

Осцилляции и квантование сопротивления в особых температурных точках трехслойных пленок PbS–PbTe–PbS на (001) KCl

© А.И. Федоренко, В.В. Зорченко, А.Ю. Сипатов, О.А. Миронов, С.В. Чистяков, О.Н. Нащеккина

Харьковский государственный политехнический университет,
310002 Харьков, Украина

E-mail: fedor@kpi.kharkov.ua

(Поступила в Редакцию 20 октября 1998 г.
В окончательной редакции 12 февраля 1999 г.)

На температурных зависимостях сопротивления монокристаллических трехслойных пленок PbS–PbTe–PbS на (001) KCl обнаружены осцилляции и множество точек перегиба. Экстремумы и точки перегиба наблюдаются при температурах $(m/n)T_0$ ($T_0 = 5.238$ К), причем в этих особых температурных точках сопротивление образцов принимает одно из значений $(p/q)R_Q$, где $R_Q = 25812.8 \Omega$ — квант сопротивления; m , n , p и q — целые числа.

Ранее было показано, что температурные зависимости сопротивления металлических островковых пленок на диэлектрической подложке [1], двухслойных пленок PbS/PbTe (111) и PbSe/PbTe (111) на слюде [2], а также мультислоев PbTe/PbS (001) на KCl [3] имеют множество точек перегиба при температурах $T = nT_0$, кратных температуре $T_0 = 5.238$ К, причем в таких особых температурных точках сопротивление островковых пленок [1] и туннельных контактов [4] с диэлектрической прослойкой, внутри которой запечатан островковый металлический слой, оказалось равным $(p/q)R_Q$, где $R_Q = 25812.8 \Omega$ — квант сопротивления; n , p , q — целые числа. В данной статье сообщается о наблюдении точек перегиба и осцилляций температурных зависимостей сопротивления $R(T)$, а также квантовании $R(T)$ в особых температурных точках трехслойных пленок PbS–PbTe–PbS на (001) KCl, которые являются минимальной по числу слоев структурной единицей, проявляющей сверхпроводящие свойства [3,5].

Образцы изготавливались в вакуумной установке ($P \sim 10^{-4} - 10^{-5}$ Па) путем последовательного термического испарения халькогенидов свинца на поверхность (001) KCl при температуре 520–570 К [3,5]. Пленки представляли собой монокристаллические слои с регулярными квадратными сетками дислокаций несоответствия на (001) межфазных границах с расстоянием между дислокационными узлами 5.2 нм. Толщины слоев контролировались кварцевым резонатором и определялись методами рентгеновской дифракции с точностью не хуже 0.1 нм [5]. Образцы конденсировались через окно маски, имевшей форму двойного холловского креста. Размер образцов 10×1 мм². Сопротивление измерялось четырехзондовым методом на постоянном токе с погрешностью $\leq 0.03\%$. Образцы крепились к медному блоку, который размещался в металлическом гелиевом криостате внутри сверхпроводящего соленоида. Температура образца в интервале (4.2–300) К задавалась величиной тока нагревателя, расположенного внутри медного блока. Стабилизация температуры осуществлялась с помощью электронной схемы с обратной связью, обеспечивающей поддержание температуры на заданном уровне в течение

длительного времени с точностью не менее 0.05 К при $T \sim 250$ К. При понижении температуры амплитуда колебаний температуры образца быстро уменьшается. Интервал (1.5–4.2) К перекрывался с помощью откачки паров жидкого гелия форвакуумным насосом (нестабильность температуры не более 0.005 К). Сопротивление образцов определялось в те периоды времени, когда их температура оставалась неизменной. Температура образцов контролировалась и измерялась платиновым термометром сопротивления (рабочий интервал (13–300) К) и двумя полупроводниковыми резистивными датчиками с рабочими интервалами (2–30) К и (1.5–300) К. Погрешность измерения температуры не превосходило 0.02 К при $T \sim 250$ К и 0.002 К при $T \sim 4$ К.

Для каждого из образцов при $T = 250$ К снимались вольт-амперные характеристики (ВАХ). Величина измерительного тока $(0.5 - 1) \cdot 10^{-5}$ А выбиралась таким образом, чтобы этот ток соответствовал линейному омическому участку ВАХ данного образца и был примерно в 4 раза меньше токов, при которых становилось заметным отклонение от линейности. После охлаждения образца и измерения $R(T)$ производилось повторное снятие ВАХ при температуре немного выше температуры сверхпроводящего перехода образца. Для всех образцов изначально выбранная величина измерительного тока находилась в пределах омических участков низкотемпературных ВАХ. Оценки показали, что нагрев пленок током не превосходил ~ 0.005 К во всем диапазоне температур, в котором велись измерения. В процессе измерения $R(T)$ магнитное поле Земли и другие возможные внешние магнитные поля были скомпенсированы с помощью сверхпроводящего соленоида.

На рис. 1 и 2 показаны температурные зависимости сопротивления трех образцов с различными толщинами слоев PbTe (d_{PbTe}), общий характер поведения которых сильно отличается. Для образца с $d_{\text{PbTe}} = 5$ нм (рис. 1) сопротивление имеет минимум при $T = 209.53$ К и увеличивается примерно в 2 раза при уменьшении температуры до 10 К. Заметим, что резкий рост сопротивления при понижении температуры от 573 К до комнатной наблюдался ранее для двухслойных пленок из халькогени-

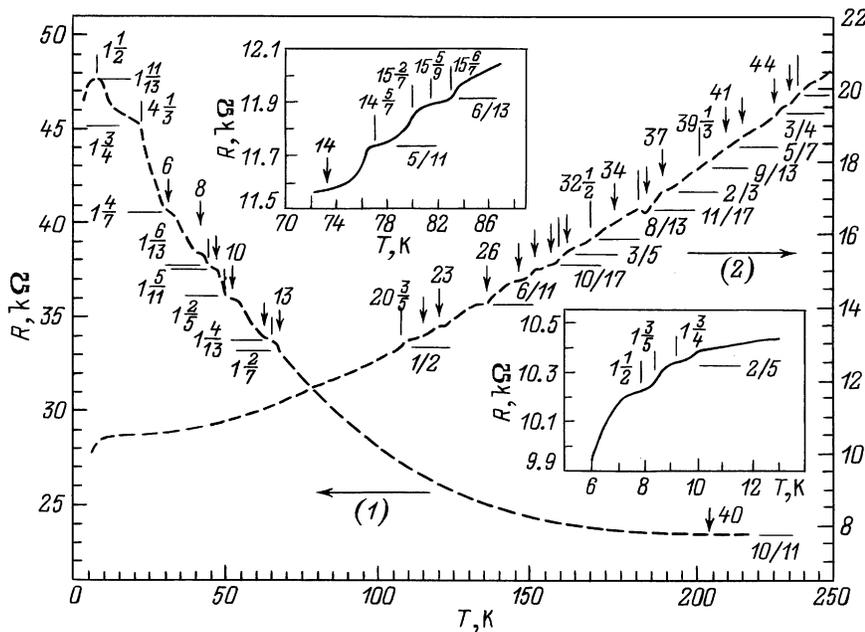


Рис. 1. Температурные зависимости сопротивления трехслойных пленок PbS (20 nm)–PbTe–PbS (20 nm) с толщинами слоев PbTe: (1) $d_{\text{PbTe}} = 5$ nm и (2) $d_{\text{PbTe}} = 8$ nm. На вставках показаны участки кривой (2) в увеличенном масштабе. Стрелки и вертикальные штрихи здесь и на рис. 2 указывают положение особых температурных точек вида $T_{cr} = nT_0$ и $T_{cr} = (m/l)T_0$, а цифры над ними — значения n и (m/l) . Вертикальным штрихам, для которых значения (m/l) на рисунке не приведены, соответствуют температуры, отличающиеся от nT_0 на величину $(1/2)T_0$. Горизонтальные штрихи отмечают уровни сопротивления $(p/q)R_0$, цифры — соответствующие (p/q) . Для кривой (2) верхний горизонтальный уровень — $(10/13)R_0$.

дов свинца на слюде с гексагональной сеткой дислокаций несоответствия на межфазной границе [2], хотя однослойные пленки (111) PbTe на слюде показали обычный спад сопротивления в той же области температур. Это свидетельствует о сильной локализации электронов на ядрах дислокаций несоответствия [2]. Сопротивление образца с $d_{\text{PbTe}} = 8$ nm (рис. 1) уменьшалось с понижением температуры, а образец с $d_{\text{PbTe}} = 16$ nm (рис. 2) показал необычное поведение. При первом охлаждении его сопротивление вело себя подобно сопротивлению образца с $d_{\text{PbTe}} = 8$ nm (см. вставку на рис. 2), а при повторном охлаждении характер поведения сопротивления резко изменился, появились осцилляции сопротивления с гигантской амплитудой.

Для рис. 1 и 2 характерно наличие множества особых температурных точек T_{cr} зависимостей $R(T)$, являющихся точками перегиба и экстремумами $R(T)$. Положение этих точек определялось численными методами путем интерполяции зависимостей $R(T)$ тригонометрическими многочленами либо интерполяционным многочленом Лагранжа с последующим дифференцированием и нахождением экстремумов и нулей dR/dT , отвечающих точкам перегиба и экстремумам $R(T)$. Эти методы интерполяции обеспечивали практически совпадающие результаты. Такая процедура давала значения температур особых точек $R(T)$ и величину сопротивления в них примерно с той же погрешностью, что и погрешности измерения температуры и сопротивления.

Оказалось, что T_{cr} принимают значения из дискретного набора $(m/n)T_0$ (m, n — целые числа). Положение некоторых из этих точек показано на рис. 1 и 2 вертикальными стрелками и штрихами с указанием отвечающих им значений (m/n) . Для образца с $d_{\text{PbTe}} = 16$ nm (рис. 2), для которого температурная зависимость измерялась с шагом 0.2 K, экстремумы (и точки перегиба) наблюдались при $T_{cr} = (m/7)T_0$, за исключением трех минимумов при $(45^2/3)$, $(46^2/3)$ и $(47^1/3)T_0$.

Значения (m/n) определялись следующим образом. Для каждой особой точки вычислялось отношение $T_{cr}/T_0 = \xi$, а затем производилось сравнение ξ со всеми рациональными дробями вида (m/n) , где n — одно- и двухзначные целые числа. Отбирались те значения (m/n) , которые попадали в окрестности отношения ξ , т. е. в область $\xi \pm (\Delta T/T_0)$, где ΔT — погрешность измерения температуры образца (включая оценку нагрева пленки током). При температурах T_{cr} ниже ~ 50 K в указанную окрестность попадало только одно значение (m/n) . При более высоких температурах единственность выбора n сохраняется также для T_{cr} с $n = 1, 2$, а для точек T_{cr} с $n > 2$ на эту окрестность приходилось несколько значений (m/n) . Например, для последнего минимума $R(T)$ на рис. 2, кроме значения $(m/n) = 47^1/3$, это могли быть числа $47^{33}/98$, $47^{32}/97$. В таких случаях больших n отдавалось предпочтение значениям (m/n) , у которых n было числом с одним знаком ($n = 3.7$).

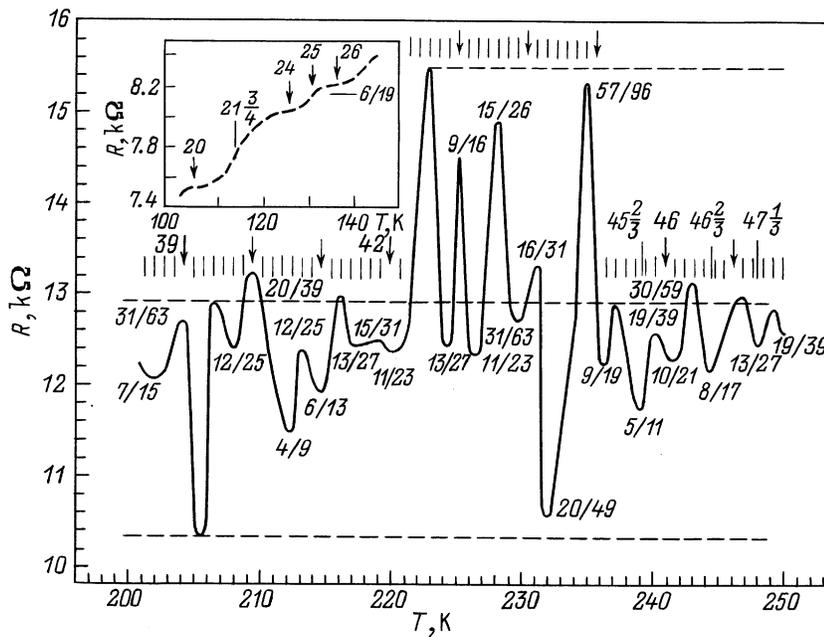


Рис. 2. Температурная зависимость сопротивления трехслойной пленки PbS–PbTe–PbS с толщинами слоев 16 нм при ее повторном охлаждении от комнатной температуры. На вставке показано изменение сопротивления образца при первом охлаждении до температуры 4.2 К. Короткие вертикальные штрихи отмечают сдвиги от температур nT_0 на величины, кратные $T_0/7$. Цифры возле экстремумов указывают сопротивление образца в данных экстремумах в единицах кванта сопротивления $R_Q = 25812.8 \Omega$. Горизонтальные штриховые линии — уровни сопротивления $(2/5)$, $(1/2)$ и $(3/5)R_Q$.

Как и для островковых пленок [1] и туннельных контактов [4], оказалось, что сопротивление образцов по крайней мере в некоторых особых точках $R(T)$ принимает одно из значений $(p/q)R_Q$. Значения (p/q) определялись с помощью того же метода, который использовался при нахождении значений (m/n) . Поскольку отношение $\Delta R/R_Q$ (ΔR — погрешность измерения сопротивления) на порядок меньше отношения $\Delta T/T_0$, процедура давала единственно возможное значение (p/q) (за исключением трех случаев; см. далее).

Анализ совокупности значений (p/q) для рис. 2 показал, что в исследованной области температур сопротивление образца испытывают осцилляции, лежащие в полосе от $(2/5)$ до $(3/5)R_Q$ с центром $(1/2)R_Q$. Экспериментальные значения (p/q) для экстремумов $R(T)$ являются числами вида $r/(2r + 1)$ ($r = 2, 4-13, 15, 19, 31$), $r/(2r - 1)$ ($r = 3, 16, 20, 30$), $3r/(5r + 1)$ ($r = 1, 3, 5, 19$), $2r/(5r - 1)$ ($r = 1, 2, 10$), а дроби $2/5$, $1/2$ и $3/5$ представляют собой предельные значения чисел этого вида при $r \rightarrow \infty$. Для пятого и двух последних ($T > 245$ К) максимумов $R(T)$ соответствующие значения p и q оказываются слишком большими, чтобы можно было сделать их однозначный выбор в пределах погрешности измерений. Заметим, что для образца с $d_{PbTe} = 8$ нм (рис. 1) значения сопротивления $(5/11)$, $(6/13)$, $(2/5)$, $(1/2)$ и $(3/5)R_Q$ в особых точках совпадают с аналогичными значениями для образца с $d_{PbTe} = 16$ нм (рис. 2). Обратим внимание также на то, что температура сверхпроводящего перехода T_c мультислоев PbTe/PbS на KCl [3] принимает одно из значений $T_{cr} = (m/n)T_0$,

если определить ее по точке перегиба кривых $R(T)$ в области перехода. Например, для образца с $d_{PbTe} = 8$ нм имеем $T_c = (5/7)T_0$, а сопротивление образца при этой температуре равно $(1/7)R_Q$.

Подчеркнем, что при температурах, отличающихся от особых температурных точек не более чем на 0.01–0.02 К, измеренное сопротивление образцов отклонялось от квантованного значения в пределах $\leq 0.05\%$. Например, в минимуме $R(T)$ при температуре 217 К, соответствующей $(41^3/7)T_0$, экспериментальное значение $R = 12430 \Omega$ отличается от значения $(13/27)R_Q = 12428.38 \Omega$ на $\sim 0.013\%$. Возможные неточности в экстраполяции поведения $R(T)$ между соседними температурными точками, в которых велись измерения R , не могут заметно повлиять на результаты. Полученные данные указывают на то, что в пределах погрешности измерений поверхностное сопротивление наших образцов $R_s = R/10$ квантуется в особых температурных точках, поскольку отклонения в форме и размерах окна маски от заданных параметров при ее изготовлении того же масштаба, что и относительная погрешность измерения сопротивления.

Для температурных зависимостей сопротивления мультислоев PbTe/PbS характерны те же особенности, что и для трехслойных образцов. Однако пока нельзя сделать какой-либо определенный вывод о возможности квантования сопротивления в мультислоистых структурах из-за недостатка экспериментальных данных по зависимостям $R(T)$, измеренным с достаточно малым шагом по температуре.

Следует отметить, что измеренные нами зависимости $R(T)$ для трехслойных образцов с промежуточными толщинами d_{PbTe} между 5 и 16 nm (7, 10 и 12 nm) вели себя качественно, подобно кривой 2 на рис. 1. Столь ярко выраженных осцилляций $R(T)$, как на рис. 2, не наблюдалось. Исходное сопротивление и температурные зависимости $R(T)$ образцов с одними и теми же d_{PbTe} и d_{PbS} , изготовленных в различных циклах конденсации, отличаются друг от друга, что связано, по-видимому, в основном с небольшим неконтролируемым различием в стехиометрии пленок. Для конкретной пленки в цикле охлаждение–нагрев в интервале температур ~ 100 K прямой и обратный ход зависимостей $R(T)$ обычно практически совпадают, хотя иногда в ограниченном интервале температур наблюдались заметные отклонения хода $R(T)$ при отогреве. При следующем цикле охлаждения и нагрева зависимость $R(T)$ отклоняется от своего хода в предыдущем цикле (пример особенно сильного отклонения приведен на рис. 2). Такое гистерезисное поведение свойств является характерным для халькогенидов свинца, а также структур, в которых проявляются так называемые системы особых температурных точек [6]. По-видимому, и в нашем случае особенности $R(T)$ можно отнести к этому классу явлений (см., например, статью Балагуровой и др. в сборнике [6], в которой приведены пики на зависимости $R(T)$ для образцов из PbTe).

Заметим, что сверхрешетки (СР) PbTe/PbS на (001) KCl по своим свойствам и в определенной мере по своей структуре являются аналогами ВТСП материалов [3,5]. При этом роль сдвоенных плоскостей CuO_2 в элементарной ячейке, разделенных слоем атомов металла (например, иттрия в $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$), играют квадратные сетки дислокаций несоответствия на границе PbTe с PbS, а дислокационные узлы являются аналогами медно-кислородных тетраэдров с основанием на плоскостях CuO_2 . С этой точки зрения сэндвичи PbS–PbTe–PbS должны быть похожими по свойствам на пленки $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ толщиной в одну элементарную ячейку. Поэтому можно ожидать качественного подобия температурных зависимостей $R(T)$ для ВТСП материалов и мультислоев PbTe/PbS. Действительно, на приведенных в литературе зависимостях $R(T)$ часто видны многочисленные ступеньки и экстремумы (см., например, данные для монокристаллов $\text{La}_2\text{CuO}_{4-y}$ [7], $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ [8] и $\text{Bi}_2\text{Sr}_{2.2}\text{Ca}_{0.8}\text{Cu}_2\text{O}_8$ [9]), однако из этих зависимостей нельзя достаточно точно определить положение особенностей $R(T)$ и значение поверхностного сопротивления в этих точках. Любопытно, что для $\text{La}_2\text{CuO}_{4-y}$ [7] кривая $R(T)$ имеет характерную ступеньку между 12 и $13T_0$, весьма похожую на ступеньку в том же интервале температур для нашего образца с $d_{\text{PbTe}} = 5$ nm (рис. 1). Для сравнения наиболее удобны СР, изготовленные из ВТСП материалов, и одиночные слои ВТСП, запечатанные с обеих сторон изолирующими слоями более высокоомного ВТСП. Мы проанализировали данные работы [10] для эпитаксиаль-

но выращенной на (100) SrTiO_3 пленки $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ толщиной в одну элементарную ячейку, закрытую с обеих сторон пленками $\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ толщиной в 6 и 11 элементарных ячеек, а также данные для СР YBCO/PrBCO с толщинами слоев в одну элементарную ячейку (10 периодов). Насколько можно судить из рис. 2 и 3 этой статьи, для одиночного слоя YBCO и СР температура сверхпроводящего перехода, определенная по точке перегиба кривой $R(T)$, составляет соответственно $(13^{1/3})$ и $13T_0$, а сопротивление образцов (10×1 mm) в этих точках равно $(1/3)R_Q$ и $(3/7)R_Q$ (в расчете на один слой YBCO). Хотя эти результаты и свидетельствуют в пользу гипотезы о качественном подобии резистивных свойств мультислоев PbTe/PbS и ВТСП, для ее подтверждения требуются, конечно, специально проведенные прецизионные исследования этих объектов.

Наблюдение упорядоченного множества особых температурных точек и квантования поверхностного сопротивления образцов в этих точках в таких сильно отличающихся объектах как островковые металлические пленки, слоистые структуры из халькогенидов свинца (и, по-видимому, ВТСП) указывает на фундаментальный характер этих явлений, причина которых пока неизвестна. Для всех этих структур характерно наличие областей локализации электронов — островков, дислокационных сеток либо плоскостей CuO_2 в ВТСП. Как было показано в [1,4], для туннельных контактов и островковых металлических пленок вольт-амперные характеристики имеют особенности в виде скачков тока (или напряжения) при напряжениях на образцах, кратных величине $V_0 = 16.25$ mV, а температура $T_0 = (1/36)eV_0$ (в энергетических единицах). Вычисленное из этого равенства значение $T_0 = 5.238$ K дает набор T_{cr} , хорошо согласующийся с экспериментальными данными. Заметим, что учет в T_0 трех знаков после запятой представляется необходимым, поскольку при высоких температурах в десятки T_0 расчетные и экспериментальные положения особых температурных точек могут заметно отличаться даже при относительно небольшой ошибке (~ 0.001 K) в расчетном значении T_0 .

Разность потенциалов V_0 можно представить в виде [4] $V_0 = e/R_0$, где длина $R_0 = 88.607$ nm оказалась чуть меньше (на 2.8%) величины, обратной постоянной Ридберга $R_\infty = me^4/4\pi\hbar^3c$ ($R_\infty^{-1} = 91.127$ nm). Используя длину R_0 , можно формально определить некоторую единицу магнитного поля $H_0 = \phi_0/\pi R_0^2$, где $\phi_0 = ch/2e$ — квант потока магнитного поля ($H_0 = 838.37$ Oe). Оказалось, что магнитополевые зависимости силы пиннинга СР PbTe/PnS на KCl и пленок $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, а также сопротивления СР Bi/Sb(111) на слюде [11] проявляют осцилляции с экстремумами в пользу $H_{cr} = (p/q)H_0$. Близость длин R_0 и R_∞^{-1} вряд ли является случайной. Это обстоятельство может оказаться ориентиром на пути к объяснению описанных явлений.

Список литературы

- [1] В.В. Зорченко, В.П. Сапелкин, А.А. Удовенко. ФТТ **32**, 3, 905 (1990).
- [2] С.Н. Григоров, В.В. Зорченко, Д.А. Литвинов, В.П. Сапелкин. УФЖ **35**, 5, 708 (1990); Вопросы атомной науки и техники. Сер. Ядерно-физич. исслед. (теория и экспер.) *4(12)*, 88 (1990).
- [3] O.A. Mironov, V.V. Zorchenko, A.Yu. Sipatov, A.I. Fedorenko, O.N. Nashchekina, S.V. Chistyakov. Defect and Diffusion Forum **103–105**, 473 (1993).
- [4] В.В. Зорченко, В.П. Сапелкин, А.А. Удовенко. ФТТ **30**, 8, 2349 (1988).
- [5] О.А. Миронов, Б.А. Савицкий, А.Ю. Сипатов, А.И. Федоренко, А.Н. Чиркин, Л.П. Шпаковская. Письма в ЖЭТФ **48**, 2, 100 (1988); Н.Л. Бобров, Л.Ф. Рыбальченко, В.В. Фисун, И.К. Янсон, О.А. Миронов, С.В. Чистяков, В.В. Зорченко, А.Ю. Сипатов. ФНТ **16**, 12, 1531 (1990).
- [6] Системы особых температурных точек твердых тел / Под ред. Ю.Н. Веневцева, В.И. Муромцева. Наука, М. (1986). 270 с.
- [7] M. Ribault, J. Joffrin. Solid State Commun. **69**, 11, 1031 (1989).
- [8] Л.И. Буравов, Л.Я. Винников, Г.А. Емельченко, П.А. Кононович, В.Н. Лаухин, Ю.А. Осипьян, И.Ф. Щеголев. Письма в ЖЭТФ **47**, 1, 50 (1988).
- [9] S. Martin, A.T. Fiory, R.M. Fleming, L.F. Schneemeyer, J.V. Waszczak. Phys. Rev. Lett. **60**, 21, 2194 (1988).
- [10] Y. Matsuda, S. Komiyama, T. Terashima, K. Shimura, Y. Bando. Phys. Rev. Lett. **69**, 22, 3228 (1992).
- [11] Б.А. Аминов, С.Ш. Ахмедов, До Тхи Шам, В.В. Кондратенко, Я.Г. Пономарев, А.Б. Теннакун, А.И. Федоренко. ФНТ **16**, 7, 939 (1990).