

PACS: 74.76.-w, 74.60.-Ge, 61.10.Lx

А.И. Коссе¹, А.Ю. Прохоров¹, В.А. Хохлов¹, Г.Е. Шаталова¹,
Н.Е. Письменова¹, А.В. Семенов², М.П. Черноморец², Д.Г. Ковальчук²,
Г.Г. Левченко¹

ОСОБЕННОСТИ МАГНИТНО-ПОЛЕВОЙ ЗАВИСИМОСТИ
КРИТИЧЕСКОГО ТОКА СВЕРХПРОВОДЯЩИХ ПЛЕНОК $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$,
ПОЛУЧЕННЫХ МЕТОДОМ ЛАЗЕРНОЙ АБЛЯЦИИ
НА ПОДЛОЖКАХ $SrTiO_3$

¹Донецкий физико-технический институт им. А.А. Галкина НАН Украины
ул. Р. Люксембург, 72, г. Донецк, 83114, Украина
E-mail: ayur@levch.fti.ac.donetsk.ua

²Институт физики НАН Украины
пр. Науки, 46, г. Киев, 03028, Украина
E-mail: semenov@iop.kiev.ua

Статья поступила в редакцию 20 апреля 2005 года

Представлены результаты исследований магнитно-полевой зависимости плотности критического тока $j_c(H)$ YBCO-пленки и рентгеноструктурного анализа. Пленки были выращены методом лазерной абляции на подложке $SrTiO_3$. Полученные разными методами средние размеры кристаллитов, из которых состоят пленки, значительно превышают аналогичный размер, известный из литературы. Обсуждаются возможные причины этих различий.

Считается, что большое количество краевых и винтовых дислокаций ($\sim 10^{11} \text{ cm}^{-2}$), возникающих в YBCO-пленках в процессе роста, является причиной значительных ($\sim (1-4) \cdot 10^6 \text{ A/cm}^2$ при 77 К) плотностей критического тока j_c , наблюдаемых в таких образцах [1-3]. Эпитаксиальные пленки YBCO растут в виде кристаллитов, которые при исследовании поверхности с помощью *atomic force microscope* визуально проявляются в виде «островков». Средний размер поверхностных островков, в зависимости от особенностей процесса напыления, составляет от 100 nm [4] до 2.5 μm (при спиральном росте островка с винтовой дислокацией в центре и несколькими краевыми ближе к периферии) [5]. Островки разделены малоугловыми границами (МУГ), представляющими собой относительно упорядоченные ряды краевых дислокаций [3,6]. Дислокации имеют несверхпроводящие ядра радиусом $r_c \sim 1 \text{ nm}$, окруженные областью с подавленным параметром поряд-

ка, которые и являются сильными центрами пиннинга для вихрей. В то же время промежутки между ядрами дислокаций внутри МУГ «прозрачны» для сверхпроводящего тока с плотностью, меньшей или порядка критической плотности тока распаривания [7].

Магнитно-полевые зависимости плотности критического тока j_c в эпитаксиальных пленках YBCO, выращенных по различным методикам и на различных подложках, исследованы в ряде работ [4,5,8,9]. В них изучены зависимости j_c от величины внешнего магнитного поля, приложенного перпендикулярно пленке ($H \parallel C$). Во всех работах отмечена независимость $j_c(H)/j_c(0)$ от поля при $H < H_m^*$ (так называемое «плато», или «полка»), где величина H_m^* при $T = 4.2$ К может достигать ~ 500 Ое и убывает с ростом температуры пропорционально $(1 - T/T_c)^{1/2}$.

Как показано в [8], в эпитаксиальных YBCO-пленках возможны два основных механизма, ограничивающих j_c . Это механизмы коллективного депиннинга вихрей со случайной сетки МУГ и распаривания сверхпроводящего тока (ограниченной прозрачности) в отдельных перколирующих среднеугловых границах. В работах [8,9] теоретически и экспериментально показано, что при малых полях должна существовать область с $j_c = \text{const}$, которая при увеличении H выше H_m^* переходит в зависимость $j_c(H, \tau)/j_c(0, \tau) \sim \ln(H^*/H)$, где H^* – характеристическое поле, а $\tau = (1 - T/T_c)$. Авторы [8] предположили, что резкий переход от плато к логарифмической зависимости на кривой $j_c(H)$ подтверждает существование контролируемого прозрачностью границ ограничения j_c в низкополевой области, переходящего в механизм коллективного депиннинга при увеличении поля. В случае, когда последний механизм ограничивает j_c во всем диапазоне полей, реальная структура кристаллитов может быть получена из измерений $j(H, T)$ путем определенной процедуры фитинга экспериментальных кривых [9].

В настоящей работе исследована YBCO-пленка толщиной 100 nm, полученная методом лазерного импульсного напыления на подложку SrTiO₃. Измерения плотности критического тока j_c и температуры сверхпроводящего перехода T_c проводили бесконтактным методом магнитной восприимчивости на частоте 937 Hz в диапазоне возбуждающих полей $H_{ac} = 0-60$ Ое. Применимость этой методики для определения j_c обоснована в [10,11] с использованием модели Бина [12]. Плотность критического тока определяли по формуле $j_c = 1.03H_m/d$, где H_m – амплитуда поля H_{ac} , при которой величина мнимой части восприимчивости $\chi''(T)$ достигает максимума, а d – толщина пленки. Величина внешнего постоянного магнитного поля H_{dc} изменялась в пределах 0–400 Ое. Целью настоящей работы было определение размеров кристаллитов в исследуемой пленке с помощью теории, предложенной в работах [8,9].

Зависимость критического тока, нормированного на величину $j_c(0)$, в функции внешнего магнитного поля H_{dc} при температуре 77 К представлена

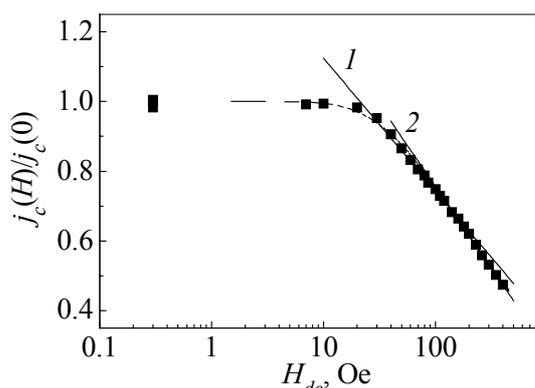


Рис. 1. Зависимость $j_c(H)/j_c(0)$ от H . Сплошные линии – результаты фитирования экспериментальной кривой по формуле $j_c(H)/j_c(0) = \alpha \ln(H^*/H)$; штриховая линия – фитинг по формуле (4): $1 - \alpha = 0.17, H^* = 7068$; $2 - \alpha = 0.2, H^* = 4080$

на рис. 1. Видно, что эта зависимость также имеет «полочку» примерно до 20 Ое, а затем достаточно резко начинает убывать с ростом H_{dc} по закону $j_c(H)/j_c(0) = \alpha \ln(H^*/H)$. Необходимо отметить, что приведенную на рис. 1 зависимость можно разделить на два участка (см. кривые 1, 2). Величина τ при 77 К равна 0.139. Значения α , найденные нами, несколько меньше, чем в [8,9] при такой же величине τ , а значение H^* по порядку величины совпадает с данными этих работ. Главной отличительной особенностью наших результатов от известных в литературе является малое

значение поля перехода $H_m^* \sim 20$ Ое от «полочки» к логарифмической зависимости по сравнению с [4,5,9], где значения H_m^* при $T = 77$ К лежат в интервале 100–200 Ое. Согласно теоретическому анализу работ [8,9] это означает, что размеры кристаллитов, образующих пленку, должны быть значительно больше, чем в пленках, исследованных в [4,5,9]. Второй особенностью наших данных является заметное изменение параметров α и H^* логарифмической зависимости $j_c(H)$ вблизи поля $H = 200$ Ое.

Теория, представленная в работах [8,9], основана на двух предположениях: 1) вихри пиннингуются на расположенных в МУГ краевых дислокациях, окружающих кристаллиты; 2) магнитная индукция B в пленке совпадает с внешним полем H , поскольку размагничивающий фактор пленки практически равен 1. Критический ток в этой модели определяется из условия коллективного депиннинга вихрей из комплекса краевых дислокаций в МУГ:

$$\frac{n_p}{n} F_p - F_L(j_c) = 0, \quad (1)$$

где n_p – число вихрей, запиннигованных на дислокациях, n – общее число вихрей в пленке, F_p – сила пиннинга, $F_L(j_c)$ – сила Лоренца, равная $\Phi_0 j_c / C$. Авторами [8,9] было получено следующее выражение для нормированной зависимости плотности критического тока в функции внешнего магнитного поля:

$$\frac{j_c(H, \tau)}{j_c(0, \tau)} = \frac{n_p(H)}{n(H)}. \quad (2)$$

Таким образом, зависимость плотности критического тока от поля пропорциональна $n_p(H)/n(H)$. Смысл этого выражения заключается в том, что,

когда число вихрей в пленке достигнет определенного значения (при отсутствии центров пиннинга), они образуют гексагональную решетку с параметром $a = (\Phi_0/H)^{1/2}$. При наличии центров пиннинга решетка искажается таким образом, что часть вихрей размещается в центрах пиннинга при наименьшем отклонении от положений, соответствующих узлам правильной решетки, а некоторые вихри вынуждены занимать положение вне центров пиннинга. Количество незапиннигованных вихрей определяется конфигурацией распределения центров пиннинга в образце и параметром a , зависящим от поля. В результате отношение n_p/n становится зависящим от поля. Таким образом, отношение n_p/n , а следовательно, и $j_c(H,\tau)/j_c(0,\tau)$ будет определяться размерами и формой кристаллитов, образующих пленку, их взаимной ориентацией и величиной a , напрямую связанной с величиной внешнего поля.

Вероятность распределения размеров кристаллитов L в пленке была взята авторами [8,9] в виде

$$P(L) = \frac{\mu^{\nu-1}}{\Gamma(\nu)} L^{\nu-1} e^{-\mu L}, \quad (3)$$

где L – размер кристаллитов; $\mu = \langle L \rangle / \sigma^2$ (σ – ширина функции распределения); $\Gamma(\nu)$ – полная гамма-функция; $\nu = \mu \langle L \rangle$. Окончательное выражение для отношения n_p/n принимает вид

$$\frac{n_p}{n} = 1 - \left\{ 1 - f(d^* x^{1/2}) \left[\frac{\Gamma(\nu, \nu x^{-1/2})}{\Gamma(\nu)} \right]^2 - f(d^* x^{1/2}) \left[\frac{\Gamma(\nu, \nu x^{-1/2}) - \nu x^{-1/2} \Gamma(\nu-1, \nu x^{-1/2})}{\Gamma(\nu)} \right]^2 \right\}. \quad (4)$$

Здесь $d^* = d/\langle L \rangle$ (d – расстояние между дислокациями); $x = H/H_0\tau$ ($H_0 = 8r_c^2 \Phi_0 / (\xi_0^2 \langle L \rangle)$, r_c – радиус кора дислокации ~ 1 nm); $\Gamma(\nu, \nu x^{-1/2})$ – неполная гамма-функция.

В результате фитирования экспериментальной кривой функцией (4) (см. штриховую линию на рис. 1) мы получили значения параметров: $H_0 = 111$ Oe, $\nu = 3$; $d^* = 2.1 \cdot 10^{-2}$. Отсюда следуют физические параметры: $\langle L \rangle = 600$ nm; $d = 13$ nm. Размер кристаллитов $\langle L \rangle$ существенно превышает полученное в [6] значение $\langle L \rangle = 280$ nm.

Из полученных измерений можно также оценить число дислокаций в пленке и угол разориентации между кристаллитами. Предположим, что пленка состоит из кристаллитов квадратной формы со стороной $\langle L \rangle$ и площадью $\langle L \rangle^2$. Тогда на каждой стороне квадрата находится $\langle L \rangle / (d/2)$ дислокаций, принадлежащих двум граничащим друг с другом кристаллитам. Общее количество дислокаций в пленке будет $n_{\text{disl}} = 2/(d\langle L \rangle)$. В нашем случае $n_{\text{disl}} =$

$= [2/(13-600)] \cdot 10^{14} = 2.5 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$. Эта величина примерно на порядок меньше количества краевых дислокаций, обычно определяемых с помощью электронной микроскопии высокого разрешения ($\sim 10^{11}-10^{12} \text{ см}^{-2}$ [3,6]). Зная величину d , можно определить угол разориентации таких блоков, используя соотношение Франка $d = b/\sin\theta$. Здесь b – вектор Бюргера, примерно равный параметру решетки пленки вдоль осей a и b ($\sim 0.4 \text{ nm}$); $\theta = 1.75^\circ$.

Естественным желанием было определить размеры кристаллитов нашей пленки непосредственно из рентгеноструктурных измерений и сравнить их со значениями, полученными из магнитных измерений. Однако существуют очень большие сложности для рентгеновских исследований столь тонких пленок. Так, при толщине пленки $d = 100 \text{ nm}$ количество YBCO слишком мало, а пленка напылена на подложку SrTiO₃, параметры ячейки которой очень близки к параметрам YBCO. В результате рефлексы от пленки и подложки практически накладываются друг на друга и имеют почти одинаковую амплитуду. Поэтому для оценки величины кристаллитов мы взяли пленку толщиной $d = 200 \text{ nm}$, изготовленную по той же технологии, что и исследованная нами пленка. Такой толщины пленки оказалось достаточно для оценки размера кристаллитов в ней.

Как известно, дислокации относятся к дефектам кристаллического строения, которые характеризуются дальнедействующими полями смещения атомов из узлов кристаллической решетки. Поля смещений вызывают вариацию межплоскостного расстояния совокупности плоскостей $\{hkl\}$ по сравнению с идеальным значением $d = d_0 \pm \Delta d$, что приводит к так называемому физическому уширению линий рентгенограммы исследуемого вещества. Кроме физических факторов, на ширину линии оказывает влияние геометрия съемки. Таким образом, профиль рентгеновского дифракционного максимума $h(2\theta)$ представляет собой свертку функций физического $f(2\theta)$ и инструментального $g(2\theta)$ профилей. Аппроксимация известными функциями экспериментально полученных профилей дифракционных максимумов образца и эталона позволяет определить величину физического уширения β и в результате количественно оценить параметры тонкой структуры. Используя формулу Селякова $D = 0.94\lambda/\beta\cos\theta$, можно найти величину областей когерентного рассеяния, которые в нашем случае являются кристаллитами, связанными между собой МУГ дислокаций.

Рентгеновские исследования пленок были проведены на дифрактометре ДРОН-3 с использованием фильтрованного излучения Cu K_α. Присутствие на рентгенограмме рефлексов двух типов (001) и (h01) позволило определить размеры областей когерентного рассеяния как в направлении, перпендикулярном поверхности пленки, так и в ее плоскости. В качестве эталона был взят монокристалл кварца. При обработке профилей дифракционных максимумов эталона и пленки наилучшая аппроксимация достигалась при использовании функции Лоренца. В этом случае, как известно [13], величина физического уширения находится как разность между экспериментальной и инструментальной ширинами.

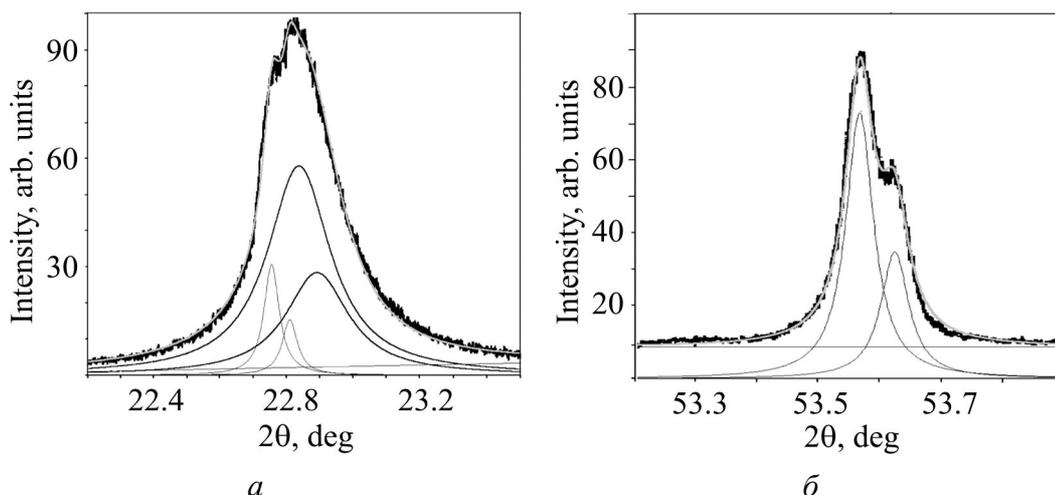


Рис. 2. Аппроксимация профилей дифракционных максимумов 003 (а) и 203 (б)

Эксперимент показал, что отражения от системы плоскостей (001) имеют большую ширину. Это свидетельствует о малой толщине регулярного кристаллического слоя пленки. Результат обработки профиля рефлекса (003) приведен на рис. 2,а. Сложная форма линии является следствием наложения отражений от пленки и подложки. Расчеты показали, что толщина ненарушенного слоя (при общей толщине пленки ~ 100 nm) составляет порядка 50 nm (большая шероховатость поверхности).

Анализ профиля отражения (203) со смешанными индексами позволяет оценить средние размеры блоков в плоскости пленки. Как видно из рис. 2,б, соответствующий пик имеет существенно меньшую ширину, что свидетельствует о больших размерах областей когерентного рассеяния рентгеновских лучей в этом направлении. Количественные оценки дают величину блоков, равную 360 ± 30 nm. Нужно отметить, что указанный размер блоков минимальный. Если бы можно было учесть напряжения второго и третьего рода, возникающие в этих кристаллитах во время их роста, то ширина линии была бы еще меньше [14]. Отсюда следует, что истинный размер кристаллитов на самом деле больше, чем 360 ± 30 nm, и может приблизиться к величине $\langle L \rangle$, оцененной из магнитных измерений.

Таким образом, несмотря на то, что в результате магнитных и рентгеноструктурных исследований на наших пленках мы получили различные значения для среднего размера кристаллитов пленки $\langle L \rangle$, оба они намного превосходят величины (50–200 nm), известные из литературы [6,7]. Критический ток наших пленок обычно составляет $j_c(77 \text{ K}) \cong 2\text{--}3 \cdot 10^6 \text{ A/cm}^2$, т.е. совпадает с литературными данными. В то же время спадание $j_c(T)$ с увеличением внешнего поля в нашей пленке начинается раньше, чем наблюдалось в других исследованиях. Это указывает на меньшее количество сильных центров пиннинга в нашей пленке, что подтверждается большим расстоянием между дислокациями.

1. Ch. Gerber, D. Anselmetti, J.G. Bernorz, J. Mannhart, D.J. Schlomm, Nature **350**, 279 (1991).
2. J.M. Huijbregtse, B. Dam, R.C.F. van der Geest, F.C. Klaassen, R. Elberse, J.H. Rector, R. Griessen, Phys. Rev. **B62**, 1338 (2000).
3. В.М. Пан, Успехи физ. мет. **1**, 49 (2000).
4. E. Mezzetti, R. Gerbaldo, G. Ghigo, L. Gozzelino, B. Minetti, C. Camerlingo, A. Monaco, G. Cuttone, A. Rovelli, Phys. Rev. **B60**, 7623 (1999).
5. B. Dam, J.M. Huijbregtse, F.C. Klaassen, R.C.F. van der Geest, G. Doornbos, J.H. Rector, A.M. Testa, S. Freisem, J.C. Martinez, B. Stäubli-Pümpin, R. Griessen, Nature **399**, 439 (1999).
6. V.L. Svechnikov, V.M. Pan, Ch. Traeholt, H. Zandbergen, IEEE Trans. Appl. Supercond. **7**, 1396 (1997).
7. Э.А. Пашицкий, В.И. Вакарюк, С.М. Рябченко, Ю.В. Федотов, ФНТ **27**, 131 (2001).
8. Ю.В. Федотов, С.М. Рябченко, Э.А. Пашицкий, А.В. Семенов, В.И. Вакарюк, В.М. Пан, В.С. Флис, ФНТ **28**, 245 (2002).
9. V.M. Pan, E.A. Pashitskii, S.M. Ryabchenko, V.A. Komashko, A.V. Pan, S.X. Dou, A.V. Semenov, K.G. Tretiachenko, Yu.V. Fedotov, IEEE Trans. Appl. Supercond. **13**, 3714 (2003).
10. J.R. Clem, A. Sanchez, Phys. Rev. **B50**, 9355 (1994).
11. M. Wurlitzer, M. Lorenz, K. Zimmer, P. Esquinazi, Phys. Rev. **B55**, 11816 (1995).
12. C.P. Bean, Rev. Mod. Phys. **36**, 31 (1964).
13. С.С. Горелик, Ю.А. Скаков, Л.Н. Распоргуев, Рентгенографический и электронно-оптический анализ, МИСИС, Москва (1994).
14. А.И. Китайгородский, Рентгеноструктурный анализ мелкокристаллических и аморфных тел, Гостехтеоретиздат, Москва (1952).

A.I. Kosse, A.Yu. Prokhorov, V.A. Khokhlov, G.Ye. Shatalova, N.Ye. Pis'menova, A.V. Semenov, M.P. Chernomorets, D.G. Kovalchuk, G.G. Levchenko

PECULIARITIES OF THE MAGNETIC-FIELD DEPENDENCE OF CRITICAL CURRENT OF THE $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ FILMS PREPARED BY LASER ABLATION ON SrTiO_3 SUBSTRATES

For the YBCO film the results of X-ray diffraction analysis and investigations of magnetic-field dependence of critical-current density $J_c(H)$ are represented. The films were grown by the method of laser ablation on SrTiO_3 substrate. The resulted average size of crystallites constituents of the films is much larger than the known from literature. Possible reasons of the differences are discussed.

Fig. 1. Dependence of $j_c(H)/j_c(0)$ on H . Solid lines – results of experimental line fitting by the formula $j_c(H)/j_c(0) = \alpha \ln(H^*/H)$; dotted line – fitting by formula (4): 1 – $\alpha = 0.17$, $H^* = 7068$; 2 – $\alpha = 0.2$, $H^* = 4080$

Fig. 2. Approximation of profiles of diffraction maxima 003 (a) and 203 (b)