УДК 537.312.62

МОДУЛЯЦИОННАЯ МЕТОДИКА ИЗМЕРЕНИЯ НЕЛИНЕЙНЫХ ЭЛЕКТРИЧЕСКИХ И МАГНИТНЫХ СВОЙСТВ $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$

М. А. Васютин, Н. Д. Кузьмичев, В. В. Славкин
Институт машиностроения Мордовского Государственного Университета, г. Рузаевка, Россия

А. И. Головашкин, И. С. Левченко
Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН, Москва, Россия

С помощью модуляционной методики измерены амплитуды гармоник намагниченности и напряжения поликристаллических образцов $YB_2Cu_3O_{7-\delta}$. Экспериментально обнаружено существование двух систем слабых связей – меж- и внутригранульной, что приводит к усложнению формы вольт-амперной характеристики.

Несмотря на значительные усилия по исследованию свойств высокотемпературных сверхпроводников (ВТСП), до сих пор не выяснен механизм их сверхпроводимости. В то же время идет активное изучение возможностей практического использования таких материалов. Если для физических исследований необходимы качественные монокристаллы, эпитаксиальные пленки ВТСП, то для целого ряда приложений привлекательна простота изготовления поликристаллических образцов. Примером являются работающие при азотных температурах керамические ВТСП сквиды [1], которые наряду с высокой чувствительностью обладают хорошей технологичностью и могут быть достаточно легко изготовлены в лабораториях. В ряде случаев параметры поликристаллических образцов предпочтительнее соответствующих характеристик монокристаллов.

Изучение ВТСП обнаружило ряд аномалий их свойств [2].

Важной задачей представляется исследование природы таких аномалий и использование их для новых приложений. В настоящей работе модуляционная методика применена для изучения некоторых аномалий нелинейных магнитных и электрических свойств поликристаллических образцов $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ (YBCO). В частности, аномальное поведение намагниченности в полях порядка 1 кЭ, форма вольт-амперных характеристик вблизи температуры перехода в сверхпроводящее состояние, поведение дифференциального сопротивления и его производных.

Поликристаллические ВТСП-образцы $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ изготовлялись по обычной технологии твердофазного синтеза [3]. Они имели критическую температуру $T_c = 91{,}9$ K ($R = 0$) и ширину перехода в сверхпроводящее состояние $\Delta T \approx 1$ K.

Исследование как электрических, так и магнитных характеристик проводилось методом измерения гармоник низкочастотного сигнала, возбуждающего образец. Использовалась модуляционная схема, в которой на образец (или на катушку, содержащую образец) подавался сигнал $x = x_0 + a \sin \omega t$, состоящий из постоянной (медленно меняющейся со временем t) x_0 и переменной $a \sin \omega t$ части.

При измерении магнитных характеристик в качестве x выступало магнитное поле $H = H_0 + a_H \sin \omega t$, при измерении электрических величин x представляло собой ток $I = I_0 + a_I \sin \omega t$.

Выражение для амплитуды гармоник y_n сигнала отклика y, где y — разность потенциалов на образце или ЭДС, возникающая на катушке с образцом, в общем случае можно записать в виде

$$y_n = 2 \sum_{m=0}^{\infty} \frac{1}{m!\,(m+n)!} \left(\frac{a}{2}\right)^{2m+n} \frac{d^{2m+n} y(x_0)}{d x^{2m+n}}. \qquad (1)$$

Производная порядка $2m + n$ от функции $y(x)$ берется при $x = x_0$. Выражение (1) получается разложением функции $y(x)$ в ряд Тейлора вблизи точки x_0, при замене разности $x—x_0$ на $a \sin \omega t$ и суммировании коэффициентов при одинаковых степенях $\sin n \omega t$ [4]. При этой операции легко определяется и фаза всех гармоник.

При исследовании нелинейности намагниченности образцов $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ указанным методом использовалась компенсационная схема [5]. Измерялись амплитуды гармоник ε_n ЭДС, возникающей на выходной катушке с образцом при воздействии на нее переменного магнитного поля первичной катушки. Постоянное магнитное поле H_0 варьировалось в интервале 0—1 кЭ. Использовались амплитуды магнитного поля a_H до 700 Э. Ранее [6, 7] нелинейность намагниченности керамики YBaCuO исследовалась нами в небольших магнитных полях, все измерения выполнялись при азотной температуре.

Учитывая, что для заданной частоты магнитного поля $\omega = 2\pi f$ амплитуда n-й гармоники намагниченности образца равна $M_n = \varepsilon_n / NSn\omega$, из (1) получим

$$M_n = 2 \sum_{m=0}^{\infty} \frac{1}{m!\,(m+n)!} \left\{ \frac{a_H}{2} \right\}^{2m+n} \cdot \frac{dM^{2m+n}(H_0)}{dH^{2m+n}}.$$

Здесь N — число витков выходной катушки; S — площадь сечения образца; n — номер гармоники; ε_n — амплитуда n-й гармоники ЭДС выходной катушки $H = H_0 + a_H \sin \omega t$.

При исследовании вольт-амперных характеристик (ВАХ) YBCO и гармоник напряжения, возникающих из-за нелинейности сопротивления таких образцов, использовалась обычная четырехконтактная схема. Сопротивление электрических контактов на образцах не превышало 3 мОм. Модуляционный сигнал имел частоту до 1 кГц. Выражение для амплитуды n-й гармоники разности потенциалов на образце в этом случае

$$U_n = 2 \sum_{m=0}^{\infty} \frac{1}{m!\,(m+n)!} \left(\frac{a_I}{2} \right)^{2m+n} \cdot \frac{d^{2m+n} U(I_0)}{d T^{2m+n}}, \qquad (2)$$

где $I = I_0 + a_I \sin \omega t$.

В результате измерения амплитуд гармоник ЭДС ε_n, пропорциональных амплитудам гармоник намагниченности M_n, обнаружено, что полевые зависимости ε_n в области больших полей ($H_0 > 100$—200 Э) немонотонны. На рис. 1 показаны зависимости амплитуд некоторых гармоник ε_n от магнитного поля H_0 для модуляционного сигнала частотой $f = 517$ Гц. Зависимости амплитуды ε_n от амплитуды модуляционного сигнала a_H монотонны, хотя и нелинейны (рис. 2). Величины ε_n на рис. 1 и 2 даны в вольтах, отнесенных к входу усилителя.

Полученные в настоящей работе результаты совместно с нашими результатами в слабых магнитных полях [6, 7] можно объяснить исходя из модели керамики $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ как среды с двумя уровнями слабых связей. Во-первых, это слабые связи между гранулами YBCO. Немонотонные зависимости гармоник намагниченности в области небольших полей H_0 до 50 Э [6—8] выявляют систему таких межгранульных связей. Во-вторых, это внутригранульные слабые связи, включающие в себя плоскости двойникования, малоугловые межзеренные границы, другие плоскостные дефекты и т. д. Характерная область магнитных полей, в которых проявв-

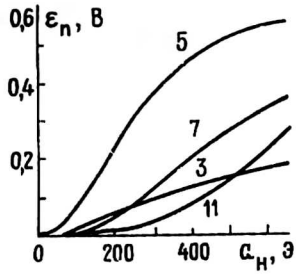

Рис. 1. Зависимость амплитуд гармоник ЭДС $\varepsilon_n \sim M_n$ от магнитного поля H_0; 3, 5, 7, 11 — номера гармоник

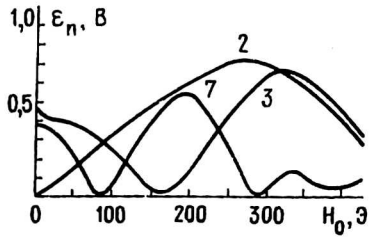

Рис. 2. Зависимость амплитуд гармоник ε_n от амплитуды модуляционного сигнала a_H; 2, 3, 7 — номера гармоник

ляются указанные слабые связи, $H_0 = 100—1000$ Э. К такому же заключению, что за аномальное поведение гармоник намагниченности в области полей $10^2—10^3$ Э ответственны внутригранульные слабые связи, приводит наблюдение слабых связей в ВТСП монокристаллах УВСО [9].

Для наших образцов эти две области полей разделены некоторым интервалом (50—150 Э), в котором не наблюдается "осциллирующих" зависимостей гармоник M_n. Наличие такой "щели" в полевой зависимости гармоник намагниченности и существование двух неперекрывающихся уровней слабых связей может быть использовано в прикладных целях.

Наконец, нелинейности, связанные с природой намагниченности матрицы УВСО, должны проявиться в полях H_0, превышающих 1 кЭ.

Наличие трех подсистем в ВТСП керамиках YBCO — межгранульной трехмерной джозефсоновской среды, внутригранульных слабых связей и кристаллической матрицы — приводит к тому, что разрушение сверхпроводимости в таких образцах в увеличивающемся магнитном поле происходит как бы подстадийно или последовательно во времени. Проникновение магнитного поля в соответствующую подсистему при достижении его величиной некоторого характерного для данной подсистемы критического значения и приводит к наблюдаемым аномалиям намагничивания. Отметим здесь, что внутригранульная система слабых связей может иметь своим происхождением и фазовое расслоение, предсказываемое, например, в работе [10] для ВТСП кристаллов $Ba_{1-x}K_xBiO_3$.

Из вышеизложенного ясно, что зависимость намагниченности керамики УВСО от магнитного поля не описывается простой моделью критического состояния.

Результаты, полученные при исследовании нелинейности намагниченности керамики $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ и выводы, сделанные на их основе, подтверждаются результатами измерений ВАХ и первых гармоник напряжения. Нелинейный характер ВАХ УВСО при $T \lesssim T_c$ обнаружен уже в ранних работах [3, 11]. Однако в настоящей работе показано, что форму ВАХ и амплитуд первых гармоник U_n (I_0) нельзя описать простой степенной зависимостью, которая предлагается в ряде работ, например [3, 12—16]. На рис. 3 приведена ВАХ одного из образцов УВСО. На рис. 4 показаны токовые зависимости амплитуд первой U_1 и второй U_2 гармоник низкочастотного сигнала ($f = 1$ кГц) для этого же образца. Все экспериментальные данные получены при температуре $T = 91$ К, при которой наблюдались максимальные значения амплитуд гармоник. При максимальной величине амплитуды модулирующего тока $a_I \approx 30$ мА удалось измерить амплитуды семи первых гармоник U_n. Анализ температурных зависимостей ВАХ и амплитуд гармоник U_n выполнен в работе [17]. Из рис. 3 и 4, следует, что зависимость $U(I_0) \sim I_0^\alpha$ не описывает всей со-

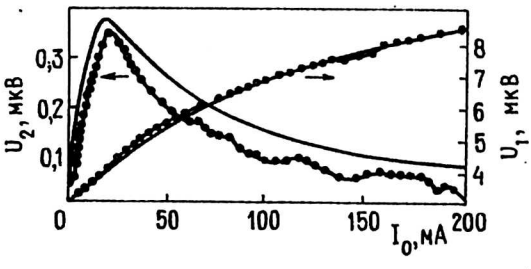

Рис. 3. ВАХ поликристаллического образца $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$, полученная при $T = 91$ К. Сплошной линией показана зависимость (3).

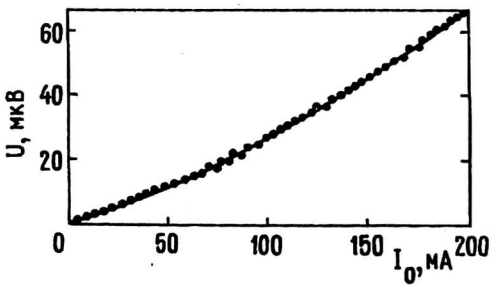

Рис. 4. Токовые зависимости амплитуд первой (U_1) и второй (U_2) гармоник напряжения, полученные при $T = 91$ К (точки); сплошная линия — зависимость, рассчитанная по формулам (2) и (3)

вокупности экспериментальных данных. Необходимо использовать более сложные функции.

Удовлетворительное описание экспериментальных данных может быть достигнуто, если для формы ВАХ использовать зависимость

$$U(I_0) = R_0 I_0 + R I \ln\left\{1 + \left(\frac{I_0}{I_m}\right)^2\right\} + 2 R I_m \operatorname{arctg} \frac{I_0}{I_m} . \qquad (3)$$

Здесь R_0, R, I_m — постоянные, зависящие от температуры. Для образца, данные для которого приведены на рис. 3 и 4, при $T = 91$ К $R_0 = 27$ и 46 мкОм, $I_m = 21$ мА (величина I_m соответствует току, при котором достигается максимум второй гармоники). На рис. 3 кривая рассчитана по формуле (3). Выражения для амплитуд гармоник получены из соотношений (2) и (3). Амплитуда тока модуляции $a_I = 26$ мА. Видно хорошее согласование расчетных кривых с экспериментом для $U(I_0)$ и U_1 и совпадение формы кривых для U_2. Чтобы добиться более детального совпадения расчетной и экспериментальной кривых второй гармоники, потребовалось бы неоправданное усложнение формулы для ВАХ.

В области малых токов форма ВАХ (с учетом формы первых производных) для наших образцов хорошо аппроксимируется степенной зависимостью $U(I_0) \sim I_0^{\alpha}$, где $\alpha \approx 1{,}35$. Полученные выражения для формы ВАХ (и амплитуд гармоник) не предсказываются теорией простой джозефсоновской среды и требуют дальнейшего анализа с учетом сложной трехуровневой структуры образцов.

Таким образом, в настоящей работе экспериментально обнаружено проявление двух систем слабых связей в поликристаллических ВТСП-образцах $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ (межгранульных и внутригранульных), наличие которых приводит к усложнению вида ВАХ, не описываемой уже простым степенным законом. Использованный модуляционный метод можно применить для исследования и других свойств ВТСП, например, для измерения небольшого флуктуационного вклада, приводящего к слабой нелинейности ВАХ при $T > T_c$.

Литература

1. *Vasiliev B. V.* Review of High T_c Ceramics SQUID's. Intern Workshop of Physics and Technology of HTS Artifical Structures for Josephson Electronics. — Tokyo, Japan, 1991. P. 4.
2. *Головашкин А. И.*// Сб. Краткие сообщения по физике. Спец. выпуск. — М., 1991. С. 2.
3. *Dubson M. A.* et al.// Phys. Rev. Lett. 1988. V. 60. P. 1061.
4. *Кузьмичев Н. Л.*//Письма в ЖТФ. 1991. Т. 17. С. 56.
5. *Пал Л., Тарноца Т.*// Изв. АН СССР. Сер. Физика. 1957. Т. 21. С. 1055.
6. *Головашкин А. И., Кузьмичев Н. Д., Левченко И. С., Мотулевич Г. П., Славкин В. В.*// Препринт ФИАН. — М., 1989, № 41. — 20 с. № 151. —.24 с.
7. *Головашкин А. И., Кузьмичев Н. Д.* и др.// ФТТ. 1989. Т. 31. С. 233; 1990. Т. 32. С. 1374.
8. *Jeffries C.* et al.// Phys. Rev. B. 1988. V. 37. P. 987.
9. *Willis J. O.* et al.// Physica C. 1991. V. 185—189. P. 235.
10. *Горбацевич А. А., Копаев Ю. В., Токатлы И. В.*// Письма в ЖЭТФ. 1990. Т. 52. С. 736.
11. *Stamp P. C.* et al.// Phys. Rev. B, 1988. V. 38. P. 2847.
12. *Kardiawarman, Suzuki M., Burr C. R.*// J. Phys.: Condensed Matter. 1989. V. 1. P. 8491.
13. *Аронзон Б. А., Гершанов Ю. В., Мейлихов Е. З., Шапиро В. Г.*// СФХТ. 1989. Т. 2. С. 83.
14. *Артеменко С. Н., Горохова И. Г., Латышев Ю. И.*// Письма в ЖЭТФ. 1989. Т. 49. С. 566.
15. *Rosenblatt J.* et al.// Revue Phys. Appl. 1990. V. 25. P. 73.
16. *Rudhani R. C.* et al.// Phys. Rev. Lett. 1990. V. 64. P. 1666.
17. *Кузьмичев Н. Д., Васютин М. А.*// СФХТ. 1994. Т. 7. С. 93.

Работа поддержана Научным Советом Государственной программы "ВТСП" и Фондом развития естественных наук (проект "Магнетометр").

Поступила в редакцию 12 апреля 1995 г.

MODULATION METHOD OF MEASUREMENT OF NONLINEAR ELECTRIC AND MAGNETIC PROPERTIES OF $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$

M. A. Vasjutin, N. D. Kuzmichev, V. V. Slavkin
Mordovia State Universiti, Ruzaevka, Russia

A. I. Golovashkin, I. S. Levchenko
P. N. Lebedev Institute of Physical RAS, Moscow, Russia

With modulation method it was measured magnetization and voltage garmonics amplitudes of polycrystal $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ samples. It was experimentally found that two systems of weak links existed, intergranular and intragranular. This leads to more complicated form of the I–V curve.