科学通报
第41卷 第20期 CHINESE SCIENCE BULLETIN 1996年10月

$YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$超薄膜的超导电性及界面对正常态电阻的影响*

孙吉军 赵柏儒 郑丽珍 许 波 李静维
尹 勃 吴 非 贾顺莲 李 林 赵忠贤
(中国科学院物理研究所国家超导实验室,北京 100080)

关键词 超薄膜 超导 界面效应

高 T_c 氧化物超导体由于其层状结构而产生了高度的各向异性,例如 $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$(YBCO)的各向异性因子为20左右,而TlBaCaCuO高达10^4. 与各向异性密切相关的维度效应是决定这些材料的超导性质,以及磁通钉扎和磁通运动相关特性的重要因素之一. 因此,对高温超导体中 CuO_2 层间耦合(维度效应)的研究有助于理解在常规超导体中未观察到的某些新的物理现象. 人们研究了用非超导层将超导层分开的多层膜[1,2],超导层的厚度最小可以达到1或2个原胞. 为了研究薄膜初始生长阶段的生长机制和探讨出现超导电性的最小单元[3,4],超薄膜的研究更引起人们的注意. 但是由于高质量超薄膜的制备和进行可靠测量的困难,使得目前在超薄膜的研究上尚未形成共识. 从应用上讲,超薄YBCO膜可以很好地应用在一些超导电子器件上,例如铁电体和超导体集成的场效应器件. 最近,我们制备出了一系列YBCO超薄膜,本文主要报道了2个原胞厚(2.5 nm)的YBCO超薄膜的超导电性,分析了界面效应对正常态电阻的影响.

1 实验方法

2.5 nm厚的YBCO超薄膜是用直流磁控溅射法制备的. 沉积YBCO之前先在(100)$SrTiO_3$基片上用射频溅射沉积一层40 nm厚的 $PrBa_2Cu_3O_{7-\delta}$(PBCO)过渡层(buffer layer). 在沉积过程中,氧与氩的气压比为1:2.5,溅射的总气压为60 Pa.和100 nm以上厚的薄膜相比,超薄膜的沉积温度需适当提高. 沉积结束后,样品在接近1个大气压的氧气氛下冷却至430℃,保温30 min,然后随炉冷却至室温. YBCO和PBCO膜的沉积率分别为2.5 nm/min和3.0 nm/min. 沉积率通过膜的厚度(Dektak Ⅱ A型台阶仪测定)除以沉积时间获得,并用掠入射X射线反射法测量设定的YBCO/PBCO多层膜的周期予以检验,两者之差在10%以内. X射线衍射表明超薄膜为单相的 c 轴取向外延生长薄膜.

为了防止样品退化,样品取出后马上进行测量. 首先用铟在较低的温度下将引线与沉积在膜面的银电极焊好,用标准的四引线法进行测量.

1995-08-25收稿,1996-04-28收修改稿
* 国家超导研究开发中心资助项目

2　结果和讨论

样品的电阻温度(R-T)曲线如图 1(a)中实线所示. 零电阻温度 T_{c0}为 35 K, 超导转变宽度约 40 K, 就我们所知, 这个没有覆盖层的 2 个原胞厚 YBCO 的转变温度比目前文献报道的结果都高, 我们认为这主要归因于适当厚的 PBCO 过渡层和较高的沉积温度. 前者由于其与 YBCO 有相同的晶体结构, 点阵失配仅在 1.5% 以内, 无互扩散, 它比直接在 $SrTiO_3$ 表面沉积更有利于 YBCO 的外延生长. 后者主要是由于在高的沉积温度下有利于基片上沉积原子的扩散而形成较完整的结晶. 尽管膜的形貌呈现一定程度的岛状结构, 但较完整的结晶导致较好的超导电性. 但是, T_{c0}的值仍然是低的, 与 PBCO/YBCO(1.2 nm)/PBCO 中单原胞层 YBCO 膜的 T_{c0}值相同[4]. 这可能是由于样品暴露在空气中表面一个原胞层性能退化对超导无贡献的结果. 在这些超薄膜中, 低的 T_{c0}可能与岛状结构的弱联, Kosterlitz-Thouless (KT)相变及界面和表面的影响有相当重要的关系.

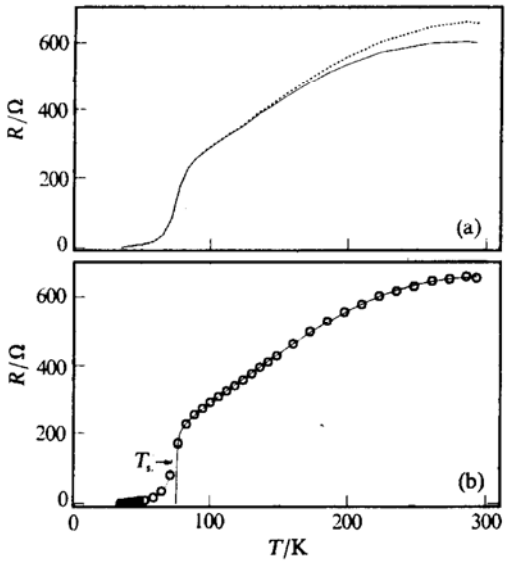

图 1　2.5 nm 厚 YBCO 超薄膜的 R-T 曲线
(a)(实线是测量值, 虚线为减去 PBCO 过渡层贡献的值)和扣除 PBCO 过渡层贡献的拟合 R-T 曲线(b)(虚线由 KT 理论拟合, 实线由公式(2)拟合, 在 T_c 处拟合由虚线转为实线)

从 R-T 曲线来看, 另一个明显的特征是在高温区电阻温度关系曲线偏离线性, 出现负曲率的行为. 这个行为首先可以归结为 PBCO 过渡层的贡献[5]. 利用 PBCO 单层膜的 R-T 曲线的数据, 根据 PBCO 与 YBCO 的并联关系, 扣除 PBCO 对 R-T 曲线的贡献, 结果如图 1(a)中的虚线所示, 可见线性电阻行为只到约 180 K, 在 180 K 以上, 电阻仍然显示非线性行为.

Wood[6]利用 KT 相变和涨落电导理论并考虑到界面和隔离层的贡献, 很好地解释了 YBCO/PBCO 多层膜的 R-T 曲线. 我们采用同样的方法分析已经扣除 PBCO 贡献的 YBCO 超薄膜的 R-T 曲线. KT 相变理论可以用来很好地讨论纯二维(2D)系统超导转变区域的电阻行为. 在 KT 转变温度附近超导体的有限电阻主要来源于正反磁通涡旋对拆对而引起的能量损耗, 这个电阻为

$$R_{KT}/R_{ns} = a\exp\left(-2\left(b\frac{T_c^0 - T}{T - T_{KT}}\right)^{1/2}\right). \tag{1}$$

在较高的温度区域, 涨落增强电导将主要决定电阻转变. 拟合发现, 公式(1)可以很好地描述温度直到 71 K 的电阻转变曲线, 得到平均场转变温度 T_c^0 为 72.4 K, KT 相变温度 T_{KT}为 9.0 K. 这个低的 T_{KT}说明两个原胞厚的超薄膜具有强的二维特性, 因为二维性越强的系统, KT 相变温度越低; 同时岛状结构或表面退化导致局部无序造成 KT 相变中的相断裂(phase-breaking)效应而降低 T_{KT}[4].

关于平均场转变温度至室温的电导行为: 在超导转变附近, 涨落增强电导有明显的贡献; 在正常态, 电导主要来自于 YBCO 层的本体及界面的贡献. 实际上, 涨落电导在高温区是很

小的，根据这些考虑，在 71～300 K，样品电导可以总体表达为

$$\sigma = \sum_{i=1}^{3}\sigma_i(T) = \sum_{i=1}^{3}C_i f_i(T), \tag{2}$$

σ_1 是 2D Aslamazov-Larkin 涨落增强电导项，$f_1 = T_c^0/(T - T_c^0)$．YBCO 层本体的电导为 $\sigma_2 = C_2/T$．对于界面项 σ_3，我们采用与多层膜相同的表达式[6]：

$$f_3 = \frac{\exp(-E_a/KT)}{T}, \tag{3}$$

这个界面项是考虑到因电荷转移电子由界面附近 PBCO 层一侧转移到 YBCO 层一侧，使其中的空穴被局域化所造成的，E_a 即为局域能．由于局域化，参与正常态导电的空穴只能以 Hopping 方式(跳跃式)运动．

由公式(2)所得的拟合结果如图 1(b)中的实线所示．拟合的参数为：$C_1 = 1.03\times10^2\ \Omega\cdot\mathrm{cm}^{-1}$，$T_c^0 = 75.6$ K，$C_2 = 1.25\times10^6\ \Omega\cdot\mathrm{cm}^{-1}\cdot\mathrm{K}$，$C_3 = 2.45\times10^7\ \Omega\cdot\mathrm{cm}^{-1}\cdot\mathrm{K}$，$E_a = 0.10$ eV．T_c^0 与从低温部分 KT 相变讨论所得的值符合得很好．$C_2/C_3 = 0.051$，与多层膜的结果相吻合．对于多层膜，C_2/C_3 随 PBCO 的增加而减小，对于 YBCO(2.4 nm/PBCO(19.2 nm)多层膜样品，C_2/C_3 减为 0.069[6]．

值得注意的是，这里得到的 E_a 值是多层膜的 7 倍，这主要是因为：(1)对于多层膜，σ_{PBCO} 为拟合项，由于拟合的任意性，σ_{PBCO} 项中可能包含了界面项的贡献，所以在界面项中的 E_a 可能小于其真实值．而我们的 σ_{PBCO} 是测量值．(2)对于超薄膜，它的表面效应可能是不可忽略的．研究表明暴露在空气中的 YBCO 膜，其表面有非晶的反应层形成[7]．这种表面退化也可能对载流子造成局域效应，导致 E_a 增大．

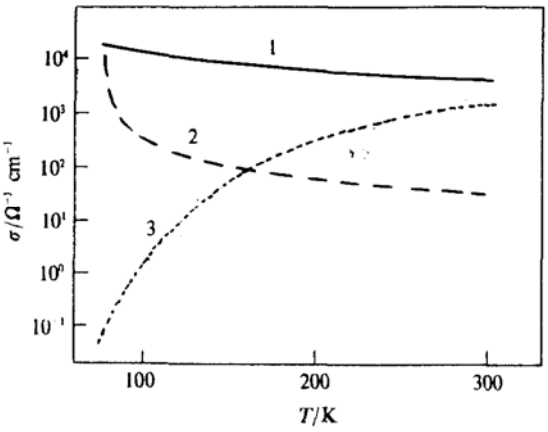

图 2 涨落电导、YBCO 层电导及界面电导的温度依赖关系

在公式(2)中的 3 项电导随温度的变化如图 2 所示．可以看出在低温区，电导主要来源于涨落增强电导和 YBCO 层的贡献．当温度达到 180 K 时，YBCO 层本体和界面项成为主要的来源，此时 $\sigma_2 = 7500\ \Omega\cdot\mathrm{cm}^{-1}$，$\sigma_3 = 180\ \Omega\cdot\mathrm{cm}^{-1}$，而 $\sigma_1 = 75\ \Omega\cdot\mathrm{cm}^{-1}$．当温度为 264 K 时，$\sigma_3$ 与 σ_2 有相同的量级．所以正是高温时大的界面(包括表面)电导使得 R-T 曲线偏离线性．

3 结论

我们报告了两个原胞层厚的 c 轴取向的 YBCO 超薄膜的超导电性和正常态电导．KT 相变模型和涨落增强电导理论可以很好地拟合超导转变区域的电阻-温度关系．其正常态电导可以很好地用 PBCO 过渡层，YBCO 和 PBCO 界面电荷转移以及 YBCO 薄膜本体电导予以描述．并证明了 YBCO 超薄膜线性电阻的本征性质．

参 考 文 献

1 Li Q, Xi X X, Wu X D *et al*. Interlayer coupling effect in high-T_c superconductors probed by $YBa_2Cu_3O_{7-x}/PrBa_2Cu_3O_{7-x}$ superlattices. Phys Rev Lett, 1990, 64: 3 086～3 089

2 Triscone J M, Fisher ϕ, Brunner O *et al*. $YBa_2Cu_3O_7/PrBa_2Cu_3O_7$ superlattices: properties of ultrathin superconducting layers separated by insulating layers. Phys Rev Lett, 1990, 64: 804～807

3 Zhu S, Lowndes D H, Chakoumakos B C *et al*. Growth mechanism and superconductivity of ultrathin $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-x}$ epitaxial on (001) MgO substrates. Appl Phys Lett, 1993, 62: 3 363～3 365

4 Terashima T, Shimura K, Bando Y *et al*. Superconductivity of one-unit-cell thick $YBa_2Cu_3O_7$ thin film. Phys Rev Lett, 1991, 67: 1 362～1 365

5 Cieplak M Z, Guha S, Vadlamannati S *et al*. Origin of the T_c depression and the role of charge transfer and dimensionality in ultrathin $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$. Phys Rev, 1994, B50: 12 876～12 886

6 Wood R F. Charge-transfer and barrier-layer effects in $YBa_2Cu_3O_7$ superlattices. Phys Rev, 1994, B50: 13 688～13 694

7 Russek S E, Sanders S C, Roshko A *et al*. Surface degradation of superconducting $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ thin films. Appl Phys Lett, 1994, 64: 3 649～3 651