

УДК 538.945

ОБНАРУЖЕНИЕ НЕЛИНЕЙНОСТИ НАМАГНИЧЕННОСТИ $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ В ОБЛАСТИ ПСЕВДОЩЕЛИ

А. И. Головашкин, Н. Д. Кузьмичев¹, В. В. Славкин², Э. А. Тищенко³

Выполнены экспериментальные исследования температурных зависимостей высших гармоник намагниченности монокристаллических образцов $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ выше T_c . Обнаружено, что нелинейность намагниченности $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ наблюдается для разных образцов вплоть до температур $T = 103-112$ К, значительно превосходящих температуру перехода в сверхпроводящее состояние этого соединения. Наблюдаемая особенность намагниченности $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ связывается с возникновением в этом соединении псевдощелевого состояния.

До последнего времени активно обсуждается природа псевдощелевого состояния высокотемпературных сверхпроводников (ВТСП) [1–6]. В различных экспериментах наблюдаются особенности физических свойств ВТСП, связанные с существованием псевдощели выше температуры перехода в сверхпроводящее состояние T_c [7]. В ВТСП соединении $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ 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 [11–13].

В настоящей работе представлены результаты подробных экспериментальных исследований температурных зависимостей высших гармоник намагниченности монокристаллических образцов $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ (YBCO) при температурах T , превышающих T_c . Нами

¹Мордовский государственный университет им. Н. П. Огарева, Саранск.

²Саранский кооперативный институт Российского университета кооперации.

³Институт физических проблем им. П. Л. Капицы, Москва.

обнаружена нелинейность намагниченности (появление высших гармоник) исследованных образцов в той области температур, где другими методами наблюдают возникновение псевдощели. Нам неизвестны работы, в которых бы псевдощель измерялась методом модуляции магнитного поля.

Нелинейность намагниченности исследовалась нами модуляционным методом [14]. В данной работе использовалась модуляция магнитного поля. Измерялись температурные зависимости первой, третьей и других высших гармоник намагниченности. Исследование нелинейности с помощью измерения гармоник является чувствительным методом. В статье экспериментальные данные представлены в основном для третьей гармоники. Выбор третьей гармоники при исследовании нелинейности связан с тем, что при работе в небольших магнитных полях целесообразно использовать нечетные гармоники, амплитуды которых значительно превосходят амплитуды четных гармоник. Амплитуда третьей гармоники при этом максимальна. Измерения выполнены в области температур $77 \text{ K} < T < 120 \text{ K}$.

В работе использовался двухкатушечный компенсационный метод измерения намагниченности [15, 16]. Синусоидальный сигнал частотой ω с генератора ГЗ-118 (коэффициент гармоник 0.005%) подавался на входную (первичную) катушку. Внутри нее были расположены две одинаковые встречно намотанные выходные (вторичные) катушки индуктивности, в одной из которых находился образец (рис. 1). Сигнал отклика $\epsilon(t)$ с выходных катушек подавался на вход селективного вольтметра. Величина сигнала отклика $\epsilon(t)$, т.е. ЭДС, возникающая во вторичных катушках, определяется изменением намагниченности исследуемого образца M [16]:

$$\epsilon(t) = -\mu_0 N S \frac{dM}{dt}. \quad (1)$$

Здесь $M = \frac{1}{V} \int_V \mathbf{M} d\mathbf{S} dz$ – намагниченность образца; $\mathbf{S} = S \cdot \mathbf{n}$; S – сечение образца; \mathbf{n} – единичный вектор, направленный перпендикулярно плоскости сечения образца по оси z ; \mathbf{M} – вектор намагниченности образца; N – число витков приемной катушки; $\mu_0 = 4\pi \cdot 10^{-7} \text{ Н/м}$ – магнитная постоянная, V – объем образца. В случае нелинейной зависимости намагниченности от магнитного поля H (учитывая нечетную симметрию) величина $M(H) = \chi_0 H + \chi_1 H^3 + \chi_2 H^5 + \dots$. Максимальным нелинейным членом является, как правило, член $\chi_1 H^3$.

Исследовались амплитуды (напряжения) гармоник ϵ_n (n – целое число) сигнала отклика ϵ , возникающего на вторичных катушках с поликристаллом YBCO при воздействии на него переменного магнитного поля первичной катушки $H(t) = h \cdot \cos(\omega t)$, где

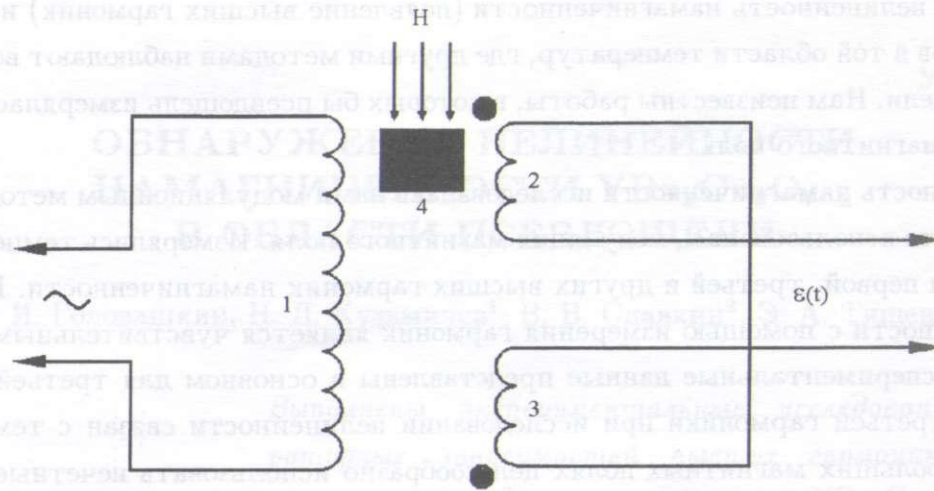


Рис. 1. Схема измерения гармоник намагниченности двухкатушечным компенсационным методом. 1 – первичная (входная) катушка индуктивности; 2 и 3 – две одинаковые, встречно намотанные выходные катушки индуктивности, находящиеся внутри катушки 1; 4 – образец YBCO, находящийся в катушке 2. Стрелками указано направление магнитного поля H , создаваемого входной катушкой. Сигнал отклика $\epsilon(t)$ с выходных катушек подается на резонансный усилитель.

h – амплитуда напряженности переменного магнитного поля, $\omega = 2\pi f$ – циклическая частота поля. Величины ϵ_n пропорциональны амплитудам гармоник намагниченности M_n [17]:

$$\epsilon_n = \mu_0 N S n \omega M_n / \sqrt{2},$$

где

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

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

В экспериментах по исследованию температурных зависимостей высших гармоник ϵ_n измерялся модуль этих гармоник, равный $\epsilon_n = [(\epsilon'_n)^2 + (\epsilon''_n)^2]^{1/2}$, где ϵ'_n и ϵ''_n – соответственно, синфазная и квадратурная составляющие n -ой гармоники, $n = 1, 3, 5, \dots$. При измерениях температурных зависимостей гармоник намагниченности образцов YBCO

система, состоящая из катушек с образцом и платиновым термометром, помещалась в массивную медную “бомбу”. Измерения проводились в парах азота в режиме отогрева. Скорость изменения температуры была меньше 0.2 K/min. Измерения проводились в нулевом постоянном поле. Частоты f переменного магнитного поля были в интервале 60–716 Hz, амплитуда поля h могла изменяться в интервале от 0 до 100 Oe.

Измерения выполнялись на монокристаллах, вырезанных из текстурированных поликристаллов $YBa_2Cu_3O_{7-x}$. Исследуемые образцы имели форму пластин. Они были вырезаны из плавленной текстурированной заготовки поликристалла так, чтобы ось “с” была направлена перпендикулярно плоскости пластины. Заготовки синтезировались с помощью затравки, которая устанавливалась сверху при высокой температуре. Выбор совершенного монокристаллического участка поликристалла осуществлялся при помощи оптического микроскопа в поляризованном свете и при помощи картографии замороженного магнитного потока. Монокристаллический участок вырезался алмазной фрезой. Были приготовлены и исследованы четыре образца. Образцы имели размеры $16 \times 13 \times 8 \text{ mm}^3$ (образец N 1), $14 \times 10 \times 2 \text{ mm}^3$ (N 2), $16 \times 8 \times 2.5 \text{ mm}^3$ (N 3) и $3.8 \times 3.5 \times 3.6 \text{ mm}^3$ (N 4). Критические температуры T_c и ширины переходов в сверхпроводящее состояние ΔT образцов слегка различались из-за несколько различных условий приготовления и составляли $T_c = 88\text{--}89 \text{ K}$ и $\Delta T = 0.5\text{--}1 \text{ K}$. Плотность образцов составляла примерно 6 g/cm^3 . Для дополнительной аттестации были выполнены измерения температурных зависимостей сопротивления и магнитной восприимчивости исследуемых образцов.

На рис. 2 показаны результаты измерения температурной зависимости сопротивления $R(T)$ образца YBCO N 1 на переменном токе частотой 1 kHz и силой 125 mA. Измерения выполнены четырехзондовым методом. На вставке к рисунку приведена температурная зависимость амплитуды первой гармоники $\epsilon_1(T)$ (частота $f = 60 \text{ Hz}$, амплитуда переменного магнитного поля $h = 1 \text{ Oe}$). Аналогичные результаты получены и для других образцов.

Полученные экспериментальные данные для температурных зависимостей амплитуд третьей гармоники $\epsilon_3(T)$ для разных образцов приведены на рис. 3–6. Учитывая лишь первый член в (2), получим для третьей гармоники намагниченности $M_3 \approx (h^3/24)d^3M/d^3H$ и $\epsilon_3 \approx 3\mu_0NS\omega M_3/\sqrt{2} = (3/4)\mu NS\omega h^3\chi_1/\sqrt{2}$.

На рис. 3 показаны температурные зависимости амплитуды третьей гармоники ϵ_3 образца N 1 в переменном магнитном поле вблизи T_c (при $T \leq T_c$, рис. 3(a)) и при $T > T_c$ (рис. 3(b), 3(c)). Измерения выполнены на частоте $f = 60 \text{ Hz}$. Зависимости $\epsilon_3(T)$ при $T > T_c$ получены для амплитуд переменного магнитного поля $h = 21 \text{ Oe}$ и 91 Oe . Из ри-

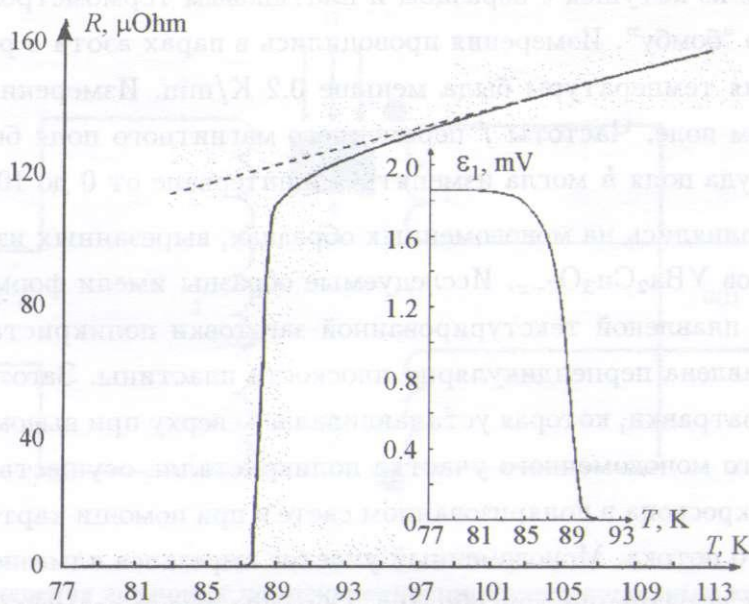


Рис. 2. Температурная зависимость сопротивления $R(T)$ монодоменного образца YBCO N 1 на переменном токе с амплитудой 125 мА (частота 1 кГц), полученная четырьмя резонансовым методом. Пунктиром показана линейная зависимость. На вставке приведена температурная зависимость амплитуды первой гармоники $\epsilon_1(T)$ (частота $f = 60$ Гц, амплитуда переменного магнитного поля $h = 1$ Ое).

сунка видно, что зависимость $\epsilon_3(T)$ выше температуры T_c в интервале температур до $T \approx 104$ К отлична от нуля и имеет особенность (при достаточно большой амплитуде поля $h = 91$ Ое). Специально введенная малая разкомпенсация выходного сигнала показала, что восприимчивость в области нелинейности имеет диамагнитный характер. Амплитуда третьей гармоники в области $T \leq T_c$ существенно превышает амплитуду этой же гармоники в “псевдощелевой” области температур. Так отношение амплитуд третьей гармоники при температурах 78 К и 94 К $\epsilon_3(78 \text{ К})/\epsilon_3(94 \text{ К}) \approx 1200$. Исследования показали, что нелинейность намагниченности исследуемых образцов выше T_c начинает четко наблюдаться (заметно превосходить уровень шума) при $h \geq 80$ Ое. Таким образом, нелинейность намагниченности данного образца YBCO наблюдается до температур $T \approx 104$ К. В этой области температур наблюдаются также и следующие нечетные гармоники с уменьшающейся амплитудой. Из сравнения рисунков 2 и 3 видно, что нелинейность намагниченности выше T_c начинает наблюдаться там же, где возникает отклонение сопротивления от линейной зависимости от температуры.

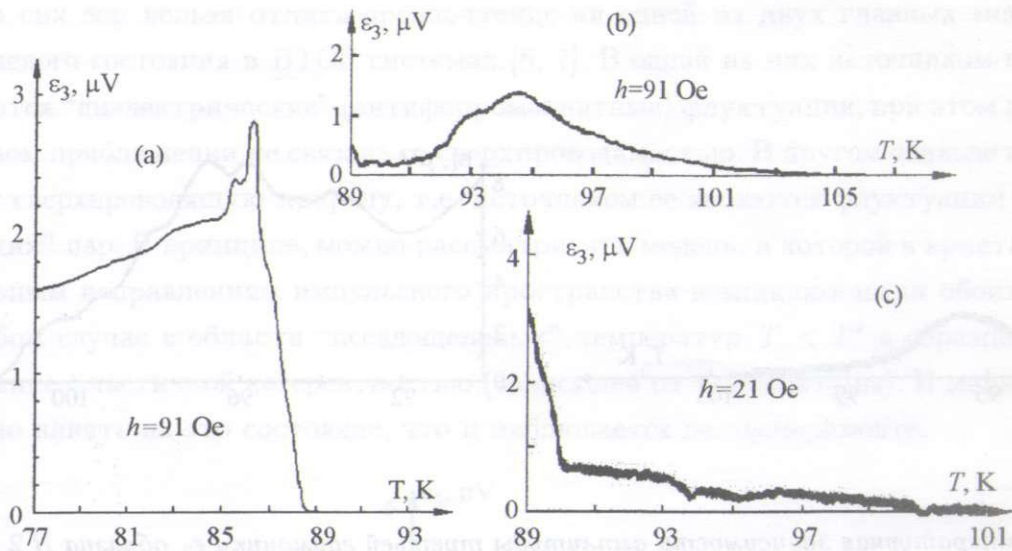


Рис. 3. Температурные зависимости амплитуды третьей гармоники ϵ_3 образца N 1 в переменном магнитном поле с частотой $f = 60$ Hz. (a) Вблизи T_c (при $T \leq T_c$, $h = 91$ Oe); (b) При $T > T_c$, $h = 91$ Oe; (c) При $T > T_c$, $h = 21$ Oe.

На рис. 4–6 приведены результаты измерений температурных зависимостей $\epsilon_3(T)$ для образцов N 2–N 4. Условия измерений (частота и амплитуда переменного магнитного поля) указаны в подписях к рисункам. При амплитуде переменного магнитного поля $h = 1$ Oe (рис. 6(b)) при $T > T_c$ проявляется только шумовой сигнал. Экспериментальные данные для образца N 4 (рис. 6) получены на установке Института физических проблем им. П. Л. Капицы.

Какие-либо литературные данные об исследовании гармоник намагниченности выше T_c высококачественных массивных образцов YBCO нам не известны. Необходимо отметить несколько моментов.

1. Нелинейность при $T > T_c$ (появление третьей и следующих нечетных гармоник с уменьшающейся амплитудой) наблюдалась во всех исследованных монокристаллических образцах YBCO. Температура возникновения нелинейности в этих образцах YBCO составляет $T^* = 103$ – 112 K (для разных образцов). Эти температуры, найденные в нашей работе, совпадают с температурами появления псевдощели, полученными другими методами в работах [11–13]. Наши предварительные данные для одного текстурированного поликристалла YBCO впервые были опубликованы в работе [18]. Исследования, вы-

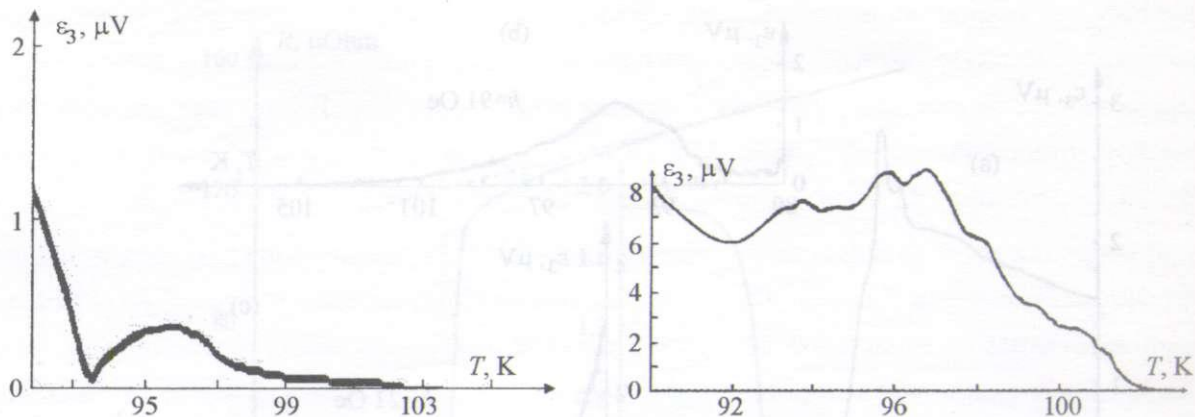


Рис. 4. Температурная зависимость амплитуды третьей гармоники ϵ_3 образца N 2 в переменном магнитном поле с частотой $f = 60$ Hz ($h = 87$ Oe).

Рис. 5. Температурная зависимость амплитуды третьей гармоники ϵ_3 образца N 3 в переменном магнитном поле с частотой $f = 120$ Hz ($h = 20$ Oe).

полненные на керамическом (не текстурированном) образце YBCO, имеющем $T_c \approx 92$ K и плотность $\rho \approx 4.2$ g/cm², в пределах ошибки измерений и в интервале использованных амплитуд переменного магнитного поля показали отсутствие вышеуказанной нелинейности выше T_c .

2. В рамках существующих моделей магнитных свойств высокотемпературных сверхпроводников полученные результаты объяснить затруднительно. Диамагнетизм мелкодисперсных областей “локализованной” сверхпроводимости выше T_c , имеющих форму непересекающихся кластеров, является весьма малым ($\sim 10^{-6}$) [19] по сравнению с идеальным диамагнетизмом. Наблюдаемые нами эффекты в области $T_c < T < T^*$ на несколько порядков величины больше. Т.е. с помощью такой модели невозможно объяснить наши эксперименты. По нашему мнению, эти данные можно объяснить именно возникновением псевдощелевой структуры ВТСП, которая должна приводить к нелинейности как сопротивления, так и намагниченности. Показательно, что нелинейность намагниченности в наших образцах возникает при той же температуре T^* , что и нелинейность сопротивления. Выше T^* нелинейность намагниченности в пределах ошибки измерений отсутствует.

До сих пор нельзя отдать предпочтение ни одной из двух главных моделей псевдощелевого состояния в ВТСП системах [6, 7]. В одной из них источником псевдощели являются “диэлектрические” (антиферромагнитные) флуктуации, при этом псевдощель в первом приближении не связана со сверхпроводимостью. В другом подходе псевдощель имеет сверхпроводящую природу, т.е. источником ее являются флуктуации “сверхпроводящих” пар. В принципе, можно рассматривать модель, в которой в кристалле ВТСП по разным направлениям импульсного пространства возникают щели обоих типов [5]. В любом случае в области “псевдощелевых” температур $T < T^*$ в образце возникает состояние с частичной когерентностью (зависящей от температуры). И магнитное поле должно влиять на это состояние, что и наблюдается на эксперименте.

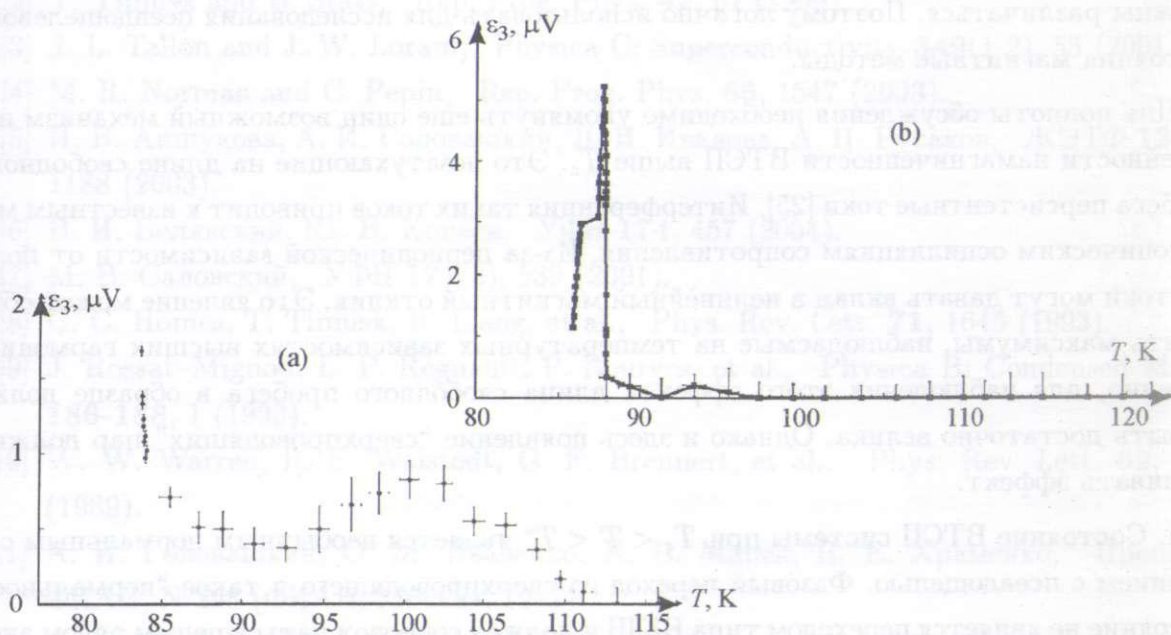


Рис. 6. Температурная зависимость амплитуды третьей гармоники ϵ_3 образца N 4 в переменном магнитном поле с частотой $f = 716 \text{ Hz}$. (a) $h = 89 \text{ Oe}$; (b) $h = 1 \text{ Oe}$.

3. В модели “некогерентных” пар считается, что при некоторой температуре $T^* > T_c$ образуется состояние с некогерентными (или частично когерентными) электронными парами. Когерентность в объеме образца и, следовательно, “настоящее” сверхпроводящее состояние устанавливается при T_c . Наличие “сверхпроводящих” пар при $T_c < T < T^*$ должно отражаться на температурной зависимости намагниченности образца в этом интервале температур. Намагниченность будет нелинейной из-за влияния магнитного поля на фазовую когерентность, образование и взаимодействие таких

пар. В “псевдощелевой” области температур наблюдаются диамагнитные флуктуации и аномально большой эффект Нернста [20–22], который может быть связан с возбуждениями в виде вихрей [6, 22, 23]. Вихревые элементарные возбуждения приводят к потере фазовой когерентности. В отсутствие фазовой когерентности выше T_c циркулярные орбитальные токи могут приводить [20, 24] к значительному диамагнетизму (нелинейному эффекту Мейснера). При этом вполне естественно, что на эксперименте при $T < T^*$ должны наблюдаться гармоники намагниченности.

В модели “диэлектрической” псевдощели, возникающей в ВТСП типа YBCO из-за антиферромагнитных флуктуаций, намагниченность при $T < T^*$ также должна быть нелинейной. Однако зависимости эффекта от магнитного поля в этих двух подходах должны различаться. Поэтому логично использовать для исследования псевдощелевого состояния магнитные методы.

Для полноты обсуждения необходимо упомянуть еще один возможный механизм нелинейности намагниченности ВТСП выше T_c . Это незатухающие на длине свободного пробега персистентные токи [25]. Интерференция таких токов приводит к известным мезоскопическим осцилляциям сопротивления. Из-за периодической зависимости от поля эти токи могут давать вклад в нелинейный магнитный отклик. Это явление может объяснить максимумы, наблюдаемые на температурных зависимостях высших гармоник. Конечно, для наблюдения этого эффекта длина свободного пробега в образце должна быть достаточно велика. Однако и здесь появление “сверхпроводящих” пар должно усиливать эффект.

4. Состояние ВТСП системы при $T_c < T < T^*$ является необычным нормальным состоянием с псевдощелью. Фазовый переход из сверхпроводящего в такое “нормальное” состояние не является переходом типа БКШ и должен сопровождаться целым рядом аномалий. И действительно, в этой области температур для поликристаллических, рентгеновски однофазных образцов $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ мы ранее наблюдали аномальное нелинейное поведение скорости ультразвука [26, 27], упругих модулей и внутреннего трения [28, 29]. Дальнейшее исследование этого фазового перехода и состояния образцов ВТСП систем в области $T < T^*$ методом гармоник намагниченности позволит получить новые данные о природе и самого перехода, и псевдощелевого состояния.

В заключение отметим, что в работе предложен новый метод определения температуры возникновения псевдощелевого состояния T^* в ВТСП соединениях, основанный на измерении высших гармоник намагниченности. Полученные этим методом значения температуры T^* в монокристаллических образцах ВТСП $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ совпали с температу-

рой начала нелинейности сопротивления в них и данными других методик. Для окончательного выяснения природы псевдощели в ВТСП системах необходимо использовать различные эксперименты.

Авторы выражают благодарность А. В. Калинову и В. В. Александрову (ВЭИ) за предоставление образцов. Работа выполнена при поддержке РФФИ (проект N 07-02-00097), Минобрнауки и РАН.

ЛИТЕРАТУРА

- [1] H. Ding, T. Yokoya, J. C. Campuzano, et al., *Nature* **382**, 51 (1996).
- [2] T. Timusk and B. Statt, *Rep. Prog. Phys.* **42**, 61 (1999).
- [3] J. L. Tallon and J. W. Loram, *Physica C: Superconductivity* **349**(1-2), 53 (2001).
- [4] M. R. Norman and C. Pepin, *Rep. Prog. Phys.* **66**, 1547 (2003).
- [5] Н. В. Аншукова, А. И. Головашкин, Л. И. Иванова, А. П. Русаков, *ЖЭТФ* **123**(6), 1188 (2003).
- [6] В. И. Белявский, Ю. В. Копаев, *УФН* **174**, 457 (2004).
- [7] М. В. Садовский, *УФН* **171**(5), 539 (2001).
- [8] C. C. Homes, T. Timusk, R. Liang, et al., *Phys. Rev. Lett.* **71**, 1645 (1993).
- [9] J. Rossat-Mignod, L. P. Regnault, P. Bourges, et al., *Physica B: Condensed Matter* **186-188**, 1 (1993).
- [10] W. W. Warren, R. E. Walstedt, G. F. Brennert, et al., *Phys. Rev. Lett.* **62**, 1193 (1989).
- [11] А. И. Головашкин, О. М. Иваненко, К. В. Мицен, Н. Е. Храменко, Препринт ФИАН, N 298 (ФИАН, Москва, 1987).
- [12] T. Ito, K. Takenaka, and S. Uchida, *Phys. Rev. Lett.* **70**, 3995 (1993).
- [13] Д. Д. Прокофьев, М. П. Волков, Ю. А. Бойков, *ФТТ* **45**, 1168 (2003).
- [14] М. А. Васютин, Н. Д. Кузьмичев, В. В. Славкин и др., *Прикладная физика* N 2, 51 (1995).
- [15] А. И. Головашкин, Н. Д. Кузьмичев, И. С. Левченко и др., *ФТТ* **31**, 233 (1989).
- [16] А. И. Головашкин, Н. Д. Кузьмичев, И. С. Левченко и др., *ФТТ* **32**, 1374 (1990).
- [17] Н. Д. Кузьмичев, *ЖТФ* **64**, 63 (1994).
- [18] А. И. Головашкин, Н. Д. Кузьмичев, В. В. Славкин, *Краткие сообщения по физике ФИАН*, N 9, 19 (2006).
- [19] А. В. Митин, Г. М. Кузьмичева, В. В. Мурашов, Е. П. Хлыбов, *ЖЭТФ* **107**, 1943 (1995).

- [20] Y. Wang et al., Phys. Rev. Lett. **95**, 24002 (2005).
- [21] Z. A. Xu et al., Nature **406**, 486 (2000).
- [22] Y. Wang et al., 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] А. И. Головашкин, А. М. Цховребов, Н. Д. Кузьмичев, В. В. Славкин, Сборник трудов Второй международной конференции "Фундаментальные проблемы высокотемпературной сверхпроводимости" (ФПС'06, ФИАН, Москва, 2006), с. 170.
- [26] A. I. Golovashkin, V. A. Danilov, O. M. Ivanenko, et al., Preprint FIAN N 305 (FIAN, Moscow, 1987).
- [27] А. И. Головашкин, О. М. Иваненко, К. В. Мицен, и др., В сб.: "Проблемы высокотемпературной сверхпроводимости" (Информационные материалы) ч. II, (АН СССР, Уральское отделение, Ин-т физики металлов, Свердловск, 1987), с. 180.
- [28] Н. В. Аншукова, А. И. Головашкин, О. М. Иваненко и др., В сб.: "Проблемы высокотемпературной сверхпроводимости" (Информационные материалы) ч. II, (АН СССР, Уральское отделение, Ин-т физики металлов, Свердловск, 1987), с. 182.
- [29] Н. В. Аншукова, Г. П. Воробьев, А. И. Головашкин, и др., Письма в ЖЭТФ **46**(9), 373 (1987).

Поступила в редакцию 20 декабря 2007 г.