

УДК 537.312.62; 538.945

## О КРИТИЧЕСКОЙ ПЛОТНОСТИ ТОКА ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНЫХ КЕРАМИЧЕСКИХ СВЕРХПРОВОДНИКОВ

*H. A. Подлевских, Л. М. Фишер*

В трехмерной модели гранулярной сверхпроводящей структуры проведены численные исследования критической плотности тока. Установлено, что по мере роста числа гранул критический ток в системе стремится к усредненной по сечениям образца токонесущей способности  $\mathcal{J}$ . Величина  $\mathcal{J}$  определяется как сумма критических токов связей, пронизывающих сечение, перпендикулярное току. Обсуждается также влияние постоянного магнитного поля на критическую плотность тока в гранулярной структуре.

После открытия Беднорда и Мюллера [1] высокотемпературные сверхпроводники (ВТСП) стали предметом интенсивных исследований. Керамические технологии приготовления ВТСП приводят к гранулярным структурам, которые в широкой области температур можно рассматривать как набор сверхпроводящих гранул, между которыми имеются слабые связи. Гранулы могут быть и моно- и поликристаллическими. Внутри гранул также могут быть неоднородные области, связанные между собой слабыми связями. В результате образец распадается на систему сверхпроводящих кластеров. Мы для определенности будем считать, что указанные кластеры совпадают координатно с гранулами. Ясно, что керамические сверхпроводники представляют разновидность неоднородных сверхпроводников, изучавшихся и до открытия высокотемпературной сверхпроводимости (см., например, [2]). На рис. 1 приведена гранулярная структура керамического ВТСП  $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-x}$ .

Естественно ожидать, что критический ток через образец  $I_{kp}$  зависит от критического тока  $i_{kp}$  между отдельными гранулами. Ток  $i_{kp}$  представляет собой случайную величину, отличающуюся для разных пар гранул. Вид и параметры распределения этой случайной величины зависят от ряда технологических факторов. Однако даже при известных  $i_{kp}$  задача определения критического тока через образец не является тривиальной. Определение  $I_{kp}$  примыкает к задачам теории протекания для сеток случайных сопротивлений [3]. Чисто геометрически ситуация подобна случаю «протекания со штрафом» [4]. Однако сверхпроводимость гранул придает задаче совершенно иной вид.

В настоящей работе обсуждается возможный способ определения  $I_{kp}$  в гранулированном сверхпроводящем образце.

1. Известно, что в большом числе случаев [5] бездиссипативный ток между двумя сверхпроводниками, соединенными слабой связью, можно записать в виде

$$i = (i_{kp})_{1,2} \sin(\varphi_1 - \varphi_2), \quad (1)$$

где  $\varphi_1, \varphi_2$  — фазы параметров порядка в первом и втором сверхпроводнике;  $(i_{kp})_{1,2}$  — максимальная величина бездиссипативного тока через контакт. Мы будем предполагать, что для наших слабых связей равенство (1) всегда выполняется. При стационарном течении по образцу сверх-

проводящего тока для каждой гранулы с номером  $k$  должно выполняться условие

$$\sum_j (i_{kp})_{k,j} \sin (\varphi_k - \varphi_j) = 0, \quad (2)$$

где суммирование проводится по всем гранулам с номерами  $j$ , связанными слабой связью с гранулой  $k$ . Это условие сохранения заряда гранул. В гранулярной системе это условие может быть реализовано большим числом способов.

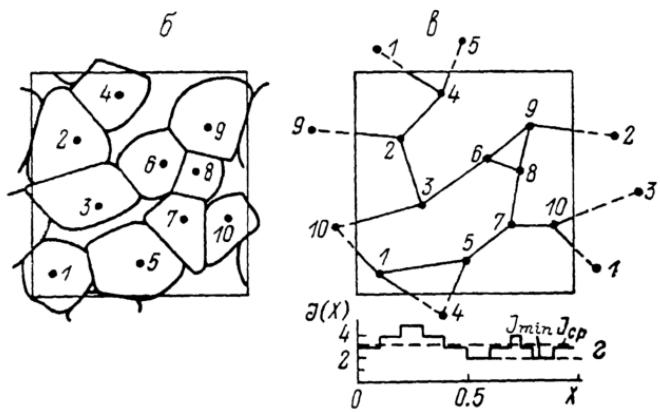
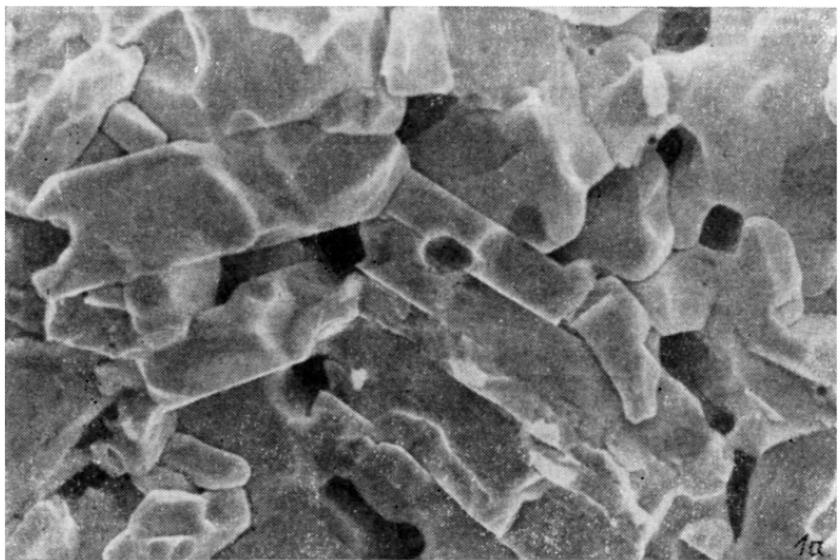


Рис. 1. Структура поверхности керамического образца ВТСП (а) и ее схематическое изображение в виде плоских областей (б) и соответствующего набора точек со связями (в). Зависимость  $J(X)$  для данного набора точек (г).

Имитируем гранулярный сверхпроводник системой точек, случайно разбросанных по трехмерному пространству. Для реализации этого в кубе с единичным объемом разместим  $M$  точек,  $X$ ,  $Y$  и  $Z$  координаты которых представляют произвольную выборку  $3M$  значений случайной величины, равномерно распределенной в интервале  $[0, 1]$ . Периодическим продолжением куба по всему пространству получаем нужный нам набор точек, соответствующих центрам гранул. Расчеты проводятся для  $M$  точек, находящихся в кубе единичного объема, который вместе с находящимися в нем точками мы называем системой. Для каждой точки  $A_k$  ( $k=1, 2, 3, \dots, M$ ) находим по какому-либо правилу соединенные с нею слабой связью точки  $A_j$ . В качестве таких точек  $A_j$  в данной работе использовались

либо  $N$  соседних точек из числа ближайших (I тип выбора), либо все соседние точки, находящиеся на расстояниях, не больших  $r$  от точки  $A_k$  (II тип выбора). Каждой связанной паре точек ставим в соответствие критический ток  $(i_{kp})_{k,j}$ , способный бездиссипативно протекать между ними. Значения  $(i_{kp})_{k,j}$  для несвязанных точек полагаем равными нулю. В нашем случае из-за недостатка информации о связях между гранулами мы считали  $i_{kp}$  случайной величиной, логарифм которой, как и для сетки случайных сопротивлений [3], распределен по нормальному закону с параметрами  $\sigma = \delta \ln(i_{kp}/i_0)$  и  $c = \langle \ln(i_{kp}/i_0) \rangle$ , где  $i_0$  — единица измерения тока, а усреднение  $\langle \dots \rangle$  проводится по всем связям. Ясно, что при увеличении всех  $i_{kp}$  в несколько раз во столько же раз увеличивается критический ток всего образца. Поэтому остается единственный существенный параметр распределения  $\sigma$ , а единицу измерения тока  $i_0$  мы выбираем такой, чтобы среднее значение  $c = \langle \ln(i_{kp}/i_0) \rangle$  было равно нулю.

При выборе граничных условий считаем, что все гранулы, центры которых расположены левее плоскости  $X=0$ , имеют фазу, равную нулю. Аналогично гранулы, координата  $X$  которых больше единицы, имеют фазу параметра порядка, равную  $\varphi_{rp}$ . (Оси координат выбраны таким образом, что плоскости  $X=\text{const}$  перпендикулярны току).

Когда сверхпроводящая гранулярная система находится в равновесном состоянии, фазы всех гранул равны и токи в системе отсутствуют. Такое состояние соответствует минимуму свободной энергии. При протекании по слабой связи тока появляются добавки к энергии, пропорциональные  $i^2$ . Они связаны с магнитным полем тока и кинетической энергией электронов. Кроме того, будет добавка к энергии, связанная со сверхпроводимостью

$$E_{k,j} = (\hbar (i_{kp})_{k,j} / 2e) [1 - \cos(\varphi_k - \varphi_j)], \quad (3)$$

где  $\hbar$  — постоянная Планка,  $e$  — заряд электрона. Будем считать критические токи между гранулами достаточно малыми, чтобы можно было пренебречь изменением параметра порядка внутри гранул и добавками к энергии, пропорциональными  $i^2$ .

Сумма энергий слабых связей по всем парам гранул дается формулой

$$E = \sum_{k=1}^M \sum_{j=1}^M \frac{\hbar (i_{kp})_{k,j}}{2e} [1 - \cos(\varphi_k - \varphi_j)]. \quad (4)$$

Она представляет собой функцию многих переменных  $\varphi_1, \varphi_2 \dots \varphi_M$  и может иметь множество экстремумов. Каждый из них соответствует условию (2) сохранения заряда. Поскольку в стационарных состояниях, соответствующих минимумам выражения (4), не происходит диссипации энергии и производства энтропии, то в рамках неравновесной термодинамики нельзя отдать предпочтения какому-либо из них. Тем не менее мы воспользуемся следующим соображением. При фиксированном значении граничной фазы рассматриваемая нами квантовомеханическая система имеет несколько стационарных метастабильных состояний, отличающихся по энергии. Наиболее вероятным будет состояние системы с минимальной энергией.

В данной работе производился поиск конфигурации фаз гранул, соответствующих наименьшему значению энергии. Для этого применяется метод «имитации отжига» [6], разработанный применительно к численным расчетам параметров спиновых стекол. В этом методе последовательно изменяется каждая из фаз. Очередное приращение к фазе произвольной гранулы делается в том случае, если оно приводит к понижению общей энергии. Если же приращение к энергии  $\Delta E$  положительно, то добавка к фазе также может производиться с вероятностью  $\exp(-\Delta E/T)$ , где  $T$  — медленно поникающаяся «температура» системы. Наличие такого множителя позволяет не останавливаться в неглубоких минимумах и найти энергию, близкую к абсолютному минимуму.

2. Прежде всего отметим, что при  $\varphi_{rp} \ll 1$  величина  $|\varphi_k - \varphi_r| \ll 1$  и в формуле (1) для тока разность фаз играет роль, аналогичную разности потенциалов в задаче для сетки случайных сопротивлений. Величина  $(i_{kp})_{k,j}$  приобретает смысл обратного сопротивления, а суммарный ток через образец  $I = \varphi_{rp}/R$ , где  $R$  — «сопротивление» системы. Таким образом, для малых задача определения  $I$  полностью эквивалентна задаче для сетки случайных сопротивлений. Увеличение  $\varphi_{rp}$  приводит к тому, что разности фаз между отдельными гранулами становятся сравнимыми с  $\pi/2$  и суммарный ток через образец оказывается меньше, чем  $I = \varphi_{rp}/R$ . Зависимость  $I$  от  $\varphi_{rp}$  для  $M=120$ ,  $N=14$  и  $\sigma=0$  изображена на рис. 2. Видно, что функция  $I(\varphi_{rp})$  имеет максимум и ток через систему не превышает 60 единиц. Это значение тока представляет собой одно из возможных значений  $I_{kp}$ , которое мы будем просто называть  $I_{kp}$ . Вертикальные отрезки на рисунке построены между двумя значениями тока, протекающего через грани  $X=0$  и  $X=1$ , при найденной с помощью ЭВМ конфигурации

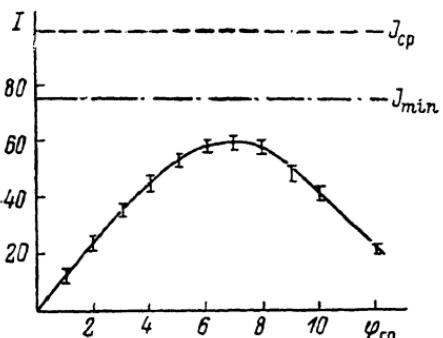


Рис. 2. Зависимость протекающего через систему тока от изменения фазы параметра порядка на полной длине образца.

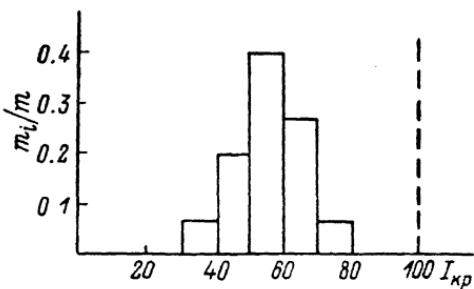


Рис. 3.

рации  $\varphi_k$ . Таким образом, длины вертикальных отрезков характеризуют «ошибку счета», т. е. степень отклонения полученного распределения фаз от искомого. При увеличении числа итераций и соответственно времени счета отличие токов  $I(X=0)$  и  $I(X=1)$  медленно уменьшается. Расчетное время машины БЭСМ-6 при получении графика (рис. 2) составляло в нашей реализации около часа.

Для контроля правильности нахождения  $I_{kp}$  мы проводили расчет одномерного случая, когда  $N=2$ . Зависимости  $I$  от  $\varphi_{rp}$  для одномерной цепочки подобны изображенной на рис. 2. Как и следовало ожидать, расчетная величина  $I_{kp}$  совпадает со значением минимального критического тока  $(i_{kp})_{\min}$  для одной из пар цепочки.

На рис. 3 приведена гистограмма  $I_{kp}$  при числе реализаций  $m=15$  системы с  $M=120$ ,  $N=14$  и  $\sigma=0$ , иллюстрирующая вероятность значений  $I_{kp}$ . (Число  $N=14$  знаменательно тем, что в модели жидкости Бернала среднее число ближайших соседей равно 14 [7]). Аналогично были проведены расчеты  $I_{kp}$  при некоторых других значениях параметров ( $M=50, 120, 240, 500$ ;  $N=2, 8, 10, 12, 14$ ), а также в системе, где соседями являются все точки, отстоящие от данной на расстояниях  $r < (3\bar{N}/4\pi M)^{1/3}$ , где  $\bar{N}$  выбирались равными 8, 10, 12, 14. Кроме того, расчеты проводились при различных значениях полной длины образца. Для образцов разной длины, в частности, установлено, что при достаточно больших  $M$  величина  $I_{kp}$  для линейной цепочки кубов близка к минимальному значению  $I_{kp}$  одного из слагающих цепочку кубов.

Как уже отмечалось, расчетное время поиска  $I_{kp}$  велико и быстро возрастает с ростом  $M$ . Поэтому во всех расчетах мы оперировали с малым числом (порядка 10) реализаций и не стремились делать количественных выводов. Корректное статистическое усреднение разумно проводить при

более определенных знаниях о виде распределения критических токов между гранулами, и в частности о значении параметра  $\sigma$ .

Оценку  $I_{kp}$  можно получить, не проводя вычислений. В предлагаемой модели для каждого сечения образца плоскостью  $X=const$  можно ввести величину  $\mathcal{J}$ , равную сумме критических токов связей, пронизывающих данное сечение. Назовем ее токонесущей способностью сечения. Величина  $\mathcal{J}$  определяет максимальное значение тока, которое может протекать через сечение при условиях, когда фазы гранул, находящихся по разную сторону сечения, отличаются на  $\pi/2$ . При  $\sigma=0$  критический ток между гранулами равен  $i_0$ , а токонесущая способность есть произведение  $i_0$  на число связей  $n$ , пронизывающих сечение. Для иллюстрации использующихся величин на рис. 1, б схематично изображено 10 плоских гранул ( $M=10$ ). Каждая из них граничит и связана слабой связью с тремя соседями ( $N=3$ ). На рис. 1, в гранулы заменены точками, а связи между гранулами — отрезками, соединяющими эти точки. На рис. 1, г изображены функция  $\mathcal{J}(X)$  (при  $\sigma=0$ ) и ее минимальное и среднее по  $X$  значения (штриховые прямые). Условие  $\sigma=0$  означает, что  $\mathcal{J}(X)$  равно числу связей, пронизывающих данное сечение.

Среднее значение числа связей на сечение для некоторых простейших моделей гранулярной структуры может быть выражено через другие задаваемые параметры. Так, для модели с  $M$  равномерно распределенными точками ( $M \gg N \gg 1$ ) в кубе единичного объема для II типа выбора ближайших соседей среднее число связей  $\bar{n}$ , пронизывающих плоскость  $X=const$ , определяется соотношением

$$\bar{n} = \pi M^2 r^4 / 4 = (3/16) M \bar{N} (3 \bar{N} / 4 \pi M)^{1/3}. \quad (5)$$

При  $M=120$  и  $\bar{N}=14$  величина  $\bar{n}$  оказывается порядка 100 и растет как  $M^{2/3}$  при увеличении  $M$ . В случае достаточно большого числа связей  $n$  на сечение выражение для  $\mathcal{J}$  можно записать в виде  $\mathcal{J}=nx_n$ , где  $x_n$  — случайная величина, которая, согласно центральной предельной теореме, имеет асимптотически нормальное распределение вероятностей с дисперсией, в  $\sqrt{n}$  раз меньшей дисперсии распределения связей. Поэтому для любого  $\sigma$  при достаточно большом  $n$  токонесущая способность может характеризоваться числом связей на сечение  $n$ .

В задаче нет каких-либо дополнительных буквенных параметров, и величина критического тока образца должна быть порядка  $\mathcal{J}_{min}$  — минимального значения  $\mathcal{J}$  по всем сечениям  $X=const$ . При этом, однако, не ясно, насколько  $I_{kp}$  меньше  $\mathcal{J}_{min}$  и не появится ли в этом соотношении какая-либо численная малость. Наши вычисления показывают, что даже для весьма ограниченных систем с  $M=120$  (при  $N=14$  и  $\sigma \approx 1$ ) такой малости для большинства реализаций не появляется. Для иллюстрации сказанного на рис. 2 проведена горизонтальная штрихпунктирная линия на уровне, соответствующем расчетному значению  $\mathcal{J}_{min}$ , которое в данной реализации равно 75 единиц. Кроме того, на рис. 2, 3 штрихами отмечены средние по всем сечениям  $X=const$  значения  $\mathcal{J}_{cp}$  для соответствующих параметров. В результате проведения расчетов было установлено, что при увеличении  $M$   $I_{kp}$  стремится к  $\mathcal{J}_{min}$ , а  $\mathcal{J}_{min}$  в свою очередь — к среднему значению  $\mathcal{J}_{cp}$ . Характер стремления  $\mathcal{J}_{min}$  к  $\mathcal{J}_{cp}$  (при  $\sigma=0$ ) проиллюстрирован на рис. 4, на котором приведены кривые, характеризующие плотность вероятности  $P$  для величины  $\mathcal{J}_{min}/\mathcal{J}_{cp}$  и построенные на основе рассчитанных гистограмм для случаев  $M=120$ ,  $N=14$  (1) и  $M=500$ ,  $N=14$  (2). Видно, что при увеличении  $M$  максимум кривой  $P(\mathcal{J}_{min}/\mathcal{J}_{cp})$  смещается вправо к асимптотическому значению  $\mathcal{J}_{min}/\mathcal{J}_{cp}=1$ , отмеченному вертикальной штрихпунктирной прямой. Таким образом, из результатов расчета следует, что в связи  $I_{kp}$  и  $\mathcal{J}_{cp}$  нет не только буквенного, но и малого численного множителя, и для достаточно больших систем ( $M \geq 100$ ) критический ток можно оценить по среднему значению  $\mathcal{J}_{cp}$  или (при  $\sigma \approx 1$ ) по среднему числу связей на сечение. Заметим, что из установленной нами числовой близости  $I_{kp}$  и  $\mathcal{J}_{cp}$  следует, что

определенная в эксперименте критическая плотность тока образца близка к средней критической плотности тока между гранулами. Это утверждение справедливо, если геометрическая форма гранул не является сильно анизотропной.

3. Модель хаотически разбросанных точек можно использовать для рассмотрения протекания тока в магнитном поле и для расчета магнитных характеристик. Так, в работе [8] рассчитывалась диамагнитная восприимчивость плоского кластера сверхпроводящих точек. Однако в эту модель трудно включить динамику прохода межкристаллитной границы квантом магнитного потока. Поэтому поведение реальной плотноупакованной структуры в магнитном поле может существенно отличаться от поведения системы точек. Для иллюстрации этого рассмотрим оценку влияния магнитного поля на величину критического тока, условно предполагая, что уменьшение  $I_{kp}(H)$  связано лишь с появлением джозефсоновских вихрей

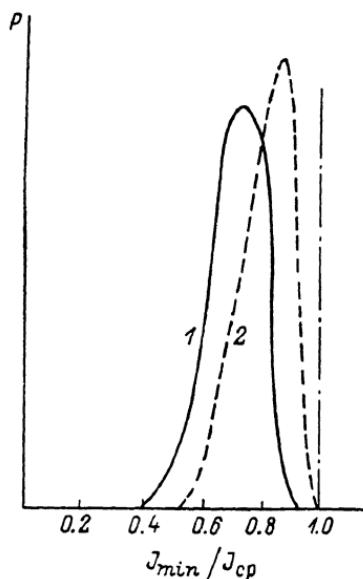


Рис. 4. Рассчитанная плотность вероятности для отношения  $J_{\min}/J_{cp}$ .

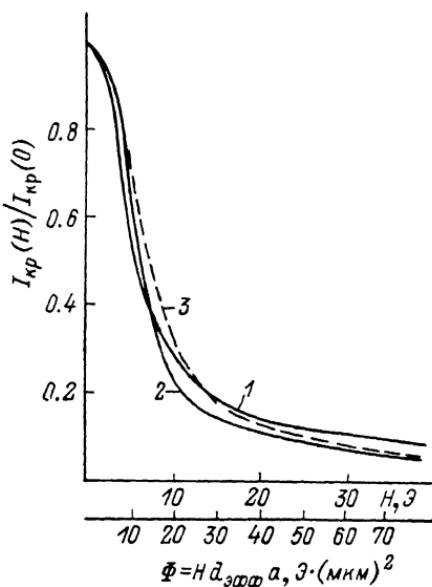


Рис. 5. Относительное изменение критической плотности тока с магнитным полем.

на границе раздела каждой пары связанных гранул. Известно [5], что критический ток, способный протекать через плоский протяженный контакт, находящийся во внешнем магнитном поле  $H$ , определяется выражением

$$i_{kp}(H) = i_{kp} \left| \frac{\sin(\pi\Phi/\Phi_0)}{\pi\Phi/\Phi_0} \right|, \quad \Phi = H a d_{\text{эфф}}, \quad (6)$$

где  $\Phi_0$  — величина кванта магнитного потока;  $a$  — длина контакта в направлении, перпендикулярном полю;  $d_{\text{эфф}}$  — его эффективная толщина. Когда  $\Phi \approx \Phi_0$ , в межзеренной границе «помещается» 1 квант потока. Фаза гранулы вдоль контакта сильно изменяется, а суммарный ток через границу близок к нулю. В керамиках параметры контактов сильно отличаются. Могут меняться площадь контактов, их толщина, материал межкристаллитной прослойки. Тем не менее даже в этих условиях можно полагать, что в слабых магнитных полях  $i_{kp}(H)$  будет квадратично по магнитному полю

$$i_{kp}(H) \approx i_{kp} \left[ 1 - \frac{1}{3!} \left( \frac{\pi\Phi}{\Phi_0} \right)^2 \right] = i_{kp} \left[ 1 - \left( \frac{H}{H_0} \right)^2 \right], \quad (7)$$

где  $H_0$  — характерный масштаб магнитных полей, по порядку величины равный  $\Phi_0/ad_{\text{эфф}}$  и определяемый эффективной толщиной  $d_{\text{эфф}}$  и диаметром  $a$  среднего по размерам контакта. В более сильных магнитных полях

$H > H_0$  за счет усреднения  $|\sin \pi\Phi/\Phi_0|$  в (6) по контактам с различными  $a$  и  $d_{\text{эфф}}$ ,  $i_{\text{kp}}(H)$  будет пропорционально  $1/H$ .

Как было отмечено выше, для образцов с достаточным числом гранул полный критический ток близок к сумме токов связей, пронизывающих сечение, поэтому поведение  $i_{\text{kp}}(H)$  будет примерно описываться усредненной по параметрам контактов зависимостью (6). Мы провели усреднение тока (6) по разным значениям произведения  $W = ad_{\text{эфф}}$ , предполагая, что плотность вероятности для  $W$  имеет гауссово распределение с параметрами  $\delta W$  и  $\bar{W}$ , оборванное при  $W < 0$  (соответственно была изменена нормировка распределения). Получающиеся кривые для двух значений среднеквадратичного отклонения приведены на рис. 5: 1 —  $\delta W = \bar{W}/2$ , 2 —  $\delta W = \bar{W}/4$ . Кривая 3 — экспериментальная зависимость  $i_{\text{kp}}(H)/i_{\text{kp}}(0)$  в области слабых магнитных полей из работы [9]. Видно, что кривые 1, 2 качественно подобны кривой 3. Сопоставляя для кривых 1—3 масштабы по оси абсцисс, как это сделано на рис. 5, можно получить оценку средней величины произведения размера контакта на его толщину  $ad_{\text{эфф}} \approx \approx 2 \text{ (мкм)}^2$ . Из анализа микрофотографий поверхностей ВТСП следует, что типичное среднее значение размеров гранул можно принять равным 10 мкм (см., например, рис. 1, a). В результате можно получить оценку эффективной толщины контакта  $d_{\text{эфф}} \approx 0.2 \text{ мкм}$ . Если считать, что  $d_{\text{эфф}} \approx 2\lambda$ , то получаем вполне разумное значение глубины проникновения магнитного поля  $\lambda$ .

Проведенная выше оценка зависимости  $i_{\text{kp}}(H)$  является грубым приближением, в котором учтено лишь изменение фазы волновой функции внутри гранул. В этом приближении отброшены некоторые существенные особенности поведения системы слабосвязанных сверхпроводящих гранул в магнитном поле (см., например, [10, 11]). В частности, не принимается во внимание влияние фрустриаций фазы волновой функции на токонесущую способность. Их учет приводит к более быстрому, чем для расчетных кривых на рис. 5, уменьшению  $i_{\text{kp}}$  с ростом  $H$ .

В работе [12] проведено подробное исследование протекания тока в металлооксидных сверхпроводниках. Анализ проводился для «крупноячеистой сети» с характерным размером  $L$ , много большим размеров кристаллитов. Такое рассмотрение справедливо при плотностях сверхпроводящей фазы, близких к критической (около 20%). Однако в хороших иттриевых керамиках даже при азотных температурах содержание фазы достигает 60% и более. В таких условиях характерный размер проводящей сети близок к размеру зерен и простой анализ становится невозможным. Поэтому в данной работе производились численные расчеты  $i_{\text{kp}}$ .

#### Список литературы

- [1] Bednorz J. G., Müller K. A. // Z. Phys. 1986. V. 64. P. 189—194.
- [2] Proc. AIP Conf. N 58 — Inhomogeneous Superconductors. 1979, Berkeley Springs, 1980. 440 р.
- [3] Шкловский Б. И., Эфрос А. Л. Электронные свойства легированных полупроводников. М.: Наука, 1979. Гл. 5. 416 с.
- [4] Шкловский Б. И. // ФТТ. 1984. Т. 26. № 2. С. 585—586.
- [5] Абрикосов А. А. Основы теории металлов. М.: Наука, 1987. 519 с.
- [6] Kirkpatrick S. et al. // Science. 1983. V. 220. N 4598. P. 671—680.
- [7] Займан Дж. Модели беспорядка. М.: Мир, 1982. 591 с.
- [8] Ebner C., Stroud D. // Phys. Rev. B. 1985. V. 31. N 1. P. 165—171.
- [9] Коханчик Л. С. и др. // Информационные материалы конф. «Проблемы высокотемпературной сверхпроводимости». Свердловск, 1987. Ч. II. С. 98—99.
- [10] Сонин Э. Б. // Письма в ЖЭТФ. 1988. Т. 47. № 8. С. 415—418.
- [11] Deutscher G., Müller K. A. // Phys. Rev. Lett. 1987. V. 59. P. 1745—1747.
- [12] Мейлихов Е. З., Аронзон Б. А., Арнольд И. Ю., Воинова С. Е., Гершанов Ю. В., Гвасалия К. К. Сверхпроводимость. Вып. 1. Исследование высокотемпературных металлооксидных сверхпроводников. М., 1987. С. 61—77.