

## СВОЙСТВА ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНЫХ СВЕРХПРОВОДЯЩИХ ПЛЕНОК СИСТЕМЫ Y – Ba – Cu – O, ПОЛУЧЕННЫХ ИЗ РАСПЛАВА

*Ю.А.Астров, В.С.Вайнер,*

Представлены результаты электрических и магнитных измерений поликристаллических сверхпроводящих пленок системы Y – Ba – Cu – O, полученных новым методом из расплава. Температура перехода в сверхпроводящее состояние  $T_c \sim 90$  К, ширина перехода  $5 \div 10$  К. В области низкотемпературного крыла затянутого фазового перехода пленок обнаружен степенной характер изменения их сопротивления от тока.

Открытие Беднорцем и Мюллером явления высокотемпературной сверхпроводимости<sup>1</sup> и последовавший за этим синтез Y – Ba – Cu – O керамик с температурой перехода в сверхпроводящее состояние  $T_c$  выше температуры жидкого азота<sup>2</sup> стимулировали поиск технологий получения тонких пленок и покрытий на основе высокотемпературных сверхпроводников (ВТСП) системы  $\text{Y}_2\text{O}_3$  – BaO – CuO. В настоящее время главные усилия исследователей сосредоточены на нанесении ВТСП пленок путем распыления или керамик системы  $\text{Y}_2\text{O}_3$  – BaO – CuO, или отдельных компонентов системы, или по смешанной технологии.

Благодаря относительно большой скорости напыления ( $5 \div 10$  нм/с) и доступности технологических установок в настоящее время наиболее широкое распространение получил метод магнетронного распыления<sup>3 – 8</sup>. Следует, однако, отметить ограниченные на сегодняшний день результаты применения этого метода по сравнению с методом электронно-лучевого распыления из нескольких источников. На установке такого типа в<sup>9</sup> были получены высококачественные монокристаллические пленки с величиной  $T_c \approx 90$  К и шириной перехода  $\Delta T_c \approx 1$  К.

В числе других используемых для распыления способов следует отметить методы НЧ плазменного<sup>10</sup> и импульсного лазерного распыления керамик<sup>11, 12</sup>, а также метод молекуллярно-пучковой эпитаксии<sup>13</sup>. В последней работе сообщается о получении ориентированных пленок, имеющих  $T_c \approx 82$  К. Для получения сверхпроводящих покрытий сообщается о применении эмульсий и взвесей измельченных порошков Y – Ba – Cu – O-керамик<sup>11, 14, 15</sup>.

В настоящем сообщении представлены результаты исследования пленок системы Y – Ba – Cu – O, полученных из расплава. В основе метода лежит способность бинарной системы BaO – CuO образовывать расплав в определенном интервале мольных соотношений компонентов. В качестве третьей компоненты системы используется монокристаллическая окись иттрия (активная подложка). Представленные в работе результаты носят предварительный характер. На этом этапе проверялась принципиальная возможность воспроизведенного получения качественных сверхпроводящих пленок определенной толщины, не требующих специальных технологических приемов их нанесения.

Пленки наносились на полированную неориентированную подложку из монокристаллической окиси иттрия, полученной индукционной плавкой в холодном тигле порошка окиси марки ИтО – Мгр. Подложка толщиной 2 мм приводилась в контакт с расплавом до полного ее смачивания в течение нескольких минут. Последующие операции термореактивной диффузии и отжига приводили к образованию сверхпроводящей поликристаллической пленки, толщина пленок составляла  $5 \div 10$  мкм. Отжиг осуществлялся в атмосфере кислорода либо на воздухе при  $850^\circ\text{C}$  с последующим охлаждением со скоростью  $200^\circ\text{C}/\text{ч}$ .

Качество полученных сверхпроводящих пленок определялось измерением температурных зависимостей сопротивления  $R$  с помощью стандартного двухзондового метода<sup>16</sup>. Как токовые, так и зондовые контакты были получены нанесением индия. Сопротивление токовых контактов не превышало единиц Ом. Электрические измерения проводились на пленках с типичными размерами  $0,8 \times 0,5$  см<sup>2</sup>.

На рис. 1 представлено температурное изменение величины  $R$ , нормированной на значение при комнатной температуре, и измеренной при пропускании постоянного тока  $I = 500 \text{ мА}$ . Кривые 1, 2 получены для пленок, отжигавшихся в кислороде, 3 – часть времени на воздухе. Видно, что для лучшего из полученных образцов переход в сверхпроводящее состояние происходит при  $T_c \approx 90 \text{ K}$  в достаточно узком температурном интервале  $T_c \approx 5 \text{ K}$  (без учета обсуждаемого ниже "хвоста" фазового перехода, растянутого в область низких температур).

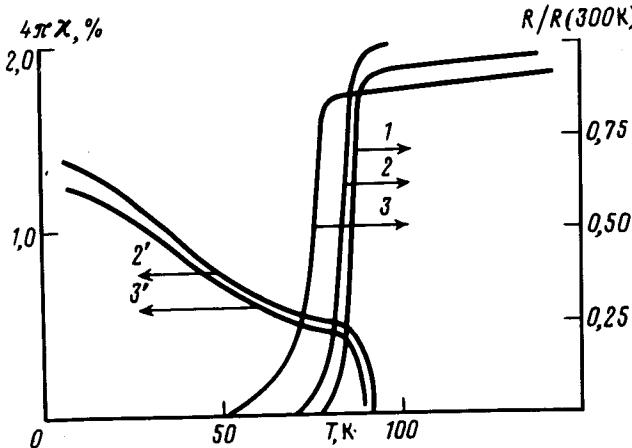


Рис. 1

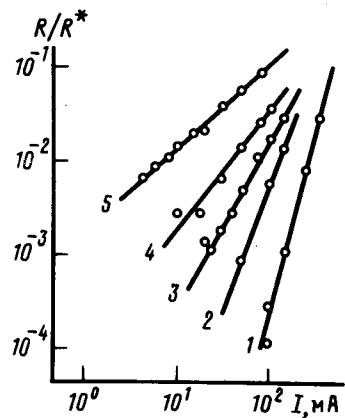


Рис. 2

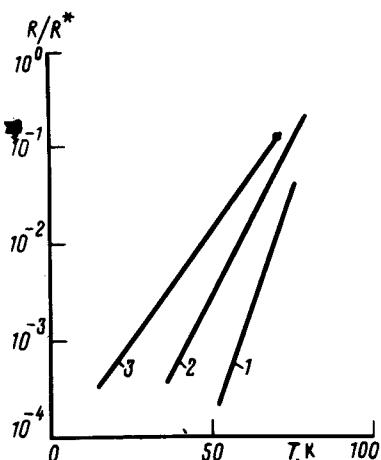


Рис. 3

Рис. 1. Зависимости сопротивления (1–3) и диамагнитной восприимчивости (2', 3') пленок от температуры. Режимы отжига: 1 – 20 ч. в кислороде; 2, 2' – 24 ч в кислороде; 3, 3' – 14 ч на воздухе, затем 10 ч в кислороде

Рис. 2. Зависимости сопротивления пленки от тока.  $T, \text{K}$ : 1 – 4,3; 2 – 42; 3 – 54; 4 – 61; 5 – 71

Рис. 3. Изменение температурных зависимостей сопротивления пленки с ростом тока.  $I, \text{mA}$ : 1 – 10, 2 – 50, 3 – 100

Из данных рис. 1 также следует, что с понижением температуры от комнатной до начала перехода имеет место монотонное, "металлического" характера уменьшение  $R$ ; при этом относительное изменение сопротивления составляет  $10 \div 15 \%$ . При комнатной температуре величина  $R$  для различных образцов изменялась в пределах  $2 \div 10 \text{ Ом}$ . Отметим, что металлическая проводимость в нормальной фазе наблюдается обычно в однофазных сверхпроводящих керамиках и высококачественных пленках.

Как для керамических, так и для пленочных ВТСП к настоящему времени не преодолены технологические трудности получения материалов с высокой однородностью критических параметров. Это приводит к уширению кривой фазового перехода. Система имеет при этом набор (распределение) локальных критических плотностей тока, зависящих от температуры. Установлено, что в данном случае измеряемая ширина такого "макроскопического" перехода может сильно зависеть от величины тока  $I$ , при котором проводятся измерения. Эти со-

образования подтверждаются измерениями зависимостей сопротивления пленок от тока при различных  $T < T_c$  и величинах  $I$ , превышающих критические для данной температуры. Результаты таких измерений в условиях сосуществования нормальной и сверхпроводящей фаз одного из образцов (кривая 1, рис. 1) представлены на рис. 2. Данные нормированы на величину  $R^*$  вблизи перехода со стороны нормальной фазы, причем  $R(I, T) \ll R^*$ . Видно, что в исследованном диапазоне токов  $R(I) \sim I^n$ , причем с понижением температуры показатель степени  $n$  возрастает.

Из данных рис. 2 с использованием линейных зависимостей, интерполирующих экспериментальные точки, может быть построен "низкоомный" хвост кривой перехода образца в сверхпроводящее состояние при различных  $I$  (рис. 3). Расширение хвоста перехода с возрастанием  $I$  является иллюстрацией влияния тока на ширину перехода.

С целью прямого доказательства существования в полученных пленках сверхпроводящей фазы и более точного определения температуры, при которой в неоднородном веществе пленки начинается фазовый переход, были исследованы магнитные свойства пленок. Проводились измерения диамагнитной восприимчивости методом взаимной индукции в переменном магнитном поле, не превышающем 4,5 Гс, на частоте 119 Гц. Поскольку чувствительность такого метода для плоских, близких к двумерным пленкам мала, измерения проводились на образцах, представляющих собой оболочку сверхпроводящей пленки вокруг подложки, имитирующих сверхпроводимость объемных образцов.

На рис. 1 представлены температурные зависимости диамагнитной восприимчивости  $\chi$  образцов, для которых получены резистивные кривые 2, 3. Характерно, что для обеих пленок фазовый переход начинается при  $T \sim 90$  К. При этом, несмотря на существенные различия температурных зависимостей  $R(T)$ , в пределах точности эксперимента кривые  $\chi(T)$  для них совпадают. Это свидетельствует, по всей видимости, о том, что режим отжига в первую очередь влияет на критические параметры участков слабой сверхпроводимости (границ микрокристаллов) в цепи пропускания сквозного тока. Низкий кажущийся процент сверхпроводящей фазы в приготовленных таким образом пленочных оболочках объясняется, по-видимому, заметным проникновением магнитного потока на участках пленки, находящихся в перпендикулярном поле, и на ее границах (сквозь ребра образца), а также гистерезисом процесса перемагничивания в переменном магнитном поле, связанным с проникновением магнитного потока по сети слабых связей и его захватом на неоднородностях<sup>1,7</sup>.

Таким образом, представленные в работе результаты показывают, что уже на предварительной опытной стадии получаемые из расплава поликристаллические пленки ВТСП обладают высокой температурой сверхпроводящего перехода  $T_c \sim 90$  К и достаточно узкой (5÷10 К) областью перехода в сверхпроводящее состояние участков слабой связи между кристаллитами. Метод получения пленок достаточно прост и перспективен как в целях практического использования сверхпроводников, так и для получения пленочных объектов для физических исследований. В частности, вольт-амперные характеристики исследованных пленок имеют характерные степенные зависимости при изменении тока в широких пределах. Такие закономерности для высокотемпературных сверхпроводников наблюдены, как нам представляется, впервые и известны из исследований неупорядоченных "классических" сверхпроводников<sup>1,8</sup>.

В заключение авторы выражают благодарность В.Н.Андрееву за проведение магнитных измерений и Ф.А.Чудновскому за стимулирующие работу дискуссии.

#### Литература

1. Bednorz J.G., Muller K.A. Z. Phys., 1986, B64, 189.
2. Wu M.-K., Ashburn J.R., Torng C.J. et al. Phys. Rev. Lett., 1987, 58, 908.
3. Adachi H., Setsune K., Mitsuyu T. et al. J. Appl. Phys. Jap., 1987, 26, L709.
4. Michikami O., Asano H., Kato Ju. et al. J. Appl. Phys., Jap., 1987, 26, L1199.
5. Enomoto J., Murakami T., Suzuki M. et al. J. Appl. Phys., Jap., 1987, 26, L1248.
6. Somkh R.E., Blamire M.G., Barber Z.H. et al. Nature, 1987, 326, 857.

7. Asano H., Tanabe K., Katoh Ju. et al. J. Appl. Phys., Jap., 1987, 26, L1221.
8. Nishino T., Nakano H., Tarutani J. et al. J. Appl. Phys., Jap., 1987, 26, L1320.
9. Chaudhari P., Koch R.H., Laibowitz R.B. et al. Phys. Rev. Lett., 1987, 58, 2684.
10. Kanumita H., Kawasaki M., Hashimoto T. et al. J. Appl. Phys., Jap., 1987, 26, L763.
11. Головашкин Г.И., Екимов Е.В., Красносвободцев С.И. и др. Письма в ЖЭТФ, 1987, 46, Приложение, с. 200.
12. Moorjani L. et al. Phys. Rev. B., 1987, 36, 4036.
13. Kwo J. et al. Phys. Rev. B, 1987, 36, 4039.
14. Koinuma H., Hashimoto T., Nakamura T. et al. J. Appl. Phys., Jap., 1987, 26, L761.
15. Kumakura H., Yoshida Ju., Togano K. J. Appl. Phys., Jap., 1987, 26, L1172.
16. Павлов Л.П. Методы измерения параметров полупроводниковых материалов. М.: Высш. школа, 1987, с. 239.
17. Melville P.H. Adv. in Physics, 1972, 21, 647.
18. Garland J.C., Lee Hu J. Phys. Rev. B., 1987, 36, 3638.

Физико-технический институт им. А.Ф.Иоффе  
Академии наук СССР

Поступила в редакцию  
25 января 1988 г.