

КОРРЕЛЯЦИИ T_c С ОТНОШЕНИЕМ СОПРОТИВЛЕНИЙ И СТРУКТУРА ПЛЕНОК Nb_3Ge

А.И. Головашкин, Е.В. Печень

Изучены различные корреляции критической температуры T_c , отношения сопротивлений и структуры пленок Nb_3Ge . Указана однозначная связь между T_c пленок и массивных образцов. Методом катодного распыления с составной мишенью достигнуты полная сверхпроводимость при рекордной температуре 22,5К, $T_c = 22,7К$ и $T_c^{(H)} = 23,4К$.

Изучение и совершенствование структуры высокотемпературных сверхпроводников является необходимым условием повышения их критических температур T_c . Корреляция T_c с отношением сопротивлений $\gamma = R_{300}/R_n$ (где R_{300} и R_n — сопротивления при 300К и остаточное), отражает тенденцию повышения T_c с улучшением качества пленок [1,2]. Нами получены дополнительные результаты для Nb_3Ge , указывающие на более сложный характер связи T_c , γ и структуры пленок:

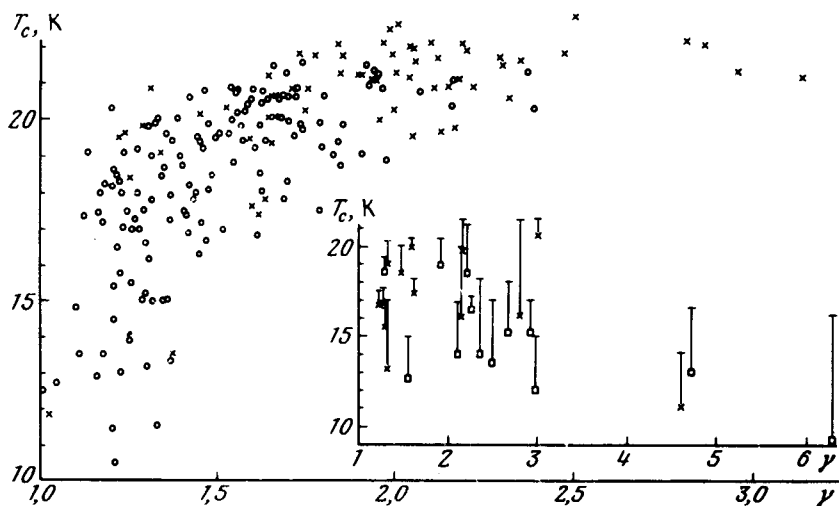


Рис. 1. Корреляция T_c и отношения сопротивлений γ для пленок Nb_3Ge . Величина T_c определена по середине перехода. Крестиками отмечены образцы стехиометрического, а кружками — нестехиометрического состава. На вставке показаны T_c и γ для образцов, полученных при дефиците кислорода (крестики), и для пленок, отвечающих составу σ -фазы (квадратики). Верхние концы отрезков обозначают $T_c^{(H)}$

Четкая корреляция T_c с γ (рис. 1), аналогичная найденной в [2], наблюдалась нами для образцов, удовлетворяющих двум условиям: 1) образцы получены при достаточном количестве кислорода; 2) в величину их γ α - и σ -фазы не вносят значительного вклада. В каждом эксперименте изготавливалась серия образцов различного состава и наблю-

дались максимумы χ , отвечающие составам α -, β - и σ -фаз. Для выполнения второго условия брались образцы, отвечающие β -фазе, в интервале составов между двумя минимумами χ . На рис. 1 приведена более физически обоснованная корреляция T_c (а не начала перехода $T_c^{(H)}$) как в [2] с γ . В отличие от [2] обнаружены, как и в [3], образцы с высокими T_c (≈ 20 К) при более низких γ ($\sim 1,3$). Максимальные T_c и достигаются для стехиометрических составов.

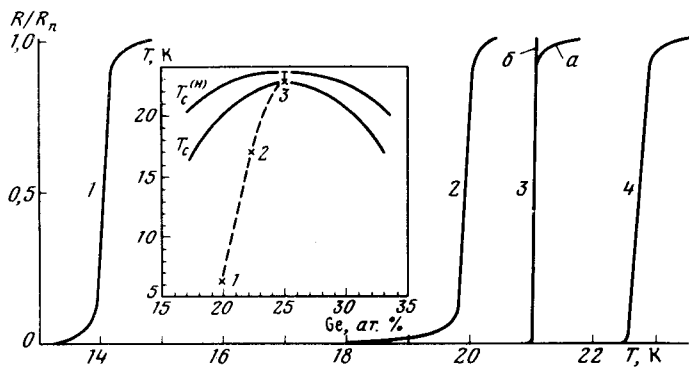


Рис. 2. Примеры переходов в сверхпроводящее состояние для пленок Nb_3Ge , полученных в различных условиях. На вставке дана зависимость T_c и $T_c^{(H)}$ от состава пленок (сплошные кривые). Пунктиром приведена зависимость T_c от состава β -фазы

Примеры переходов пленок с различными γ , изготовленных в разных режимах, показаны на рис. 2. Низкая скорость осаждения пленок (0,1 — 0,3 Å/сек) приводила к низким $\gamma=1,0 - 1,3$ и $T_c = 12 - 15$ К из-за большого количества примесей (кривая 1). Для образцов, полученных в "жестких" режимах [4] при достаточном количестве кислорода, характерно наличие "хвостов" на кривых перехода (кривая 2), электронная микроскопия обнаруживает ярко выраженную зернистую структуру (рис.3). Именно они имеют необычно высокие T_c при $\gamma \sim 1,3$. Высокотемпературная фаза таких пленок обособлена внутри зерен, защищена аморфным слоем окислов, обогащенными кислородом гексагональной (Nb_5Ge_3Ox) и β -фазой. Кроме того, по нашему мнению, их T_c остаются высокими потому, что воздействие энергичных частиц приводит к образованию в первую очередь точечных дефектов, которые, понижая γ , слабо сказываются на T_c .

Образцы с высокими γ и T_c получены в "мягких" режимах [5] и имеют резкие кривые перехода (кривые 3 и 4). Полная ширина перехода ΔT_c для пленок, изготовленных при напряжениях $V \sim 1000$ В, не превышала 0,7К (кривая 3а), а при увеличении рабочего тока снижалась до сотых долей градуса (кривая 3б). Кривая 4 относится к образцу с $\gamma = 2,5$, полученному в оптимальных режимах, имеющему $T_c = 22,7$ К, $T_c^{(H)} = 23,4$ К, полностью сверхпроводящему при 22,5К.

Корреляция для образцов полученных при дефиците кислорода и соответствующих провалу в величине T_c как функции состава [5], показана на вставке к рис. 1. Видно, что эта корреляция имеет противопо-

ложный характер, т. е. отсутствие стабилизации фазы Nb_3Ge , особенно в "жестких" режимах, приводит к значительному росту γ и понижению T_c .

На той же вставке отмечены T_c и γ образцов, соответствующих составу σ -фазы. Для них также наблюдается антикорреляция. Даже для таких составов достигаются высокие T_c . Малые γ указывают на неоднородность таких пленок, а высокие T_c — на присутствие высокотемпературной фазы. Наоборот, высокие γ для них означают, что формируется практически одна σ -фаза, что резко понижает T_c .

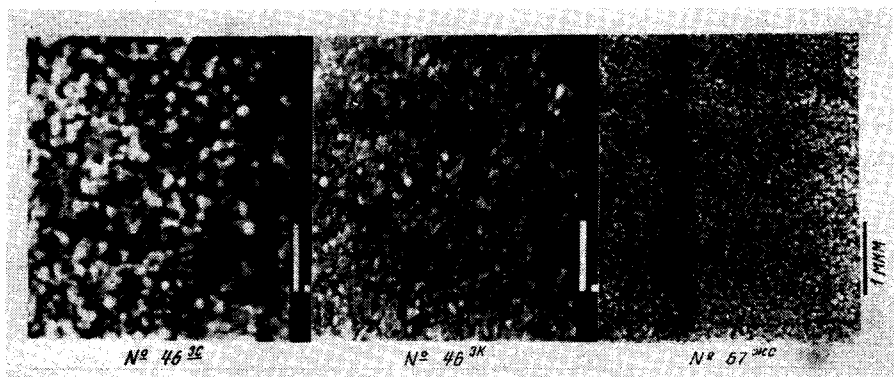


Рис. 6. Микрофотографии структуры пленок Nb_3Ge , полученных в "жестких" режимах ($V = 2$ кВ). Образец №46³ имеет $T_c = 19,2$ К, $T_c^{(H)} = 20,4$ К и толщину ~ 1 мкм (индексы "с" и "к" означают "середина" и "край" образца); образец №67^{жс} имеет $T_c = 16,5$ К, $T_c^{(H)} = 17$ К и толщину $\sim 0,4$ мкм.

Зависимости T_c и $T_c^{(H)}$ от состава образцов для лучших серий приведены на вставке к рис. 2. Там же пунктиром показана резкая зависимость T_c от состава собственно β -фазы, построенная по трем точкам. Точка 1 соответствует равновесной β -фазе, образующейся обычным металлургическим путем. Точка 2 относится к неравновесной β -фазе, получаемой быстрой закалкой [6], точка 3 — к метастабильной β -фазе стехиометрического состава, полученной в пленках. Слабая зависимость T_c от состава пленки (как и антикорреляция T_c с γ , показанная на вставке к рис. 1) свидетельствует о существовании в нестехиометрических образцах значительного количества β -фазы с составом, близким к стехиометрическому. Это подтверждает факт существования стабилизирующих факторов, действующих в процессе формирования пленки и делающих эту фазу конкурентноспособной по отношению к росту как α -, так и σ -фазы. Стабилизация определяется внедрением кислорода в решетку при формировании пленки, выделением его на фазовые границы (и в σ -фазу) и "замораживанием" метастабильной β -фазы после ухода кислорода при выборе оптимальной температуры подложки T_d [5]. Согласно этой модели в образцах нестехиометрического

состава при оптимальных условиях должны формироваться как σ -фаза, так и фаза Nb_3Ge . При отсутствии же стабилизации состав β -фазы в серии будет близок к Nb_4Ge с $T_c \sim 6K$. Пленки, содержащие ~ 20 ат. % Ge , будут тогда иметь одну фазу Al_5 , аномально высокие и низкие T_c . Наиболее близок к такому случаю образец, полученный нами в "жестком" режиме при резком недостатке кислорода, имеющий $\gamma = 4,6$ и $T_c \approx 11K$. При менее остром дефиците кислорода максимум γ смещается в сторону стехиометрического состава, величина γ падает, а T_c повышается. Точное положение максимума γ по составу пленок в серии указывает состав β -фазы, стабилизирующейся в условиях приготовления данной серии. При слабом дефиците кислорода величина γ обычно оказывалась ниже, чем при оптимальном его количестве, поскольку в образцах из-за флуктуаций формируется β -фаза некоторого диапазона составов. Их переходы уширены до 2K и более. Чрезмерное количество кислорода понижает γ , а затем и T_c , так как значительная его часть остается в β -фазе, уширяет ее решетку и действует как вредная примесь.

С фазовым составом связана и наблюдавшаяся нами корреляция γ и ΔT_c . Величина γ для различных фаз коррелировала также с T_D . Небольшое превышение оптимальной T_D приводило к повышению γ образцов с составом σ -фазы, а снижение T_D улучшало рост α -фазы.

Интересно отметить, что пленки с высокими T_c были получены как с совершенно зеркальной поверхностью, так и с серым или даже темным оттенком. При увеличении "жесткости" режима, толщины пленки, относительной площади Ge на мишени, числа циклов с одной мишенью пленки становились темнее. Не обнаружено однозначной связи цвета с величиной γ и размером зерна (из снимков на рис. 3 №46^{ЗК} — наиболее светлая пленка). При наличии темных образцов в серии их оттенок осциллировал с составом, причем максимум T_c достигался вблизи границы потемнения, а наивысшая зеркальность — при составах, богатых Nb . Можно предположить связь оттенка с колоночным ростом пленок [7] в сочетании с выделением Ge , образованием окислов и фазы Nb_5Ge_3Ox на поверхности.

Полученные результаты показывают, что отношение сопротивлений дает богатую информацию о структуре сверхпроводящих пленок, позволяющую проникать в природу высокотемпературной сверхпроводимости.

Физический институт
им. П.Н.Лебедева
Академии наук СССР

Поступила в редакцию
5 июля 1979 г.

Литература

- [1] А.И.Головашкин, И.С.Левченко, Г.П.Мотулевич. Препринт ФИАН №166, 1969.
- [2] L.R.Testardi, R.L.Meek, J.M.Poate, W.A.Royer, A.R.Storm, J.H.Wernick. Phys. Rev., B11, 4304, 1975.
- [3] R.E.Somekh. Phil. Mag., B37, 713, 1978.
- [4] А.И.Головашкин, Е.В.Печень. ФТТ, 21, 1248, 1979; Препринт ФИАН №261, 1978.

- [5] А.И. Головашкин, Е.В. Печень. Письма в ЖЭТФ, 29, 396, 1979;
А.И. Головашкин, А.Н. Лыков, С.Л. Прищепа. ЖЭТФ, 76, 1316, 1979.
- [6] B.T. Matthias, T.H. Geballe, R.H. Willens, E. Corenzwit, G.W. Hull. Jr.
Phys. Rev., A139, 1501, 1965.
- [7] M.A. Janocko, J.R. Gavaler, C.K. Jones. Phys. Lett., A36, 465, 1971;
H.F. Braun, E.J. Saur. J. Low Temp. Phys., 33, 87, 1978.
-