

Акустическая эмиссия, сопровождающая сверхпроводящий переход в ВТСП керамике Tl_2BaCuO

И. В. Островский, И. Н. Саливонов

Киевский университет им. Тараса Шевченко, Украина, 252033, г. Киев, ул. Владимирская, 64

Статья поступила в редакцию 3 марта 1997 г., после переработки 22 июля 1997 г.

Экспериментально обнаружен пик акустической эмиссии (АЭ) при температуре сверхпроводящего перехода в образцах сверхпроводящей керамики $Tl_2Ba_2CuO_{6+x}$. Прием сигналов АЭ производился пьезоэлектрическим преобразователем с резонансной частотой 1 МГц в диапазоне температур 80–300 К. Обнаруженные релаксационные аномалии связываются с изменением зарядового состояния линейных дефектов в образце и изменениями параметров структуры купратного слоя.

Експериментально виявлено пік акустичної емісії (АЕ) при температурі надпровідного переходу в зразках надпровідної кераміки $Tl_2Ba_2CuO_{6+x}$. Прийом сигналів АЕ проводився п'єзоелектричним перетворювачем з резонансною частотою 1 МГц в діапазоні температур 80–300 К. Виявлені акустичні релаксаційні аномалії зв'язуються із змінами зарядового стану лінійних дефектів у зразку та змінами параметрів структури купратного шару.

PACS: 64.70.Kb

Фазовые переходы (ФП) в высокотемпературных сверхпроводниках (ВТСП) по-прежнему привлекают внимание экспериментаторов. В литературе [1–4] представлены данные по исследованию электрических, магнитных, упругих и других свойств ВТСП. Однако до сих пор не существует достаточно полной теории, описывающей природу и особенности сверхпроводящего перехода в ВТСП.

Акустоэмиссионные исследования процессов нагружения иттриевых и висмутовых сверхпроводящих керамик описаны в работах [5,6]. Авторами получены интересные результаты, свидетельствующие о перспективности использования акустической эмиссии (АЭ) для изучения физико-механических свойств ВТСП. Было показано, что с помощью акустоэмиссионной методики могут быть зарегистрированы структурные превращения в висмутовой керамике [6].

Несмотря на большое число экспериментальных исследований ВТСП, термоактивированная акустическая эмиссия изучена недостаточно. Это относится и к эмиссии

при циклическом изменении температуры в диапазоне, включающем фазовый переход. Такие исследования могут дать не только новую информацию о ВТСП как материале, но и представляют интерес с точки зрения фундаментальных физических исследований.

Следует отметить, что в предпринимавшихся ранее попытках измерения АЭ при сверхпроводящих ФП в ВТСП, полученные результаты либо не допускали их однозначной трактовки с точки зрения физических процессов, связанных с ФП в керамике [7], либо вообще методика эксперимента сильно отличалась от общепринятых стандартов по надежности экспериментов (например, бесклеевой контакт пористого образца с датчиком АЭ, большая скорость изменения температуры и др.) [8].

В настоящей работе представлены результаты экспериментальных исследований интенсивности термостимулированной акустической эмиссии как функции температуры в окрестности сверхпроводящего перехода в керамике $Tl_2Ba_2CuO_{6+x}$. Наличие акустоэмиссионного излучения в иттриевой ВТСП керамике при

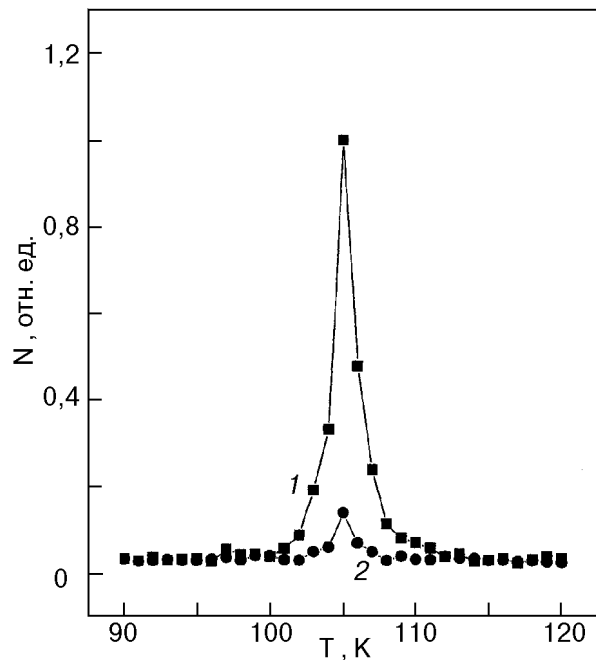


Рис. 1. Температурная зависимость интенсивности АЭ N при увеличении (1) и уменьшении (2) температуры со скоростью 0,1 К/мин.

переходе в сверхпроводящее состояние было установлено ранее [9].

Методика эксперимента

Особенностью подготовки к экспериментам был подбор клея для крепления пьезопреобразователя к образцу ВТСП керамики. Предварительно были исследованы клеи разных типов (эпоксидные и на основе органических растворителей) с различным временем отвердевания. Проведенные контрольные эксперименты позволили подобрать клей, не вносящий вклад в сигналы АЭ в исследуемом диапазоне температур.

Интенсивность АЭ измерялась в температурном интервале 80–300 К. Для приема АЭ сигналов применялся пьезоэлектрический преобразователь с резонансной частотой 1 МГц. Экспериментальная установка имела рабочий диапазон частот 0,2–2,0 МГц. Скорость изменения температуры была одинаковой при движении как вверх, так и вниз по температурной шкале и составляла для различных серий опытов 0,1 или 0,5 К/мин. Акустический контакт образца с пьезопреобразователем обеспечивался с помощью специально подобранного клея. Преобразователь из пьезокерамики типа ЦТС принимал акустические сигналы АЭ и преобразовывал их в электрические. Эти

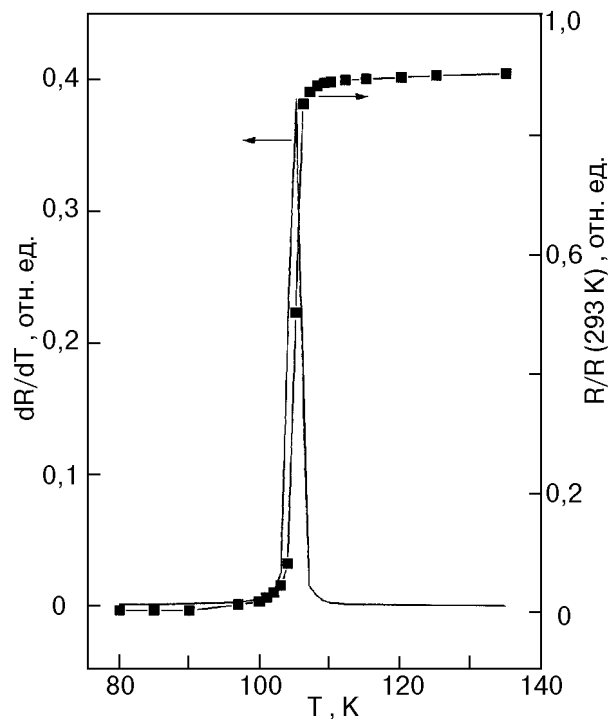


Рис. 2. Зависимости относительного электросопротивления образца $R/R(293\text{ К})$ и скорости его изменения dR/dT от температуры.

сигналы затем усиливались специальным предусилителем и регистрировались акустоэмиссионным прибором АФ-15. Контроль температуры осуществлялся полупроводниковым датчиком и измерительным устройством. Измерительная камера, снабженная системой термостабилизации, помещалась в пары азота. Изменение температуры производилось посредством изменения потока газообразного азота.

Экспериментальные результаты и их обсуждение

Результаты акустоэмиссионных исследований приведены на рис. 1, интенсивность АЭ N дана в относительных единицах. Абсолютная величина интенсивности изменялась от 70 до 700 имп/с. Кривые представляют собой экспериментальные данные, усредненные по пяти термоциклам. Обращает на себя внимание различие почти в 10 раз максимальных интенсивностей АЭ при повышении (кривая 1) и понижении (кривая 2) температуры.

Для проверки совпадения температуры АЭ максимумов (T_a) с температурой сверхпроводящего перехода T_c были проведены измерения электросопротивления образца

четырёхзондовым методом. Оказалось, что температурная область резкого изменения сопротивления образца совпадает с областью нарастания интенсивности АЭ. При этом температура максимума интенсивности $N(T)$ практически совпадает с максимальной скоростью изменения электросопротивления образца dR/dT (рис. 2).

Полученные результаты могут быть объяснены с точки зрения зарядового состояния дефектов в ВТСП керамике. Образцы ВТСП, использованные нами в экспериментах, имели зернистую структуру и, следовательно, содержали группы различных дислокаций, сконцентрированных в основном у поверхностей микрочерен. При изменении температуры в образцах возникали упругие напряжения, вызывавшие изменения состояния дислокаций. Групповые дислокационные эффекты в кристаллах и керамиках обычно сопровождаются излучением акустических импульсов [10].

Механизм возникновения АЭ при ФП можно представить следующим образом. Дислокации в ВТСП керамике, как и в любой другой, электрически заряжены, однако при температуре $T < T_c$ их электрическое поле экранируется. В начальном состоянии ($T > T_c$) внутри образца существуют различные упругие поля, включая дальнедействующие поля дислокаций, групп дислокаций, границ микрочерен. В результате формируется определенное начальное поле напряжений в образце. При температурах выше T_c механические напряжения состоят из двух компонент: чисто упругой и связанной с пондеромоторными силами, вызванными электрическими полями дислокаций и поляризационными зарядами. Изменение температуры вызывает изменение характера и величины внутренних упругих и электрических полей. Экранировка электрических полей дислокаций и их групп при понижении температуры ниже T_c уменьшает внутренние силы взаимодействия, что и является причиной появления импульсов механического напряжения. При повышении температуры выше T_c вновь включается электростатическое взаимодействие и вновь происходит скачкообразное изменение внутренних упругих напряжений. Таким образом, при $T = T_c$ должно происходить изменение величины механических напряжений в объеме образца, что и зафиксировано нами по изменению интенсивности АЭ.

Безусловно, существует вклад в АЭ, связанный с температурными изменениями механических

напряжений в микрочернах образца в результате чисто геометрических изменений его размеров, т.е. с термдеформацией. Однако этот вклад невелик. Так, в наших экспериментах максимальное значение интенсивности АЭ составляло около 700 имп/с. В то же время для керамики титаната бария [11] интенсивность АЭ, которую авторы связывают с чисто механическими эффектами, не превышала 140 имп/с. В нашем случае этот фоновый сигнал составлял 20–30 имп/с.

Различные по амплитуде максимумы интенсивности АЭ при повышении и понижении температуры в целом можно связать с наличием релаксационных процессов, приводящих к температурному отжигу внутренних напряжений при росте температуры до комнатной. Сигнал АЭ в области ФП при понижении температуры не может иметь высокую интенсивность, поскольку вызван изменением внутренних напряжений от малых, релаксированных, к еще более малым в сверхпроводящем состоянии. Максимальная интенсивность зарегистрированного нами сигнала составляла 70 имп/с. При повышении же температуры вблизи T_c образец переходит в состояние с относительно более высокими внутренними напряжениями, еще не релаксированными, что и может быть зафиксировано по изменению интенсивности АЭ. Мы зарегистрировали ее максимальное значение около 700 имп/сек.

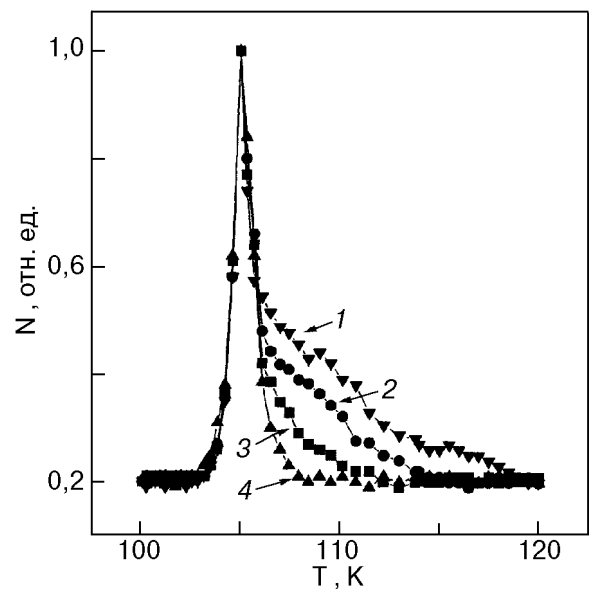


Рис. 3. Зависимости интенсивности АЭ от температуры при различных скоростях нагрева образца, К/мин: 0,2 (1), 0,3 (2); 0,4 (3); 0,5 (4).

Строго говоря, релаксационные процессы должны оказывать влияние на ход зависимости $N(T)$, если скорость изменения температуры больше или сравнима со скоростью релаксационных процессов в керамике.

С целью выяснения влияния скорости изменения температуры на акустическую эмиссию были проведены измерения интенсивности АЭ при скоростях изменения температуры 0,5; 0,4; 0,3 и 0,2 К/мин. Результаты приведены на рис. 3. Видно, что на всех кривых, кроме кривой 4, в некоторой области температур интенсивность эмиссии повышена, что свидетельствует о переходном процессе. По нашему мнению, это подтверждает высказанные предположения о природе различной величины максимумов интенсивности АЭ при повышении и понижении температуры.

Недавние рентгеновские исследования [12] показали, что при сверхпроводящем переходе в ВТСП смещаются атомы кислорода в купратных плоскостях, а также атомы бария относительно этих плоскостей. Такие структурные изменения могут давать значительный вклад в акустоэмиссионное излучение. Кроме того, как оказалось [12], в окрестности температуры перехода имеют место изменения амплитуды тепловых колебаний атомов, достигающее 20%. Эти процессы не являются мгновенными, а происходят с определенной постоянной времени.

Отсутствие «размытия» зависимости $N(T)$ при скорости нагрева образца 0,2 и 0,1 К/мин (рис. 1, 3) свидетельствует о том, что скорость релаксационных процессов выше скорости изменения температуры. Поскольку скорость изменения температуры в течение эксперимента была практически постоянной, оказалось возможным вычислить время затухания релаксационных эффектов. Оно составило (25 ± 2) мин.

Заключение

Можно сделать вывод, что сверхпроводящий ФП в образцах ВТСП керамики $Tl_2Ba_2CuO_{6+x}$ сопровождается излучением АЭ. Источниками эмиссии могут быть изменения напряженного состояния во внутренних микрообъемах и отдельных зернах керамического образца, а также изменения параметров структуры в области купратного слоя. Перемены величин внутренних

микронапряжений, вероятнее всего, связаны также с изменением электрического состояния дефектов структуры и их скоплений.

1. T. Wada, T. Sakurai, N. Suzuki, S. Koriyama, H. Yamauchi, and S. Tanaka, *Phys. Rev.* **B41**, 11209 (1990).
2. С. В. Лубенец, В. Д. Нацик, Л. С. Фоменко, *ФНТ* **21**, 475 (1995).
3. G. Xiao, P. Xiong, and M. Z. Cieplac, *Phys. Rev.* **B46**, 8687 (1992).
4. K. Tamasaku, Y. Nakamura, and S. Uchida, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 1455 (1992).
5. В. С. Бойко, В. М. Горбатенко, Л. Ф. Кривенко, М. Б. Лазарева, В. И. Соколенко, П. А. Хаймович, *ФНТ* **15**, 217 (1989).
6. В. М. Горбатенко, Е. В. Карасева, Л. Ф. Кривенко, М. Б. Лазарева, Я. Д. Стародубов, В. А. Фролов, П. А. Хаймович, *ФНТ* **19**, 217 (1993).
7. О. Ю. Сердобольская, Г. П. Морозова, *ФТТ* **31**, № 8, 280 (1989).
8. Е. А. Дулькин, *СХФТ* **6**, 314 (1993).
9. I. S. Ostrovskii and I. N. Salivonov, *14th Intern. Conf. on Utilization of Ultrasonic Methods in Condensed Matter*, Zilina, Slovak Republic, August 30–September 2, 1995, Book of Abstracts, 38.
10. A. E. Lord, *Acoustic Emission*, in: *Physical Acoustics*, W. P. Mason and R. N. Thurston (eds.), Vol. 15, 340, Academic Press, N.Y. (1981).
11. Е. А. Дулькин, И. Г. Гавриляченко, А. Ф. Семенчев, *ФТТ* **35**, 2039 (1990).
12. V. Simonov and V. Molchanov, *IX Trilateral German-Russian-Ukrainian Seminar on High Temperature Superconductivity*, Gabelach, Germany, September 22–25, 1996. Program and Abstracts, a98.

Acoustic emission accompanying the superconductive transition in HTSC ceramics $TlBaCuO$

I. V. Ostrovskii and I. N. Salivonov

A peak of acoustic emission (AE) is experimentally found at the temperature of superconducting transition in samples of the superconductive ceramics $Tl_2Ba_2CuO_{6+x}$. The AE signal were received with a piezoelectric transducer with the resonance frequency 1 MHz in the temperature range 80 to 300 K. The relaxation effects are attributed to changes in the charge condition of the linear defects and the parameters of the cuprate layer in the samples.