

# Гармоники намагниченности текстурированных поликристаллов $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ выше температуры перехода в сверхпроводящее состояние

© Н.Д. Кузьмичев, В.В. Славкин\*

Мордовский государственный университет им. Н.П. Огарева,  
430000 Саранск, Россия

\* Саранский кооперативный институт (Филиал Российского университета кооперации),  
430027 Саранск, Россия

E-mail: kuzmichevnd@rambler.ru

(Поступила в Редакцию 3 октября 2006 г.  
В окончательной редакции 7 февраля 2007 г.)

Выполнены экспериментальные исследования температурной зависимости третьей и других высших гармоник намагниченности текстурированных поликристаллических образцов  $YBa_2Cu_3O_{7-x}$  в температурной области 77–120 К. Обнаружено, что нелинейность намагниченности  $YBa_2Cu_3O_{7-x}$  наблюдается до температур, значительно превосходящих температуру перехода в сверхпроводящее состояние. Наблюдаемая нелинейность намагниченности  $YBa_2Cu_3O_{7-x}$  связывается с возникновением в этом соединении псевдощелевого состояния при  $T \sim 102$  К.

Работа выполнена при поддержке Рузаевского института машиностроения Мордовского госуниверситета им. Н.П. Огарева.

PACS: 74.70.-b, 74.25.Na, 05.45.-a

## 1. Введение

В настоящее время активно обсуждается псевдощелевая структура высокотемпературных сверхпроводников (ВТСП) [1–6]. В различных экспериментах наблюдаются особенности физических свойств ВТСП, которые связываются с существованием псевдощели выше температуры перехода в сверхпроводящее состояние  $T_c$  [7]. В соединении  $YBa_2Cu_3O_{7-x}$  (YBCO) псевдощель ранее наблюдалась в измерениях оптической проводимости [8], в экспериментах по неупругому рассеянию нейтронов [9], методами ЯМР и ЯКР [10], по отклонению температурной зависимости сопротивления от линейной зависимости [11–13].

## 2. Образцы и методика эксперимента

Нами проведены экспериментальные исследования температурной зависимости первой, третьей и других высших гармоник намагниченности текстурированного поликристалла YBCO в интервале температур  $77 < T < 120$  К. Экспериментальные данные в работе приведены в основном для третьей гармоники.

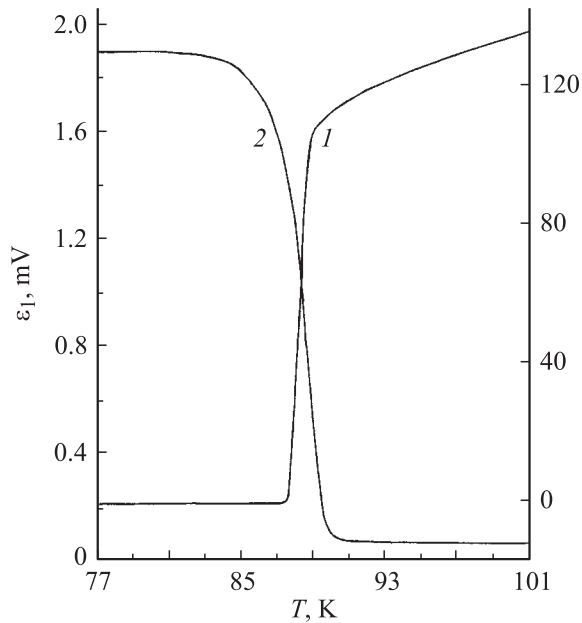
Сверхпроводящие образцы имели форму пластин. Они были вырезаны из плавленной текстурированной заготовки поликристалла так, что ось  $c$  направлена перпендикулярно плоскости пластины. Заготовки синтезировались с помощью затравки, которая устанавливалась сверху при высокой температуре. Выбор совершенного монодоменного участка поликристалла осуществлялся при помощи оптического микроскопа в поляризованном свете и при помощи картографии замороженного магнитного потока.

Монодоменный участок вырезался алмазной фрезой. Образцы имели размеры  $16 \times 13 \times 8$  mm (образец № 1),  $14 \times 10 \times 2$  mm (образец № 2) и  $16 \times 8 \times 2.5$  mm (образец № 3);  $T_c = 88$ – $89$  К и ширину перехода в сверхпроводящее состояние  $\Delta K \approx 1$  К. Плотность образцов составляла  $\approx 6$  g/cm<sup>3</sup>. Для дополнительной аттестации были выполнены измерения температурных зависимостей сопротивления и магнитной восприимчивости исследуемых образцов. На рис. 1 показаны результаты измерения температурной зависимости сопротивления  $R(T)$  текстурированного поликристалла YBCO (образец № 1) на переменном токе ( $f = 1$  kHz,  $I = 125$  mA), полученные четырехзондовым методом. На этом же рисунке приведена температурная зависимость первой гармоники  $\varepsilon_1(T)$  ( $\varepsilon_1$  пропорциональна магнитной восприимчивости образца) для  $h = 1$  Ое и  $f = 60$  Hz. Аналогичные результаты получены и для других образцов.

В работе использовался двухкатушечный компенсационный метод измерения намагниченности [14–16]. Синусоидальный сигнал частотой  $\omega$  с генератора (коэффициент гармоник 0.005%) подавался на входную (первичную) катушку. Внутри ее были расположены две одинаковые встречно намотанные выходные (вторичные) катушки индуктивности, в одной из которых находился образец. Сигнал отклика  $\varepsilon(t)$  с выходных катушек подавался на вход селективного вольтметра. Величина сигнала отклика  $\varepsilon(t)$ , т.е. ЭДС, возникающая во вторичных катушках, выражается формулой [15]

$$\varepsilon(t) = -\mu_0 NS \frac{dM}{dt}. \quad (1)$$

Здесь  $M = \frac{1}{V} \int V M dS dz$  — намагниченность образца;  $S = S \cdot n$ ;  $S$  — сечение образца;  $n$  — единичный век-



**Рис. 1.** Температурная зависимость сопротивления  $R(T)$  текстурированного поликристалла YBCO (образец № 1) на переменном токе ( $f = 1$  kHz) 125 мА, полученная четырехзондовым методом (1) и температурная зависимость первой гармоники  $\varepsilon_1(T)$  (образец № 1) для  $h = 1$  Ое и  $f = 60$  Hz (2).

тор, направленный перпендикулярно плоскости сечения образца по оси  $z$ ;  $\mathbf{M}$  — вектор намагниченности образца;  $N$  — число витков приемной катушки;  $\mu_0 = 4\pi \cdot 10^{-7}$  Н/м — магнитная постоянная и  $V$  — объем образца.

Исследовались гармоники  $\varepsilon_n$  сигнала отклика  $\varepsilon$ , возникающего на вторичных катушках с поликристаллов YBCO при воздействии на него переменного магнитного поля первичной катушки ( $H(t) = h \cdot \cos(\omega t)$ , где  $h$  — амплитуда напряженности переменного поля,  $\omega = 2\pi f$  — циклическая частота поля).

Величины  $\varepsilon_n$  пропорциональны амплитудам гармоник намагниченности  $M_n$  ( $\varepsilon_n = \mu_0 N S \omega M_n / \sqrt{2}$ ) [17]:

$$M_n = 2 \sum_{m=0}^{\infty} \frac{1}{m!(m+n)!} \left(\frac{h}{2}\right)^{2m+n} \frac{d^{2m+n} M(0)}{dH^{2m+n}}. \quad (2)$$

Здесь  $n$  — номер гармоники;  $\varepsilon_n$  — напряжение  $n$ -й гармоники;  $d^{2m+n} M(0)/dH^{2m+n}$  — производная по  $H$  (напряженности магнитного поля) от намагниченности  $M(H)$  порядка  $2m+n$ , вычисленная для  $H = 0$ . Формула (2) справедлива в отсутствие гистерезиса в  $M(H)$ .

Система, состоящая из катушек с образцом и платиновым термометром, помещалась в массивную медную „бомбу“. Измерения проводились в парах азота в режиме отогрева (в температурном интервале  $78 \leq T \leq 120$  К). Скорость изменения температуры была меньше 0.2 К/мин. Измерения проводились в нулевом постоянном поле. Переменное магнитное поле имело частоту  $f = 60$  Hz и амплитуду  $h$  в ин-

тервале от 0 до 100 Ое. В экспериментах по исследованию температурных зависимостей высших гармоник измерялся модуль ЭДС  $\varepsilon_n$  этих гармоник, равный  $\varepsilon_n = [(\varepsilon_n')^2 + (\varepsilon_n'')^2]^{1/2}$  ( $n = 1, 3, 5, \dots$ ). Отношение сигнал/шум  $\approx 3$ .

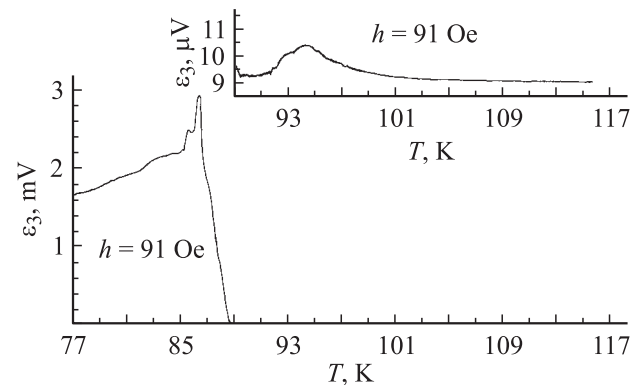
### 3. Результаты эксперимента

Полученные экспериментальные данные приведены на рис. 2. Здесь показана температурная зависимость ЭДС третьей гармоники  $\varepsilon_3$  образца № 1 в переменном магнитном поле при  $h = 91$  Ое и  $f = 60$  Hz. Из рисунка видно, что зависимость  $\varepsilon_3(T)$  выше температуры  $T_c$  в интервале от 92 до 102 К отлична от нуля и имеет особенность. Специально введенная малая раскомпенсация выходного сигнала показала, что нелинейность носит диамагнитный характер (рис. 2). Амплитуда третьей гармоники ниже  $T_c$  существенно превышает амплитуду этой же гармоники в „псевдощелевой“ области температур. Так, отношение амплитуд третьей гармоники при температурах 78 и 94 К  $\varepsilon_3(78 \text{ К})/\varepsilon_3(94 \text{ К}) \approx 160$ . Отметим, что для образца № 3 это отношение  $\approx 20$  при температурах 84 и 97 К.

Аналогичные результаты наблюдались и на других текстурированных поликристаллах, предварительные данные о которых опубликованы впервые в работе [18], а затем в [19]. Всего с учетом данных настоящей работы исследовалось пять текстурированных поликристаллов.

Таким образом, нелинейность намагниченности исследуемых текстурированных поликристаллов YBCO наблюдается до температур  $T \approx 102$  К. В этой области температур наблюдаются также и следующие нечетные гармоники с уменьшающейся амплитудой.

Исследования, выполненные на керамическом (нетекстурированном) образце YBCO, имеющем  $T_c \approx 92$  К и  $\rho \approx 4.2$  г/см<sup>2</sup>, показали отсутствие указанной нелинейности выше  $T_c$  в пределах ошибки измерений.



**Рис. 2.** Температурная зависимость третьей гармоники ЭДС  $\varepsilon_3$  образца № 1 в переменном магнитном поле для  $h = 91$  Ое и  $f = 60$  Hz.

#### 4. Обсуждение полученных результатов

Из сравнения рис. 1 и 2 видно, что нелинейность намагниченности выше  $T_c$  наблюдается в области отклонения сопротивления от линейной температурной зависимости.

В рамках существующих моделей магнитных свойств ВТСП полученные результаты объяснить затруднительно. По нашему мнению, эти данные объясняются псевдощелевой структурой ВТСП, которая может приводить к нелинейности намагниченности. В этом случае температура возникновения псевдощели  $T^*$  в наших образцах YBCO составляет примерно 102 К (так как выше 102 К нелинейность не наблюдается в пределах ошибки измерений). Полученное значение  $T^*$  хорошо согласуется с данными [11,12]. Авторы работы [11] наблюдали резкий спад сопротивления (отклонение от линейного хода) в образце керамики YBaCuO при  $T = 102$  К. Какие-либо литературные данные об исследовании гармоник намагниченности выше  $T_c$  высококачественных массивных образцов YBCO нам неизвестны.

Существует два основных подхода к вопросу о происхождении псевдощели [5–7]: 1) псевдощель имеет сверхпроводящую природу, т.е. ее источником являются флуктуации „сверхпроводящих“ пар (возникает „сверхпроводящая“ псевдощель); 2) ее источником являются флуктуации ближнего порядка „диэлектрического“ типа (т.е. возникает „диэлектрическая“ псевдощель).

Однозначного ответа на этот вопрос пока нет. Рассматривались также модели, в которых в кристалле ВТСП по разным направлениям импульсного пространства возникают обе псевдощели — и „диэлектрическая“, и „сверхпроводящая“ [5].

В первом подходе считается, что при некоторой температуре  $T^* > T_c$  образуются некогерентные „сверхпроводящие“ пары, а когерентность в объеме образца и соответственно „настоящее“ сверхпроводящее состояние устанавливаются при  $T_c$ . Намагниченность будет нелинейной вследствие влияния магнитного поля на фазовую когерентность таких пар. В этом случае наличие „сверхпроводящих“ пар при  $T_c < T < T^*$  должно отражаться на температурной зависимости намагниченности образца. В псевдощелевой области, согласно работе [20], наблюдаются диамагнитные флуктуации и аномально большой эффект Нерста [21,22], который может быть связан с возбуждениями в виде вихрей при температурах  $T > T_c$  [6,22,23]. Вихревые элементарные возбуждения приводят к потере фазовой когерентности. В отсутствие фазовой когерентности выше  $T_c$  циркулярные орбитальные токи могут приводить, согласно [24], к значительному диамагнитизму (нелинейному эффекту Мейснера) [20].

Рассмотрим данную концепцию более подробно. Согласно [23,25], куперовские пары при кулоновском отталкивании образуются с большим импульсом. Это возможно при отсутствии транспортного тока в том

случае, если куперовские пары будут сгруппированы в систему вихрей (орбитальных токов) с противоположными циркуляциями. Внешнее магнитное поле влияет на такую систему нелинейным образом. Проникающее в образец внешнее магнитное поле, согласно закону электромагнитной индукции, будет создавать в образце экранирующие токи. Незатухающими будут токи, созданные куперовскими парами. Это явление подобно эффекту Мейснера [26,27] или явлению критического состояния (например, по модели Бина) [26,28–30]. Экранирующий эффект является диамагнитным. Экранирующий ток в обоих случаях создается теми же куперовскими парами, которые образуют вихри (орбитальные токи). Другими словами, как будто внешнее магнитное поле „перекачивает“ куперовские пары из системы вихрей в экранирующий ток, и в результате при обоих типах экранировки эффект будет нелинейным. Например, с ростом поля увеличиваются экранирующий ток и соответственно количество куперовских пар, участвующих в образовании данного тока. Аналогичное явление для экранирующего тока в модели критического состояния рассмотрено в работах [29,30]. Глубина проникновения поля  $\lambda$  будет зависеть от напряженности поля  $H$  и в результате будет наблюдаться нелинейный эффект Мейснера. Действительно, экранирующий ток, образованный куперовскими парами, имеет вид [26,27]  $j_s = \frac{H}{\lambda} e^{-\frac{x}{\lambda}}$ , где  $H$  — напряженность внешнего поля, а  $x$  — координата, направленная в глубь сверхпроводника. Рассмотрим цилиндрический образец радиуса  $R$ , находящийся в псевдощелевом состоянии при  $T > T_c$ . Глубина проникновения  $\lambda$  будет много больше  $R$ , так как пары не образуют когерентного состояния. Поэтому в первом приближении можно считать, что  $j_s = \frac{H}{\lambda}$ . В таком случае намагниченность цилиндра будет определяться по формуле

$$M(H) = -\frac{RH}{3\lambda} = -\frac{RH}{3} \sqrt{\frac{\mu_0 e^2}{m}} n_s(H). \quad (3)$$

Здесь  $\mu_0$  — магнитная постоянная,  $e$  — заряд и  $m$  — эффективная масса носителей сверхтока,  $n_s(H)$  — концентрация пар, принимающих участие в образовании экранирующего сверхтока.

Если предположить величину  $n_s(H)$  пропорциональной энергии магнитного поля  $n_s \propto H^2$ , то в силу нечетной симметрии из (3) следует, что намагниченность образца ( $M(H) = -M(-H)$ ) будет равна

$$M(H) = -\frac{\chi}{H^*} H|H|. \quad (4)$$

Здесь  $\chi$  — восприимчивость, а  $H^*$  — характерное поле образца. Выражение (4) имеет при  $H = 0$  особенность, и к нему нельзя применить формулу (2). Амплитуда третьей гармоники намагниченности для  $M(H)$ , определенной формулой (4), представляется интегралом

$$M_3(h) = \frac{\chi h^2}{\pi H^*} \int_0^{2\pi} \cos(\omega t) |\cos(\omega t)| \cos(3\omega t) d(\omega t)$$

и равна

$$M_3(h) = \frac{8}{15\pi} \frac{\chi h^2}{H^*} \approx 0.17 \frac{\chi h^2}{H^*}.$$

Здесь величина  $h$ , как и в формуле (2), является амплитудой напряженности переменного магнитного поля. ЭДС третьей гармоники равна

$$\varepsilon_3(h) = \frac{8}{5\pi} \mu_0 N S \omega \frac{\chi h^2}{H^*}. \quad (5)$$

Оценка величины  $\frac{\chi}{H^*}$  (см. рис. 2 и формулу (4)) дает значение  $\sim 4 \cdot 10^{-10}$  м/А.

Диамагнитный отклик орбитальных токов с противоположными циркуляциями будет, по-видимому, линейным и аналогичным хорошо известному орбитальному диамагнетизму [31].

В случае другой зависимости  $n_s(H)$  (см. (3)) или вообще другого механизма нелинейности, когда  $M(H)$  при  $H = 0$  имеет производные, ее ряд будет содержать нечетные степени напряженности поля  $H$

$$M(H) = \chi_0 H + \chi_1 H^3 + \chi_2 H^5 + \dots$$

Наибольшим нелинейным членом в данной формуле является второй член  $\chi_1 H^3$ . Следуя формуле (2), в ЭДС сигнала отклика будут наблюдаться высшие гармоники. Наибольшей по амплитуде будет третья:

$$\varepsilon_3 \approx \frac{1}{8} \mu_0 N S \omega h^3 \left( \frac{d^3 M}{dH^3} \right)_{H=0} = \frac{3}{4} \mu_0 N S \omega h^3 \chi_1. \quad (6)$$

Оценка (см. рис. 2 и формулу (6)) приводит к значению  $\chi_1 \sim 3.5 \cdot 10^{-14}$  м<sup>2</sup>/А<sup>2</sup>.

Таким образом, согласно первой концепции („сверхпроводящей“ псевдощели) и формулам (5) или (6), в эксперименте должны наблюдаться гармоники намагниченности и соответственно высшие гармоники в сигнале отклика образца в области  $T < T^*$ .

Во втором подходе [7] „диэлектрическая“ псевдощель в таких ВТСП-соединениях, как YBCO, возникает из-за антиферромагнитных флуктуаций. По-видимому, это должно приводить к значительно преобладающей линейной намагниченности при температурах  $T < T^*$  аналогично орбитальному диамагнетизму [31], так как магнитное поле, используемое в эксперименте, является малым и слабо влияет на указанные флуктуации.

Другим механизмом нелинейности намагниченности ВТСП выше  $T_c$  может быть нелинейный магнитный отклик незатухающих на длине свободного пробега носителей заряда персистентных токов [32–34].

Для окончательного выяснения природы псевдощели в ВТСП-соединениях необходимо проводить дополнительные эксперименты.

Диамагнетизм мелкодисперсных областей локализованной сверхпроводимости, выше  $T_c$  имеющих форму непересекающихся протяженных кластеров, как показали оценки работы [35], весьма мал по сравнению с идеальным диамагнетизмом ( $\sim 10^{-6}$ ). Экспериментальная точность наших измерений имеет порядок  $10^{-2}$ . Этот факт указывает на то, что данная модель не может объяснить наши эксперименты.

## 5. Заключение

Таким образом, состояние ВТСП-систем при  $T_c < T < T^*$  является необычным нормальным состоянием, состоянием с псевдощелью. И фазовый переход из сверхпроводящего в такое „нормальное“ состояние не является переходом типа БКШ. Поэтому более детальные исследования фазового перехода этого состояния выше  $T_c$  методом гармоник намагниченности позволяет получить новые данные о природе как самого перехода, так и псевдощелевого состояния ВТСП.

Нами предложен новый метод определения температуры возникновения псевдощели  $T^*$  в ВТСП-соединениях, основанный на измерении гармоник намагниченности.

Авторы выражают благодарность А.В. Калинову и В.В. Александрову (Всероссийский электротехнический институт) за предоставление образцов и А.И. Головашкину (ФИ РАН им. П.Н. Лебедева) за обсуждение результатов работы.

## Список литературы

- [1] H. Ding, T. Yokoya, J.C. Campuzano, T. Takahashi, M. Randeria, M.R. Norman, T. Mochiku, K. Kadowaki, J. Giapintzakis. *Nature* **382**, 51 (1996).
- [2] T. Timusk, B. Statt. *Rep. Prog. Phys.* **42**, 61 (1999).
- [3] J.L. Tallon, J.W. Loram. *Physica C: Supercond.* **349**, 53 (2001).
- [4] M.R. Norman, C. Pepin. *Rep. Prog. Phys.* **66**, 1547 (2003).
- [5] Н.В. Аншукова, А.И. Головашкин, Л.И. Иванова, А.П. Рузаков. *ЖЭТФ* **123**, 1188 (2003).
- [6] В.И. Белявский, Ю.В. Копаев. *УФН* **174**, 457 (2004).
- [7] М.В. Садовский. *УФН* **171**, 539 (2001).
- [8] C.C. Homes, T. Timusk, R. Liang, D.A. Bonn, W.N. Hardy. *Phys. Rev. Lett.* **71**, 1645 (1993).
- [9] J. Rossat-Mignod, L.P. Regnault, P. Bourges, C. Vettier, P. Burllet, J.Y. Henry. *Physica B: Cond. Mater.* **186–188**, 1 (1993).
- [10] W.W. Warren, R.E. Walstedt, G.F. Brennert, R.J. Cava, R. Tyccko, R.F. Bell, G. Dabbagh. *Phys. Rev. Lett.* **62**, 1193 (1989).
- [11] А.И. Головашкин, О.М. Иваненко, К.В. Мицен, Н.Е. Храменков. *Препринт ФИАН № 298* (1987).
- [12] T. Ito, K. Takenaka, S. Uchida. *Phys. Rev. Lett.* **70**, 3995 (1993).
- [13] Д.Д. Прокофьев, М.П. Волков, Ю.А. Бойков. *ФТТ* **45**, 1168 (2003).
- [14] А.И. Головашкин, Н.Д. Кузьмичев, И.С. Левченко, Г.П. Мотулевич, В.В. Славкин. *ФТТ* **31**, 233 (1989).
- [15] А.И. Головашкин, Н.Д. Кузьмичев, И.С. Левченко, Г.П. Мотулевич, В.В. Славкин. *ФТТ* **32**, 1374 (1990).
- [16] Н.Д. Кузьмичев, В.В. Славкин. *Деп. в ВИНТИ, рег. № 4832* (1991).
- [17] Н.Д. Кузьмичев. *ЖТФ* **64**, 63 (1994).
- [18] Н.Д. Кузьмичев, В.В. Славкин. *Сб. тр. Четвертой Межрегион. молодежной науч. школы „Материалы нано-, микро- и оптоэлектроники: физические свойства и применение“*. Саранск (2005). С. 111.

- [19] Н.Д. Кузьмичев, В.В. Славкин, А.И. Головашкин, Науч. сессия МИФИ-2006. Сб. науч. тр. **4**, 124 (2006).
- [20] Y. Wang, Lu Li, M.J. Naughton, G.D. Gu, S. Uchida, N.P. Ong. Phys. Rev. Lett. **95**, 247002 (2005).
- [21] Z.A. Xu, N.P. Ong, Y. Wang, T. Kukashita, S. Uchida. Nature **406**, 486 (2000).
- [22] Y. Wang, S. Ono, N. Onse, G. Gu, Y. Ando, Y. Tokura, S. Uchida, N.P. Ong. Science **299**, 86 (2003).
- [23] В.И. Белявский, Ю.В. Копаев. УФН **176**, 457 (2006).
- [24] В.И. Белявский, Ю.В. Копаев, М.Ю. Смирнов. ЖЭТФ **128**, 525 (2005).
- [25] В.И. Белявский, Ю.В. Копаев. ЖЭТФ **127**, 45 (2005).
- [26] В.В. Шмидт. Введение в физику сверхпроводников. МЦНМО, М. (2000). 398 с.
- [27] П. Де Жен. Сверхпроводимость металлов и сплавов. Мир, М. (1968). 280 с.
- [28] C.P. Bean. Phys. Rev. Lett. **8**, 250 (1962).
- [29] Н.Д. Кузьмичев. ФТТ **43**, 1934 (2001).
- [30] Н.Д. Кузьмичев. Письма в ЖЭТФ **74**, 291 (2001).
- [31] С.Г. Калашников. Электричество. Наука, М. (1979). 668 с.
- [32] А.И. Головашкин, А.Н. Жерихин, Л.Н. Жерихина, Г.В. Кулешова, А.М. Цховребов. ЖЭТФ **126**, 415 (2004).
- [33] R. Landauer, M. Büttiker. Phys. Rev. Lett. **54**, 2049 (1985).
- [34] А.И. Головашкин, А.М. Цховребов, Н.Д. Кузьмичев, В.В. Славкин. Сб. тр. Второй Междунар. конф. ФПС-06. ФИАН, М. (2006). С. 170.
- [35] А.В. Митин, Г.М. Кузьмичева, В.В. Мурашов, Е.П. Хлыбов. ЖЭТФ **107**, 1943 (1995).