

СРАВНИТЕЛЬНОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ ТРАНСПОРТНЫХ СВОЙСТВ КОМПОЗИТОВ
 $Y_{3/4}Lu_{1/4}Ba_2Cu_3O_7 + NiTiO_3$, $Y_{3/4}Lu_{1/4}Ba_2Cu_3O_7 + MgTiO_3$ В МАГНИТНЫХ ПОЛЯХ

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

Приготовлены композиты 92.5 Vol.% $Y_{3/4}Lu_{1/4}Ba_2Cu_3O_7$ + 7.5 Vol.% $NiTiO_3$, 92.5 Vol.% $Y_{3/4}Lu_{1/4}Ba_2Cu_3O_7$ + 7.5 Vol.% $MgTiO_3$, представляющие сеть туннельных переходов джозефсоновского типа. Приведены результаты исследования транспортных свойств этих композитов в магнитных полях. На температурной зависимости электросопротивления $R(T)$ композитов с парамагнитным соединением $NiTiO_3$ ниже температуры перехода высокотемпературного сверхпроводника (ВТСП) T_c обнаружена особенность - участок, на котором R не зависит от тока j и слабо зависит от магнитного поля H . Ниже некоторой температуры T_m наблюдается сильная зависимость R от j и H , характерная для сети джозефсоновских переходов. Зависимости $R(T, j, H)$ для образцов с "немагнитным" $MgTiO_3$ не имеют необычных особенностей. Аномальное поведение композитов ВТСП + $NiTiO_3$ объясняется влиянием магнитных моментов атомов Ni в диэлектрических барьерах между ВТСП кристаллитами на транспорт носителей тока.

Джозефсоновские структуры с различным типом магнитного упорядочения в барьере (сверхпроводник - ферромагнетик - сверхпроводник, сверхпроводник - парамагнетик - сверхпроводник) интенсивно изучаются как теоретически, так и экспериментально на низкотемпературных сверхпроводниках на протяжении многих лет [1-13], поскольку в них есть интересные эффекты, такие как немонотонная зависимость критического тока от температуры [6,7,10-12], наблюдение π -структур [3,7,10-12], редуцирование сверхпроводящих свойств и характерные зависимости магнитосопротивления [13]. Из-за сильной химической активности высокотемпературных сверхпроводников (ВТСП) затруднительно создавать подобные одиночные джозефсоновские структуры на их основе. С другой стороны, некоторые особенности резистивного состояния таких контактов можно наблюдать и на двухфазных композитах, одним из ингредиентов которых будет ВТСП, а вторым - какое-либо соединение, обладающее магнитным упорядочением. Технологически изготовить такие композиты достаточно просто. Необходимым условием синтеза таких композитов является отсутствие сильного химического взаимодействия между исходными ингредиентами композита. Ранее показано [14-18], что ниже температуры перехода сверхпроводящих гранул T_c транспортные свойства композитных ВТСП, приготовленных по технологии быстрого спекания, подобной описанной ниже в п.1, определяются в основном влиянием границ между ВТСП - кристаллитами - слабыми связями джозефсоновского типа. Несверхпроводящий ингредиент играет роль материала этих слабых связей. Поэтому мы рассматриваем эти композиты как сеть джозефсоновских переходов.

В настоящей работе результаты исследования магниторезистивных свойств композитов, состоящих из ВТСП $Y_{3/4}Lu_{1/4}Ba_2Cu_3O_7$ и парамагнетика $NiTiO_3$. В качестве "реперного" образца нами использовались композиты $Y_{3/4}Lu_{1/4}Ba_2Cu_3O_7 + MgTiO_3$, поскольку соединение $MgTiO_3$ немагнитно и изоструктурно с $NiTiO_3$. В предыдущей работе [19] мы исследовали транспортные свойства этих композитов и получили следующие результаты. На температурных зависимостях электросопротивления $R(T)$ композитов $Y_{3/4}Lu_{1/4}Ba_2Cu_3O_7 + NiTiO_3$ ниже температуры перехода при некоей температуре T_m была обнаружена особенность. Ниже T_m зависимости $R(T)$ являются функциями транспортного тока, выше T_m вольт-амперные характеристики (ВАХ) композитов линейны. Данная температура T_m была интерпретирована как температура плавления решетки абрикосовских вихрей, аналогично результатам работ [20,21], в которых исследовались зависимости $R(T)$ монокристаллов $YBa_2Cu_3O_7$ [20] и $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$ [21] вдоль c -оси. Также на температурной зависимости критического тока композита ВТСП + 7.5 об.% $NiTiO_3$ при температуре антиферромагнитного перехода соединения $NiTiO_3$ (~22 К) обнаружен излом. Логическим продолжением исследований, которые были опубликованы в работе [19], явилось разрушение слабых связей не только транспортным током, но и магнитным полем.

Композитные образцы с различным объемным содержанием $Y_{3/4}Lu_{1/4}Ba_2Cu_3O_7$ и $NiTiO_3$, $Y_{3/4}Lu_{1/4}Ba_2Cu_3O_7$ и $MgTiO_3$ были приготовлены следующим образом. Первоначально синтезировались исходные компоненты будущих композитов. Технология синтеза $Y_{3/4}Lu_{1/4}Ba_2Cu_3O_7$ - стандартная керамическая. $NiTiO_3$ и $MgTiO_3$ были приготовлены соответственно из NiO , MgO и TiO_2 ОСЧ по стандартной керамической технологии за ~100 часов при 1250 °С с пятью промежуточными помолками. Затем исходные компоненты будущего композита, взятые в нужной пропорции, тщательно ретировали и перемешивали в агатовой ступке и прессовали в таблетки. Далее таблетки помещали в печь, нагретую до 910 °С и выдерживали в ней 2 минуты. После этого таблетки помещались в другую печь, нагретую до 350 °С и выдерживали в ней 3 часа для насыщения их кислородом, а далее охлаждали вместе с печью. Таким методом быстрого спекания были приготовлены композиты:

92.5 об.% $Y_{3/4}Lu_{1/4}Ba_2Cu_3O_7$ + 7.5 об.% $NiTiO_3$ - маркировка - (S+7.5(Ni)),

92.5 об.% $Y_{3/4}Lu_{1/4}Ba_2Cu_3O_7$ + 7.5 об.% $MgTiO_3$ - маркировка - (S+7.5(Mg)).

Измерения электросопротивления $R(T)$ и магнитосопротивления $R(H)$ (магнитное поле перпендикулярно направлению тока) проводились стандартным четырехзондовым методом на установке автоматизированный вибрационный магнетометр со сверхпроводящим соленоидом [22].

Результаты магнитных измерений синтезированного $NiTiO_3$ приведены в работе [19]. Они показали, что используемое соединение $NiTiO_3$ является антиферромагнетиком с температурой Нееля ~ 22 К, выше 22 К это парамагнетик. Полученная величина эффективного момента на атом составила $\sim 4\mu_B$.

Измерения температурных зависимостей намагниченности $M(T)$ композитных образцов $S+7.5(Ni)$ (рис.1) и $S+7.5(Mg)$ показали, что оба композита имеют только одну сверхпроводящую фазу с температурой перехода $T_C=93.5$ К, что совпадает с T_C исходного поликристаллического ВТСП $Y_{3/4}Lu_{1/4}Ba_2Cu_3O_7$, прошедшего режим обжига, аналогичный композитам.

Рентгеноструктурные измерения композитных образцов $S+7.5(Ni)$ и $S+7.5(Mg)$ показали наличие только двух фаз (в пределах точности рентгенструктурного анализа) от структуры 1-2-3 и структуры ильменита. Посторонних рефлексов обнаружено не было. Относительные интенсивности рефлексов соответствуют объемному содержанию компонентов в композите.

Таким образом, на основании рентгеноструктурных и магнитных измерений можно сделать вывод, что композиты, синтезированные методом быстрого спекания, представляют собой двухфазную систему сверхпроводник - парамагнитный диэлектрик без заметного химического взаимодействия между ингредиентами.

На рис. 2 приведены зависимости $R(T)$ композита $S+7.5(Mg)$, которые были измерены при различных величинах внешнего магнитного поля и транспортного тока j . Вид данных зависимостей типичен для композитов с диэлектриком ВТСП + CuO [15], ВТСП + Pb_2SeTaO_6 [18] с коротким временем спекания. Отметим их характерные особенности.

Начало сверхпроводящего перехода наблюдается при температуре $T_C = -93.5$ К для всех значений транспортного тока и малых (< 1 кОе) полей, что совпадает с T_C исходного ВТСП. При этой температуре наблюдается переход сверхпроводящих гранул, что выражается в резком уменьшении сопротивления. Величина скачка сопротивления не зависит от приложенного поля и тока и определяется объемным содержанием сверхпроводника в композите. Размытие сверхпроводящего перехода при величинах магнитного поля 1-60 кОе связано с проникновением магнитного поля в сверхпроводящие кристаллиты. Величина эффекта (~ 10 К) совпадает с данными на монокристаллах [23]. Далее следует плавное уменьшение сопротивления, что соответствует переходу сети джозефсоновских слабых связей. Температура обнуления сопротивления понижается по мере увеличения транспортного тока и магнитного поля. Такие зависимости $R(T, j)$, $R(T, H)$ могут быть описаны в рамках механизма термоактивационного проскальзывания

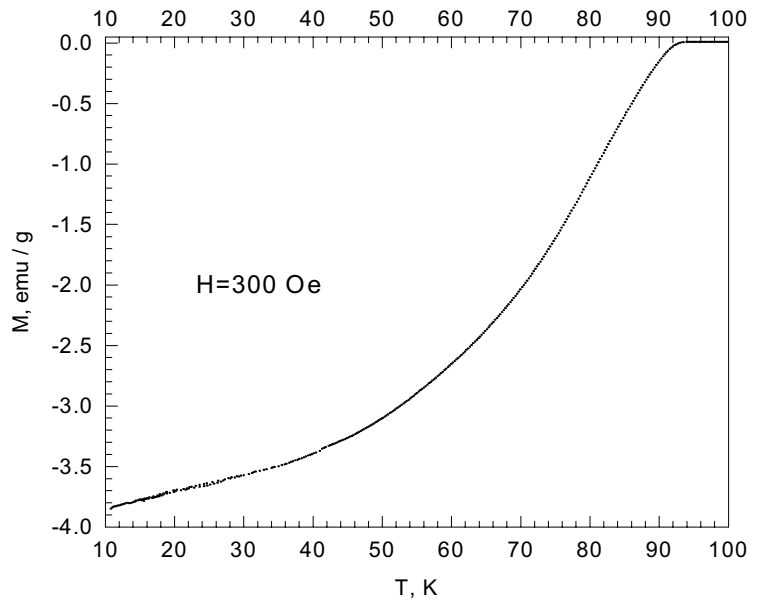


Рис.1. Температурная зависимость намагниченности образца $S+7.5(Ni)$ в поле $H = 300$ Ое

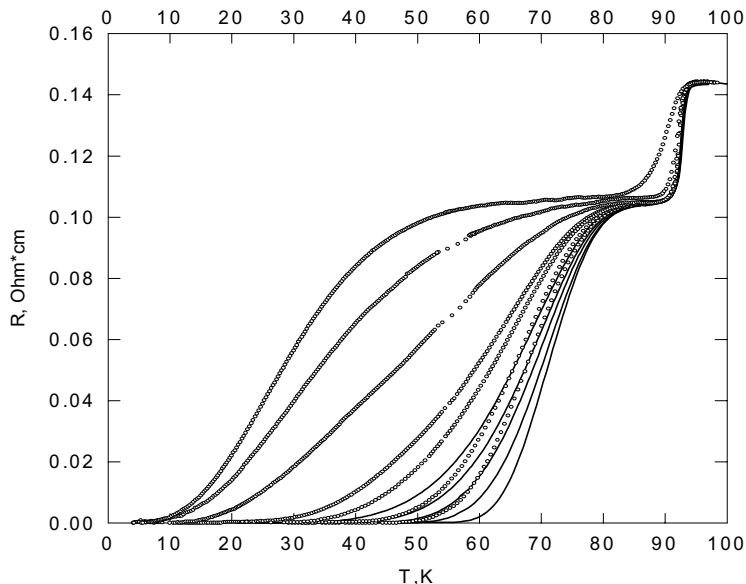


Рис.2. Температурные зависимости электросопротивления образца $S+7.5(Mg)$, измеренные при различной плотности тока j (сплошные линии) и приложенного магнитного поля H (символы). Сплошные линии - $H = 0$, справа налево: $j = 27$ mA/cm^2 , 135 mA/cm^2 , 270 mA/cm^2 , 407 mA/cm^2 , 540 mA/cm^2 . Символы - $j = 27$ mA/cm^2 , справа налево: $H = 20$ Ое, 38 Ое, 80 Ое, 116 Ое, 1 кОе, 10 кОе, 60 кОе

фазы [24], что было сделано для композитов ВТСП + CuO [15] и композитов ВТСП + MgTiO₃ для зависимостей R(T, H = 0) [19].

На рис. 3 представлены зависимости электросопротивления R(T) композита S+7.5(Ni), измеренные при различных значениях транспортного тока j (сплошные линии) и различных значениях внешнего магнитного поля (0 – 60 кЭ) (точки). На рис. 4 приведена зависимость R(H) данного композита при температуре жидкого гелия. Картина начала сверхпроводящего перехода (см. рис.3) такая же, как и для образцов S+7.5(Mg), и описана выше. По мере понижения температуры на зависимостях R(T) обнаружена особенность – появление участка (“плато”), на котором зависимости R(T, j) не являются функциями тока (ВАХ - линейные), а R слабо зависит от магнитного поля. Только начиная с некоторой температуры T_m R(T) оказывается сильно зависящей функцией магнитного поля и тока. В больших полях наблюдается размытие точки T_m, однако смещение данной температуры не происходит. Это отчетливо видно из вставки к рис.3, где представлена зависимость dR/dT от температуры. По мере увеличения транспортного тока и магнитного поля температура обнуления сопротивления понижается. Также следует отметить, что ход зависимостей R(T, H) и R(T, j) не совпадает, что, видимо, связано с влиянием функции распределения на вид R(T).

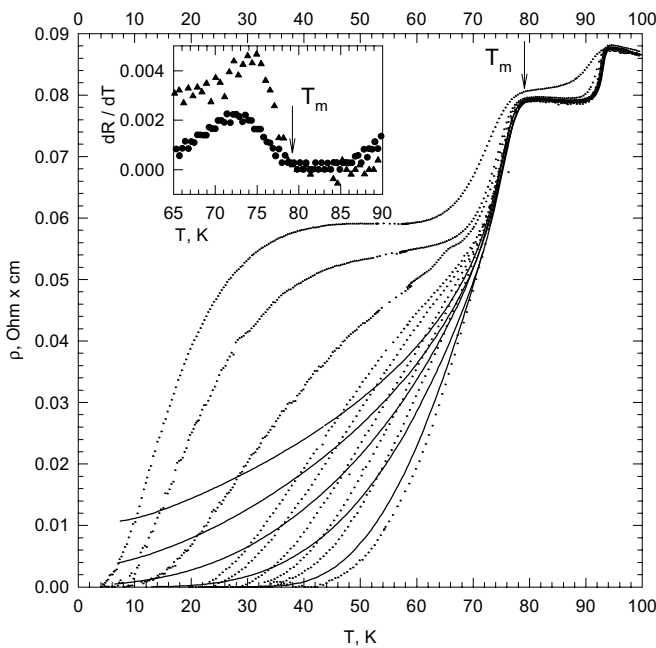


Рис.3. Температурные зависимости электросопротивления образца S+7.5(Ni), измеренные при различной плотности тока j (сплошные линии) и приложенного магнитного поля H (символы). Сплошные линии - H = 0, справа налево: j = 20 mA/cm², 100 mA/cm², 200 mA/cm², 300 mA/cm², 400 mA/cm². Символы - j = 2.0 A/cm², справа налево: H = 0 Oe, 20 Oe, 38 Oe, 80 Oe, 116 Oe, 200 Oe, 1 kOe, 10 kOe, 60 kOe. На вставке: фрагмент температурной зависимости производной электросопротивления dR/dT для зависимостей при H = 0 (треугольники) и H = 60 kOe (кружки)

Появление особенности – температуры T_m, на наш взгляд, не может быть объяснено какими-либо химическими причинами и связано с тем, что в качестве второго компонента композита выступает парамагнетик NiTiO₃. Именно существование магнитных моментов у атомов никеля приводит к аномальному поведению зависимостей R(T) и может быть объяснено в рамках механизма, предложенного в работах [20,21]. Измерение сопротивления вдоль с оси монокристаллов YBa₂Cu₃O₇ [20] и Bi₂Sr₂CaCu₂O₈ [21], помещенных в сильное магнитное поле величиной до 18 Тл компланарно a-b плоскости кристалла, показало уширение резистивного перехода и появление на кривых ρ(T) двух участков - один сразу ниже T_c, где γ не зависит от j, и другой ниже некоторой точки T_m, на котором γ является функцией от тока. Авторы работ [20,21] считают, что точка T_m есть температура плавления решетки абрикосовских вихрей. Достаточно очевидно, что в такой геометрии (H || a, b) магнитное поле проникает в несверхпроводящие слои в большей степени, чем в сверхпроводящие, порождая

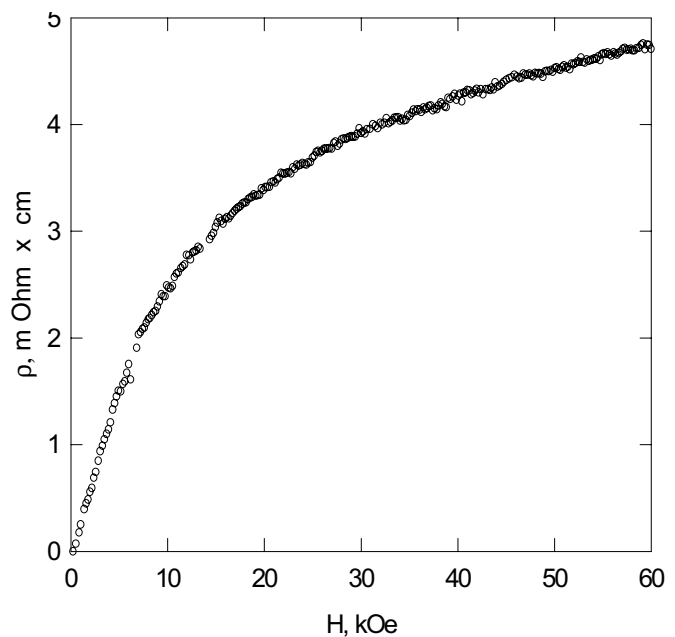


Рис.4. Зависимость электросопротивления образца S+7.5(Ni) при T = 4.2 K от приложенного магнитного поля. Плотность измерительного тока j = 200 mA/cm²

абрикосовские вихри. При пропускании тока вдоль c оси носители туннелируют из сверхпроводящих слоев через несверхпроводящие, где спины носителей взаимодействуют зеэмановским образом с внешним полем. Кроме этого, абрикосовские вихри приходят в движение, и при температурах выше T_m они движутся без пиннинга, что приводит к специфическому виду температурной зависимости магнитосопротивления.

Наши композиты ВТСП+NiTiO₃ можно рассматривать как макроскопический аналог изложенного выше эксперимента. Действительно, имеет место туннелирование носителей между сверхпроводящими гранулами через парамагнетик, где спины носителей взаимодействуют обменным образом (приближенный аналог зеэмановского взаимодействия) с магнитными моментами никеля. Вероятность такого взаимодействия видимо близка к 1, т.к. $a_0 < \xi_0$ (a_0 – параметр решетки, ξ_0 – длина когерентности). Парамагнитный NiTiO₃ индуцирует некоторое эффективное магнитное поле, проникающее внутрь сверхпроводящих гранул на глубину λ (~1000 Å) [25]. Это поле приводит к образованию в приповерхностном с NiTiO₃ слое ВТСП абрикосовских вихрей. При температурах выше T_m сопротивление образца не зависит от величины транспортного тока, как и в случае [20,21]. Ниже этой температуры вихри пиннинуются, ВАХ уже зависит от плотности транспортного тока и наблюдается сильная зависимость электросопротивления от магнитного поля (см. рис. 3, 4).

Поведение зависимости $R(T)$ композитов ВТСП+NiTiO₃ во внешнем магнитном поле подтверждает ранее сделанные выводы [19] о механизме взаимодействия носителей сверхтока с магнитными моментами никеля.

Отметим сходство полученных нами зависимостей с результатами работы [13], где исследовались транспортные свойства одиночных джозефсоновских переходов Nb/Al/Gd/Al/Nb (сверхпроводник – ферромагнетик – сверхпроводник) и были получены подобные зависимости $R(T)$. Ниже температуры сверхпроводящего перехода также наблюдалось два различных участка. Непосредственно ниже температуры сверхпроводящего перехода зависимости $R(T)$ в работе [13] не зависят от величины транспортного тока и только начиная с некоторой температуры (аналогичной T_m) $R(T)$ зависят от j . Эффекты, связанные с влиянием ферромагнитного характера Gd на потенциал барьера, в работе [13] не рассматривались.

Авторы выражают благодарность А.Д. Балаеву за помощь в проведении магнитных измерений и А.Ф. Бовиной за рентгеноструктурный анализ.

Работа поддержана грантом по 6-му конкурсу - экспертизе молодёжных проектов РАН 1999 г., грант №55, и частично поддержана Красноярским краевым фондом науки, грант 10F162M.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Кулик И.О. О величине критического туннельного тока Джозефсона // ЖЭТФ. – 1965. - Т.49 (вып.4), С.1211-1214.
2. Shiba H., Soda T. Superconducting tunneling through the barrier with paramagnetic impurities // Progress of Theoretical Physics. – 1969. – Vol.41 (N1), P. 25-39.
3. Булаевский Л.Н., Кузий В.В., Собянин А.А. Сверхпроводящая система со слабой связью в основном состоянии // Письма в ЖЭТФ. – 1977. – Т.25, (вып.7), С.314-318.
4. Paterson J.L. Critical currents of SNS Junctions with Cu:Mn and Cu:Ni Barriers // Journ. of Low Temp. Phys. – 1979. – Vol.35 (Nos.3/4), P.371-389.
5. Niemeijer J., von Minnigerode G. Effects of Nonmagnetic and Magnetic Impurities in the Normal Metal Layer of SNS Junctions // Z. Physik B. – 1979. – Vol.36, P.57-63.
6. Bulaevskii L.N., Buzdin A.I., Panjukov S.V. The oscillation dependence of the critical current on the exchange field of ferromagnetic (F) metals in Josephson junction S-F-S // Sol. St. Commun. – 1982. – Vol.44 (No 4), P.539-542.
7. Бuzдин А.И., Вуйичич Б., Куприянов М.Ю. Структуры ферромагнетик-сверхпроводник // ЖЭТФ. – 1992. – Т.101 (вып.1), С.231-236.
8. Куплевацкий С.В., Фалько И.И. Стационарный эффект Джозефсона в системе с упорядоченными локализованными примесями в барьере // ФНТ. – 1984.- Т.10 (N7), С.691-698.
9. Борухович А.С. Особенности квантового туннелирования в мультислоях и гетероструктурах, содержащих ферромагнитные полупроводники // УФН. – 1999. – Т.169 (N7), С.737-752.
10. Fogelström M. Josephson currents through spin-active interfaces // Phys. Rev. B. - 2000. – Vol.62 (N17), P.11812-11817.
11. Tanaka Y., Kashiwaya S. Phase dependent energy levels of bound states and dc Josephson current in unconventional superconductor / ferromagnetic insulator / unconventional superconductor junctions // Journal of Physical Society of Japan. – 2000. – Vol.69 (N4), P.1152-1158.
12. Ryazanov V.V., Oboznov V.A., Rusanov A.Yu., Veretennikov A.V., Golubov A.A. and Aarts A.A. Coupling of two superconductors through a ferromagnet: evidence for a p - junction // Phys. Rev. Lett. – 2001. – Vol.86 (N11), P.2427-2430.
13. Bourgeois O, Gandit P., Sulpice A., Chaussy J., Lesueur J., and Grison X. Transport in superconductor/ferromagnet/superconductor junctions dominated by interface resistance // Phys. Rev. B. – 2001. – Vol.63 (N6), P.064517-7.

14. Petrov M.I., Balaev D.A., Ospishchev S.V., Shaihudtinov K.A., Aleksandrov K.S. Critical currents in bulk $Y_{3/4}Lu_{1/4}Ba_2Cu_3O_7 + BaPbO_3$ composites // *Phys. Lett. A.* – 1997. – Vol.237, P.85-89.
15. Петров М.И., Балаев Д.А., Шайхутдинов К.А., Александров К.С. Влияние транспортного тока и тепловых флуктуаций на резистивные свойства композитов ВТСП + CuO // *ФТТ.* – 1999. – Т.41 (вып.6), С.969-977.
16. Петров М.И., Балаев Д.А., Шайхутдинов К.А., Овчинников С.Г. Влияние магнитных центров рассеивания в диэлектрической компоненте композита ВТСП + $Cu_{1-x}Ni_xO$ на его резистивные свойства // *ФТТ.* – 1998. – Т.40 (вып.8), С.1599-1603.
17. Петров М.И., Балаев Д.А., Оспищев С.В., Александров К.С. Транспортные свойства композитов ВТСП + $Ba(Pb,Me)O_3$ в зависимости от электрических и магнитных свойств несверхпроводящих ингредиентов // *ФТТ.* – 2000. – Т.42 (вып.5), P.791 - 797.
18. Berling D., Loegel B., Mehdaoui A., Caranoni C., and Marfaing J. Investigation of intra- and intergranular coupling of ferroelectric-superconducting composites $Pb_2ScTaO_6 - YBa_2Cu_3O_7$ // *Supercond. Sci. Technol.* – 1998. – Vol.11, P.1292-1298.
19. Petrov M.I., Balaev D.A., Shaihudtinov K.A., Aleksandrov K.S. The anomalous transport properties of composites HTSC+ $NiTiO_3$ // *Physica C.* – 2001. – Vol.361 (N1), P.45-52.
20. Charalambous M., Chaussy J., Lejay P. Evidence from resistivity measurements along the c axis for a transition within the vortex state for H//ab in single-cristal $YBa_2Cu_3O_7$ // *Phys. Rev. B.* – 1992. – Vol.45, P.5091-5094.
21. Fuhrer M.S., Ino K., Oka K., Nishihara Y., Zettl A. Josephson vortex lattice melting in $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$ // *Physica C.* – 1997. – Vol.282-287, P.2041-2042.
22. Балаев А.Д., Бояршинов Ю.В., Карпенко М.М., Хрусталеv Б.П. Автоматизированный вибрационный магнитометр со сверхпроводящим соленоидом // *ПТЭ.* – 1985. – Т.3, С.167-168.
23. Tinkham M. Resistive Transition of High-Temperature Superconductors // *Phys. Rev. Lett.* – 1988. – Vol.61 (N14), P.454-457.
24. Ambegaokar V., Halperin B.I. Voltage due to thermal noise in the DC Josephson effects // *Phys. Rev. Lett.* – 1969. – Vol.22, P.1364-1366.
25. Malozemoff A.P. Physical Properties of high temperature superconductors. I. – (ed. Donald M.Ginsberg) Singapore: Wold Scientific, 1989. – 544p.