

## РЕЗИСТИВНЫЕ АНОМАЛИИ И ОТРИЦАТЕЛЬНОЕ МАГНИТОСОПРОТИВЛЕНИЕ В РЕГУЛЯРНОЙ ТРЕХМЕРНОЙ РЕШЕТКЕ СВЕРХПРОВОДНИКОВЫХ НАНОСТРУКТУР

*С.Г.Романов, А.В.Фокин, К.Х.Бабамуратов*

*Физико-технический институт им. А.Ф.Иоффе РАН*

*194021 Санкт-Петербург, Россия*

Поступила в редакцию 2 ноября 1993 г.

Приготовлены регулярные трехмерные решетки сверхпроводниковых наноструктур типа мостиков переменной толщины путем заполнения идием пустот кристаллографически упорядоченной диэлектрической матрицы, модифицированной молекулярным наслаиванием  $\text{TiO}_2$  на внутреннюю поверхность матрицы. Измерены зависимости  $R(T, H)$ . Обнаружено, что на кривой  $R(T)$  возникают последовательно с понижением температуры две резистивные аномалии, с которыми связан отрицательный ход магнитосопротивления.

Транспортные свойства низкотемпературных сверхпроводников с пониженной размерностью подвержены воздействию одновременно сверхпроводникового упорядочения, квантовых поправок к проводимости и тепловых флуктуаций [1]. Формирование сверхпроводниковых наноструктур, имеющих размеры, сравнимые с длиной когерентности, и ансамблей из них ведет к дальнейшему усложнению поведения таких систем в силу возникновения интерфейсных и коллективных эффектов. К последним относятся резистивные аномалии [2,3] и осцилляции магнитосопротивления [4]. Экспериментальное исследование отдельных наноструктур показало, что условием возникновения всплеска сопротивления при температуре, несколько выше критической температуры перехода в сверхпроводящее состояние ( $T_c$ ), является развитие неравновесных процессов на  $S-N$ -границах, имеющих в результате модуляции  $T_c$  вдоль направления протекания тока, причем условием наблюдения этой аномалии является расположение контактов в области неравновесности. Очевидно, что, набирая ансамбль из таких наносекунд, можно, с одной стороны, увеличить суммарную мощность неравновесных эффектов, а с другой – получить новые эффекты, обусловленные взаимодействием наноструктур в ансамбле.

Образование больших регулярных ансамблей сверхпроводниковых наноструктур (до  $10^{12}$  в образце) возможно методом внедрения сверхпроводника в полости кристаллических пористых диэлектрических матриц [5,6]. Такая система представляет собой композиционный материал, приготовленный путем вдавливания расплава металла в пористую диэлектрическую матрицу, состоящую из упакованных в ГЦК решетку одинаковых силикатных шаров (структура благородного опала). В результате металл образует пространственную сетку, которую в силу кристаллографически упорядоченной структуры опала можно представить как трехмерную (3М) решетку связанных между собой гранул [7]. Любой токоведущий путь в этом материале представляет собой зигзагообразный канал в виде последовательного чередования больших (размер  $d_1$  соответствует диаметру вписанного в полость матрицы шара) и меньших ( $d_2$ ) взаимопроникающих гранул с наименьшим размером пересечения  $d_3$  (на рис.1а показан спрямленный канал). Эти размеры строго связаны геометрическим соотношением с диаметром  $D$  составляющих опал силикатных шаров

( $D$  лежит в пределах 200 - 400 нм, разброс не более 5% в одном образце). За отдельную наноструктуру в таком ансамбле можно принять элемент вида  $-d_1 - d_3 - d_2 - d_3 -$  с модуляцией поперечного размера токоведущего канала  $d_1 : d_3 : d_2 : d_3 = 2,7 : 1 : 1,5 : 1 : 2,7$ . Материал, полученный заполнением полостей опала индием (O-In), имеет растянутый переход, в силу размерной зависимости  $T_c(d)$  индия, из трех ступеней с  $T_{ci}$  в соответствии с геометрическими размерами компонентов  $d_i$  наноструктуры [8].

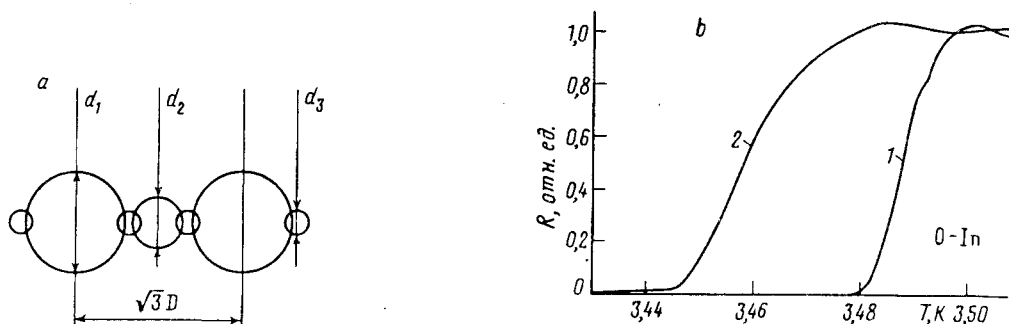


Рис.1. а - Схематическое изображение токоведущего канала в О-Ин. б - Форма резистивного перехода О-Ин на основе: кривая 1 - исходной матрицы, 2 - модифицированной матрицы

Пористость матрицы - диаметр пор и степень их изолированности - может быть изменена в результате нанесения на ее внутреннюю поверхность дополнительного слоя диэлектрика. Очевидно, что при равномерном нанесении слоя диэлектрика на внутреннюю поверхность матрицы отношение  $d_3 : d_{1,2}$  будет уменьшаться. Нами это обстоятельство было использовано для управления свойствами ансамбля сверхпроводниковых наноструктур за счет ослабления межгранульной связи в матрице, модифицированной нанесением ряда слоев  $\text{TiO}_2$  на внутреннюю поверхность опала методом молекулярного наслаивания [9]. Следует отметить, что примененный метод наиболее адекватно соответствует поставленной задаче равномерного уменьшения пор при сохранении идентичности их геометрии, однако, результат его применительно к заращению внутренних полостей узкопористого материала требует специального электронно-микроскопического исследования.

Для измерений были приготовлены образцы прямоугольной формы  $3 \times 1 \times 0,5$  мм с половинным уменьшением сечения в центральной области. Образцы, снабженные выращенными электрохимически четырьмя Ag-контактами, выполненными в виде полос, пересекающих его широкую грань, располагали поперек оси соленоида, создававшего поле до 200 Э. Измерения сопротивления проводили на переменном токе частотой 130 Гц в режиме источника тока с последующим синхронным детектированием. Сопротивление образцов в нормальном состоянии вблизи перехода составляло несколько единиц на  $10^{-4}$  Ом. Экранирования от магнитного поля Земли не было.

Для оценки роли матрицы (изменение относительных размеров гранул и мостиков и, возможно, характера рассеяния на поверхности в результате нанесения слоя  $\text{TiO}_2$ ) в формировании зависимости  $R(T)$  нами были сопоставлены формы переходов образцов (рис.1 б) на основе исходной (кривая 1) и зарощен-

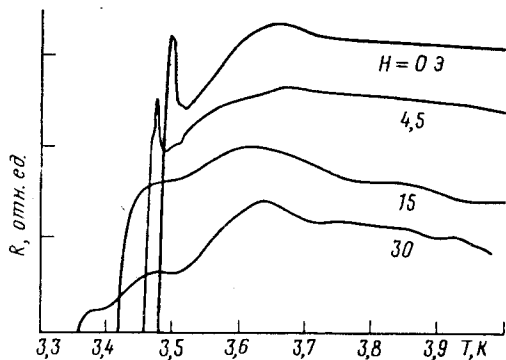


Рис.2. Изменение зависимости  $R(T)$  вблизи перехода под действием магнитного поля. Кривые сдвинуты относительно друг друга по оси ординат. Числа возле кривых указывают напряженность магнитного поля в эрстедах

ной (кривая 2) матриц. Оказалось, что непосредственно перед переходом в сверхпроводящее состояние оба образца имеют аномальное увеличение сопротивления. Модифицирование матрицы вызвало (кривая 2) увеличение амплитуды резистивной аномалии непосредственно перед резким спадом сопротивления (с 4 до 5,5%), развитие еще одной аномалии (рис.2), увеличение ширины перехода и понижение  $T_c$ . Последний факт идет вразрез с характерной для In тенденцией к увеличению  $T_c$  с уменьшением размера. По-видимому, на снижение  $T_c$  O-In, кроме размерной зависимости, оказывает влияние ослабление джозефсоновской связи гранул в решетке [10] и возрастание роли тепловых флуктуаций с уменьшением размера гранул. Свидетельством изменения размеров гранул In является уменьшение сдвига  $T_{cd3}$  в поле  $H = 30 \text{ Э}$  с 0,22 К до 0,175 К (определено по сдвигу максимума  $dR/dT$ ), что отвечает уменьшению размера  $d_1$  в 1,26 раза (в случае линейной связи  $T_c - d$  [8]). Это соответствует нанесению слоя  $\text{TiO}_2$  толщиной около 10 нм.

Изменение зависимости  $R(T)$  при наложении внешнего магнитного поля показано на рис.2. Видно, что в диапазоне температур 3,2–4,2 К  $R(T, H = 0)$  имеет две приблизительно равные по амплитуде аномалии: всплеск сопротивления полушириной 0,02 К (низкотемпературная аномалия (НА)) и широкий максимум при больших температурах (ВА), причем незначительный подъем сопротивления наблюдается, начиная с 4,2 К. С наложением внешнего магнитного поля переход сдвигается в сторону меньших температур, НА уменьшается по амплитуде, а затем при  $H > 10 \text{ Э}$  исчезает. Напротив, ВА практически не меняет во внешнем поле своего положения и амплитуды. Кроме того, с увеличением поля выявляется еще ряд неоднородностей кривой  $R(T)$ , неразличимых в его отсутствии.

При измерительных токах в диапазоне от 3 до 30 мА изменений кривых  $R(T)$  не обнаружено, однако при увеличении измерительного тока еще на 2 порядка обе аномалии полностью исчезают, хотя  $T_c(R = 0)$  практически не изменяется.

Очевидно, что подавление НА в слабом поле должно выглядеть как падающий участок сопротивления в координатах  $R - H$  вблизи нулевого поля (рис.3а, средняя кривая снята при температуре, соответствующей НА), причем эта аномалия сохраняется в виде всплеска сопротивления для более низких температур, когда сопротивление в нулевом поле уже уменьшилось (нижняя кривая рис.3а).

Наблюдаемая нами НА имеет сходство с резистивными аномалиями, которые объясняются несбалансированностью квазичастиц и куперовских пар на S-N-границе, возникающей при сверхпроводящем переходе низкоразмерных объектов, имеющих в своем составе две компоненты с различающимися не менее чем на несколько процентов  $T_c$  [2,3]. Характерной чертой таких аномалий является их подавление в очень низких полях порядка нескольких эрстед. Имеется также интерпретация аномалий на краю перехода неоднородных сверхпроводников, как артефакта, возникающего в результате перераспределения протекающего через образец тока из-за анизотропии  $T_c$  при расположении токовых и потенциальных контактов не на одной линии [11]. Не исключая полностью наличие такого вклада, возможного из-за несовершенства контактов, следует указать, что при линейном расположении электродов в [2,3] и в нашем эксперименте он должен быть пренебрежимо мал. Кроме того, анизотропия не в состоянии объяснить весь комплекс сопровождающих аномалию свойств. Система O-In имеет три характерные  $T_{ci}$ , отвечающие переходам в трех компонентах составляющих ее наноструктур [8]: по мере понижения температуры происходит сначала переход в сверхпроводящее состояние  $d_3$  сужений, затем участков  $d_3 - d_2 - d_3$  и завершается переход системы в целом переходом  $d_1$  гранул. Соответственно, при понижении температуры возникают последовательно S-N-границы двух типов. По аналогии, аномалии  $R(T)$  O-In, сильно подверженные влиянию внешнего магнитного поля (НА и неоднородности зависимости  $R(T)$ ), можно также отнести к проявлению неравновесности на множестве S-N-границ в объеме материала. При этом наличие явно выраженной НА, имеющей амплитуду, такую же как в случае аномалий у исследованных авторами [2-4] отдельных наноструктур, свидетельствует об идентичности размеров элементов наноструктур в ансамбле, а появление ряда неоднородностей кривой  $R(T, H)$  определяется поликристаллической структурой приготовленного материала [7], ведущей к различной ориентации кристаллитов относительно магнитного поля.

Отличительной чертой данного материала является то, что при температурах, соответствующих области аномалии, равновесное распределение не успевает установиться в пределах его размерных компонентов, что делает возможным суммирование эффекта по всему образцу. Характерный размер S-N-области при этом должен быть сравним с размером гранул, причем длина установления равновесного распределения квазичастиц и куперовских пар должна превышать размер гранул, а длина когерентности  $\xi = \sqrt{\xi_0 d_3}$  — не превышать его ( $\xi_0 = 440$  нм — длина когерентности в массивном In). В противном случае, в гранулах установится либо равновесное нормальное, либо равновесное сверхпроводящее состояние после перехода более узких частей наноструктуры. В обоих случаях проявление аномалии по данному механизму будет невозможно. Этим можно объяснить отсутствие аномалии сопротивления в образцах с неглубокой модуляцией сечения канала [8], где размер  $d_3$  недостаточно мал для обособления наноструктур в ансамбле (то есть  $\xi < d_1$ ), что ведет к незначительному изменению свойств сверхпроводника вдоль канала. Таким образом, ток в O-In при  $T_{cd1} < T < T_{cd3}$  переносится как квазичастицами, так и куперовскими парами, что важно для определения характера проникновения магнитного потока в решетку связанных гранул.

ВА не имеет аналогов в других сверхпроводниковых системах. Низкотемпературный спад ее определяется флуктуационным спариванием квазичастиц, что

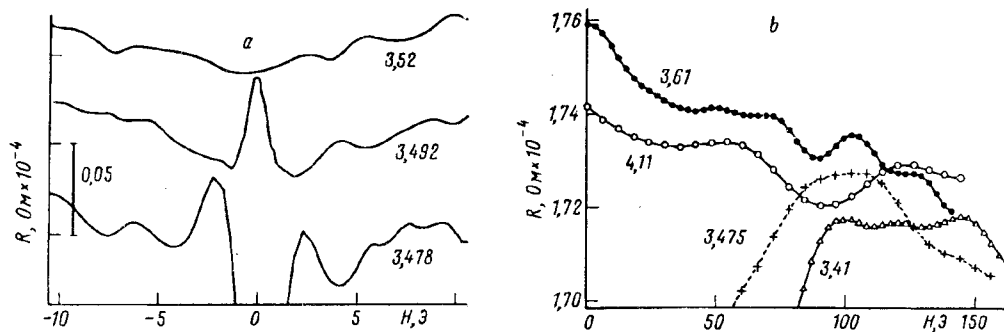


Рис.3. Изменение магнитосопротивления в области низкотемпературной (а) (кривые сдвинуты по оси ординат), и высокотемпературной (б) резистивных аномалий. Числа возле кривых указывают температуру

подтверждается положительным ходом магнитосопротивления в этой области температур (рис.3а, верхняя кривая). Рост сопротивления в высокотемпературной части ВА по мере понижения температуры может быть обусловлен как локализацией носителей в узких, близких к одномерным по характеру проводимости, каналах, соединяющих гранулы, так и аналогичным по характеру НА неравновесным процессом на S-N-границах между сверхпроводящими мостиками и нормальными гранулами. По-видимому, O-In не удовлетворяет условиям локализации носителей, так как сопротивление мостиков порядка 1 Ом, что много меньше кванта сопротивления. Предположение о связи ВА со сверхпроводимостью более обосновано, так как: (i) при 3,7 К дифференциальное сопротивление образца в области малых токов несколько ниже омического, (ii) положение ВА соответствует размерно обусловленному  $T_{cd3}$  (для частиц размером в 10 нм  $T_c \approx 3,9$  К) и (iii) магнитное поле, необходимое для сдвига  $T_{cd3}$ , значительно превосходит соответствующие поля гранул [8], что способно объяснить отсутствие сдвига ВА в поле до 30 Э (рис.2). Следует отметить, что область существования ВА сопровождается наличием отрицательного хода магнитосопротивления во всем исследованном диапазоне температур (рис.3б): по мере снижения температуры наклон  $R(H)$  возрастает и максимален вблизи максимума НА по температуре, более того, при  $T < T_c(H = 0)$  область отрицательного магнитосопротивления также наблюдается после подавления полем сверхпроводимости в O-In.

Осцилляциям магнитосопротивления, наблюдаемым на  $R(H)$  зависимостях, присущи определенные периоды и тенденция их изменения с температурой. Однако в настоящей работе при обработке результатов эти осцилляции были значительно сглажены с тем, чтобы продемонстрировать более крупномасштабные изменения. Анализ осцилляций мы планируем посвятить следующую работу.

Заключая, мы хотим подчеркнуть, что увеличение глубины геометрической модуляции токоведущего канала ведет к формированию более четко определенного потенциального рельефа и перевода, таким образом, наноструктурированного материала в разряд ансамбля взаимодействующих наноструктур.

Авторы благодарны М.П.Волкову и Ю.А.Кумзерову за полезное обсуждение результатов.

- 
1. P.Santhanam, S.Wind, and D.E.Prober, Phys. Rev. B **35**, 3188 (1987).
  2. P.Santhanam, C.C.Chi, S.J.Wind et al., Phys. Rev. Lett. **66**, 2254 (1991).
  3. Y.K.Kwong, K.Lin, P.J.Hakonen et al., Phys. Rev. B **44**, 462 (1991).
  4. V.V.Moshchalkov, H.Vloeberghs, M.Dhalle et al., Physica Scripta T **45**, 226 (1992).
  5. V.Bogomolov, Y.Kumzerov, and S.Romanov, in Physics of nanostructures, 1992, Bristol, IOP, p.317.
  6. V.N.Bogomolov, Y.A.Kumzerov, S.G.Romanov, and V.V.Zhuravlev, Physica C **208**, 371 (1993).
  7. В.Г.Балакирев, В.Н.Богомолов, В.В.Журавлев и др., Кристаллография **38**, 111 (1993).
  8. К.К.Бабамуратов, В.В.Журавлев, Ю.А.Кумзеров и др., ФТТ **35**, 1577 (1993).
  9. В.Б.Алесковский, Химия твердых веществ. М.: Высшая школа, 1978.
  10. B.Y.Lin and J.B.Kettersen, Adv. Phys. **38**, 189 (1989).
  11. P.Vaglio, C.Attanasio, L.Maritato, and A.Ruosi, Phys. Rev. B **47**, 1502 (1993).