юрьев В. П. // ПТЭ. 1990. № 6. С. 150—152.
- [8] Дифракционные и микроскопические методы в материаловедении / Под ред. С. Амелинкса, Р. Геверса, Дж. Ван Ланде. М.: Металлургия, 1984. 504 с.
- [9] Левин А. А., Смолин Ю. И., Шепелев Ю. Ф. и др. // ФТТ. 1991. Т. 33. № 5. С. 1434—1442.
- [10] Головенчик Е. И., Санина В. А., Сапожникова Л. М. и др. // ФТТ. 1989. Т. 31. № 3. С. 285—287.
- [11] Bean C. P. // Rev. Mod. Phys. 1964. V. 36. N 1. P. 31—39.
- [12] Senoussi S., Oussena M., Ribault M., Collin G. // Phys. Rev. B. 1987. V. 36. N 7. P. 4003—4006.
- [13] Dutoit B., Rinderer L. // Helv. Phys. Acta. 1989. V. 62. N 6—7. P. 886—887.
- [14] Senoussi S., Oussena M., Collin G., Campbell I. A. // Phys. Rev. B. 1988. V. 37. N 16. P. 9792—9795.