

ТЕРМОЭЛЕКТРИЧЕСКИЙ ДОМЕН В Y – Ba – Cu – O-КЕРАМИКЕ И ЕЕ АНАЛОГАХ

*Ю.А. Осипьян, Р.К. Николаев, Н.С. Сидоров,
В.С. Бобров, В.С. Цой*

При пропускании электрического тока через образец Y – Ba – Cu – O-керамики и ее аналогов возникает область локального повышения температуры и сопротивления (температурно-электрический домен). В режиме постоянного тока наблюдается дрейф этого домена. Направление дрейфа зависит от полярности тока.

При пропускании электрического тока через $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-x}$ -керамику происходит сначала общий нагрев образцов, а затем возникает область локального повышения температуры, которая наблюдается визуально по свечению. Границы такого локализованного температурного домена хорошо очерчены, а его длина примерно совпадает с поперечным размером образцов. В режиме постоянного тока наблюдается дрейф домена к отрицательному полюсу источника тока. Направление дрейфа изменяется на противоположное при изменении полярности тока, причем инверсию дрейфа домена по образцу можно проводить многократно.

Основным объектом исследований служили образцы $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-x}$ -керамики с характерными размерами $3 \times 3 \times 40$ мм³, изготовленные путем синтеза и прессования порошков¹. Опыты обычно проводились на воздухе при исходной температуре образцов $T_0 \approx 300$ К. осуществлялось также варьирование T_0 и изменение состава окружающей газовой среды, использовались образцы керамики других составов.

Пороговые значения напряжения и тока, при которых возникает тепловой домен, зависят от размеров образцов и их структуры. Значения U_p и J_p увеличиваются при охлаждении образцов и уменьшаются при их нагреве. Наблюдаются влияние на U_p и J_p условий теплоотвода, состава окружающей среды, состояния контактов и т. п. Все эти факторы связаны с условиями нагрева образцов при пропускании тока. Для исследованных образцов типичные значения $U_p \approx 3 - 4$ В и $J_p \approx 8 - 10$ А. После начала формирования теплового домена происходит падение тока до значений 3 – 5 А и понижение T участков образца, удаленных от домена. В отдельных случаях наблюдалось формирование двух, а иногда и трех доменов. но по мере "разгорания" одного из них остальные "угасали".

Дрейф доменов происходит со скоростью ~ 10 см/час и его можно наблюдать визуально. На рис. 1 представлены фотографии одного из образцов в разные моменты времени с интервалом 5 мин. Скорость дрейфа зависит от структуры образцов и уменьшается при уменьшении T_0 и улучшении условий теплоотвода. Наблюдаются "пиннинг" доменов в области токовых контактов, в местах локального теплоотвода и на неоднородностях образцов. Существует влияние на кинетику движения доменов градиентов T . Скорость дрейфа, как правило, выше при движении домена в область образца с более высокими значениями T . При "пиннинге" домена его движение можно стимулировать созданием дополнительного градиента T . В отличие от постоянного тока переменный ток не приводит к заметному дрейфу доменов.

В зонах образцов, удаленных от домена на $\Delta l > 1$ см, температура по показаниям термопар ($d = 0,1$ мм) составляет 450 – 600 К в зависимости от условий теплоотвода и уровня свечения домена, а в области домена соответствующая оценка $T \approx 800 - 900$ К. Следует, однако, иметь в виду, что из-за низкой теплопроводности образцов показания использованных термопар дают только оценку снизу для истинных значений T . Поэтому проводились также измерения T в области доменов с использованием оптического пирометра и при разном уровне свечения доменов получены оценки $T \approx 1000 - 1250$ К. Исследования обычно осуществлялись при свечении доменов, соответствующем $T \approx 1100 - 1200$ К.

Предварительные исследования спектра излучения доменов свидетельствуют, что в видимой области он примерно совпадает со спектром обычных нагретых тел (вольфрамовая нить, селитровый стержень), но в спектре излучения доменов наблюдаются особенности, которые в настоящее время уточняются.

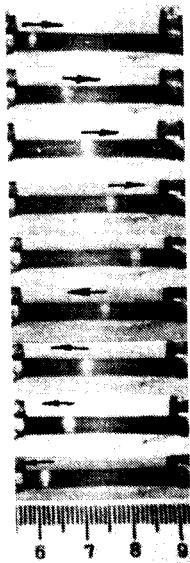


Рис. 1

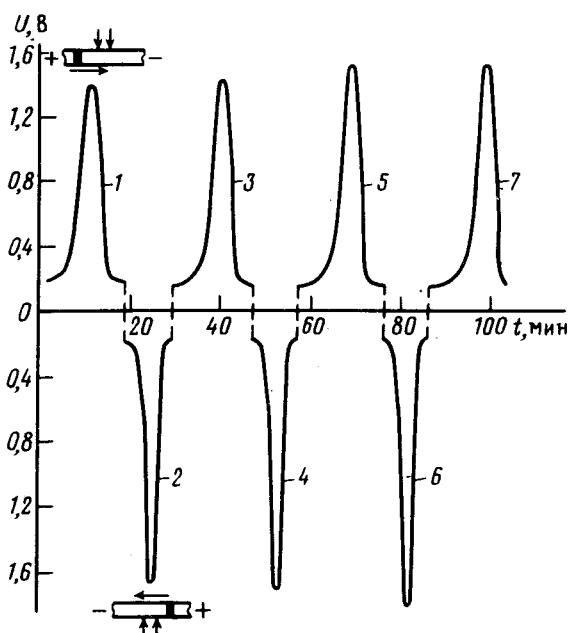


Рис. 2

Рис. 1. Фотографии образца иттриевой керамики в условиях дрейфа теплового домена при изменении полярности тока ($\Delta t \approx 5$ мин)

Рис. 2. Зависимость напряжения U от времени t в условиях инверсий дрейфа теплового домена при изменениях полярности тока $J \approx 4$ А, (расстояние между потенциальными контактами $\Delta l \approx 7$ мм)

В условиях формирования тепловых доменов наблюдается немонотонная зависимость тока от напряжения. При значениях напряжения ниже $U_{\text{пп}}$ ток зависит от U примерно линейно, а выше $U_{\text{пп}}$ наблюдается резкое увеличение сопротивления и падение J . Это коррелирует с результатами работы ², в которой наблюдалось значительное увеличение R при нагреве иттриевой керамики выше 900 К. При формировании теплового домена основной прирост сопротивления образцов связан с ростом R в области домена. Об этом свидетельствуют, например, приведенные на рис. 2 результаты регистрации U при многократной инверсии дрейфа домена через область между потенциальными контактами. Из этих данных можно также судить о зависимости дрейфа от градиента температуры образца. При градиенте из-за разности тепловыделения в области контактов $\langle dT/dx \rangle \approx 30$ К/см время прохождения доменом расстояния между потенциальными контактами (≈ 7 мм) примерно в 1,6 раза меньше при движении в область более высоких T . Регистрируя прохождение домена между последовательно расположенными парами потенциальных kontaktов, можно судить о kinetike его дрейфа.

Проводились опыты в замкнутых объемах с изменением состава наполняющих газов. В кислороде наблюдалось увеличение скорости дрейфа домена по сравнению с опытами на воздухе в 1,2 – 1,5 раза, а в гелии наблюдалось сужение домена и уменьшение скорости его дрейфа примерно в 10 раз, после нескольких инверсий дрейфа домена образцы разрушались.

Аналогичное поведение наблюдалось и в опытах с азотом. В вакууме также наблюдалось формирование узкого светящегося домена, но из-за быстрого разрушения образца не было установлено его заметного дрейфа.

Определялось количество выделившегося кислорода при нагреве образцов до 1100 К. Проведенный анализ показал, что после многократного прохождения домена по одному из образцов содержание кислорода в нем уменьшалось на 0,12 г-ат, а значение T_c упало с 92 до 71 К.

Осуществлялись наблюдения движения домена в оптическом микроскопе. После прохождения домена происходит отчетливое изменение морфологии поверхности. Фотография области раздела зоны прохождения домена и исходной поверхности одного из образцов представлена на рис. 3. Данные рентгеноструктурного анализа показали, что исходные образцы и образцы после многократной инверсии дрейфа домена состоят преимущественно из орторомбической фазы, но доля тетрагональной фазы после прохождения домена несколько выше. Учитывая данные по фазовым превращениям в иттриевой керамике при нагреве и обеднении кислородом (см., например, ³), можно полагать, что в области домена происходят обратимые фазовые превращения. Дальнейшие исследования позволят говорить об этом более определенно.

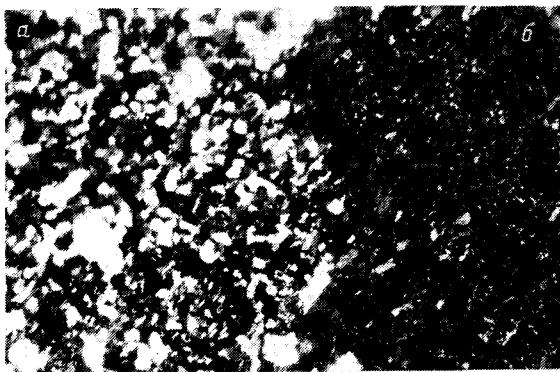


Рис. 3. Поверхность образца ($\times 300$) иттриевой керамики: *a* – область исходного образца, *b* – зона прохождения домена

Кроме иттриевой керамики в опытах использовались образцы других составов: $\text{Ho}_1\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$, $\text{Er}_1\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$, и $\text{La}_{1,6}\text{Sr}_{0,4}\text{CuO}_4$, имеющие $T_c \approx 96, 66$ и 37 К, соответственно. Поведение голмийевых и эрбийевых образцов было аналогично иттриевой керамике. В лантановой керамике область локализации нагрева было заметно более размытой и не наблюдалось дрейфа этой области. Это может быть связано с особенностями состояния кислорода в этой керамике. Были также проведены опыты с использованием керамики La_2CuO_4 ⁴, в структуре которой не содержится выраженных вакансий по кислороду. При пропускании тока через эту керамику происходил разогрев образцов по всей длине, возникновения теплового домена не наблюдалось.

Обнаруженное явление может быть связано с нелинейной зависимостью сопротивления от температуры, резким увеличением R при интенсивном выделении кислорода в условиях нагревания током. Это, как показывает теоретический анализ и данные для металлов (см., например, ⁵), может привести к возникновению температурного домена. Образование домена, по-видимому, протекает автокатализически с образованием высокой концентрации положительно заряженных кислородных вакансий, что при высокой их подвижности может

определять наблюдаемый дрейф домена в электрическом поле. Важное значение при этом, по-видимому, также имеет газовый обмен с окружающей средой. Определенную роль при образовании и движении доменов могут играть и другие эффекты (например, диодный и пироэлектрический).

Авторы благодарят Г.К.Баранову, О.В.Жарикова, М.В.Инденбома, Б.Г.Карепова, Н.В.Классена, В.В.Коршунова, В.Ш.Шехтмана и И.М.Шмытько за содействие при проведении исследований и обсуждение, В.С.Лунева, Б.А.Скакуна и С.С.Шевага за помощь.

Литература

1. Wu M.K., Asburn J.R., Torny C.J. et al. Phys. Rev. Lett., 1987, **58**, 908.
2. Gurvetch M., Fiory A.T. Phys. Rev. Lett., 1987, **59**, 1337.
3. Schuller J.K., Hinks D.G., Jorgensen J.D. et al. Novel Superconductivity, ed. S.A.Wolf, V.Z.Kresin . N.Y.—London: Plenum Press. 1987, p. 647.
4. Портной К.И., Тимофеева Н.И. Кислородные соединения редкоземельных элементов. справочник, М.: Металлургия, 1987, с. 41.
5. Абрамов Г.И., Гуревич А.Вл., Захарченко С.И. и др. ФТТ, 1985, **27**, 2250.

Институт физики твердого тела
Академии наук СССР

Поступила в редакцию
4 января 1988 г.