

Анизотропия плотности критического тока в слоистом электронно-легированном сверхпроводнике $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4+\delta}$

А.С. Клепикова¹, М.Р. Попов¹, А.А. Иванов², М.В. Медведев³, Т.Б. Чарикова^{1,4}

¹Институт физики металлов УрО РАН, г. Екатеринбург, 620041, Россия
E-mail: klepikova@imp.uran.ru

²Национальный исследовательский ядерный университет "МИФИ", г. Москва, 115409, Россия

³Институт электрофизики УрО РАН, г. Екатеринбург, 620016, Россия

⁴ФГАОУ ВПО «Уральский федеральный университет им. Б.Н. Ельцина», г. Екатеринбург, 620002, Россия

Статья поступила в редакцию 3 октября 2018 г., опубликована онлайн 20 декабря 2018 г.

Представлены результаты исследования проводимости и плотности критического тока монокристаллических пленок $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4+\delta}/\text{SrTiO}_3$ с осью c , перпендикулярной или параллельной плоскости подложки, с концентрацией церия $x = 0,15$ и $x = 0,17$. Обнаружено, что в стехиометрически отожженных пленках с оптимальным содержанием церия ($x = 0,15$) величина анизотропии сопротивления максимальна, а анизотропия плотности критического тока составила $j_c^{ab}/j_c^c \cong 3 \cdot 10^3$ при $T = 4,2$ К. Сильная анизотропия плотности критического тока рассмотрена в рамках модели естественной сверхрешетки с чередующимися проводящими CuO_2 -слоями и непроводящими буферными $\text{Nd}(\text{Ce})\text{O}$ -слоями. Показано, что высокая плотность критического тока вдоль проводящих CuO_2 -плоскостей связана с пиннингом вихрей на буферных слоях, а сильная анизотропия плотности критического тока является следствием анизотропного движения вихревой решетки в слоистом сверхпроводнике.

Ключевые слова: электронно-легированный сверхпроводник, критическая плотность тока, анизотропия транспортных свойств.

Введение

Сверхпроводимость в слоистом сверхпроводнике $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4+\delta}$ наблюдается только в ограниченной области концентраций Ce [1]. В интервале концентраций церия $0,13 \leq x \leq 0,14$ сверхпроводимость появляется, а при $x = 0,15$ материал имеет максимальную температуру сверхпроводящего перехода (СП) $T_c = 24$ К [2]. Дальнейшее увеличение концентрации Ce приводит к уменьшению T_c , и при $x = 0,18$ сверхпроводящий переход исчезает. Такая фазовая диаграмма наблюдается в образцах, отожженных в бескислородной атмосфере. Основная роль отжига состоит в удалении «лишнего» нестехиометрического кислорода. Располагаясь в вершинных узлах, незанятых в оптимально отожженном $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4+\delta}$, избыточный кислород создает хаотический примесный потенциал, который локализует электроны, поставляемые церием. Удаление избыточного кислорода в процессе отжига уменьшает беспорядок, порог подвижности для электронов понижается, электроны становятся делокализованными и проявляют сверхпроводящие свойства [3]. В данной работе представлены исследования проводимости и плотности критического тока в оптимально отожженных монокристаллических пленках $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4+\delta}/\text{SrTiO}_3$ с осью c , расположенной перпендикулярно и параллельно подложке.

Критическая плотность тока — один из основных параметров сверхпроводников, определяющих возможности их практического использования. Вместе с тем, изучение процессов переноса тока представляет интерес не только с технической, но и с физической точки зрения, так как многие связанные с этим явления имеют глубокую физическую природу и позволяют получить дополнительную информацию о некоторых параметрах сверхпроводящего состояния. Получить надежные данные о критическом токе «монокристаллических» пленок очень нелегко по двум причинам. Во-первых, сложно изготовить образцы специальной геометрии, во-

вторых, для измерения критического тока необходимо использовать образцы с определенной геометрией, что затрудняет получение образцов с оптимальными параметрами. Кроме того, для измерения критического тока необходимо использовать образцы с определенной геометрией, что затрудняет получение образцов с оптимальными параметрами.

вторых, трудно предотвратить влияние джоулева тепла, которое вносит неопределенность в полученные результаты. При измерении критических токов «монокристаллических» пленок часто возникают осложнения, связанные со «слабыми местами» пленок — с областями, которые оказываются либо уже, либо тоньше остальной пленки, либо имеют несколько иные металлургические свойства. Эти слабые места могут перейти в нормальное состояние при токах, меньших истинного критического тока пленки, и нормальная область в результате теплового распространения может разрастись по всей пленке. Этой трудности можно избежать, если применять токи в виде коротких импульсов, во время которых тепло не успевает заметно распространиться.

Образцы и методика эксперимента

Образцы в виде эпитаксиальных пленок $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4+\delta}/SrTiO_3$ были синтезированы в национальном исследовательском ядерном университете «МИФИ», (г. Москва) методом распыления исходного вещества керамической мишени сфокусированным лазерным пучком с последующим осаждением на нагретую монокристаллическую пластину $SrTiO_3$ [4]. Концентрация церия определялась его содержанием в исходном материале керамической мишени, изменение концентрации кислорода достигалось отжигом образцов при высокой температуре (около 780 °С) в вакууме или окислительной среде. Для температуры, при которой осуществлялся отжиг, было определено давление, близкое к термодинамическому равновесию, при котором обеднение кислородом происходит достаточно медленно, что облегчает контроль параметров в синтезируемых пленках.

В работе представлены результаты измерения плотности критического тока в оптимально отожженных монокристаллических пленках. Оптимальный отжиг в бескислородной атмосфере ($\delta \rightarrow 0$) приводит к удалению апексного кислорода и увеличению температуры сверхпроводящего перехода до максимального для данного соединения. Рентгеноструктурные исследования пленки $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4+\delta}/SrTiO_3$, выполненные на дифрактометре ДРОН-3, показали высокое структурное совершенство полученных образцов. Толщина пленок, измеренная интерференционным микроскопом МИИ-11, составила 1000–4200 Å.

Для определения плотности критического тока монокристаллической пленки $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4+\delta}/SrTiO_3$ было изготовлено четыре образца с содержанием церия 15%, 17%. Образцы N1, N2 изготовлены так, что монокристаллические пленки имеют ориентацию (001), плоскость ab лежит в плоскости пленки, а образцы N3, N4 выращены с ориентацией (110) — ось c лежит в плоскости пленки. В таблице 1 представлены основные характеристики пленок.

Таблица 1. Основные характеристики пленок

Номер образца	Содержание церия	Толщина, Å	Ориентация монокристаллической пленки
1	0,15	1000	001
2	0,17	1000	001
3	0,15	4200	110
4	0,17	1400	110

Разработанная нами установка для измерения критических токов в пленках основана на импульсном методе. Длительность импульса тока, пропускаемого через образец, составляла 150 мкс. Величина тока определялась величиной напряжения на конденсаторах, входящих в установку. В зависимости от величины тока образец либо переходил из сверхпроводящего состояния в нормальное, либо оставался в сверхпроводящем состоянии. При переходе в нормальное состояние на зондовых контактах образца появлялось напряжение отклика, которое фиксировалось запоминающим осциллографом.

Результаты и обсуждение

На монокристаллических пленках $Nd_{2-x}Ce_xO_{4+\delta}/SrTiO_3$ измерения проводимости выполнялись в интервале температур 1,5–300 К, а плотность критического тока определялась при температуре $T = 4,2$ К.

На рис. 1 представлены температурные зависимости сопротивления $\rho_{ab}(T)$ и $\rho_c(T)$ для оптимально легированной пленки ($x = 0,15$) $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4+\delta}/SrTiO_3$ с оптимальным отжигом. В интервале температур $T = 300 - T_c$ К сопротивление в CuO_2 -плоскости оптимально отожженной пленки имеет металлическое поведение ($d\rho/dT < 0$): $\rho_{ab}(T) \sim T^2$. При температуре $T_c = 22$ К наблюдается переход в сверхпроводящее состояние. Удельное сопротивление перед сверх-

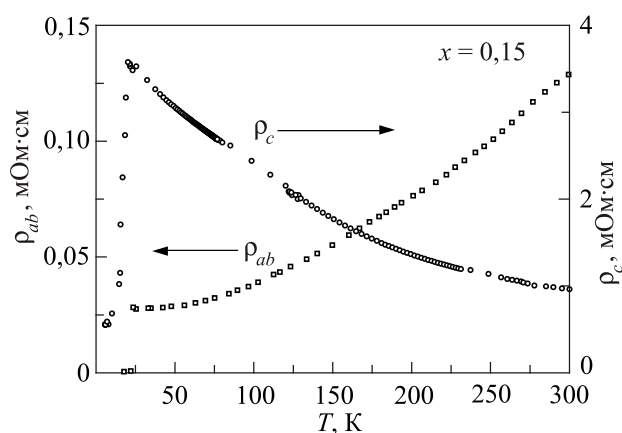


Рис. 1. Температурные зависимости удельного сопротивления $\rho_{ab}(T)$ и $\rho_c(T)$ $Nd_{1,85}Ce_{0,15}CuO_4/SrTiO_3$.

проводящим переходом составило $\rho_{ab}(T) = 28 \text{ мкОм}\cdot\text{см}$, а отношение $\rho_{ab}(300 \text{ К})/\rho_{ab}(T_c) \cong 5$.

Оптимально отожженный образец имеет резкий сверхпроводящий переход шириной $\Delta T \approx 1,4 \text{ К}$ и металлический характер зависимости $\rho_{ab}(T)$.

Одновременно с этим $\rho_c(T)$ увеличивается с понижением температуры: $\rho_c(T) \sim 1/T$. Таким образом, для области оптимального легирования ($x = 0,15$) наблюдается металлический ход зависимости сопротивления $\rho_{ab}(T)$ и полупроводниковый ход $\rho_c(T)$. Также имеет место наибольший коэффициент анизотропии.

На рис. 2 показана температурная зависимость коэффициента анизотропии сопротивления $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ для $x = 0,15$. Видно, что коэффициент анизотропии сопротивления растет с понижением температуры и достигает максимального значения для оптимально легированного образца $\rho_c/\rho_{ab} = 125$. Это значение на порядок меньше наблюдавшегося в объемных монокристаллах, что, по-видимому, объясняется некоторой разориентацией плоскости подложки и оси c кристаллов ($0,2^\circ - 0,6^\circ$).

Таким образом, установлено, что механизм проводимости коренным образом различается в ab -плоскости и c -направлении: проводимость является металлической ($d\rho_{ab}/dT > 0$) в ab -плоскости и неметаллической ($d\rho_c/dT < 0$) в c -направлении в стехиометрически отожженном ($\delta = 0$) $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4+\delta}$ [5]. В модели естественной сверхрешетки [6] неметаллическое поведение $\rho_c(T)$ мы связываем с некогерентным туннелированием носителей заряда в c -направлении.

Для образцов с концентрацией легирующей примеси $x = 0,17$ зависимости $\rho_{ab}(T)$ и $\rho_c(T)$ имеют металлический ход (рис. 3). В перелегированных образцах с $x = 0,17$ вид зависимостей сопротивления можно связать с включением переноса заряда между плоскостями CuO_2 , т.е. переходом от двумерной к трехмерной проводимости по мере увеличения легирующей примеси. Таким образом перелегированный $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ становится анизотропным трехмерным металлом.

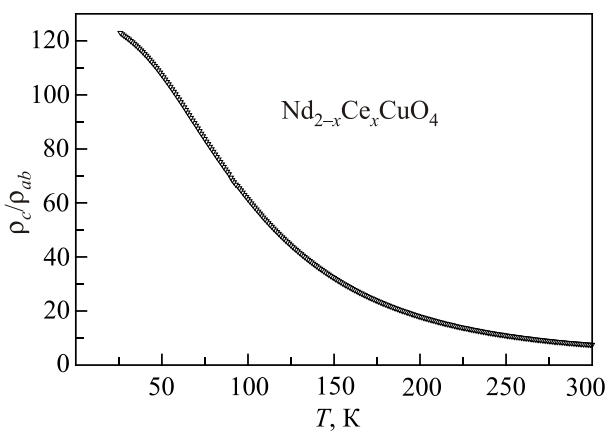


Рис. 2. Температурная зависимость коэффициента анизотропии сопротивления $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ ρ_c/ρ_{ab} для $x = 0,15$.

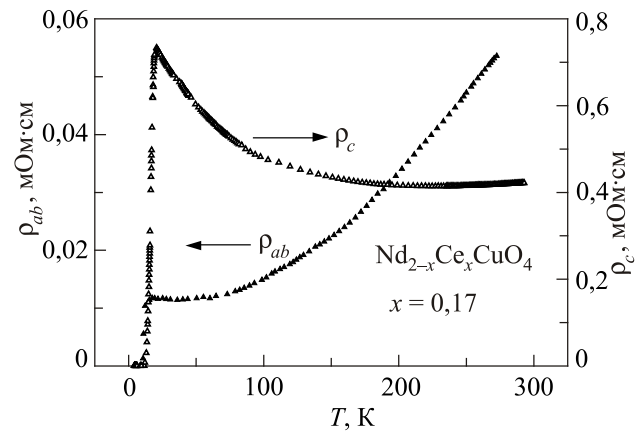


Рис. 3. Температурные зависимости удельного сопротивления $\rho_{ab}(T)$ и $\rho_c(T)$ $\text{Nd}_{1,83}\text{Ce}_{0,17}\text{CuO}_4/\text{SrTiO}_3$.

Температурная зависимость удельного сопротивления $\rho_{ab}(T)$ перелегированного образца ($x = 0,17$) подчиняется квадратичному закону $\rho_{ab}(T) \sim T^2$ в диапазоне температур $60 \text{ К} < T < 270 \text{ К}$. При температуре $T_c = 15 \text{ К}$ наблюдается переход в сверхпроводящее состояние. Перед сверхпроводящим переходом пленка $\text{Nd}_{1,83}\text{Ce}_{0,17}\text{CuO}_4/\text{SrTiO}_3$ имеет $\rho_{ab}(T) = 11 \text{ мкОм}\cdot\text{см}$, $T_c = 15 \text{ К}$, $\Delta T < 1 \text{ К}$, а отношение $\rho_{ab}(300 \text{ К})/\rho_{ab}(T_c) \cong 5,5$.

Температурная зависимость удельного сопротивления $\rho_c(T)$ перелегированного образца ($x = 0,17$) в диапазоне температур $60 \text{ К} < T < 270 \text{ К}$ показывает комбинацию металлического ($T > 180 \text{ К}$) и полупроводникового хода. В интервале температур $20 \text{ К} < T < 70 \text{ К}$ удельное сопротивление имеет степенной характер с показателем степени $\alpha = -0,5$: $\rho_c(T) \sim T^{-0,5}$. При температуре $T = 20 \text{ К}$ начинается резкое падение сопротивления с последующим переходом в сверхпроводящее состояние.

На рис. 4 показана температурная зависимость коэффициента анизотропии сопротивления $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ для $x = 0,17$. Видно, что коэффициент анизотропии растет

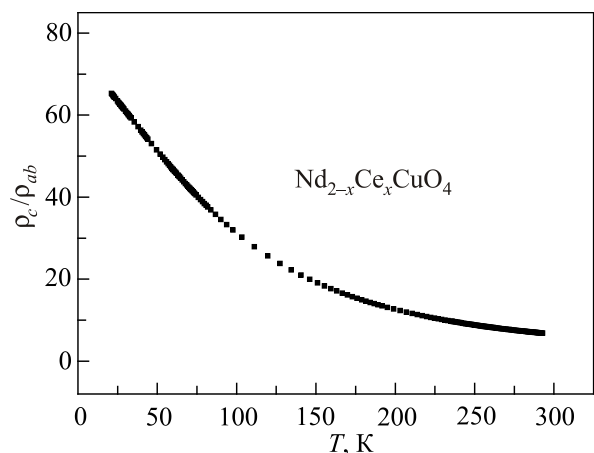


Рис. 4. Температурная зависимость коэффициента анизотропии сопротивления $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ ρ_c/ρ_{ab} для $x = 0,17$.

с понижением температуры и достигает максимального значения $\rho_c/\rho_{ab} = 65$.

Измерение критического тока на монокристаллических пленках $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4+\delta}/\text{SrTiO}_3$ производилось при температуре жидкого гелия $T = 4,2$ К.

Через образец пропускаться транспортный ток и измерялось возникающее напряжение. В зависимости от величины тока образец либо переходил из сверхпроводящего состояния в нормальное, либо оставался в сверхпроводящем состоянии. При переходе в нормальное состояние на зондовых контактах образца появлялось напряжение отклика, которое фиксировалось запоминающим осциллографом (рис. 5). Построив зависимость напряжения на зондовых контактах от величины тока и аппроксимировав полученную прямую до пересечения с осью абсцисс, нами была определена величина критического тока. Плотность критического тока получена делением критического тока на наименьшее поперечное сечение образца.

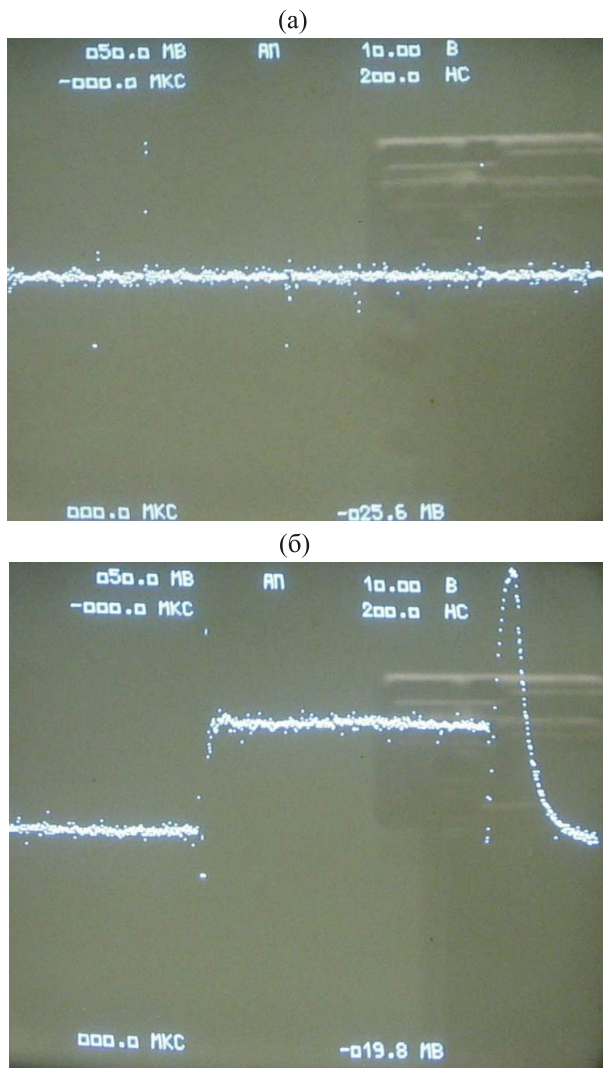


Рис. 5. Вид отклика, получаемого на зондовых контактах: сверхпроводящее состояние (а), нормальное состояние (б).

На рис. 6 представлены вольт-амперные характеристики оптимально отожженных пленок $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4+\delta}/\text{SrTiO}_3$ с $x = 0,15$ ($T_c = 23$ К) с различной ориентацией c -оси относительно подложки.

Для $\text{Nd}_{1,85}\text{Ce}_{0,15}\text{CuO}_4$ с ориентацией (001) величина критического тока составила $I_c \cong 0,1$ А, плотность критического тока — $j_c^{ab} \cong 10^5$ А/см². В пленке $\text{Nd}_{1,85}\text{Ce}_{0,15}\text{CuO}_4/\text{SrTiO}_3$ с ориентацией (110) величина критического тока — $I_c \cong 10^{-4}$ А, а плотность критического тока данного образца — $j_c^c \cong 40$ А/см². Таким образом, анизотропия плотности критического тока составила $j_c^{ab}/j_c^c \cong 3 \cdot 10^3$.

При наличии в сверхпроводнике транспортного тока, на вихри действует сила Лоренца. Если бы сверхпроводник был однороден и бездефектен, то при любой, сколь угодно малой силе Лоренца, вихри бы начали свое движение в направлении этой силы. В сверхпроводнике второго рода существуют разные виды микроскопических дефектов, на которых могут закрепляться вихри. Отличительной чертой высокотемпературных сверхпроводников, и в особенности $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4+\delta}$, является слоистая структура этих соединений. Проводящие CuO_2 -слои разделяются непроводящими буферными $\text{Nd}(\text{Ce})\text{O}$ -слоями, и вихри могут задерживаться в этих слоях. Следовательно, требуется конечный ток для отрыва вихрей от дефектов.

В нашем эксперименте ток распространялся одинаково — вдоль пленки. Сами же пленки были ориентированы по-разному: CuO_2 -слои при ориентации (001) расположены параллельно плоскости подложки, а при ориентации (110) — перпендикулярно. Вихри, образующиеся при протекании тока на поверхности пленки, в первом случае должны преодолеть буферные слои, которые являются барьерами при их движении. Поэтому плотность критического тока, необходимая для срыва и

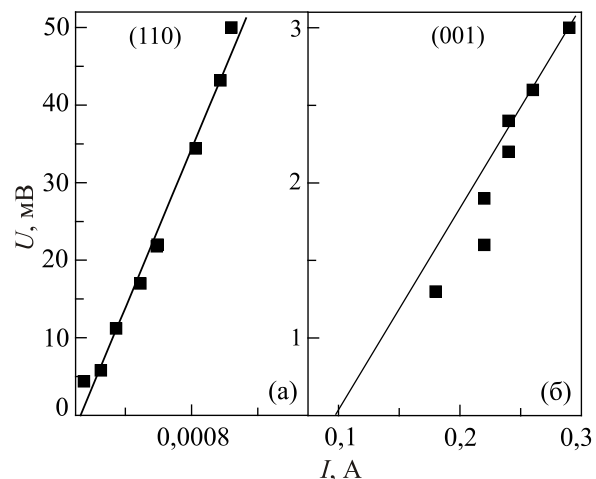


Рис. 6. Вольт-амперные характеристики монокристаллических пленок $\text{Nd}_{1,85}\text{Ce}_{0,15}\text{CuO}_4/\text{SrTiO}_3$ с различной ориентацией c -оси: (а) — (110), (б) — (001).

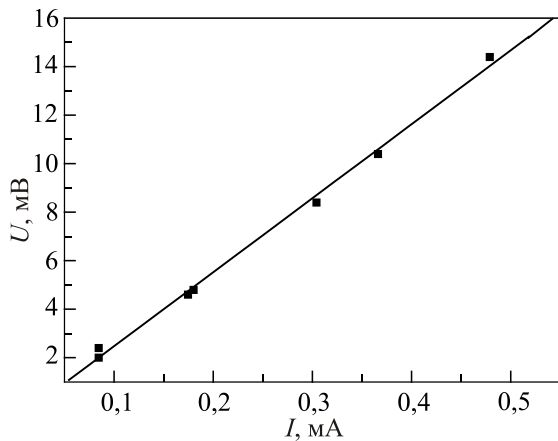


Рис. 7. Вольт-амперная характеристика $\text{Nd}_{1.83}\text{Ce}_{0.17}\text{CuO}_4/\text{SrTiO}_3$, ориентация (001).

распространения вихрей в объеме образца, существенно (на три порядка) больше плотности критического тока для пленок с ориентацией (110). В этом случае вихри движутся по проводящим CuO_2 -слоям, где центров пиннинга значительно меньше.

На рис. 7 представлена вольт-амперная характеристика $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4/\text{SrTiO}_3$, $x = 0,17$ (плоскость ab лежит в плоскости пленки). Для пленки $\text{Nd}_{1.83}\text{Ce}_{0.17}\text{CuO}_4/\text{SrTiO}_3$ с ориентацией (001) была проведена оценка критического тока и получен следующий результат: $I_c \cong 0,52 \cdot 10^{-4}$ А. Так как сечение образца: $S = a \cdot d = 3 \cdot 10^{-6}$ см², то плотность критического тока составила: $j_c^{ab} \cong 17,3$ А/см². Плотность критического тока для пленки $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4/\text{SrTiO}_3$ с содержанием церия $x = 0,17$ в c -направлении, по видимому, существенно меньше, чем j_c^{ab} , и чувствительность приборов не позволяет зарегистрировать данную величину.

Заклучение

Были проведены измерения проводимости в интервале температур 1,5–300 К и плотности критического тока при температуре $T = 4,2$ К на монокристаллических пленках $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4+\delta}/\text{SrTiO}_3$ ($x = 0,15$; $x = 0,17$).

Исследовались закономерности поведения температурных зависимостей электросопротивления в проводящих плоскостях ab и вдоль направления c монокристаллических пленок $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4/\text{SrTiO}_3$ с различными концентрациями легирующих примесей. Наблюдалось металлическое поведение сопротивления в плоскости CuO_2 и неметаллический ход сопротивления между плоскостями CuO_2 .

Таким образом, в стехиометрически отоженных пленках с оптимальным содержанием церия при $T = 4,2$ К анизотропия плотности критического тока составила $j_c^{ab}/j_c^c \cong 3 \cdot 10^3$. Сильная анизотропия плотности критического тока может быть рассмотрена в

рамках модели естественной сверхрешетки с чередующимися проводящими CuO_2 -слоями и непроводящими буферными $\text{Nd}(\text{Ce})\text{O}$ -слоями. Высокая плотность критического тока вдоль проводящих CuO_2 -плоскостей, по видимому, связана с пиннингом вихрей на буферных слоях.

В перелегированных образцах с $x = 0,17$ вид зависимостей сопротивления можно связать с включением переноса заряда между плоскостями CuO_2 , то есть переходом от двумерной к трехмерной проводимости по мере увеличения легирующей примеси. Таким образом перелегированный $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ становится анизотропным трехмерным металлом.

Работа выполнена в рамках государственного задания по теме «Электрон» № АААА-А18-118020190098-5 и проекту №18-10-2-6 Программы УрО РАН при поддержке РФФИ (грант № 18-02-00192).

1. Y. Tokura, H. Takagi, and S. Uchida, *Nature* **337**, 345 (1989).
2. N.P. Armitage, P. Fournier, and R.L. Greene, *Rev. Mod. Phys.* **82**, 2421 (2010).
3. A.I. Ponomarev, G.I. Harus, T.B. Charikova, A.N. Ignatenkov, L.D. Sabirzhanova, N.G. Shelushinina, and A.O. Tashlykov, *Modern Phys. Lett. B* **17**, 701 (2003).
4. A.A. Ivanov, S.G. Galkin, A.V. Kuznetsov, and A.P. Menushenkov, *Physica C* **180**, 69 (1991).
5. T.B. Charikova, A.N. Ignatenkov, A.I. Ponomarev, A.O. Tashlykov, A.V. Khrustov, N.G. Shelushinina, and A.A. Ivanov, *Physica B* **359-361**, 445 (2005).
6. Т.Б. Чарикова, А.И. Пономарев, Г.И. Харус, Н.Г. Шелушинина, А.О. Ташлыков, А.В. Ткач, А.И. Иванов, *ЖЭТФ* **132**, 712 (2007).

Анізотропія густини критичного струму в шаруватому електронно-легованому надпровіднику $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4+\delta}$

А.С. Клепікова, М.Р. Попов, А.А. Іванов, М.В. Медведєв, Т.Б. Чарікова

Представлено результати дослідження провідності та густини критичного струму монокристалічних плівок із віссю c , яка перпендикулярна або паралельна площині підкладки, з концентрацією церію $x = 0,15$ та $x = 0,17$. Виявлено, що у стехіометрично відпалених плівках з оптимальним вмістом церію ($x = 0,15$) величина анізотропії опору максимальна, а анізотропія густини критичного струму складала $j_c^{ab}/j_c^c \cong 3 \cdot 10^3$ при $T = 4,2$ К. Сильну анізотропію густини критичного струму розглянуто в рамках моделі природної надгратки з провідними CuO_2 -шарами, які чергуються, та непровідними буферними $\text{Nd}(\text{Ce})\text{O}$ -шарами. Показано, що висока густина критичного струму

уздовж провідних CuO_2 -площин пов'язана з пінінгом вихорів на буферних шарах, а сильна анізотропія густини критичного струму є наслідком анізотропного руху вихрової ґратки у шаруватому надпровіднику.

Ключові слова: електронно-легований надпровідник, критична густина струму, анізотропія транспортних властивостей.

Anisotropy of the critical current density in the layered electron-doped superconductor $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4+\delta}$

**A.S. Klepikova, M.R. Popov, A.A. Ivanov,
M.V. Medvedev, and T.B. Charikova**

The results of studies of the conductivity and critical current density of single-crystal films $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4+\delta}/\text{SrTiO}_3$ with an

axis c perpendicular or parallel to the substrate plane with a cerium concentration of $x = 0.15$ and $x = 0.17$ are presented. It was found that in the stoichiometrically annealed films with the optimum cerium content ($x = 0.15$) the resistance anisotropy is maximal and the anisotropy of the critical current density is $j_c^{ab}/j_c^c \cong 3 \cdot 10^3$ at $T = 4.2$ K. The strong anisotropy of the critical current density is considered within the framework of the natural superlattices with alternating conducting CuO_2 layers and nonconducting $\text{Nd}(\text{Ce})\text{O}$ -buffer layers. It was found that the high density of the critical current along the conducting CuO_2 planes is related to the pinning of vortices on the buffer layers and a strong anisotropy of the critical current density is a manifestation of the anisotropic motion of the vortex lattice in a layered superconductor.

Keywords: electron-doped superconductor, critical current density, anisotropy of transport properties.