

# Возможный механизм возникновения участка с отрицательным магнитосопротивлением гранулярного ВТСП

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

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

E-mail: dir@iph.krasn.ru

(Поступила в Редакцию 16 июля 2008 г.  
В окончательной редакции 10 ноября 2008 г.)

С целью выяснения механизма возникновения участка с отрицательным магнитосопротивлением гранулярного ВТСП исследованы полевые зависимости магнитосопротивления при 77.4 K образцов  $\text{Bi}_{1.8}\text{Pb}_{0.3}\text{Sr}_{1.9}\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$  различной плотности, имеющих микроструктуру „пены“ и обладающих различными значениями диамагнитного отклика. Обнаружено, что участок с отрицательным магнитосопротивлением наблюдается в образцах с наибольшими по модулю значениями намагниченности. Такое поведение адекватно объясняется влиянием дипольных моментов ВТСП кристаллитов на эффективное поле в межгранульной среде. Оценена величина этого эффективного поля.

Работа выполнена в рамках программы РАН № 3.4 „Квантовая макрофизика“ и комплексного интеграционного проекта СО РАН № 3.4. Один из авторов (Д.А.Б.) благодарит фонд содействия отечественной науке.

PACS: 74.81.Fa, 74.50.+r

## 1. Введение

Известно, что зависимость электросопротивления от внешнего магнитного поля  $R(H)$  гранулярных высокотемпературных сверхпроводников (ВТСП) в некоторых случаях демонстрирует участок с отрицательным магнитосопротивлением (ОМС) [1–6]. В гранулярных ВТСП межгранульные границы играют роль джозефсоновских слабых связей. Поэтому их критические параметры (плотность критического тока, первые и вторые критические поля  $H_{C1J}$ ,  $H_{C2J}$ ) намного меньше таковых для ВТСП-гранул. И в большинстве экспериментов транспортный ток не вызывает процессов диссипации в сверхпроводящих кристалликах [3–9]. Хотя в работах [2,3] было указано, что участок ОМС на зависимости  $R(H)$  связан с перераспределением магнитного потока в межгранульных границах в районе первого критического поля гранул  $H_{C1G}$ , тем не менее условия возникновения данной особенности к настоящему времени не выяснены. Зависимость  $R(H)$  фактически отражает резистивный отклик системы межгранульных границ на эффективное поле в межгранульной среде  $B_{\text{eff}}$ , которое является суперпозицией внешнего поля (при  $H \geq H_{C1J}$ ) и поля, наведенного дипольными моментами ВТСП-кристаллитов [10,7,3,9,11]. Чтобы оценить величину индукции магнитного поля в межгранульной среде  $B_{\text{eff}}$  и прояснить механизм, приводящий к появлению участка с ОМС на зависимости  $R(H)$ , целесообразно, на взгляд авторов, исследовать поликристаллические образцы ВТСП одного состава, но с модифицированной микроструктурой и с различными значениями диамагнитного отклика.

В настоящей работе были исследованы магниторезистивные свойства висмутовых ВТСП различной плот-

ности, которые обладают различными значениями диамагнитного отклика, и впервые обнаружена корреляция между существованием участка с ОМС и величиной намагниченности образца. Указанные объекты относятся к классу пенообразных ВТСП [12] с характерной хлопьевидной структурой кристаллитов и имеют микропоры [13]. Ранее были исследованы магнитные свойства [14], вольт-амперные характеристики в отсутствие внешнего поля [15] и резистивный переход в магнитном поле [16] данных образцов. Поэтому данные исследования являются также и логическим продолжением указанных работ.

## 2. Эксперимент

Образцы для измерений — ВТСП микропены  $\text{Bi}_{1.8}\text{Pb}_{0.3}\text{Sr}_{1.9}\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$  были получены по технологии, описанной в работах [13,15,16]. Там же приведена микроструктура этих образцов, которая показала, что образцы состоят из хаотически расположенных пластинчатых кристаллитов с линейными размерами 20–30  $\mu\text{m}$  и толщиной 1–2  $\mu\text{m}$ . Исследовались образцы с плотностью 2.26 и 1.55  $\text{g}/\text{cm}^3$  (38 и 26% от теоретической плотности соответственно). Обозначим эти образцы далее как foam 1 ( $2.26 \text{ g}/\text{cm}^3$ ) и foam 2 ( $1.55 \text{ g}/\text{cm}^3$ ). В качестве репера был синтезирован плотный образец того же состава (обозначен далее как poly-Bi). Он был приготовлен из микропены путем перемалывания, прессования с последующим спеканием при той же температуре, что и „пены“ ( $825^\circ\text{C}$ ), в течение 5 h. Плотность образца poly-Bi составила  $5.28 \text{ g}/\text{cm}^3$  (90% от теоретической). Сканирующая электронная микроскопия этого образца

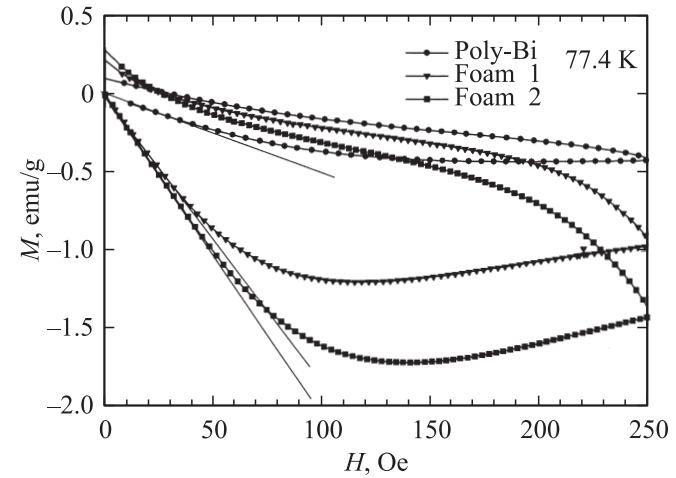
показала отчетливую гранулярную микроструктуру, линейные размеры кристаллитов уменьшились по сравнению с таковыми в микропенах ( $5\text{--}10\mu\text{m}$ ), в то же время увеличилась доля мелких кристаллитов (до  $\sim 5\mu\text{m}$ ). Рентгеноструктурные исследования образцов показали, что доминирующей является фаза 2-2-2-3, доля низкотемпературной фазы 2-2-2-1 составляет менее 5%. Из магнитных измерений температура перехода всех трех образцов составила 108 K, температура перехода в состояние „ $R = 0$ “ из резистивных измерений составила 106 K.

Измерения магнитосопротивления  $R(H) = U(H)/I$ , где  $U$  — падение напряжения на образце,  $I$  — транспортный ток,  $\mathbf{H} \perp \mathbf{I}$ , были проведены стандартным четырехзондовым методом. Типичный размер образца  $1 \times 1.5 \times 8\text{ mm}$ . Электрические контакты приготавливались с помощью клея Epo-Tek H20E на основе эпоксидной смолы. Во время измерений образец находился в среде жидкого азота. Плотность критического тока при  $T = 77.4\text{ K}$ , определенная по критерию  $1\mu\text{V}/\text{cm}$ , составила  $\approx 0.5, 35$  и  $80\text{ A/cm}^2$  для образцов foam 2, foam 1 и poly-Bi соответственно (транспортный критический ток  $I_C$  через образец составлял соответственно 15, 600 и  $410\text{ mA}$ ). Величина удельного электросопротивления при  $120\text{ K}$  (выше  $T_C$ ) примерно одинакова для всех образцов и составляет  $\sim 1.6\Omega\cdot\text{cm}$ . Данные по  $R(H)$  приведены в  $\text{m}\Omega$ . Величины магнитосопротивления при  $77.4\text{ K}$  в полях более  $1\text{ kOe}$  и транспортных токах  $500\text{--}700\text{ mA}$  составляют около 10% от  $R(120\text{ K})$ . Образцы охлаждались в условиях нулевого замороженного поля (специальных мер по экранированию поля Земли не предпринималось). После каждого цикла измерения до некоторого максимального поля  $H_\uparrow \rightarrow H_{\max}$ , а затем до  $H_\downarrow \rightarrow 0$  ( $H_\uparrow$  и  $H_\downarrow$  соответствуют возрастающему и убывающему полю) образец отогревался выше  $T_C$ .

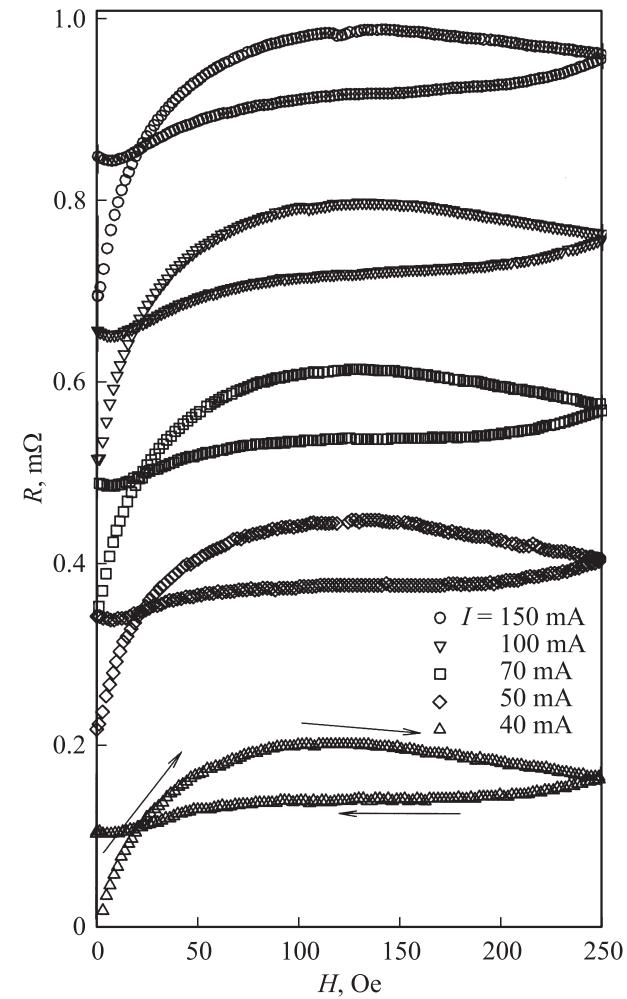
Измерения намагниченности образцов проводились на вибрационном магнетометре [17]. Использовались те же самые образцы, на которых были проведены измерения  $R(H)$ : из них вырезалась центральная часть (которая соответствовала „рабочей“ части между потенциальными контактами).<sup>1</sup>

### 3. Результаты и обсуждение

На рис. 1 приведены петли гистерезиса намагниченности  $M(H)$  при  $T = 77.4\text{ K}$  исследованных образцов. Видно, что пористые образцы обладают большими значениями намагниченности, чем „реперный“ образец poly-Bi. Такое поведение обнаружено ранее [13,14] и может быть связано по крайней мере с двумя факторами. Во-первых, в микропене большие линейные размеры кристаллитов,

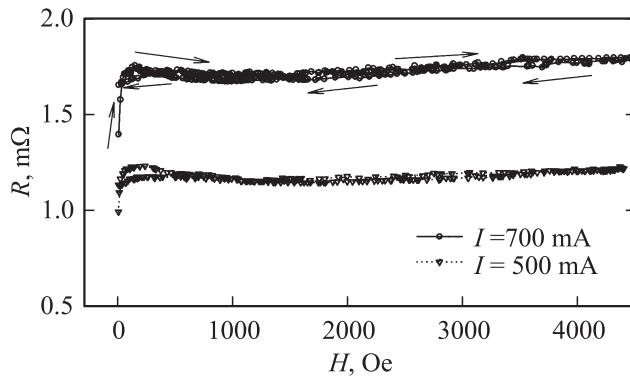


**Рис. 1.** Гистерезисные зависимости намагниченности исследованных образцов при  $T = 77.4\text{ K}$ .



**Рис. 2.** Гистерезисные зависимости магнитосопротивления  $R(H)$  образца foam 2 при  $T = 77.4\text{ K}$ ,  $H_{\max} = 250\text{ Oe}$  и различных величинах транспортного тока  $I$ . Стрелки указывают направление изменения внешнего поля  $H$ .

<sup>1</sup> Авторы не обнаружили кардинального влияния (не более 10%) формы образца (цилиндр, пластина) при  $\mathbf{H} \perp$  оси цилиндра или  $\mathbf{H} \perp$  плоскости пластины на форму и максимальное значение зависимости  $M(H)$ ; при оценке эффективного поля в межгранульной среде влияние размагничивающего фактора образца незначительно для исследованных образцов.



**Рис. 3.** Гистерезисные зависимости  $R(H)$  образца foam 2 при  $T = 77.4$  К,  $H_{\max} \approx 4.4$  кОе и различных значениях транспортного тока  $I$ . Стрелки указывают направление изменения внешнего поля  $H$ .

что приводит к увеличению диамагнитного сигнала от внутригранульного тока. Во-вторых, в плотной керамике может быть частичная экранировка кристаллитов, находящихся в глубине образца, отсутствующая в пористом образце. Механизмы увеличения диамагнитного отклика в данных микропенах будут проанализированы в отдельной работе, а далее основное внимание уделим взаимосвязи гистерезисных зависимостей намагниченности и магнитосопротивления  $R(H)$ .

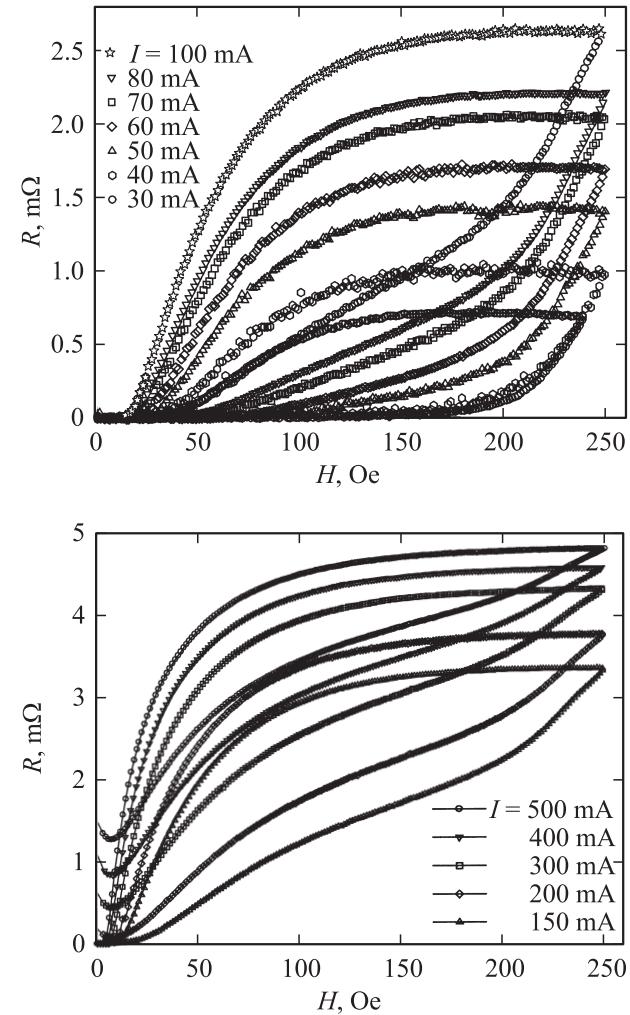
На рис. 2 приведены зависимости  $R(H)$  образца foam 2 при различных величинах транспортного тока  $I$  в полях до 250 Ое при  $T = 77.4$  К. Эти зависимости обладают рядом интересных особенностей. Во-первых, это ярко выраженный гистерезис при увеличении/уменьшении внешнего поля  $H$ . Во-вторых, на прямом ходу зависимость  $R(H)$  имеет выраженный максимум, после которого следует участок с ОМС. При дальнейшем увеличении внешнего поля, проходя через минимум, зависимость  $R(H)$  начинает слабо возрастать (рис. 3). Также отметим, что зависимости  $R(H)$  на рис. 2, 3 начинают ход с точки  $R(H = 0) \neq 0$ . Указанное обстоятельство является следствием того, что для данного образца измерительный ток  $I$  больше критического  $I_C(H = 0)$  ( $I_C \approx 15$  мА).

Зависимости  $R(H)$  для образца foam 1 приведены на рис. 4. Эти зависимости также характеризуются гистерезисом, однако выраженного участка ОМС не наблюдается. При достаточно низких величинах транспортного тока ( $I = 30$ – $40$  мА) можно различить очень небольшое уменьшение сопротивления с ростом внешнего поля, при больших значениях  $I$  в диапазоне  $H = 150$ – $250$  Ое сопротивление практически не меняется (в больших полях  $R$  также возрастает, подобно данным рис. 3).

Для плотного образца poly-Bi гистерезисные зависимости  $R(H)$  не имеют участка с ОМС, что показано на рис. 5. Данные рис. 5 получены как при условиях  $I < I_C(H = 0)$ , так и при  $I > I_C(H = 0)$ . Как следует из наших измерений, в интервале полей 0.25–1.5 кОе эти зависимости продолжают возрастать.

Исходя из полученных данных по  $R(H)$  и зависимостей  $M(H)$  (рис. 1), можно однозначно заключить, что участок с ОМС наблюдается в образце с наибольшим значением диамагнитного отклика. Величина внешнего поля, при котором наблюдается локальный максимум магнитосопротивления  $\sim 130$  кОе, коррелирует с полем минимума прямого хода зависимости  $M(H)$  ( $\sim 140$  Ое). Для описания полученного результата рассмотрим качественно картину полей в межгранульной среде.

Пусть две соседние гранулы обладают дипольными моментами  $\mathbf{M}_G(H)$  и в межгранульном промежутке направление транспортного тока перпендикулярно внешнему полю. Если внешнее поле возрастает, то векторы  $\mathbf{M}_G$  направлены против внешнего поля [9,11]. Тогда поле, индуцированное дипольными моментами гранул в промежутке между гранулами  $\mathbf{B}_{\text{ind}}$ , будет усиливать внешнее поле,  $\mathbf{B}_{\text{ind}} \parallel \mathbf{H}$  (линии магнитной индукции от  $\mathbf{M}_G$  замыкаются через межгранульную границу [9,11]). Для эффективного поля в межгранульной



**Рис. 4.** Гистерезисные зависимости  $R(H)$  образца foam 1 при  $T = 77.4$  К,  $H_{\max} = 250$  Ое и различных величинах транспортного тока  $I$ .

среде  $\mathbf{B}_{\text{eff}}$  можно записать  $\mathbf{B}_{\text{eff}} = \mathbf{H} + \mathbf{B}_{\text{ind}}$ ; значит,

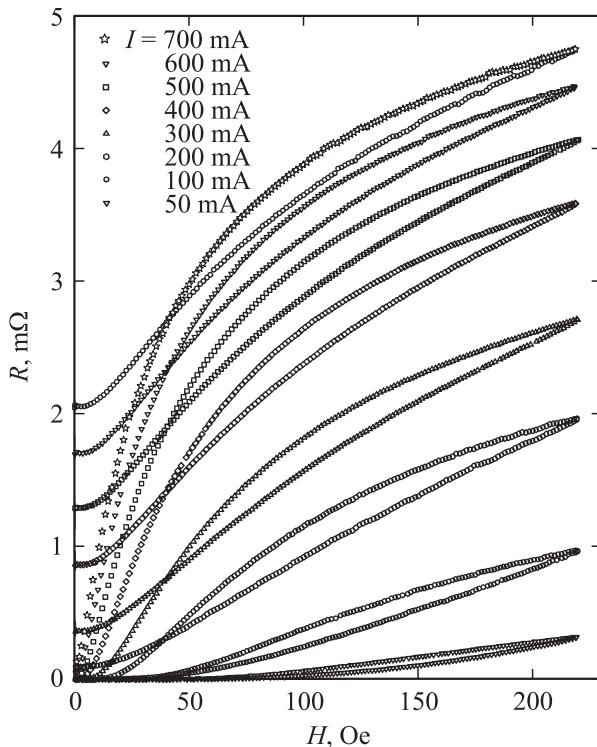
$$\mathbf{B}_{\text{eff}} = \mathbf{H} + 4\pi\mathbf{M}_G \alpha, \quad (1)$$

где  $\alpha$  — коэффициент, определяющийся влиянием размагничивающих факторов гранул и размерами межгранулярных промежутков. Величины  $\mathbf{M}_G$  и  $\alpha$  неизвестны. Однако для анализа эффективного поля можно использовать экспериментальные данные по намагниченности  $M(H)$  образцов. В этом случае выражение (1) можно переписать в виде

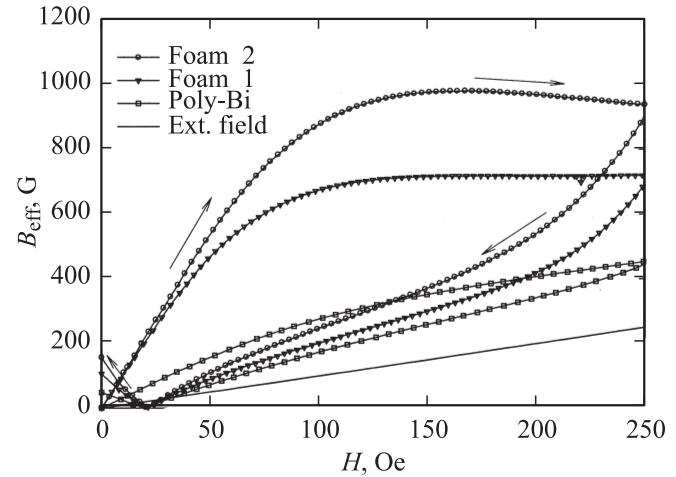
$$\mathbf{B}_{\text{eff}} = \mathbf{H} + 4\pi\mathbf{M}(H)\alpha(H), \quad (2)$$

где  $M$  — намагниченность образца (в единицах G),  $\alpha$  в общем случае — функция  $H$ . Выражение (2) объясняет гистерезисное поведение магнитосопротивления, поскольку из данных рис. 1  $|M(H_{\uparrow})| > |M(H_{\downarrow})|$ , поэтому  $\mathbf{B}_{\text{eff}}(H_{\downarrow}) > \mathbf{B}_{\text{eff}}(H_{\uparrow})$ ; следовательно,  $R(H_{\uparrow}) > R(H_{\downarrow})$ . Минимум или нулевое значение магнитосопротивления в области малых полей  $H_{\downarrow}$  имеет место, когда индуцированное поле преобладает над внешним:  $|\mathbf{B}_{\text{ind}}| > |\mathbf{H}|$ . Ясно, что максимум диамагнитного отклика на зависимости  $M(H_{\uparrow})$  может проявиться и на зависимости  $B_{\text{eff}}(H_{\uparrow})$  как локальный максимум; следовательно, магнитосопротивление также будет иметь локальный максимум и далее участок с ОМС.

На рис. 6 приведены зависимости эффективного поля в межгранулярной среде от внешнего поля, построенные для исследованных образцов с помощью выражения (2)



**Рис. 5.** Гистерезисные зависимости  $R(H)$  образца poly-Bi при  $T = 77.4$  K,  $H_{\max} = 250$  Ое и различных величинах транспортного тока  $I$ .



**Рис. 6.** Эффективное поле в межгранулярной среде  $\mathbf{B}_{\text{eff}} = |\mathbf{H} + 4\pi\mathbf{M}(H)\alpha|$ , рассчитанное из экспериментальных зависимостей  $M(H)$  (рис. 1), в зависимости от внешнего поля для исследованных образцов. Стрелки указывают направление изменения внешнего поля  $H$ .

с учетом экспериментальных зависимостей  $M(H)$  (для пересчета единиц измерения в G использовалась теоретическая плотность Bi2223, поскольку поры не вносят вклада в диамагнитный отклик). В первом приближении мы взяли  $\alpha = \text{const}$ . Оказалось, что локальный максимум на зависимости  $B_{\text{eff}}(H_{\uparrow})$  для образца foam 2 появляется при  $\alpha > 6$ . Зависимости  $B_{\text{eff}}(H_{\uparrow})$  построены при одинаковом значении  $\alpha = 6.5$  для всех образцов.<sup>2</sup> Из рис. 5 видно, что при таком значении  $\alpha$  зависимости  $B_{\text{eff}}(H)$  удовлетворительно согласуются с зависимостями  $R(H)$ : появление локального максимума для образца foam 2, слабо выраженный локальный максимум для образца foam 1 и отсутствие такового для образца poly-Bi. Абсолютная величина диамагнитного отклика ВТСП-гранул вносит основной вклад в эффективное поле в межгранулярной среде и в конечном счете влияет на магнитосопротивление и существование участка с ОМС. И это является принципиальным дополнением к объяснению механизма возникновения участка с ОМС на зависимости  $R(H)$  гранулярного ВТСП. Магнитосопротивление может демонстрировать локальный максимум в поле, близком к минимуму зависимости  $M(H_{\uparrow})$ , а не в районе поля первого проникновения вихрей в грануле  $H_{C1G}$ , как указано в работах [2,3]. Величина  $H_{C1G}$ , оцененная из данных рис. 1, как поле, при котором зависимость  $M(H_{\uparrow})$  начинает отклоняться от линейного хода, составляет  $\sim 30-40$  Ое для исследованных образцов (рис. 1). В то же время величины внешнего поля  $H_{\uparrow}$ , при которых зависимости  $B_{\text{eff}}(H)$  и  $R(H)$  имеют максимумы, близки (рис. 2, 4, 5).

<sup>2</sup> В случае образцов foam 1 и foam 2 это справедливо, поскольку границами в микропенах являются плоскости спайности сверхпроводящих кристаллитов и они идентичны для этих образцов; в образце poly-Bi геометрия межгранулярных границ изменилась, и  $\alpha$ , возможно, принимает другое значение. Однако на вывод работы это не влияет.

Обратим внимание на то, что величина эффективного поля в межгранулярной среде гранулярного ВТСП значительно больше и внешнего поля, и намагниченности самого образца (в единицах G) (рис. 5). Мы считаем это проявлением сжатия магнитного потока в межгранулярной среде гранулярного ВТСП, которое предполагалось в ряде работ [3,18], однако до сих пор этому не было экспериментального подтверждения.

Таким образом, в ходе исследования магниторезистивных свойств микропен  $\text{Bi}_{1.8}\text{Pb}_{0.3}\text{Sr}_{1.9}\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$  различной плотности обнаружена корреляция между существованием участка с ОМС на зависимости  $R(H)$  и величиной диамагнитного отклика. Возникновение участка ОМС определяется влиянием поля, индуцированного dipольными моментами ВТСП гранул, на эффективное поле в межгранулярных границах и характерно для образцов с большим значением диамагнитного отклика. Оценена степень сжатия магнитного потока в межгранулярных границах.

## Список литературы

- [1] Y.J. Quian, Z.M. Yang, K.Y. Chen, B. Zhou, J.W. Qiu, B.C. Miao, Y.M. Cai. Phys. Rev. B **39**, 7, 4701 (1989).
- [2] Sun Shifang, Zhao Yong, Pan Guoqian, Yu Daoq, Zhang An, Chen Zuyao, Qian Yitai, Kuanw Eiyen, Zhang Qirui. Europhys. Lett. **6**, 4, 359 (1988).
- [3] D. Daghero, P. Mazzetti, A. Stepanescu, P. Tura, A. Masoero. Phys. Rev. B **66**, 13, 11478 (2002).
- [4] Н.Д. Кузьмичев. Письма в ЖЭТФ **74**, 5, 291 (2001).
- [5] В.В. Деревянко, Т.В. Сухарева, В.А. Финкель. ФТТ **46**, 10, 1740 (2004).
- [6] Т.В. Сухарева, В.А. Финкель. ФТТ **50**, 6, 961 (2008).
- [7] L. Ji, M.S. Rzchowski, N. Anand, M. Tinkham. Phys. Rev. B **47**, 470 (1993).
- [8] C. Gaffney, H. Petersen, R. Bednar. Phys. Rev. B **48**, 3388 (1993).
- [9] Д.А. Балаев, Д.М. Гохфельд, А.А. Дубровский, С.И. Попков, К.А. Шайхутдинов, М.И. Петров. ЖЭТФ **132**, 6 (12), 1340 (2007).
- [10] J.E. Evetts, B.A. Glowacki. Cryogenics **28**, 641 (1988).
- [11] Д.А. Балаев, А.А. Дубровский, С.И. Попков, К.А. Шайхутдинов, М.И. Петров. ФТТ **50**, 6, 972 (2008).
- [12] E.S. Reddy, G.J. Schmitz. Supercond. Sci. Technol. **15**, 21 (2002).
- [13] 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**, 23, 40 (2003).
- [14] D.M. Gokhfeld, D.A. Balaev, S.I. Popkov, K.A. Shaihutdinov, M.I. Petrov. Physica C **434**, 135 (2006).
- [15] Д.А. Балаев, И.Л. Белозерова, Д.М. Гохфельд, Л.В. Кашкина, Ю.И. Кузьмин, К. Мигель, М.И. Петров, С.И. Попков, К.А. Шайхутдинов. ФТТ **48**, 2, 193 (2006).
- [16] K.A. Shaykhutdinov, D.A. Balaev, S.I. Popkov, A.D. Vasilyev, O.N. Martyanov, M.I. Petrov. Supercond. Sci. Technol. **20**, 491 (2007).
- [17] А.Д. Балаев, Ю.В. Бояршинов, М.И. Карпенко, Б.П. Хрусталев. ПТЭ **3**, 167 (1985).
- [18] M.N. Kunchur, T.R. Akew. J. Appl. Phys. **84**, 12, 6763 (1998).