

ПИННИНГ МАГНИТНОГО ПОТОКА В ПОЛИКРИСТАЛЛИЧЕСКИХ ВТСП $YBa_2Cu_3O_{6.92}$ ПРИ ОХЛАЖДЕНИИ В СЛАБОМ МАГНИТНОМ ПОЛЕ

Н. Г. Трусевич^{a}, С. Ю. Гаврилкин^b, Л. И. Трахтенберг^{a,c}*

^a *Федеральный исследовательский центр химической физики им. Н. Н. Семёнова Российской академии наук
119991, Москва, Россия*

^b *Физический институт им. П. Н. Лебедева Российской академии наук
119991, Москва, Россия*

^c *Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова
119991, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 16 марта 2023 г.,
после переработки 26 апреля 2023 г.
Принята к публикации 27 апреля 2023 г.

Исследовано поведение мелкокристаллических ВТСП $YBa_2Cu_3O_{6.92}$ при охлаждении в слабом магнитном поле. Проведен детальный анализ намагниченности образцов с размерами кристаллитов, сравнимыми с глубиной проникновения магнитного поля, в области ниже температуры сверхпроводящего перехода. Показано, что в случае, когда размер кристаллитов оказывается меньшим 0.5 мкм, не происходит фиксации вихрей на центрах пиннинга и зависимость намагниченности от температуры целиком определяется экранированием кристаллитов и температурой возникновения межкристаллитных сверхпроводящих токов.

DOI: 10.31857/S0044451023090109
EDN: KDUYAY

1. ВВЕДЕНИЕ

Как известно, один из наиболее известных признаков сверхпроводящего состояния, эффект Мейснера – Оксенфельда, наблюдается для всех сверхпроводников. Это обстоятельство указывает на возможность использовать данный эффект для определения величины T_c и оценки количества «сверхпроводящей фазы» в случаях фазовой неоднородности образцов. Уже на начальных этапах исследования высокотемпературных сверхпроводников стало понятно, что величина намагниченности образцов при охлаждении ниже температуры сверхпроводящего перехода в присутствии постоянного магнитного поля заметно отличается от ожидаемой величины, соответствующей полной экранировке образца [1]. Эти различия обусловлены такими трудно контролируемыми явлениями, как пиннинг вихрей [2, 3] в сверхпроводниках второго рода, анизотропия и наличие дефектов [4, 5].

Задача усложняется в случае поликристаллических образцов, когда важной оказывается соизмеримость размеров кристаллитов и глубины проникновения магнитного поля λ [6, 7]. Кроме того, определяющую роль в величине и форме наблюдаемых зависимостей могут играть состояние контактов между кристаллитами и транспортный критический ток [8]. Все эти обстоятельства усложняют интерпретацию поведения намагниченности (M_{fc}) при охлаждении в магнитном поле.

Однако использование поликристаллических образцов с достаточно малыми размерами кристаллитов позволяет исключить часть осложняющих факторов и выделить влияние наиболее важных. В работах [9, 10] показано, что размер кристаллитов сказывается на зависимостях намагниченности поликристаллических образцов от магнитного поля. Особенно сильно это проявляется при повышенных температурах вблизи температуры сверхпроводящего перехода T_c , когда величина λ велика и превышает средний размер кристаллитов. Следует ожидать влияния размеров кристаллитов на эффекты, связанные с пиннингом вихрей в кристаллитах. Представляет интерес на основе анализа зависимостей

* E-mail: trousevich@gmail.com

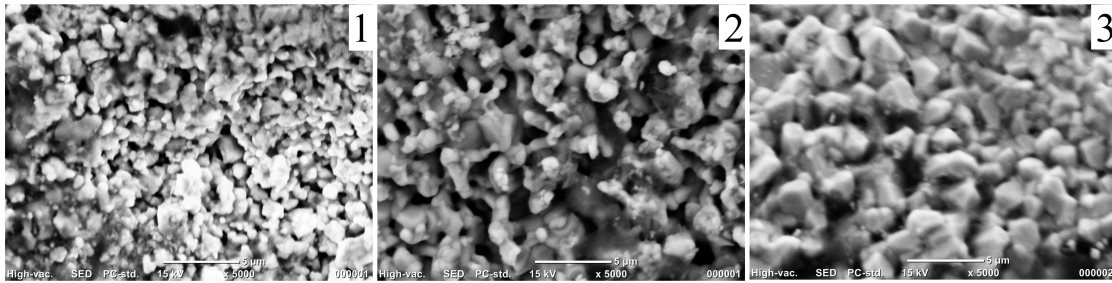


Рис. 1. Микрофотографии исследованных образцов. Цифры на фотографиях соответствуют номерам образцов

намагниченности от поля для образцов с различными размерами кристаллитов объяснить наблюдающиеся особенности поведения температурных зависимостей M_{fc} при охлаждении в магнитном поле.

В частности, будет показано, что, если величина λ существенно превышает размер кристаллитов, можно не учитывать вклад в величину M_{fc} , связанный с пиннингом вихрей, который в образцах с более крупными кристаллитами, а также монокристаллах, является определяющим.

2. ПРИГОТОВЛЕНИЕ ОБРАЗЦОВ

Исследования проводились на трех поликристаллических образцах состава $YBa_2Cu_3O_{6.92}$ [11, 12]. Образцы были приготовлены методом твердофазного синтеза с использованием приемов механохимии. В результате механической активации смеси исходных оксидов достигается не только высокая однородность шихты, но и существенно снижается температура синтеза, что позволило получить однородные по составу образцы с малыми размерами кристаллитов и имеющие практически одинаковые значения $T_c \approx 92$ К.

Образцы отжигались при температурах 840 °С, 900 °С и 930 °С. Чем меньше была температура отжига T_{an} , тем меньшими оказывались размеры кристаллитов: $\langle D \rangle = 0.4$ мкм (обр. 1); 1 мкм (обр. 2) и 2 мкм (обр. 3). Микрофотографии образцов представлены на рис. 1.

Насыщение образцов кислородом осуществлялось одинаковым образом. По данным йодометрического титрования для всех трех образцов были реализованы одинаковые значения кислородного индекса ($y = 6.92 \pm 0.02$). Рентгенографические и нейтронографические исследования этих образцов показали отсутствие заметного количества каких-либо примесных фаз [13].

Плотность полученных образцов была оценена, как 4.1 г/см³, 4.8 г/см³ и 5.7 г/см³ для образцов 1, 2 и 3 соответственно. Эти значения составляют 64%, 75% и 89% от значения 6.36 г/см³ — величины, по-

лученной из расчетов на основе параметров элементарной ячейки.

Для магнитных измерений были использованы образцы с размерами $1.6 \times 2.3 \times 4.0$ мм³ — образец 1, $1.9 \times 2.5 \times 5.0$ мм³ — образец 2, $1.6 \times 2.1 \times 4.1$ мм³ — образец 3. Магнитное поле направлялось вдоль длинной стороны.

Исследование магнитных свойств образцов проводилось методом «Весов Фарадея» на установке «Oxford Instruments», а также на установке PPMS фирмы Quantum Design в Центре коллективного пользования (ФИАН).

Микрофотографии были получены на сканирующем электронном микроскопе Jeol JCM 6000 plus в Институте кристаллографии им. А. В. Шубникова РАН.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

На рис. 2 приведены результаты измерения намагниченности M_{fc} трех представленных выше об-

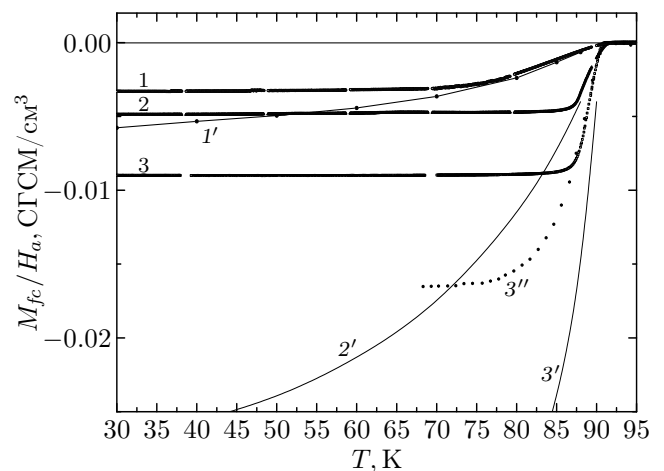


Рис. 2. Зависимость намагниченности M_{fc} от температуры при охлаждении в постоянном магнитном поле $H_a = 10$ Э образцов 1, 2, 3 (расчет с учетом рентгеновской плотности). Цифры — номера образцов. Кривая 1' — расчет по квазилинейному участку $M(H)$ для образца 1, Кривые 2' и 3' — расчет по данным [11], 3'' — экспериментальная зависимость M_{fc} в поле $H_a = 53.3$ Э

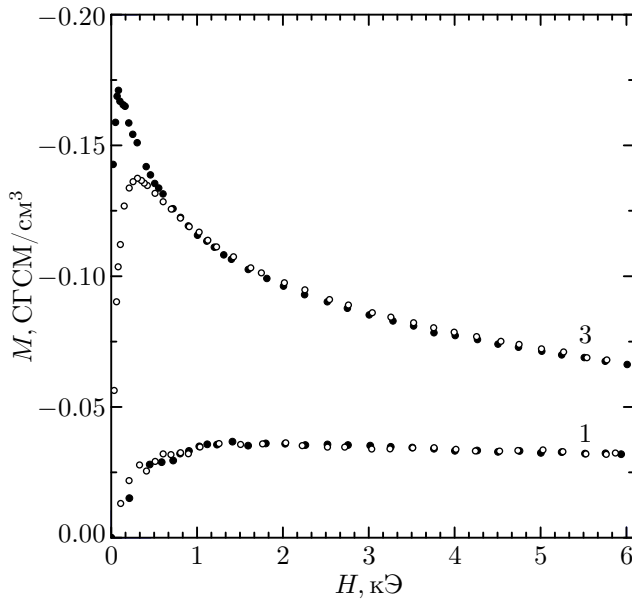


Рис. 3. Зависимости намагниченности образцов 1 и 3 от магнитного поля при температуре 90 К. Закрытые символы — увеличение магнитного поля, открытые — его уменьшение. Цифры — номера образцов

разцов $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.92}$ при охлаждении от 100 К до 10 К в поле 10 Э. Видно, что все три образца имеют температуру сверхпроводящего перехода $T_c \approx 92$ К. Ниже 85 К намагниченность M_{fc} образцов 2 и 3 не зависит от температуры, однако для образца 1, наиболее мелкокристаллического, независимость от температуры возникает лишь ниже 70 К.

Величина M_{fc}/H_a даже при низкой температуре является весьма небольшой, составляет менее 10% от величины полного экранирования ($-1/4\pi$), и оказывается тем меньше, чем меньше размер кристаллитов и чем более низкой была температура синтеза. Причин для этого, как отмечалось выше, может быть несколько, и одна из важнейших — пиннинг вихрей в сверхпроводниках второго рода. При охлаждении в присутствии хоть и малого, но конечного внешнего магнитного поля всегда существует диапазон температур ниже T_c , когда внешнее поле превышает первое критическое поле H_{c1} . При этом происходит образование вихрей и их закрепление на центрах пиннинга, а при дальнейшем охлаждении образца эти вихри остаются в объеме сверхпроводника и уменьшают его диамагнитный отклик [7].

Однако для поликристаллических образцов с размерами кристаллитов, сравнимыми с глубиной проникновения, поля возникновения вихрей в кристаллитах существенно превышают значения H_{c1} для массивных образцов [9, 10]. Именно такие образцы исследуются в данной работе. Измерения магнитной восприимчивости в постоянных и перемен-

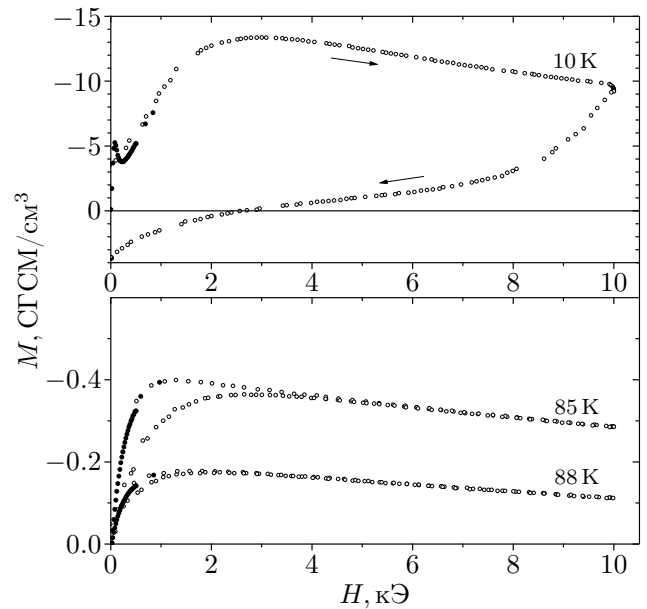


Рис. 4. Зависимость намагниченности образца 1 от магнитного поля при температурах 10, 85 и 88 К. Закрытыми символами приведены начальные участки кривой первого ввода поля

ных магнитных полях показали, что глубина проникновения магнитного поля $\lambda_{ab}(0)$ (лондоновская глубина проникновения в ab -плоскости при $T = 0$) составляет 0.164 мкм, 0.144 мкм и 0.135 мкм для образцов 1, 2 и 3 соответственно. Для образца 1 при температуре 88 К эта величина составляет 0.66 мкм и превышает средний размер кристаллитов [11].

На рис. 3 представлены зависимости намагниченности образцов 1 и 3 при температуре 90 К. Положение максимума на кривых соответствует полям возникновения вихрей в кристаллитах. Оно заметно смещено по сравнению с величинами H_{c1} для массивных образцов в область высоких полей (особенно для обр. 1), т. е. наблюдается рост этих полей с уменьшением размера кристаллитов. Существенным является отсутствие гистерезиса намагниченности при этой температуре для образца 1. Небольшой гистерезис в районе максимума наблюдается для образца 3, наиболее крупнокристаллического.

Отсутствие гистерезиса в образце 1 свидетельствует о том, что в этом образце при температуре 90 К вихри, если и существуют [14], то не закреплены на центрах пиннинга. Возможно, это связано с малостью энергии их взаимодействия с центрами при этой температуре. Возникшие вблизи поверхности малых по сравнению с λ кристаллитов вихри находятся в позициях, определяемых их взаимодействием с поверхностью кристаллита. При этом вклад от взаимодействия с дефектами (центрами пиннинга) должен быть сильно ослаблен. Наличие

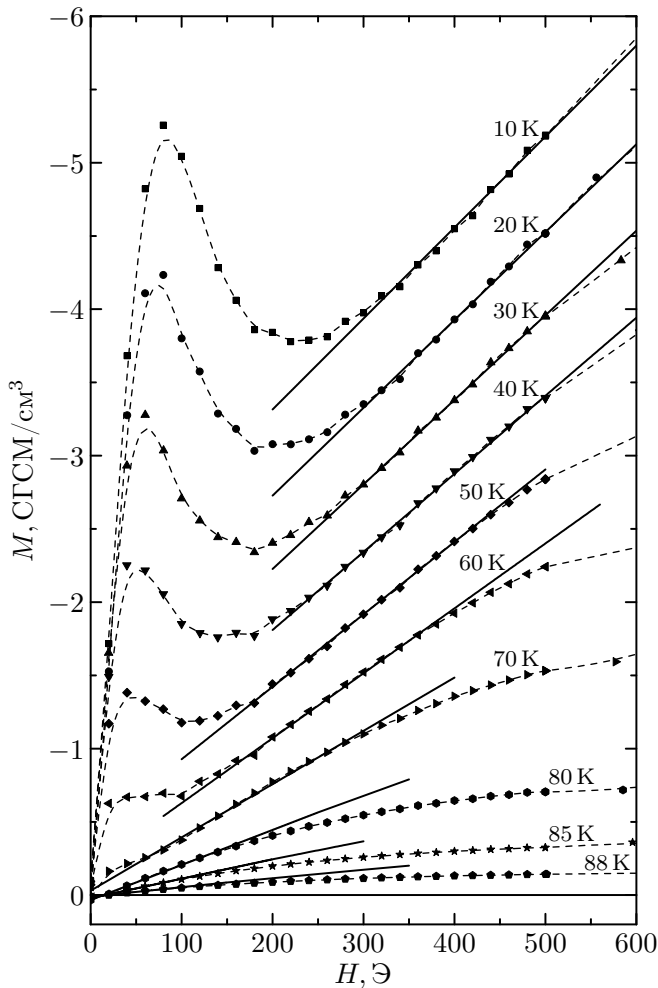


Рис. 5. Начальные участки зависимости $M(H)$ первого ввода магнитного поля образца 1

гистерезиса при этой же температуре в более крупнокристаллическом образце 3 показывает, что вдали от поверхности в глубине кристаллита фиксация вихрей на центрах пиннинга вполне возможна.

Таким образом, по крайней мере, в образце 1 вихри, закрепленные на центрах пиннинга в процессе охлаждения в поле 10 Э, отсутствуют, и для этого образца вклад от пиннинга вихрей в величину M_{fc} можно не учитывать во всем диапазоне температур.

Зависимость намагниченности от магнитного поля образца 1 при температурах 10, 85 и 88 К приведена на рис. 4. Видно, что с понижением температуры и уменьшением величины λ_{ab} до величин, приблизительно равных и меньше среднего размера кристаллитов (0.48 мкм при 85 К), в больших магнитных полях возникают гистерезис намагниченности и вихри, закрепленные на центрах пиннинга.

Рассмотрим начальные участки зависимости $M(H)$ (при первом вводе магнитного поля), которые

отмечены на рис. 4 закрытыми символами. Более подробно эти участки при различных температурах представлены на рис. 5.

В магнитных полях до 200 Э видна аномалия, сохраняющаяся вплоть до температуры 70 К, связанная с существованием межгранулярных сверхпроводящих токов. При этих температурах в диапазоне самых малых полей имеет место полная экранировка объема образца. Квазилинейный участок в полях выше аномалии, но достаточно малых по сравнению с положением максимума при 1500–2000 Э (см. рис. 4) соответствует экранированию объема гранул с учетом соизмеримости их размеров и глубины проникновения магнитного поля λ .

Малый размер гранул и, соответственно, высокие значения полей возникновения вихрей в кристаллитах, а главное, значительная доля объема кристаллитов, занимаемая приповерхностным слоем толщиной λ , позволяет выделить его достаточно точно. Линейная аппроксимация этого участка (рис. 5) не проходит через нуль, что связано с наличием «джозефсоновских вихрей» в межгранулярном пространстве. Полевая зависимость их вклада, по-видимому, невелика, хотя и не является пренебрежимо малой.

Существенно, что при температурах выше 80 К низкополевая аномалия, связанная с межгранулярными сверхпроводящими токами, для образца 1 отсутствует и существует только один начальный линейный участок, отражающий экранирование кристаллитов.

Таким образом, наклоны линейных участков зависимостей $M(H)$ при первом вводе поля позволяют восстановить температурную зависимость экранирования кристаллитов в отсутствие межгранулярных токов. Она представлена на рис. 2 под номером 1' и совпадает с экспериментальной кривой намагниченности образца в режиме охлаждения в магнитном поле в области температур выше 80 К. Это подтверждает вывод об отсутствии влияния внутригранулярного пиннинга на эту зависимость для подобных образцов.

Следует отметить, что при сопоставлении размеров кристаллитов и величины λ , а также при оценке вклада в намагниченность кристаллитов слоя толщиной λ под величиной λ следует понимать эффективное значение λ_{eff} как результат усреднения по ориентациям хаотично ориентированных кристаллитов в поликристалле. Следуя работе [11], полагаем $\lambda_{eff}(T) = 1.41\lambda_{ab}(T)$, что справедливо для достаточно больших значений анизотропии, характерных для $YBa_2Cu_3O_{6.92}$.

Таблица. Значения λ_{ab} для образца 1

Температура, К	λ_{ab} , мкм	λ_{ab} , мкм [11]
80	0.30	0.36
85	0.42	0.48
88	0.61	0.67

Наклон квазилинейного участка зависимости $M(H)$ (показан сплошными линиями на рис. 5), когда вихри в кристаллитах (а также межкристаллитные токи) отсутствуют, в рамках модели изотропных длинных цилиндров [15] может быть описан простой формулой:

$$\frac{dM}{dH} = -\frac{1}{4\pi} \left(1 - 2 \frac{\lambda_{eff} I_1(r/\lambda_{eff})}{r I_0(r/\lambda_{eff})} \right), \quad (1)$$

где $I_0(r/\lambda_{eff})$, $I_1(r/\lambda_{eff})$ — модифицированные функции Бесселя, $r = \langle D \rangle / 2$ — радиус цилиндров.

Используя выражение (1), по наклону начального участка зависимостей $M(H)$ или, что то же самое в данном случае, по зависимости M_{fc}/H_a при охлаждении в поле в диапазоне температур 80–90 К можно рассчитать $\lambda_{eff}(T)$ и $\lambda_{ab}(T)$ (величину глубины проникновения λ при направлении поля вдоль c -оси кристаллита). Полученные на основе кривой M_{fc}/H_a значения $\lambda_{ab}(T)$ для образца 1 представлены в таблице. Также в таблице приведены результаты работы [11], которые были получены при исследовании тех же образцов, исходя из расчетов всей обратимой кривой намагниченности в магнитных полях 0–90 кЭ. Видно неплохое согласие полученных величин.

Провести подобный анализ для образцов 2 и 3, имеющих более крупные размеры кристаллитов, представляется затруднительным. Это связано с тем, что значения полей входа вихрей для них заметно меньше и близки к значениям, характерным для массивных образцов. Квазилинейный участок зависимости $M(H)$, использованный для анализа образца 1, для образцов 2 и 3 намного короче и имеет наклон, мало отличающийся от начального, определяемого полной экранировкой образца межгранулярными токами. С этим связаны трудности надежного выделения квазилинейного участка для образцов 2 и 3.

Однако, учитывая неплохое согласие результатов анализа для образца 1 и данных работы [11], можно использовать результаты определения $\lambda_{eff}(T)$ для образцов 2 и 3, полученные в [11]. Используя эти значения и выражение (1), можно рассчитать вклад в намагниченность от экраниро-

вания гранул для образцов 2 и 3. Эти зависимости приведены на рис. 2.

Для образца 2 согласие высокотемпературных участков зависимости M_{fc} (кривая 2) и расчетной кривой намагниченности $M(H)$ гранул в малых полях является удовлетворительным, в то время как для образца 3, еще более крупнозернистого, согласия нет. Величина M_{fc} занижена относительно кривой $M(H)$. Таким образом, в образце 3 пиннинг вихрей в гранулах в режиме охлаждения даже в таком малом поле, как 10 Э все же присутствует, хотя размер гранул всего лишь в 5 и в 2 раза превышает размер гранул образцов 1 и 2 соответственно. Гистерезис на зависимостях $M(H)$ образца 3 при температуре 90 К (см. рис. 3) является тому подтверждением.

Как уже говорилось выше, аномалия на зависимостях $M(H)$ в полях меньше 200 Э (см. рис. 5) связана с возникновением при охлаждении отличных от нуля межгранулярных сверхпроводящих токов. В образце 1 она возникает при температуре 70 К. В образцах 2 и 3, которые были синтезированы при более высоких температурах, подобные аномалии и, соответственно, межгранулярные токи возникают при более высоких температурах.

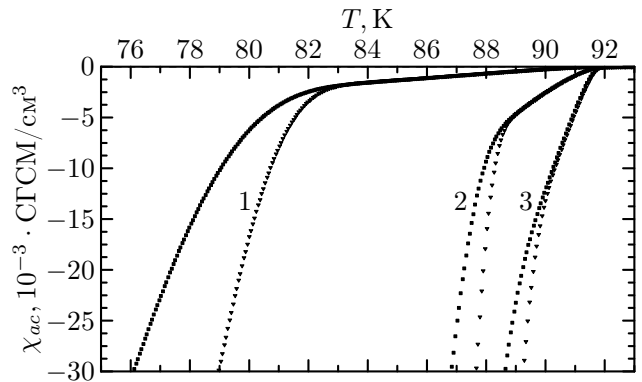


Рис. 6. Зависимости χ_{ac} от температуры в переменных магнитных полях образцов 1, 2, 3 по данным [12]

На рис. 6 приведены результаты измерений магнитной восприимчивости χ_{ac} в переменных магнитных полях [12].

Зависимости χ_{ac} от температуры в переменных магнитных полях h_{ac} были получены для двух значений амплитуды переменного поля — 1 и 3 Э. Кривые раздваиваются на две ветви, соответствующие амплитудам 1 и 3 Э при температурах возникновения межгранулярных токов. Эти температуры, равные 82.5 К, 88.7 К и 90.1 К соответственно для образцов 1, 2 и 3, оказываются различными для разных образцов и, хотя и несколько превышают, но

согласуются с температурами возникновения аномалий на зависимостях $M(H)$ в малых полях, вызванных межгранулярными токами. Приблизительно такими же оказываются и температуры, ниже которых величина M_{fc} при охлаждении в поле перестает изменяться.

Возникновение межгранулярных сверхпроводящих токов порождает широко известный эффект замораживания магнитного момента внутри сверхпроводящего кольца. По этой причине магнитный момент поликристаллического образца перестает меняться при понижении температуры после возникновения кольцевых макроскопических сверхпроводящих токов в режиме охлаждения в поле, как это видно на рис. 2. Уровень, на котором магнитный момент будет заморожен, определяется температурой возникновения межгранулярных токов и крутизной изменения магнитного момента до того, как эта температура будет достигнута.

Известно, что температура, при которой межгранулярные сверхпроводящие токи становятся отличными от нуля, зависит от величины внешнего магнитного поля H_a . Соответствующая зависимость от поля H_a должна быть и для температуры возникновения горизонтальных участков на зависимостях $M_{fc}(T)$. На рис. 2 приведена зависимость $M_{fc}(T)$ для образца 3 при охлаждении в поле 53 Э (кривая 3''). Видно, что кривая совпадает с высокотемпературным участком кривой в поле 10 Э (кривая 3), что свидетельствует о том, что количество «запинингованных» вихрей такое же, как и в случае охлаждения при 10 Э, но температура выхода на константу существенно ниже.

Как следует из изложенного выше, в области высоких температур для образцов с размерами гранул, сравнимыми с величиной λ , скорость изменения величины $M_{fc}(T)$ и уровень, на который она выходит до возникновения межгранулярных сверхпроводящих токов, определяется отношением $\langle D \rangle / \lambda$. Однако, согласно результатам работы [9], рассмотренные образцы обладают существенной структурной неоднородностью, которая тем больше, чем меньше размер кристаллитов. Эта неоднородность приводит к различию в величинах λ , которые также тем больше, чем меньше размер кристаллитов [11, 13]. Это различие в величинах λ , в свою очередь, должно приводить к изменению зависимостей $M_{fc}(T)$.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведен анализ зависимостей намагниченности от магнитного поля в диапазоне температур ниже температуры сверхпроводящего перехода для образ-

цов с размерами кристаллитов, сравнимыми с глубиной проникновения магнитного поля λ . Анализ показал, что при достаточно высокой температуре для кристаллитов с размером меньше λ фиксация вихрей на центрах пиннинга отсутствует. Для поликристаллических образцов с достаточно мелкими кристаллитами эффект пиннинга вихрей на дефектах в кристаллитах практически не оказывает влияния на зависимость намагниченности от температуры при охлаждении в магнитном поле.

Начальный участок зависимостей $M_{fc}(T)$ мелкокристаллического образца с размерами кристаллитов порядка λ в диапазоне температур от T_c до температуры возникновения межгранулярных токов, определяется намагниченностью кристаллитов, достаточно небольшой из-за сравнимости величин $\langle D \rangle$ и λ_{eff} . Значение, которого достигает намагниченность при охлаждении до возникновения межгранулярных токов (температура их возникновения зависит от величины измерительного поля H_a), определяет положение не зависящего от температуры участка.

Благодарности. Авторы признательны А. А. Вишнёву за синтез образцов и К. С. Пигальскому за полезные обсуждения полученных результатов.

Финансирование. Работа поддержана субсидией Минобрнауки, выделенной ФИЦ ХФ РАН на выполнение государственного задания по теме «Наноструктурированные системы нового поколения с уникальными функциональными свойствами» (регистрационный номер № 122040500071-0).

ЛИТЕРАТУРА

1. A. P. Malozemoff, L. Krusin-Elbaum, D. C. Cronemeyer, Y. Yeshurun, and F. Holtzberg, *Phys. Rev. B* **38**, 6490 (1988).
2. T. Matsushita, E. S. Otabe, T. Matsuno, M. Murakami, and K. Kitazawa, *Physica C* **170**, 375 (1990).
3. L. Krusin-Elbaum, A. P. Malozemoff, D. C. Cronemeyer, F. Holtzberg, John R. Clem, and Zhi-dong Hao, *J. Appl. Phys.* **67**, 4670 (1990).
4. S. L. Li, H. H. Wen, and Z. X. Zhao, *Physica C* **316**, 293 (1999).
5. M. R. Koblischka, A. Koblischka-Veneva, and M. Murakami, *Physica C* **340**, 235 (2000).
6. T. Nagano, Y. Tomioka, Y. Nakayama, K. Kishio, and K. Kitazawa, *Phys. Rev. B* **48**, 9689 (1993).

7. Y. Tomioka, M. Naito, K. Kishio, and K. Kitazawa, *Physica C* **223**, 347 (1994).
8. D. Wohlleben, G. Michels, and S. Ruppel, *Physica C* **174**, 242 (1991).
9. A. S. Krasilnikov, L. G. Mamsurova, N. G. Trusevich, L. G. Shcherbakova, and K. K. Pukhov, *Supercond. Sci. Technol.* **8**, 1 (1995).
10. А. С. Красильников, Л. Г. Мамсурова, К. К. Пухов, Н. Г. Трусевич, Л. Г. Щербакова, *ЖЭТФ* **109**, 1006 (1996).
11. Л. Г. Мамсурова, К. С. Пигальский, Н. Г. Трусевич, А. А. Вишнев, М. А. Рогова, С. Ю. Гаврилкин, А. Ю. Цветков, *Письма в ЖЭТФ* **102**, 752 (2015).
12. Л. Г. Мамсурова, Н. Г. Трусевич, А. А. Вишнёв, К. С. Пигальский, Л. И. Трахтенберг, *Хим. физика* **39**, 66 (2020).
13. А. М. Балагуров, Л. Г. Мамсурова, И. А. Бобриков, То Тхань Лоан, В. Ю. Помякушин, К. С. Пигальский, Н. Г. Трусевич, А. А. Вишнев, *ЖЭТФ* **141**, 1144 (2012).
14. Г. Ф. Жарков, *УФН* **174**, 1012 (2004).
15. J. R. Clem, *Physica C* **153–155**, 50 (1988).