

МАГНИТНЫЕ СВОЙСТВА СЛОИСТЫХ СТРУКТУР Nb/NbO<sub>x</sub>

В. И. Дедю, А. Н. Лыков

Разработана методика приготовления слоистых структур на основе ниобия. Измерены температурные и угловые зависимости верхнего критического магнитного поля. Обнаружено, что вблизи критической температуры  $T_c$   $H_{c2}^{\perp}(T) \sim (T_c - T)^{4/3}$  и  $H_{c2}^{\parallel}(T) \sim (T_c - T)^{2/3}$ . Результаты согласуются с зависимостями, полученными на основе макроскопической теории сверхпроводников с малой длиной когерентности.

В последние годы появился целый ряд работ, посвященных изучению искусственно созданных сверхпроводящих слоистых структур (СС). СС представляют собой многослойный сэндвич, в котором слои сверхпроводника чередуются со слоями другого сверхпроводника ( $S/S'$ ), нормального металла ( $S/N$ ), полупроводника ( $S/s$ ) либо диэлектрика ( $S/I$ ). В эксперименте основное внимание уделено изучению  $S/N$  и  $S/s$  структур, в которых обычно реализуется сильная связь между слоями. В них обнаружен размерный переход из режима квазидвумерного в режим обычного трехмерного поведения при приближении температуры к критической [1, 2]. На зависимости параллельного критического поля от температуры наблюдается излом и происходит изменение закона от корневого  $H_{c2}^{\parallel} \sim (T_c - T)^{1/2}$  для низких температур к линейному  $H_{c2}^{\parallel} \sim (T_c - T)$  при  $T \rightarrow T_c$ . Теоретическое описание этого явления дано в работах [3, 4]. Физический смысл перехода заключается в том, что при некоторой температуре разделение слоев фактически исчезает и образец становится трехмерным. При этом длина когерентности сверхпроводника в направлении, перпендикулярном к слоям  $\xi_z(T)$ , становится равной периоду слоистой структуры.

Другое интересное явление было обнаружено в работе [5] при изучении температурной зависимости перпендикулярного критического магнитного поля  $H_{c2}^{\perp}(T)$  на слоистых пленках Al—Ge. Суть его состоит в существовании положительной кривизны ПК ( $d^2 H_{c2}^{\perp}(T)/dT^2 > 0$ ) в области температур вблизи  $T_c$ . Такой характер зависимости  $H_{c2}^{\perp}(T)$  до конца не понят до сих пор. Изучению положительной кривизны посвящено несколько теоретических работ. В [4] ПК является следствием различия коэффициентов диффузии двух компонент  $S/N$  структуры и наблюдается как для перпендикулярного, так и для параллельного направлений поля. В [6] показано, что ПК усиливается при ослаблении связи между слоями. В недавних теоретических работах [7, 8], посвященных созданию макроскопической теории массивных высокотемпературных сверхпроводников, предсказано, что в области критических флуктуаций  $H_{c2}^{\perp}(T)$  будет определяться зависимостью  $H_{c2}^{\perp}(T) \sim (T_c - T)^{4/3}$ , т. е. также должна наблюдаться положительная кривизна. Область существования такого закона изменения верхнего критического магнитного поля довольно мала [7]  $(T_c - T) \leq 10^2 T_c (a/\xi(0))^4$ , где  $a$  — постоянная кристаллической решетки сверхпроводника,  $\xi(0)$  — длина когерентности при  $T=0$ . Поскольку в СС длина когерентности в направлении, перпендикулярном слоям, зависит от связи между слоями и в случае слабой связи также может быть очень малой, температурный интервал, где должно наблюдаться такое поведение верхнего критического магнитного поля, может быть значительным.

Несмотря на большое количество работ по СС, магнитным свойствам структуры сверхпроводник / изолятор ( $S/I$ ) уделялось недостаточное внимание. В них реализуется джозефсоновское взаимодействие между слоями. Размерный переход в таких структурах не наблюдается, так как из-за слабости связи  $\xi_z(0)$  мала и температура перехода фактически совпадает с критической. Таким образом, поведение в магнитных полях должно резко отличаться от поведения  $S/N$  структур. Интересным является влияние слабого взаимодействия между слоями на критическую температуру структуры. В [9, 10] показано, что критическая температура СС увеличивается по сравнению с критической температурой одного слоя. Этот вопрос приобретает дополнительную актуальность в связи с открытием высокотемпературных сверхпроводников, которые, как показывают исследования, также имеют слоистую структуру [11].

Нами изготовлены и исследованы структуры  $Nb/NbO_x$  со слабым джозефсоновским взаимодействием между слоями. Выбор такой системы не случаен. Ниобий среди простых сверхпроводников обладает наибольшей критической температурой и наименьшей длиной когерентности  $\xi(0)$ , что важно для наблюдения критических флуктуаций. Плавная зависимость толщины окисного слоя от времени окисления определяет преимущество данной системы по сравнению со структурами, где слой изолятора напыляется и имеется больший разброс по толщинам. На таких структурах мы измеряли зависимости второго критического поля от температуры и направления внешнего магнитного поля.

## 1. Приготовление образцов и методика измерений

Слоистые структуры создавались методом магнетронного распыления в вакуумной установке с диффузионным насосом. Конструкция магнетрона подробно описана в [12]. Отметим лишь, что выделяемая на мишени мощность близка к 350 Вт при рабочем токе 1 А. Ниобий осаждался со скоростью 20—25 Å/с при давлении спектрально чистого аргона (99.997 %) 2—5 мТор. Остаточное давление в рабочей камере  $P_{\min} \approx 10^{-6}$  Тор. Магнетронное устройство включает в себя цилиндрический водоохлаждаемый экран из нержавеющей стали. В процессе напыления используются геттерные свойства пленки Nb, осаждающейся на внутренней поверхности экрана в процессе распыления мишени. Уменьшение давления остаточных газов в области распыления вследствие этого позволяет улучшить качествоготавливаемых пленок. В качестве подложек использовались полированные пластинки из монокристаллического сапфира размером  $12 \times 2 \times 2$  мм. В процессе напыления пленок температура подложек не поднималась выше 70 °С. Толщина пленок контролировалась временем осаждения. Для предотвращения разброса по толщине отдельных слоев многослойной структуры поддерживался одинаковый режим напыления в процессе приготовления всех ниобиевых слоев. Окисный слой формировался при напуске воздуха в рабочую камеру на 5 или 10 мин. Давление воздуха при этом выбиралось либо 1, либо  $2 \cdot 10^{-2}$  бар. Таким образом варьировалась электрическая связь между слоями. Характеристикой связи является произведение удельного сопротивления окисного слоя  $\rho_i$  на его толщину  $d_i$ , равное сопротивлению единицы площади туннельного контакта  $S-I-S$ . Чем больше это сопротивление, тем меньше величина критического тока контакта и слабее связь между слоями. Оно определялось нами из измерений поперечного сопротивления туннельных контактов  $Nb-NbO_x-Nb$ , приготовленных в заданном режиме окисления. Характерные параметры некоторых исследованных образцов представлены в таблице, где  $N$  — количество слоев;  $d$  — толщина слоя;  $T_c$  — критическая температура образца, определенная по середине резистивного перехода;  $\rho_{300}$ ,  $\rho_{10}$  — удельные сопротивления при 300 и 10 К.

Был проделан Оже-анализ одного из образцов, который подтвердил наличие периодической структуры [13]. Оже-анализ сопровождался по-

Номер образца	N	d, Å	T <sub>c</sub> , К	γ = ρ <sub>300</sub> /ρ <sub>10</sub>	ρ <sub>300</sub> / МКОМ · см	ρ <sub>c</sub> d <sub>c</sub> / Ом · см <sup>2</sup>
1	1	100	3.77	1.21	80	—
2	1	300	4.93	1.32	40	—
3	10	300	5.63	1.42	40	10 <sup>-6</sup>
4	20	300	5.18	1.2	152	2 · 10 <sup>-6</sup>
5	10	300	6.13	1.6	40	2 · 10 <sup>-8</sup>
6	10	400	5.8	1.2	94	2 · 10 <sup>-6</sup>
7	10	100	5.41	1.45	40	2 · 10 <sup>-8</sup>
8	10	200	6.18	1.23	40	2 · 10 <sup>-8</sup>
9	10	400	7.42	1.6	40	10 <sup>-5</sup>

слоистым ионным стравливанием. Наблюдалось периодическое уменьшение интенсивности линии ниобия с глубиной модуляции ~25 % при одновременном возрастании интенсивности линии кислорода. Толщина окисных прослоек, определенная на основе этого анализа, не превышает нескольких десятков ангстрем.

Магнитное поле напряженностью до 70 кЭ создавалось сверхпроводящим соленоидом, неоднородность поля на образце не превышала 0.04 %. При измерении температурной зависимости верхнего критического магнитного поля образец помещался в вакуумируемой вставке, снабженной микропечью, которая меняла температуру. Измерение температуры проводилось германиевым термометром с точностью 4 · 10<sup>-3</sup> К. Угловая зависимость критического поля измерялась с помощью зубчатой конической передачи, работающей в жидком гелии. Точность выставления угла между плоскостью пленки и направлением магнитного поля составляет 0.5°.

Измерены температурные зависимости сопротивления R(T) и верхнего критического поля H<sub>c2</sub>(T), а также угловые зависимости H<sub>c2</sub>(θ). Измерение сопротивления образцов проводилось обычным 4-зондовым методом. На всех образцах в нормальном состоянии наблюдался металлический характер зависимости R(T). Критическое поле определялось по уровню направления на образце 1 мкВ, что составляет ~1 % от величины IR<sub>10</sub>. Для сравнения на некоторых образцах критическое поле определялось также по середине и концу перехода.

## 2. Экспериментальные результаты и их обсуждение

Важной характеристикой слоистых структур является качество отдельных слоев. Поэтому технологический режим нанесения тонких слоев ниобия в наших структурах выбран таким, чтобы максимально удовлетворить этому требованию. С точки зрения поставленной задачи, о качестве однослойных пленок следует судить главным образом по виду зависимостей H<sub>c2</sub><sup>∥</sup>(T), H<sub>c2</sub><sup>⊥</sup>(T) и H<sub>c2</sub>(θ). Согласно теории [14],

$$H_{c2}^{\perp} = \Phi_0 / 2\pi \xi^2(T) \xrightarrow{T \rightarrow T_c} (T_c - T), \quad H_{c2}^{\parallel} = \sqrt{3} \Phi_0 / 2\pi d \xi(T) \xrightarrow{T \rightarrow T_c} (T_c - T)^{1/2}.$$

Угловая зависимость верхнего критического магнитного поля при условии d ≪ ξ(T) определяется из уравнения

$$\left[ \frac{H_{c2}(\theta)}{H_{c2}^{\perp}} \cos \theta \right]^2 + \frac{H_{c2}(\theta)}{H_{c2}^{\parallel}} \sin \theta = 1. \quad (1)$$

На рис. 1 приведены температурные зависимости параллельного и перпендикулярного критических магнитных полей для тонкой ниобиевой пленки. В согласии с теорией, H<sub>c2</sub><sup>∥</sup> ~ (T<sub>c</sub> - T) и H<sub>c2</sub><sup>⊥</sup> ~ (T<sub>c</sub> - T)<sup>1/2</sup> вблизи T<sub>c</sub>, что говорит о хорошем качестве пленки.

На основе этих зависимостей можно определить толщину сверхпроводящего слоя d<sub>сф</sub><sup>2</sup> = k H<sub>c2</sub><sup>∥</sup>(T) / (H<sub>c2</sub><sup>⊥</sup>(T))<sup>2</sup>, где k = 1.08 · 10<sup>-7</sup> см<sup>2</sup> · Э. Для образца № 2 d<sub>сф</sub><sup>2</sup> = 170 Å, что существенно меньше полной толщины пленки и указывает на наличие переходного слоя.

На рис. 2 показаны примеры угловых зависимостей для однослойной и многослойной сверхпроводящих пленок. Как видно, экспериментальная угловая зависимость для однослойного образца достаточно хорошо согласуется с теоретической, следующей из уравнения (1). Особо отметим отсутствие дополнительного максимума при  $90^\circ$ . Существование такого максимума указывало бы на гранулированный характер пленок. В случае слоистых сверхпроводников с джозефсоновским взаимодействием между слоями расчеты, проведенные в работе [15] на основе дифференциально-разностных уравнений Гинзбурга—Ландау, дают

$$H_{c2}(\theta) = \frac{H_{c2}^\perp}{[\sin^2\theta + (H_{c2}^\perp/H_{c2}^\parallel)^2 \cos^2\theta]^{1/2}} \quad (2)$$

Как видно из рис. 2, экспериментальная зависимость для слоистого сверхпроводника согласуется с теоретической. На некоторых образцах экспериментальная зависимость  $H_{c2}(\theta)$  спадает с увеличением  $\theta$  более

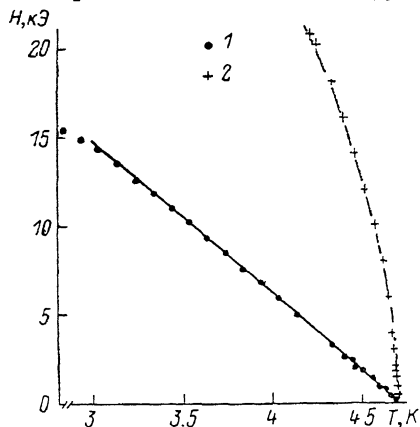


Рис. 1. Зависимость  $H_{c2}^\perp(T)$  (1) и  $H_{c2}^\parallel(T)$  (2) для обр. № 2.

Кривая соответствует закону  $H_{c2}^\parallel(T) \sim (T_c - T)^{0.5}$ .

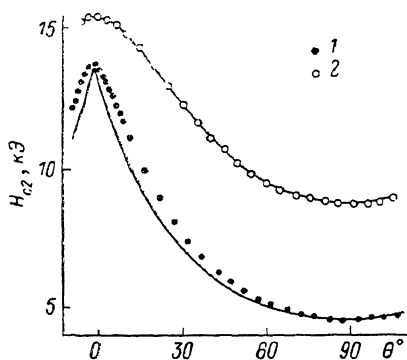


Рис. 2. Угловые зависимости верхнего критического магнитного поля при 4.2 K для образцов № 2 (1) и № 4 (2).

Верхняя кривая получена по формуле (2), нижняя — из уравнения (1).

резко, чем теоретическая, хотя качественно также наблюдается хорошее согласие между экспериментом и теорией.

В слоистых образцах Nb/NbO<sub>x</sub> со слабым взаимодействием между слоями для  $d=200, 300$  и  $400 \text{ \AA}$   $H_{c2}^\parallel(T)$ , так же как и в однослойной пленке, хорошо описывается корневой зависимостью. Однако при приближении к  $T_c$  наблюдается отклонение (рис. 3), причем отклонение имеет место для точек, снятых как по началу перехода, так и по середине. Это говорит о том, что отклонение не является следствием уширения перехода. Этот результат можно интерпретировать уменьшением в магнитном поле добавки к критической температуре отдельных слоев, возникающей за счет взаимодействия между ними. В пользу такого предположения говорит то, что величина магнитного поля, при которой начинается отклонение, растет при уменьшении  $\rho_i d_i$ , т. е. при усилении взаимодействия между слоями [10]. Для слоистой структуры с  $d=100 \text{ \AA}$   $H_{c2}^\parallel(T)$  описывается линейной зависимостью (рис. 4), что, видимо, определяется малой толщиной слоя  $d \sim \xi(0)$  и большой величиной связи (см. таблицу). В этом случае образец можно рассматривать как квазитрехмерный с  $H_{c2}^\parallel \sim (T_c - T)$ . При температурах, близких к критической, также наблюдается изменение характера температурной зависимости.

В случае перпендикулярного направления поля  $H_{c2}^\perp(T)$  описывается линейным законом для всех толщин слоев. Но для температур  $T \rightarrow T_c$  имеется участок с положительной кривизной. Величина температурного

интервала с ПК для всех образцов приблизительно равна величине интервала, где наблюдаются отклонения для  $H_{c2}^{\perp}(T)$  (рис. 4).

Нами проанализированы температурные зависимости для параллельного и перпендикулярного направлений поля в области отклонений. Обнаружено, что температурный интервал, где наблюдаются отклонения, увеличивается с увеличением величины связи между слоями. Это видно, например, из сравнения рис. 3 и 4. Характер температурной зависимости в обоих случаях является степенным, но с разным показателем степени. Оказывается, что для случая параллельного поля  $H_{c2}^{\parallel} \sim (T_c - T)^{2/3}$ ; для перпендикулярного поля  $H_{c2}^{\perp} \sim (T_c - T)^{1/3}$ . Для наглядности на рис. 5 приведены температурные зависимости  $(H_{c2}^{\perp})^{3/4}$  (а) и  $(H_{c2}^{\parallel})^{3/2}$  (б) для образцов № 4 (1) и № 7 (2). Видно, что точки очень хорошо ложатся на прямую.

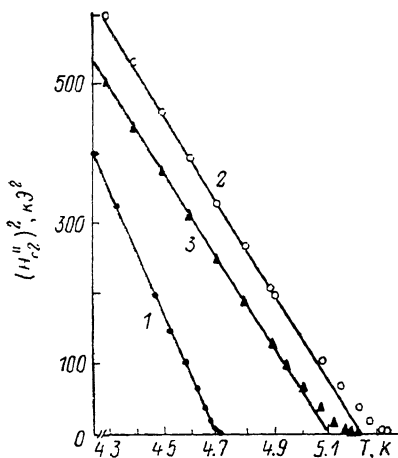


Рис. 3. Температурные зависимости  $(H_{c2}^{\perp})^2$  для образцов № 2 (1) и № 4, построенные по середине (2) и концу (3) резистивного перехода.

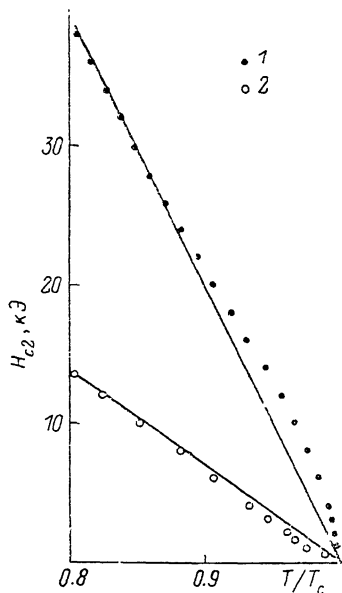


Рис. 4. Зависимости  $H_{c2}^{\parallel}(T)$  и  $H_{c2}^{\perp}(T)$  для обр. № 7.

При понижении температуры в случае параллельного поля наблюдается отклонение точек от прямой как вверх (для  $d=100 \text{ \AA}$ ), так и вниз (для  $d \geq 200 \text{ \AA}$ ). Это соответствует возврату к линейной (рис. 4) либо к корневой (рис. 3) зависимостям для  $H_{c2}^{\parallel}(T)$  в этой области температур.

Полученные нами результаты хорошо согласуются с предсказаниями макроскопической теории для сверхпроводников с малой длиной когерентности [7, 8]. В этих работах, в частности, выведена температурная зависимость длины когерентности в области критических флуктуаций  $\xi(T) \sim (T_c - T)^{-2/3}$ . Учитывая, что в СС для случая слабой связи между слоями  $H_{c2}^{\parallel} \sim 1/\xi(T)$  и  $H_{c2}^{\perp} \sim 1/\xi^2(T)$ , мы получаем соответственно законы «2/3» и «4/3» для двух направлений поля. Довольно широкий диапазон температур, где наблюдается это согласие, можно объяснить слабой связью между слоями, приводящей к тому, что  $\xi_z(0)$  может быть очень малой величиной. Для оценки верхней границы  $\xi_z(0)$  воспользуемся тем, что в наших структурах размерный переход не наблюдается. На языке длины когерентности условие наблюдения размерного перехода определяется из выражения  $\xi_z(T) \sim d$ . Это приводит в нашем случае к условию  $\xi_z(0)/(\Delta T)/T_c^{1/2} \leq d$ , где  $\Delta T$  — точность измерения температуры; у нас  $\Delta T = 4 \cdot 10^{-3} \text{ K}$ . Отсюда получаем  $\xi_z(0) < 5 \div 10 \text{ \AA}$ . Такая малая длина когерентности приводит к тому, что температурный интервал, где суще-

ственно влияние критических флуктуаций, будет заметен. Можно ввести некую эффективную длину когерентности  $\xi_{\text{эфф}} = (\xi_x(0)\xi_z(0))^{1/2}$ . Это дает величину  $\xi_{\text{эфф}}(0) < 30 \text{ \AA}$  и при наших критических температурах приводит к интервалу  $\Delta T > 0.05 \div 0.1 \text{ K}$ .

Таким образом, наши результаты на слоистых сверхпроводящих структурах подтверждают теоретические расчеты, полученные в работах [7, 8]. В СС с джозефсоновским взаимодействием между слоями наблюдалось существенное увеличение критической области температур, где велика роль флуктуаций по сравнению с критической областью обычных сверхпроводников. СС нельзя рассматривать просто как набор отдельных сверхпроводящих слоев. Слабое джозефсоновское взаимодействие между слоями существенно влияет на свойства всей структуры, приводя, в частности, к увеличению  $T_c$  с ростом количества слоев.

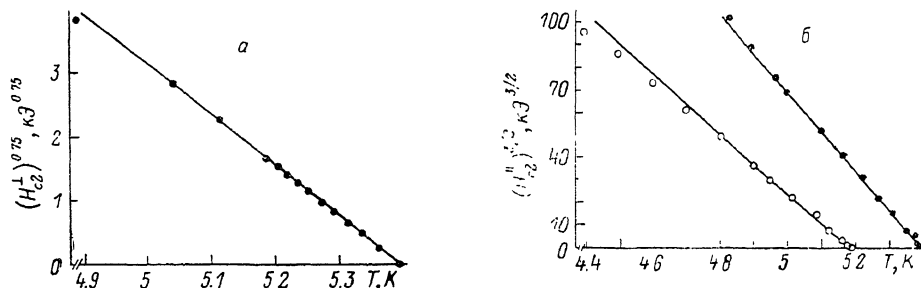


Рис. 5.

В заключение авторы выражают благодарность А. И. Головашкину, В. Ф. Елесуну и А. А. Собянину за полезное обсуждение результатов.

#### Л и т е р а т у р а

- [1] Banerjee I., Yang Q. S., Falco Ch. M., Schuller I. K. // Phys. Rev. B. 1983. V. 28. N 9. P. 5037—5040.
- [2] Ruggiero S. T., Barbee T. W., Beasley M. R. // Phys. Rev. B. 1982. V. 26. N 9. P. 4894—4907.
- [3] Deutscher G., Entin-Wohlman O. // Phys. Rev. B. 1978. V. 17. N 3. P. 1249—1252.
- [4] Takahashi S., Tachiki M. // Phys. Rev. B. 1986. V. 34, N 5. P. 3162—3164.
- [5] Haywood T. W., Ast. D. G. // Phys. Rev. B. 1978. V. 18. N 5. P. 2225—2236.
- [6] Biagi K. R., Kogan V. G., Clem J. R. // Phys. Rev. B. 1985. V. 32. N 11. P. 7165—7172.
- [7] Шапиро Б. Я. // Письма в ЖЭТФ. 1987. Т. 46. № 11. С. 451—453.
- [8] Булаевский Л. Н., Гинзбург В. Л., Собянин А. А. // ЖЭТФ. 1988. Т. 94. № 7. С. 355—375.
- [9] Strongin M., Kammerer O. F., Douglass D. H. Jr., Cohen M. H. // Phys. Rev. Lett. 1967. T. 19. N 3. P. 121—125.
- [10] Дедю В. И., Лыков А. Н. // Письма в ЖЭТФ. 1987. Т. 46. № 5. с. 184—186.
- [11] Dinger T. R., Worthington T. K., Gallagher W. J., Sandstrom R. L. // Phys. Rev. Lett. 1987. T. 58. N 25. P. 2687—2690.
- [12] Дедю В. И., Лыков А. Н., Махашвили Л. И. // Препринт ФИАН № 92. М., 1986. 8 с.
- [13] Дедю В. И., Лыков А. Н. // РСФ. 1987. № 2. С. 11—12.
- [14] Сан-Жам Д., Сарма Г., Томас Е. Сверхпроводимость второго рода. М., 1974. 364 с.
- [15] Булаевский Л. Н. // УФН. 1975. Т. 116. № 3. С. 449—483.

Физический институт  
им. П. Н. Лебедева АН СССР  
Москва

Поступило в Редакцию  
11 мая 1988 г.  
В окончательной редакции  
29 августа 1988 г.