

## YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-x</sub> c 轴方向临界电流的测定\*

余 正 丁世英 颜家烈

南京大学物理系, 南京, 210008

任 洪 涛

北京有色金属研究总院, 北京, 100088

1990 年 8 月 6 日收到

本文测量了熔化织构法生长 (MTG) 的和通常烧结法制备的 YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-x</sub> 块状样品的传输临界电流密度  $J_c$  以及磁场-样品不同取向的磁滞回线。MTG 样品的  $J_c$  在 78K 和零场时达到  $3.5 \times 10^4 \text{ A/cm}^2$ 。实验提供了有力的证据表明如此高的  $J_c$  主要是由于块状样品内弱连接的消除, 因为 MTG 块状样品的整体  $J_c$  与烧结样品颗粒内的  $J_c$  几乎相同。从磁滞回线中我们估算出了垂直于  $a$ - $b$  平面流动 (沿  $c$  轴方向) 的  $J_c$  比平行于  $a$ - $b$  平面流动的  $J_c$  约小一个数量级。

PACC: 7460G; 7460J

### 一、引 言

高温超导体潜在技术应用的最重要的参数之一是它们的在液氮温度下的传输  $J_c$ 。高温超导体发现后掀起的世界性“高温超导热”由于普通烧结样品的低传输  $J_c$  (约为  $10^2 \text{ A/cm}^2$ ) 而受到严重的降温。现在已经普遍地认识到, 烧结样品中的大量的弱连接是导致它们的低  $J_c$  的主要原因之一。另一个可能是重要的、并被认为是带有根本性的原因是由于低的磁通钉扎能和高的工作温度 (78K) 共同产生的所谓“巨磁通蠕动” (giant flux creep)。然而, 提高块状样品 YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7</sub> (YBCO) 传输  $J_c$  的努力近年来取得了重大进展<sup>[1-4]</sup>。最近, 任洪涛等人应用改进的 MTG 制备的 YBCO 块状样品的传输  $J_c$  已达到  $3.5 \times 10^4 \text{ A/cm}^2$  (78K, 0 Oe) 和  $2.3 \times 10^4 \text{ A/cm}^2$  (78K, 20kOe)<sup>[5,6]</sup>。但是对 YBCO 块状样品取得高  $J_c$  的物理机制目前的看法尚不一致。Murakami 等人认为他们的淬火熔化生长的块状样品的  $J_c$  高是由于 211 相的强钉扎效应产生的<sup>[3]</sup>。丁世英等人则认为 MTG YBCO 块状样品的高  $J_c$  主要是弱连接的消除所致<sup>[6]</sup>。本文的一个目的是提供进一步的证据来澄清后一看法的正确性。

高温超导体区别于常规超导体的重大特征之一是结构与超导电性的各向异性。就临界电流和钉扎效应的各向异性来讲, 人们已经做了不少工作<sup>[5-7]</sup>。但是已报道的工作中尚未见到沿  $c$  轴方向 (垂直  $a$ - $b$  平面) 的  $J_{c\perp}$  的直接测定值。一般文献中的  $J_{c\perp}$  是指电流

\* 国家自然科学基金资助的课题。

在  $a-b$  平面内流动,外场垂直  $a-b$  平面,而不是本文下面要确定的  $J_{c\perp}$ 。这里的主要困难是不易得到  $c$  轴方向足够厚的单晶,以使沿  $c$  轴方向传输大电流为可能。在对单晶 YBCO 的磁测法中已得到的也仅为  $J_{c\parallel}$  和  $J_{c\perp}$  的平均值<sup>[7]</sup>。垂直于  $a-b$  平面的  $J_c$  的研究不仅对于了解高温超导体的磁通钉扎物理十分重要,而且对于理解高温超导电性机制也是重要的。本文另一个目的是利用品质优良的沿  $c$  轴织构化的 MTG 生长的 YBCO 块状样品和外形相同的烧结样品在几种外场-样品相对取向条件下测量磁滞迴线以及传输  $J_c$ ,并在临界态的 Bean 模型的基础上推导出适当的公式来确定  $J_{c\perp}$  及其与外场的关系。

## 二、实 验

MTG 工艺制备样品的方法已有报道<sup>[9]</sup>。本实验中使用两个 MTG 的 YBCO 样品。一个作磁测量用,为  $3.75 \times 1 \times 0.5\text{mm}^3$  的长方板。另一个作直流传输临界电流测量用,其形状也是长板状的,并且是和作磁测量用的样品从同一块材料上切下来的。X 射线衍射实验仅得到 [001] 谱线,表明样品是高度织构化的。由样品断面拍摄的扫描电子显微镜照片上可以看到样品为致密的层状结构, $a-b$  平面相互平行地规则地排列着,没有看到空隙与微裂纹。样品沿  $a-b$  平面容易解理,我们两块样品的宽大面即  $a-b$  平面。 $a-b$  平面上的晶片可长到直至 25mm 长。从高分辨率的透射电子显微镜照片看,样品仍为多晶的,但晶界薄,晶内致密。关于结构分析的详细结果将另文报道。

传输  $J_c$  的测量是用标准的直流四引线法进行的。 $J_c$  的定义为样品中电场为  $1\mu\text{V}/\text{cm}$ ,磁场为铜线绕的螺管提供,大小为 0—2kOe,测量时样品和磁体一起放在液氮中。磁  $J_c$  由磁滞迴线来计算,磁滞迴线由振动样品磁强计测量,磁场范围为 0—20kOe 并由常规电磁铁提供。

为了对比, $3.75 \times 1 \times 0.5\text{mm}$  的烧结的 YBCO 板条样品被同样地进行了不同外场-样品取向的磁测量。烧结板条样品和 MTG 板条样品的  $T_c$  均为 91k。所有的磁测量都是在液氮中(78K)进行的。

## 三、结果与讨论

图 1 示出三根电场  $E$  和电流密度  $J$  的曲线,其中标有 Cu 的是工业纯紫铜棒的实测结果。如按上述  $J_c$  判据  $1\mu\text{V}/\text{cm}$ ,铜的  $J_c = 0$ 。曲线 1 和 2 分别表示 YBCO 样品在  $H = 0$  和  $H = 800\text{Oe}$  外场中的电场  $E$ -电流密度  $J$  曲线。电流平行于  $a-b$  平面而垂直于外场(曲线 2)。由图 1 可见, $J_{c\parallel}(H = 0) = 3.5 \times 10^4\text{A}/\text{cm}^2$ ,超过迄今为止的任何已报道过的值。 $J_{c\parallel} = 3.4 \times 10^4\text{A}/\text{cm}^2$  ( $H = 800\text{Oe}$ ),几乎和  $J_{c\parallel}(H = 0)$  相同,表示已对磁场不敏感。这些数据说明,MTG YBCO 样品的传输  $J_c(H)$  已和含有大量弱连接的烧结样品完全不同。对于烧结样品,其  $J_c$  不但小 ( $10^2\text{A}/\text{cm}^2$ ),而且对小的外场(例如 50 Oe)就明显地降低。因此图 1 所示的结果不仅说明 YBCO (78K) 的电阻率 ( $= E/J$ ) 大大低于纯铜(78K),其  $J_c$  已创纪录,而且主要不是为弱连接所控制。

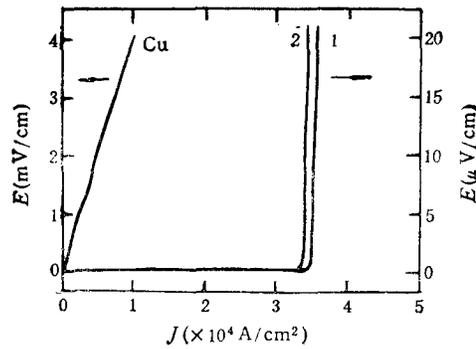


图1 铜棒和 MTG YBCO 块状样品的电场  $E$ -电流密度  $J$  曲线 Cu 为铜棒; 曲线 1 为 MTG YBCO,  $H = 0$ ; 曲线 2 为 MTG YBCO,  $H = 800 \text{Oe}$ ;  $T = 78 \text{K}$

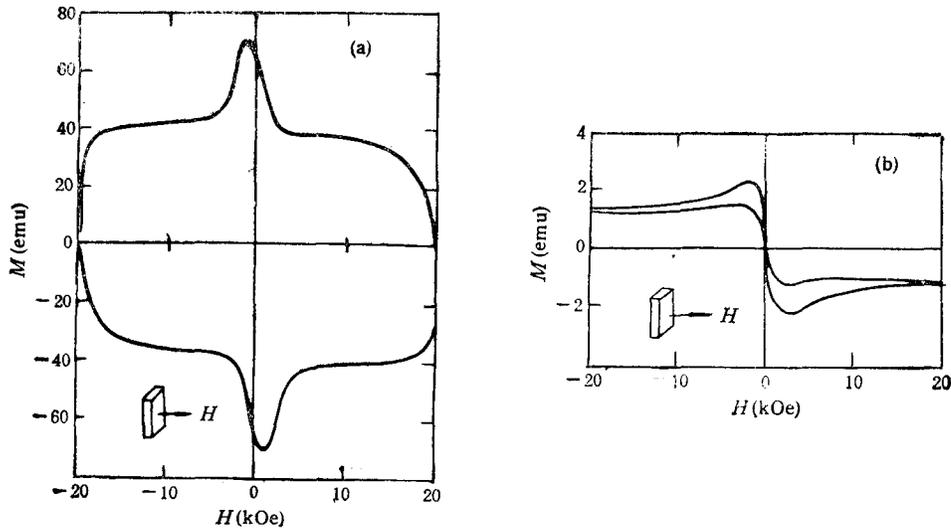


图2 MTG(a) 和烧结的样品 (b) 在液氮中的磁滞迴线  $H$  垂直于宽面

图2中示出 MTG (a) 和烧结的样品(b)在磁场垂直于宽面时的磁滞迴线。上节已指出, 这两种样品外形相同。由图2可见, MTG 的磁化强度以及磁滞量  $\Delta M [ = M^+(H) - M^-(H), M^+$  和  $M^-$  分别表示外场  $H$  相同时升场和降场的磁化强度] 都大大超过烧结样品。由于  $H$  垂直于  $a$ - $b$  平面(样品宽面), 磁化屏蔽电流在  $a$ - $b$  平面内流动, 记作  $J_{c\parallel}$ 。按照临界态的 Bean 模型可以把  $\Delta M$  和  $J_c$  联系起来, 把图2的外场-样品取向的  $\Delta M$  记作  $\Delta M_1$ , 在附录中推得

$$\Delta M_1 = 0.5 J_{c\parallel} a_2 (1 - a_2/2a_1) \quad (1)$$

式中的  $a_1$  和  $a_2$  分别为样品的长度和宽度(见图2)。在推导(1)式时已假设样品没有弱连接。如果设  $a_1 \gg a_2$ , 即样品为长带状, 则  $\Delta M_1 = 0.5 J_{c\parallel} a_2$ , 和通常的长带状样品近似结果一致((1)式为 SI 单位制, 图2为 emv 单位制)。用方程(1)和图2的数据可以得到不同  $H$  时的  $J_{c\parallel}$ 。例如  $H = 0$  时,  $J_{c\parallel} = 3.2 \times 10^4 \text{A/cm}^2$ ,  $H = 10 \text{kOe}$  时,  $J_{c\parallel} = 1.8 \times 10^4$

$\text{A}/\text{cm}^2$  (均指 MTG 样品)。这里的磁屏蔽整个样品的  $J_{cH}(H=0)$  几乎和前述传输直流测得结果  $3.5 \times 10^4 \text{A}/\text{cm}^2$  相同。这一事实是一个有力的证据,表明样品中至少在低场时弱连接已基本被消除。

对于烧结样品,它含有大量弱连接,为颗粒状。如果再以样品的表观尺寸  $a_1, a_2$  来计算  $J_c$  则是不合理的,此时各颗粒的磁性已独立。磁屏蔽临界电流在颗粒内流动,所以方程中的尺寸  $a_1$  和  $a_2$  在假定颗粒内无弱连接时应是颗粒的平均尺寸,取平均是因为颗粒形状不规则,且是随机分布的。经显微结构观察,我们烧结样品中颗粒的平均尺度约为  $15 \mu\text{m}$  (这和一般报道的值相同)。用  $a_1 = a_2 = 15 \mu\text{m}$  代入方程(1),  $\Delta M$  取图 2(b) 的实验值,得到平均的  $J_c$  值约为  $\bar{J}_c = 1.1 \times 10^4 \text{A}/\text{cm}^2 (78\text{K}, H = 10\text{kOe})$ 。

图 3 和图 4 为图 2 中所用样品在另外两种(如这两图所示的)外场-样品取向的磁滞迴线。如果我们的结论正确,那么在图 2 至图 4 中烧结样品的磁滞迴线应该一样,即烧结样品的磁滞迴线与磁场-样品的取向基本无关。实验结果也正是这样。对于 MTG 样品,我们将磁场取向如图 3 时测得的磁滞量记作  $\Delta M_2$ ,如图 4 的取向测得  $\Delta M_3$ 。比较图 2 至图 4 中的 MTG 样品,实验结果明确地显示了在相同的外场  $H$  值,磁滞量  $\Delta M_3 < \Delta M_2 < \Delta M_1$ 。用附录中 (A·1) — (A·5) 式来计算  $\Delta M$ ,也正是这种关系。而这些计算式是在认为样品中没有弱连接,磁化电流密度是通过样品整体的条件下推导出来的。这是 MTG YBCO 样品中弱连接已基本消除的又一个证据。

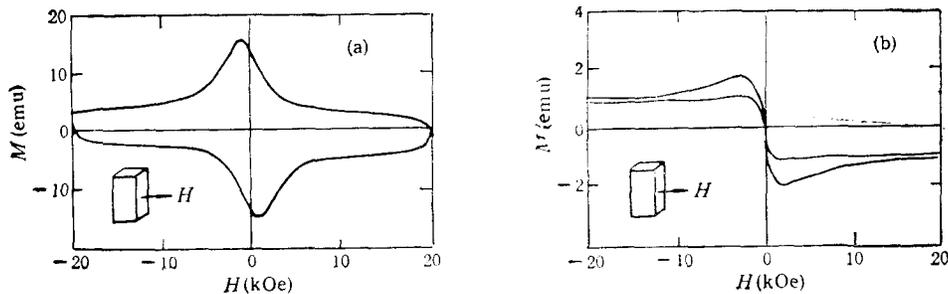


图 3 MTG 的(a)和烧结的(b) YBCO 样品的磁滞迴线  $T = 78\text{K}; H$  垂直于长度和厚度

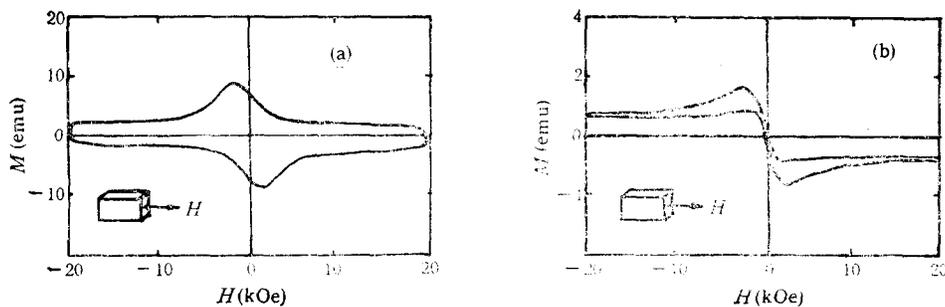


图 4 MTG 的(a)和烧结的(b) YBCO 样品的磁滞迴线  $T = 78\text{K}; H$  垂直于宽度和厚度

如果仅考虑弱连接消除而  $J_c$  无各向异性,用(1)式求出的  $J_{cH}$  值来计算  $\Delta M_2$  和  $\Delta M_3$ ,则与图 2(a)或图 3(a)的实测结果偏大较多。因此必须考虑垂直于  $a-b$  平面流动

的磁化电流  $J_{c\perp}$  小于  $J_{c\parallel}$ . 由测量的  $\Delta M_2$  或  $\Delta M_3$ , 用附录中给出的计算式可以求出  $J_{c\perp}$ . 在使用 (A.2)–(A.5) 式时必须注意到各方程的条件和解的自洽性. 求出的  $J_{c\perp}$

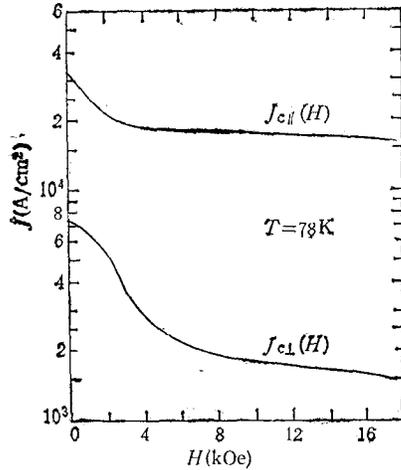


图5 由磁滞回线计算得到的各向异性临界电流密度  $J_{c\parallel}(H)$  和  $J_{c\perp}(H)$  与外场  $H$  的关系

与  $H$  的关系示于图5中. 必须指出, 这里的  $J_{c\perp}$  是在  $H$  平行于  $a$ - $b$  平面 (即  $\text{Cu-O}$  面) 的测试中求得的. 由于直流传输方法还不能直接测量  $J_{c\perp}$ . 在单晶 YBCO 的磁测量中, 也只给出  $H$  垂直  $a$ - $b$  平面的值和  $H$  平行  $a$ - $b$  平面的值 ( $J_{c\parallel}$  和  $J_{c\perp}$  的某种平均值, 例如参见文献[7]), 因而我们得到了 YBCO 沿  $c$  轴方向流动的  $J_{c\perp}(H \perp c)$  与  $H$  的关系. 从图5可知, 在  $H = 10 \text{ kOe}$ ,  $J_{c\perp} = 1.7 \times 10^3 \text{ A/cm}^2$ , 约为同样磁场时的  $J_{c\parallel}$  的  $1/10$ .

我们还可以看到, 烧结样品的  $\bar{J}_c$  在 MTG 样品的  $J_{c\parallel}$  和  $J_{c\perp}$  之间, 因而可以说  $J_{c\parallel}$  和  $J_{c\perp}$  的某种带权平均值和烧结样品的基本一样. 例如当  $H = 10 \text{ kOe}$  时, 如取  $(2J_{c\parallel} + J_{c\perp})/3 = 1.2 \times 10^4 \text{ A/cm}^2$  作为 MTG 样品的平均  $J_c$  值, 则和烧结样品的  $1.1 \times 10^4 \text{ A/cm}^2$  几乎一样. 这一事实

说明, 烧结样品的晶内钉扎应基本和 MTG 样品一样, 虽然后者中观察到了 211 相的存在.

支持我们这一观点的另一个人所共知的事实是, 高度织构化的 YBCO 薄膜在液氮中的  $J_{c\parallel}$  已经显著地超过  $10^6 \text{ A/cm}^2$ , 但是还未见有报导认为这种织构膜的高  $J_c$  是 211 相产生的, 因为没有在薄膜中观察到大量 211 相. 薄膜的高  $J_c$  表明块状样品的传输  $J_c$  还可以进一步提高. 事实上, 在本研究完成时, 已得知中国科学院上海冶金研究所的一个小组已经在 YBCO 块状样品中得到的传输  $J_c$  比本文报道的还要高.

YBCO(MTG) 样品中我们确实观察到 211 相, 其大小为  $\mu\text{m}$  数量级. 实验中虽然不能支持 211 相增强了 YBCO 的钉扎效应, 但是 211 相确实和 MTG YBCO 的高  $J_c$  同时存在. 因此深入研究 211 相在提高 YBCO 的传输  $J_c$  方面的作用仍是值得重视的. 例如, 211 相是否对消除弱连接方面起了什么作用这一问题仍不清楚.

#### 四、小 结

经过对形状相同的 MTG 和烧结的 YBCO 块状样品的电磁测量和理论分析后得出, MTG 样品的高传输  $J_c$  主要是因为这种样品中的弱连接已基本消除. 支持这一结论的主要事实是传输  $J_c$  和  $H$  的关系已不象有弱连接的烧结样品那样敏感; 磁  $J_c$  和样品-外场的相对取向有明显关系, 而不是象烧结样品那样基本与这种改变取向无关; 传输  $J_c$  (即晶粒间的  $J_c$ ) 与烧结样品的晶内  $J_c$  以及文献中单晶的磁  $J_c$  相近, 这也表明 211 相的存在没有明显改进晶内的  $J_c$ . 在这些结果的基础上, 我们还得到了  $J_{c\parallel}:J_{c\perp} \approx 10$  ( $78 \text{ K}, 10 \text{ kOe}$ ). 211 相是否有消除 MTG YBCO 样品中的弱连接的作用虽然还不清楚, 但这是一

个值得仔细研究的重要问题。

### 附录 有限尺寸样品的磁滞量 $\Delta M$ 与各向异性 $J_c$ 的关系式

一个截面为  $S$  的超导柱形样品, 外场  $H$  平行于柱面. 认为柱体中任一横截面上内场  $B$  的分布相同. 在降场情况下的超导临界态, 磁化强度在 SI 单位制(即 MKSA 制)中为

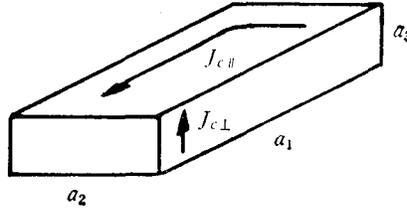
$$M^- = \frac{\langle B(r) \rangle}{\mu_0} - H = \frac{1}{\mu_0 S} \iint B(r) dS - H.$$

升场的情形与降场是对称的, 故可以写出一般关系式为

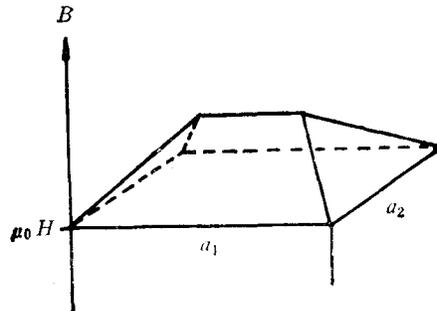
$$\Delta M = M^- - M^+ = 2 \left( \frac{1}{\mu_0 S} \iint B(r) dS - H \right).$$

按照 Bean 模型,  $dB/dr = \mu_0 J_c$ ,  $J_c$  为常数. 因而对形状简单的样品, 磁化强度  $M$  或磁滞量  $\Delta M$  的计算就可以简化为初等几何的运算.

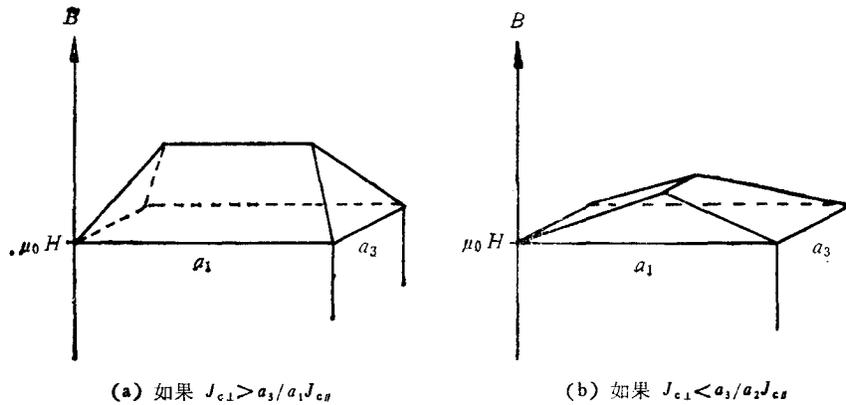
对于一个边长  $a_1 > a_2 > a_3$  的矩形立方体(见附录图 1),  $a_1$ - $a_2$  面为晶体的  $a$ - $b$  晶面, 平行于该面的临界电流密度记为  $J_{c\parallel}$ . 平行于  $c$  轴即垂直于  $a_1$ - $a_2$  平面的  $J_c$  记为  $J_{c\perp}$ . 下面就三种磁场-样品取向, 分别给出  $\Delta M$  与  $J_{c\parallel}$  和  $J_{c\perp}$  的关系.



附录图 1 样品外形尺寸和各向异性  $J_c$  示意图



附录图 2  $H//a_3$  时, 样品内的磁通分布



(a) 如果  $J_{c\perp} > a_3/a_1 J_{c\parallel}$

(b) 如果  $J_{c\perp} < a_3/a_2 J_{c\parallel}$

附录图 3  $H//a_1$  时, 磁通分布的两种情形

1.  $H//a_3$ , 只有  $J_{c0}$  提供磁屏蔽电流. 磁通分布如附录图 2, 可得

$$\Delta M_1 = \frac{1}{2} J_{c0} a_2 - \frac{1}{4} J_{c0} \frac{a_2^2}{a_1}. \quad (\text{A}\cdot\text{1})$$

2.  $H//a_2$ , 如果  $J_{c1}/J_{c0} > a_3/a_1$ , 样品内的最大磁场由  $J_{c0}$  决定, 见附录图 3(a), 则

$$\Delta M_2 = \frac{1}{2} J_{c0} a_3 - \frac{1}{4} \frac{J_{c0}^2 a_2^2}{J_{c1} a_1}. \quad (\text{A}\cdot\text{2})$$

如果  $J_{c1}/J_{c0} < a_3/a_1$ , 样品内最大磁场由  $J_{c1}$  决定, 见附录图 3(b), 则

$$\Delta M_2 = \frac{1}{2} J_{c1} a_1 - \frac{1}{4} \frac{J_{c1}^2 a_1^2}{J_{c0} a_3}. \quad (\text{A}\cdot\text{3})$$

3.  $H//a_1$ , (A·2), (A·3) 式相应地变为

$$\Delta M_3 = \frac{1}{2} J_{c0} a_3 - \frac{1}{4} \frac{J_{c0}^2 a_3^2}{J_{c1} a_2}, \quad \text{当 } \frac{J_{c1}}{J_{c0}} > \frac{a_3}{a_2}. \quad (\text{A}\cdot\text{4})$$

$$\Delta M_3 = \frac{1}{2} J_{c1} a_2 - \frac{1}{4} \frac{J_{c1}^2 a_2^2}{J_{c0} a_3}, \quad \text{当 } \frac{J_{c1}}{J_{c0}} < \frac{a_3}{a_2}. \quad (\text{A}\cdot\text{5})$$

当垂直于磁场方向的任一条边长趋于  $\infty$ , (A·1)–(A·5) 式中相应的方程就可退化为通常的带状样品的关系,

$$\Delta M = \frac{1}{2} J_c d, \quad d \text{ 为垂直于磁场的带宽.}$$

- [ 1 ] S. Jin, T. H. Tiefel, R. C. Sherwood, M. E. Davis, R. B. Van Dover, C. W. Kammlott, R. A. Fastnacht and H. D. Keith, *Appl. Phys. Lett.*, **52**(24) (1988), 2074.
- [ 2 ] K. Salama, V. Selvmanicham, L. Gao and K. Sun, *Appl. Phys. Lett.*, **54**(1989), 5.
- [ 3 ] M. Murakami, M. Morita and N. Koyama, *Jpn. J. Appl. Phys. Lett.*, **28**(1989), L1125.
- [ 4 ] F. S. Liu, H. L. Mou, K. G. Wang, T. J. Zhang, X. Z. Wu and L. Zhou, Proc. of ICMC'90 (May, 1990, FRG).
- [ 5 ] H. T. Ren, Q. He, L. Xiao, R. K. Wang, D. Yu, C. G. Cui and S. L. Li, Proc. of ICEC-13 (Apr. 1990, Beijing), to be published in *Cryogenics*.
- [ 6 ] S. Y. Ding, Z. Yu, J. L. Yan, Y. T. Chang, M. Lou, X. Jing, H. T. Ren, Q. He, L. Xiao, R. K. Wang, to be published in *Supercon. Sci. & Tech.*, (1990).
- [ 7 ] T. K. Worthington, W. J. Gallagher, D. L. Kaiser, F. H. Holtzberg and T. R. Dinger, *Physica*, **C153**—**155** (1988), 32.

## MEASUREMENT OF $c$ -AXIS CRITICAL CURRENT DENSITY FOR $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$

YU ZHENG DING SHI-YING YAN JIA-LIE

*Department of Physics, Nanjing University, Nanjing, 210008*

REN HONG-TAO

*General Research Institute for Non-Ferrous Metals, Beijing 100088*

(Received 6 August 1990)

### ABSTRACT

Transport critical current density  $J_c$  and hysteresis loop at different field-sample orientations were measured for both melt-textured growth (MTG) and sintered  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  (YBCO) sample. Very high  $J_c$  (78K, 0 Oe) of  $3.5 \times 10^4$  A/cm<sup>2</sup> has been obtained for the MTG YBCO sample. The experimental results show strong evidence of that the high  $J_c$  in MTG YBCO results mainly from the significant reduction of weak links because the bulk  $J_c$  for MTG sample are almost the same as the intragrain  $J_c$  for sintered sample. We also show that the  $J_c$  parallel to  $a$ - $b$  plane is about an order of magnitude higher than that normal to  $a$ - $b$  plane ( $J_{c||} \approx 10J_{c\perp}$ ).

**PACC:** 7460G; 7460J