

## Сверхпроводимость гранулированных пленок 80NbN–20SiO<sub>2</sub>

О.И. Юзефович<sup>1,2</sup>, Б. Костельска<sup>3</sup>, С.В. Бенгус<sup>1,2</sup>, А. Витковска<sup>3</sup>

<sup>1</sup>Физико-технический институт низких температур им. Б.И. Веркина НАН Украины  
пр. Ленина, 47, г. Харьков, 61103, Украина  
E-mail: yuzephovich@ilt.kharkov.ua

<sup>2</sup>International Laboratory of High Magnetic Fields and Low Temperatures, 53-421 Wroclaw, Poland

<sup>3</sup>Faculty of Applied Physics and Mathematics, Gdańsk University of Technology, 080-952 Gdańsk, Poland

Статья поступила в редакцию 19 апреля 2010 г.

Продемонстрирована возможность создания гранулированных сверхпроводящих пленок NbN–SiO<sub>2</sub> с контролируемым размером гранул золь-гель методом. Проведено комплексное исследование структурных и транспортных свойств гранулированных пленок 80%NbN–20%SiO<sub>2</sub> разной толщины. Установлено, что для наблюдения полного сверхпроводящего перехода образцы должны быть толщиной больше 750 нм. Критические температуры сверхпроводящего перехода и верхние критические магнитные поля для пленок разной толщины примерно равны и составляют 4,5 К и 4,4 Тл соответственно. Обнаружен кроссовер от 2D к 3D поведению температурной зависимости верхнего параллельного критического магнитного поля. Показано, что в области слабых магнитных полей резистивные переходы хорошо описываются законом Аррениуса. Механизмом уширения резистивных переходов в магнитном поле, вероятнее всего, является крип магнитного потока. Получена зависимость энергии активации от магнитного поля. В сильных магнитных полях обнаружены характерные начальные признаки индуцированного магнитным полем фазового перехода сверхпроводник–изолятор.

Продемонстровано можливість створення гранульованих надпровідних плівок NbN–SiO<sub>2</sub> з контролем розміром гранул золь-гель методом. Проведено комплексне дослідження структурних і транспортних властивостей гранульованих плівок 80%NbN–20%SiO<sub>2</sub> різної товщини. Установлено, що для спостереження повного надпровідного переходу зразки повинні бути товщиною більше 750 нм. Критичні температури надпровідного переходу й верхні критичні магнітні поля для плівок різної товщини приблизно рівні й становлять 4,5 К і 4,4 Тл відповідно. Виявлено кросовер від 2D до 3D поведінки температурної залежності верхнього паралельного критичного магнітного поля. Показано, що в області слабких магнітних полів резистивні переходи добре описуються законом Аррениуса. Механізмом розширення резистивних переходів у магнітнім полі, найімовірніше, є крип магнітного потоку. Отримано залежність енергії активації від магнітного поля. У сильних магнітних полях виявлені характерні початкові ознаки індукваного магнітним полем фазового переходу надпровідник–ізолятор.

PACS: 74.25.–q Свойства сверхпроводников;

74.81.–g Неоднородные сверхпроводники и сверхпроводящие системы, включая электронные неоднородности;

81.20.Fw Золь-гель методика, осаждение.

Ключевые слова: золь-гель метод, гранулированная пленка, сверхпроводимость, переход сверхпроводник–изолятор.

### Введение

В последнее время динамично развивается тематика исследований, связанная с изучением низкоразмерных систем, таких как ультратонкие пленки, нанодисперс-

ные гранулированные системы, квантовые точки, квантовые биты и др. Эти системы имеют принципиально новые уникальные свойства и демонстрируют необычные квантовые эффекты. Для разработки, создания и использования наноструктурированных систем с за-

данными свойствами и новыми функциональными возможностями требуются химически и физически стабильные материалы. Этим качествам отвечает NbN, обладающий высокой адгезией и прочностью [1,2], химической инертностью [3,4], устойчивостью к термическому циклированию [5] и высокой температурой плавления, — материал, являющийся одним из приоритетных в микроэлектронике. Отдельный интерес представляют его сверхпроводящие свойства: высокая критическая температура (до 17 К в объемном материале), большие значения критических магнитных полей и критических токов (для тонких пленок  $J_c \sim 10^7$  А/см<sup>2</sup>). Для тонких пленок наблюдается малая длина когерентности  $\xi = 4-7$  нм, большая лондоновская глубина проникновения магнитного поля  $\lambda_{\text{NbN}} = 180$  нм. Ультратонкие однородные пленки NbN активно используются для создания сверхпроводящих детекторов, фильтров, одноквантовых транзисторов и антенн [6–8].

Структурные и электрофизические свойства пленок NbN очень сильно зависят от методов изготовления. Внесение в пленку беспорядка, с одной стороны, приводит к уменьшению критической температуры, а с другой — может повысить такие параметры, как критический ток и критическое магнитное поле. Кроме того, беспорядок — один из возможных механизмов, приводящих к возникновению квантовых эффектов, таких как, например, переход сверхпроводник–изолятор [9–13], стохастический резонанс [14,15] и др. Поэтому как с фундаментальной, так и с прикладной точки зрения представляет интерес возможность создания гранулированных структур с заданными размерами гранул NbN в изолирующих матрицах. Гранулированные пленки могут состоять из гранул размером от единиц до сотен нанометров и относятся к классу искусственных материалов, в которых можно легко моделировать электронные свойства [9]. Подстройкой связи между гранулами система может переводиться из состояния «хорошего металла» или сверхпроводника в состояние «изолятора». Сверхпроводимость в них возникает пошагово, вначале в сверхпроводящее состояние переходят отдельные гранулы, а затем между ними образуется джозефсоновская связь и наступает глобальное сверхпроводящее состояние всей системы в целом.

Среди обычных методов изготовления гранулированных материалов распространены термическое испарение и магнетронное напыление. В данной работе предложена альтернативная, интенсивно развивающаяся в последнее время, золь-гель технология создания гранулированных пленок с последующим термическим нитрированием. Она позволяет синтезировать качественные покрытия, отвечающие высоким требованиям современной техники, и контролировать размеры сверхпроводящих гранул в изоляционной матрице [16].

В настоящей работе приведены результаты комплексного исследования структурных и сверхпроводящих

свойств гранулированных пленок  $x\text{NbN}-(100-x)\text{SiO}_2$  (где  $x = 80$  мол.%) с толщинами от 450 до 1950 нм. Исследовано влияние магнитного поля на особенности сверхпроводящего состояния, обнаружены характерные признаки индуцированного магнитным полем перехода сверхпроводник–изолятор.

## 2. Методика эксперимента

### 2.1. Методика приготовления образцов и их структурные характеристики

Пленки  $x\text{Nb}_2\text{O}_5-(100-x)\text{SiO}_2$  (где  $x = 100, 80, 60, 50, 40, 20, 0$  мол.%) разной толщины были изготовлены золь-гель методом. Начальный раствор  $x\text{Nb}_2\text{O}_5-(100-x)\text{SiO}_2$  представляет собой смесь тетраэтоксисилана (TEOS, Fluka) и хлорида ниобия ( $\text{NbCl}_5$ , Aldrich) с этанолом и ацетилацетоном в качестве комплексообразующего агента. Раствор наносили на кварцевую подложку методом центрифугирования. Подложки с нанесенной пленкой высушивались 24 ч при комнатной температуре и затем в муфельной печи при температуре 250 °С около часа. Данная процедура позволяет получить пленку толщиной около 150 нм. Для получения пленок большей толщины процедуру повторяли необходимое количество раз.

После получения покрытия  $x\text{Nb}_2\text{O}_5-(100-x)\text{SiO}_2$  пленка подвергалась термическому нитрированию в среде проточного аммиака при скорости нагрева 1 °С/мин до определенной температуры и затем изотермически в течение часа.

Проведены комплексные структурные исследования образцов, нитрированных при разных температурах. Рентгеноструктурные исследования пленок проводились на дифрактометре Philips X'Pert в  $\theta-2\theta$  геометрии с использованием  $\text{CuK}\alpha$  излучения. Рентгенограммы снимались при комнатной температуре как до, так и после нитрирования пленок. Фаза  $\text{SiO}_2$  остается аморфной при любых температурах нитрирования. При температуре нитрирования 1200 °С в пленке присутствует только кристаллическая фаза NbN, при более низких температурах нитрирования наблюдаются также пики, соответствующие кристаллическим фазам NbO и  $\text{Nb}_2\text{O}_5$ . Таким образом, установлена оптимальная температура нитрирования 1200 °С.

Топографические изображения всех исследованных образцов до и после нитрирования получены с помощью атомно-силовой микроскопии на установке MSS-system (Łódź University, Польша). Типичные топографические изображения атомно-силовой микроскопии образцов  $x\text{Nb}_2\text{O}_5-(100-x)\text{SiO}_2$  (где  $x = 80, 60$  мол.%) после процесса нитрирования при  $T = 1200$  °С представлены на рис. 1. Во всех пленках, кроме чистых пленок  $\text{SiO}_2$ , возникает регулярная нанокристаллическая структура, а расположение гранул NbN становится более регулярным с увеличением количества нио-

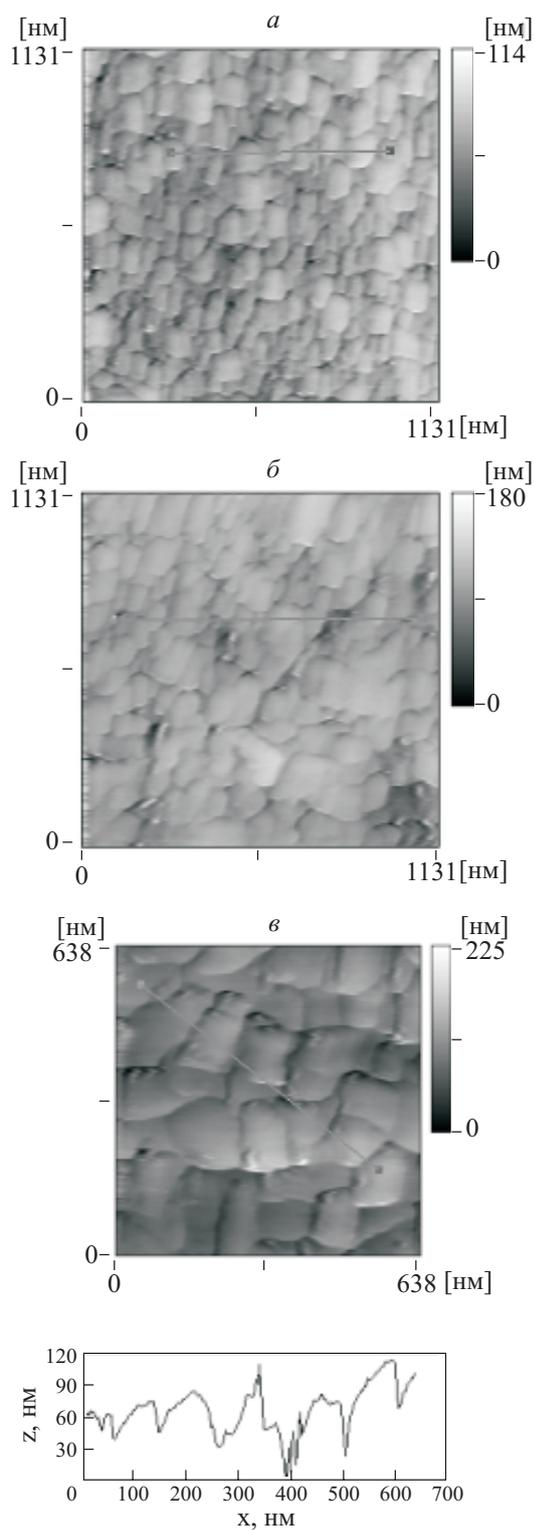


Рис. 1. АФМ топографическое изображение пленок  $x\text{Nb}_2\text{O}_5-(100-x)\text{SiO}_2$  после нитрирования:  $x = 60$  (а),  $80$  (б) и  $100$  (в) мол.%. Максимальный размер кристаллитов  $100$  нм.

бия. Максимальный размер гранул NbN составляет  $100$  нм при максимальной концентрации  $x = 100$  мол.% (см. табл. 1), хотя размер гранул  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  до нитрирования может составлять  $500$  нм. Таким образом, изме-

нение молярного соотношения  $\text{Nb}_2\text{O}_5:\text{SiO}_2$  в исходном геле и процесс нитрирования позволяют формировать пленки  $\text{NbN-SiO}_2$  с заданным размером гранул NbN.

Таблица 1. Средний диаметр гранул NbN в матрице  $\text{SiO}_2$  для пленок с разной концентрацией  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  в стартовом растворе, определенный из топологических изображений пленок методом атомно-силовой микроскопии

Концентрация $\text{Nb}_2\text{O}_5$ , мол.%	Средний диаметр гранул NbN, нм
50	35
60	50
70	60
80	83
100	100

Более детально методика приготовления и структурные характеристики гранулированных пленок  $\text{NbN-SiO}_2$  описаны в работе [2].

Для исследования сверхпроводящих свойств в настоящей работе выбраны пленки  $x\text{NbN}-(1-x)\text{SiO}_2$  с  $x = 80$  мол.% разной толщины  $d$ :  $450, 750, 1050, 1350, 1650$  и  $1950$  нм.

## 2.2. Методика транспортных измерений

Транспортные измерения проведены в стандартном гелиевом криостате Oxford Instruments, снабженном сверхпроводящим соленоидом с максимальным магнитным полем  $14$  Тл, в интервале температур  $1,4-300$  К. Точность определения и стабилизации температуры в интервале  $1,4-10$  К не хуже  $10^{-3}$  К, а в интервале  $10-300$  К —  $0,05$  К.

Сопротивление  $R$  измерялось четырехзондовым методом, образцы представляли собой двойные холловские кресты. Измерения проводились как на постоянном, так и на переменном токе ( $50$  нА,  $13$  Гц). Направление транспортного тока  $\mathbf{I}$  параллельно плоскости пленки при соблюдении условия  $\mathbf{I} \perp \mathbf{H}$ . Величины критических магнитных полей  $H_{c2}$  определялись по середине резистивных переходов.

## 3. Экспериментальные результаты и их обсуждение

### 3.1. Переходы в сверхпроводящее состояние при $H = 0$

На рис. 2 приведены температурные зависимости сопротивления на квадрат для пленок с толщинами  $d = 450, 750, 1050, 1350, 1650$  и  $1950$  нм. Все образцы до перехода в сверхпроводящее состояние демонстрируют отрицательный температурный коэффициент сопротивления и, как видно на вставке на рис. 2, проводимость подчиняется логарифмическому закону  $\sigma(T) = a + b \ln T$ , что соответствует предсказаниям теории

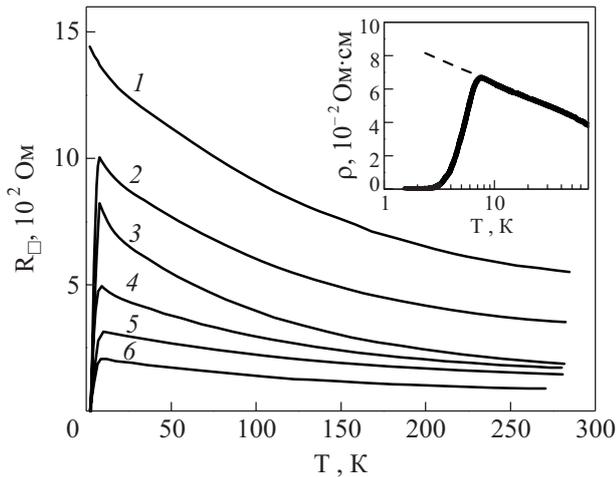


Рис. 2. Температурные зависимости сопротивления на квадрат для пленок 80%NbN–20%SiO<sub>2</sub> разной толщины: 450 (1), 750 (2), 1050 (3), 1350 (4), 1650 (5), 1950 (6) нм. На вставке: температурная зависимость удельного сопротивления для образца толщиной  $d = 1350$  нм.

[9] для гранулированных металлов. Подобный тип проводимости наблюдался и для гранулированных пленок NbN с меньшим размером гранул и для трехмерных гранулированных систем [9,12]. Для образца толщиной 450 нм сверхпроводящий переход не наблюдается (в интервале температур от 300 до 1,4 К). Образцы толщиной 750 нм и выше переходят в сверхпроводящее состояние. Критические температуры начала сверхпроводящего перехода  $T_{c\text{ onset}}$  в нулевом магнитном поле слегка варьируются, проявляя небольшую тенденцию к увеличению с увеличением толщины пленок, и составляют около 8 К (см. рис. 2, вставка). Небольшое отличие в  $T_{c\text{ onset}}$  для образцов разной толщины может быть связано с присутствием в образцах небольшого количества кристаллической фазы N<sub>2</sub>O<sub>5</sub>.

Критические температуры сверхпроводящих переходов  $T_c$ , определенные по середине резистивного перехода по уровню  $\rho_{\text{max}}/2$ , равны (как и должно быть в случае гранулированных пленок [9]) и составляют порядка 4,5 К.

На рис. 3 представлен переход в сверхпроводящее состояние для пленки  $d = 1350$  нм в нулевом магнитном поле  $H = 0$  Тл. Критические температуры начала перехода  $T_c(0,9) = 6,39$  К, конца перехода  $T_c(0,1) = 3,59$  К, середины  $T_c(0,5) = 4,5$  К и ширина  $\Delta T_c = \Delta T(T_{0,9} - T_{0,1}) = 2,8$  К,  $T_{c\text{ onset}} \sim 7,5$  К. Глобальная сверхпроводящая когерентность устанавливается в системе при достаточно низких температурах за счет увеличения джозефсоновской энергии связи между гранулами. Начало сверхпроводящего перехода определяется появлением сверхпроводимости в объеме гранул, а конец — появлением сверхпроводимости по слабым межгранульным путям. Критическая температура чис-

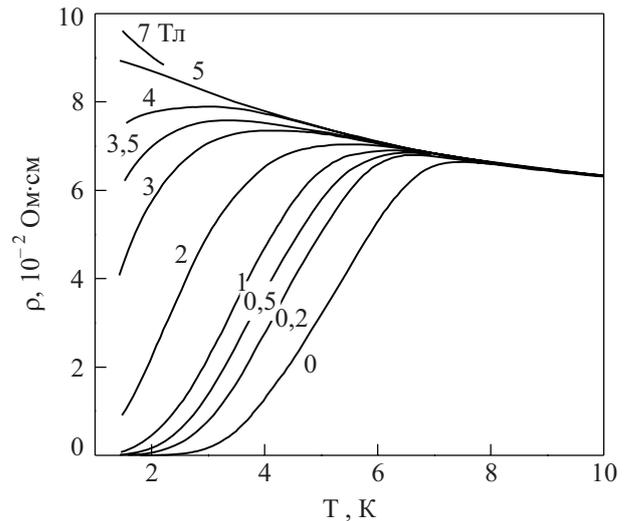


Рис. 3. Температурные зависимости удельного сопротивления при разных значениях перпендикулярного магнитного поля для образца толщиной  $d = 1350$  нм.

того NbN составляет порядка 16 К (для тонких однородных пленок около 10 К), для наших гранулированных пленок значение критической температуры в два раза ниже. Возникает вопрос, с чем связано столь сильное понижение критической температуры? Однозначного ответа мы дать не можем, но данное свойство не является необычным для гранулированных систем. Беспорядок может существенно уменьшать величину критической температуры. В идеальной системе гранул фазовая когерентность наступает одновременно во всем объеме, а размытие сверхпроводящего перехода определяется влиянием флуктуаций параметра порядка. Реальные системы обладают пространственной неоднородностью как размеров гранул, так и толщин диэлектрических прослоек. Для таких систем больше подходят протекательные модели проводимости, согласно которым при понижении температуры фазовая когерентность устанавливается только в ограниченном количестве кластеров. По мере понижения температуры сверхпроводящие кластеры растут и образуется бесконечный кластер — сопротивление падает до нуля [10]. Поэтому экспериментально наблюдаемое нами большое размытие сверхпроводящего перехода в нулевом магнитном поле можно связать с сильной разупорядоченностью и гранулярностью пленки.

### 3.2. Влияние слабого магнитного поля на сверхпроводящее состояние

В слабых магнитных полях во многих системах (гранулированных пленках, ВТСП, пленках и кристаллах MgB<sub>2</sub>) наблюдается уширение резистивных переходов, являющееся предметом многочисленных трактовок и дискуссий. Данное явление может быть связано с неоднородностью структуры, флуктуациями

или крипом магнитного потока. Не всегда легко разделить эти механизмы. На рис. 3 представлены температурные зависимости удельного сопротивления для пленки толщиной  $d = 1350$  нм при разных значениях магнитного поля  $H$ , перпендикулярного плоскости пленки. В слабых магнитных полях наблюдается уширение резистивных переходов. Ширина резистивного перехода  $\Delta T$  — разница температур, определенных в точках  $0,1\rho_{\max}$  и  $0,9\rho_{\max}$  в нулевом магнитном поле порядка 2,8 К, тогда как в магнитном поле 1,5 Тл размытие резистивного перехода сильнее и больше 3 К.

Размытие резистивных переходов в магнитном поле в гранулированных пленках, ВТСП, искусственных СР и др. неоднородных системах интерпретируется в терминах диссипации энергии. В нашем случае механизм диссипации, вероятно, связан с крипом магнитного потока, так как размер сверхпроводящих гранул значительно больше длины когерентности. Основанием для такой интерпретации является то, что в области малых сопротивлений ( $\rho \ll \rho_{\max}$ ) зависимости  $\rho(T)$  имеют термоактивационный характер. Такие зависимости в общем виде можно представить как

$$R = R_0 \exp(-U(H, T)/kT), \quad (1)$$

где  $U(H, T)$  — энергия активации, имеющая различную зависимость от температуры и магнитного поля для разных типов структур,  $k$  — постоянная Больцмана [17,18]. На рис. 4 представлены зависимости  $\rho$  от  $1/T$  для пленки  $d = 1350$  нм при нескольких значениях магнитного поля. Из рис. 4 и аналогичных данных для других образцов следует, что резистивное поведение хорошо описывается законом Аррениуса (1). Согласно моделям Андерсена и Кима [18], зависимость энергии активации крипа магнитного потока от магнитного

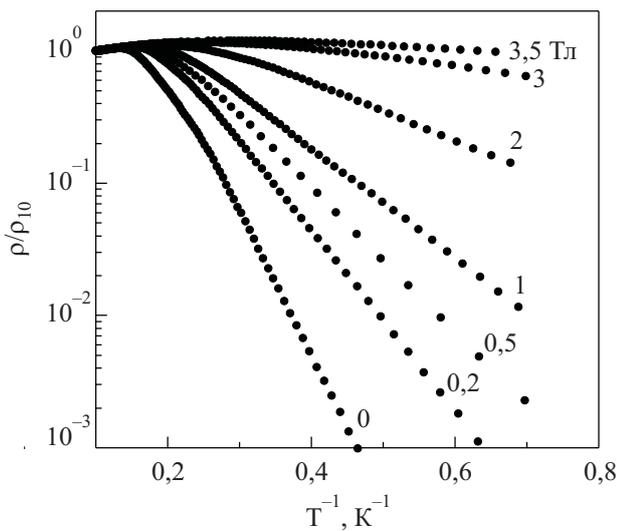


Рис. 4. Нормированное сопротивление как функция обратной температуры при разных значениях магнитного поля для образца толщиной  $d = 1350$  нм.

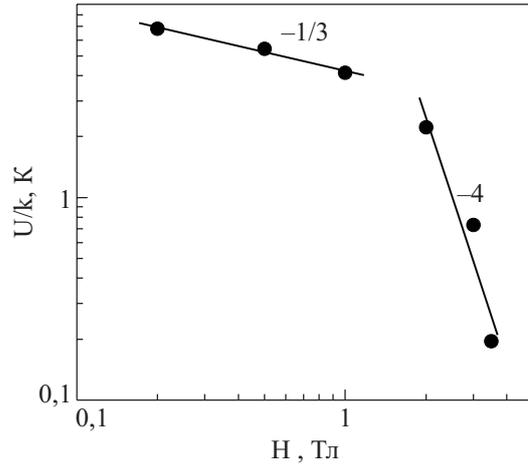


Рис. 5. Зависимость энергии активации крипа магнитного потока от магнитного поля для образца толщиной  $d = 1350$  нм.

поля и температуры может быть описана как  $U(H) = U_0 H^{-\alpha} (1 - T/T_c)^n$ . На рис. 5 приведена зависимость энергии активации от магнитного поля для пленки  $d = 1350$  нм. Энергия активации в нулевом магнитном поле  $U_0(H = 0)$  порядка 10 К. Зависимость энергии активации характеризуется двумя степенными законами:  $\alpha = -1/3$  в слабых полях и переходит в  $\alpha = -4$ .

Уширение резистивных переходов в слабых магнитных полях в гранулированных пленках может быть также объяснено в рамках модели связанных джозефсоновских контактов, в этом случае эффект не зависит от макроскопической силы Лоренца, т.е. от направления транспортного тока по отношению к магнитному полю. Такой эффект наблюдался экспериментально на гранулированных пленках NbN в работе [19]. Для сопоставления наших результатов с данной теоретической моделью необходимо провести дополнительные экспериментальные исследования.

### 3.3. Влияние сильного магнитного поля на сверхпроводящее состояние

В сильных магнитных полях для образца  $d = 1350$  нм наблюдаются все начальные признаки, характерные для индуцированного магнитным полем перехода сверхпроводник–изолятор. Переход сверхпроводник–изолятор интенсивно изучается в последнее время и экспериментально обнаружен в ряде различных систем, таких как ультратонкие аморфные пленки  $\text{Mo}_x\text{Ge}_{1-x}$ ,  $\text{Mo}_x\text{Si}_{1-x}$ ,  $\text{InO}_x$ , Be, Bi, Ta, Bi/Sb,  $\text{Nb}_{0,15}\text{Si}_{0,85}$ , пленки  $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4+y}$ , гранулированные пленки, массивы джозефсоновских контактов (см. обзор [11]). И хотя уже известен широкий спектр различных низкоразмерных систем, демонстрирующих переход сверхпроводник–изолятор, природа его окончательно не выяснена. Фазовый переход для многих структур объясняют скейлинговой теорией Фишера [20] (теория дуальности между куперовскими парами и вихрями).

Предполагается существование при  $T = 0$  делокализованных куперовских пар и локализованных вихрей ниже перехода, при полях  $H < H_c$  (сверхпроводник), и локализованных пар при делокализованных вихрях выше перехода  $H > H_c$  (изолятор). Для разупорядоченных однородных пленок с относительно низким сопротивлением на квадрат эффект может быть объяснен квантовыми поправками к проводимости [21]. В гранулированных системах с малым размером гранул (к нашим гранулированным пленкам данная модель вряд ли применима из-за большого размера гранул порядка 80 нм) переход объясняется конкуренцией между джозефсоновской силой связи между гранулами и зарядовой кулоновской энергией отдельной гранулы. Если преимущество за кулоновской блокадой, куперовские пары становятся локализованными при  $T \rightarrow 0$  и система переходит в изолятор [9–11]. Однозначной ясности касательно природы этого довольно универсального явления пока не существует.

Первый признак перехода сверхпроводник–изолятор — это веерные зависимости сопротивления от температуры при разных значениях магнитного поля. Существуют три типа эволюции кривых  $R(T)$  при варьировании магнитного поля. Первый тип кривых — веерные зависимости  $R(T)$  при разных значениях магнитного поля с горизонтальной сепаратрисой, разделяющей семейства кривых со сверхпроводящим переходом от кривых, на которых перехода нет. Второй тип — это веерные кривые, но с наклонной сепаратрисой, имеющей тенденцию к увеличению крутизны или даже уходу на бесконечность с уменьшением температуры. И третий тип — если поля достаточно велики, то первая производная везде отрицательна, при этом в диапазоне промежуточных полей зависимости  $R(T)$  имеют два экстремума: минимум вблизи  $T_{c\text{ onset}}$  и максимум при более низких температурах с последующим переходом в сверхпроводящее состояние. Горизонтальная сепаратриса считается идеальным случаем. Наклон сепаратрисы может быть связан с одночастичным транспортом между сверхпроводящими гранулами [11]. Минимум же сопротивления наблюдается в системах с большой толщиной диэлектрических прослоек, где сверхпроводимость возникает поэтапно — сначала в гранулах, а затем устанавливается джозефсоновская связь между ними [10]. Для наших гранулированных пленок мы наблюдаем начальный участок веерного типа температурных зависимостей удельного сопротивления  $\rho(T)$  с наклонной сепаратрисой (см. рис. 3). Из-за наклонной и, по-видимому, даже нелинейной сепаратрисы, невозможно воспользоваться однопараметрической скейлинговой теорией Фишера [20] и определить критическое значение сопротивления перехода сверхпроводник–изолятор  $R_c$ . Ранее считалось, что фазовый переход сверхпроводник–изолятор характеризуется универсальным квантовым сопротивлением  $R_c \approx h/4e^2 \approx$

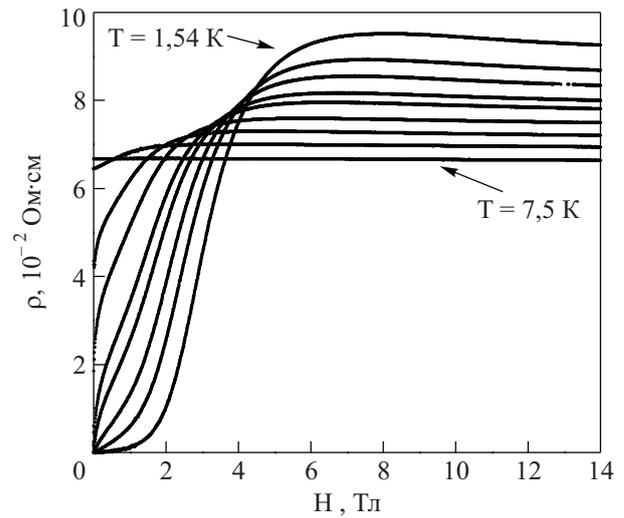


Рис. 6. Зависимости удельного сопротивления от магнитного поля при разных температурах: 1,54; 2,11, 2,53, 3,09, 3,46, 4,19, 5, 6 и 7,5 К для образца толщиной  $d = 1350$  нм.

$\approx 6,5$  кОм [20]. В настоящее время, опираясь на большое количество экспериментов, полагают, что универсального для всех систем сопротивления  $R_c$  не существует [11]. Актуальным является вопрос, есть ли особое сопротивление  $R_c$ , связанное с квантовым фазовым переходом, как оно зависит от свойств соответствующего квантового пограничного состояния и можно ли на величину  $R_c$  направленно воздействовать? В рамках перколяционных моделей перехода сверхпроводник–изолятор показано, что критическое сопротивление в гранулированных пленках зависит от распределения беспорядка и от природы перколяционных токовых каналов [22].

Вторым признаком индуцированного магнитным полем перехода сверхпроводник–изолятор является пересечение магнитополевых зависимостей сопротивления при разных температурах и третьим — отрицательное магнитосопротивление в сильных магнитных полях (см. рис. 6). Начальные признаки перехода сверхпроводник–изолятор наблюдаются для образца толщиной  $d = 1350$  нм как в параллельном, так и в перпендикулярном магнитном поле. Следует отметить, что все характерные особенности перехода сверхпроводник–изолятор проявились уже при температурах выше 1,4 К, а с понижением температуры эффект будет более ярко выражен. Детальное экспериментальное исследование особенностей перехода сверхпроводник–изолятор и сопоставление с теоретическими моделями будет проведено позже.

### 3.4. Верхние критические магнитные поля

На рис. 7 представлены температурные зависимости параллельного и перпендикулярного верхних магнитных полей для пленки  $d = 1650$  нм. Значения верхних перпендикулярных и параллельных полей при  $T = 0$  К,

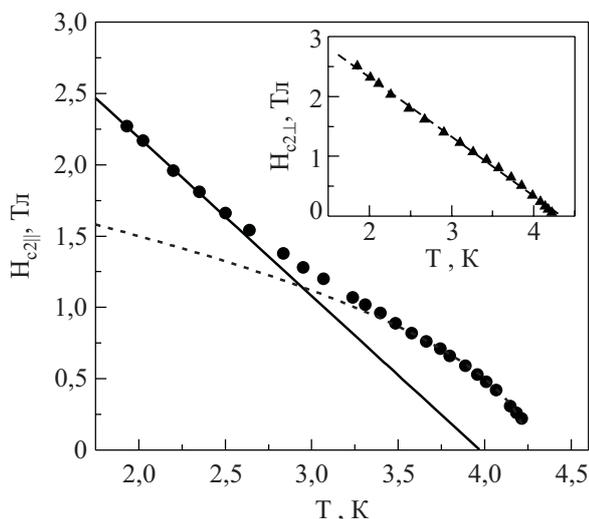


Рис. 7. Температурные зависимости верхних критических магнитных полей для образца толщиной  $d = 1650$  нм.

определенные методом экстраполяции линейных участков зависимостей  $H_c(T)$ , для пленок  $d = 750\text{--}1950$  нм примерно равны и составляют 4,4 Тл. Таким образом, параметр анизотропии  $\gamma = (dH_{c||}/dT)/(dH_{c\perp}/dT)$  для данных гранулированных пленок равен единице. В теории Гинзбурга–Ландау для классических сверхпроводников второго рода, справедливой вблизи  $T_c$ , установлена связь длины когерентности сверхпроводящего конденсата  $\xi(T)$  с верхним критическим магнитным полем соотношением  $H_{c2\perp}(T) = \phi_0 / 2\pi\xi_{II}^2(T)$ , где  $\phi_0 = 2,07 \cdot 10^{-15}$  Тл/м<sup>2</sup> — квант магнитного потока. Температурная зависимость  $H_{c2\perp}(T)$  линейна. Согласно теории Гинзбурга–Ландау,  $H_{c2}$  растет с уменьшением длины когерентности, что связано с уменьшением размера вихрей. Значение параллельной длины когерентности  $\xi_{||}(0)$  при  $T = 0$ , определенное из перпендикулярного критического поля, составляет примерно 8 нм.

Как видно на рис. 7, для перпендикулярного верхнего критического поля наблюдается линейная зависимость  $H_{c\perp} \sim (T_c - T)$ , т.е. 3D-поведение (трехмерное) пленки. Зависимость  $H_{c||}$  близка к корневой (2D-поведение) вблизи температуры перехода  $T_c$ , но линейна при низких температурах, т.е. наблюдается кроссовер 2D–3D (рис. 7). Данный кроссовер может быть объяснен в рамках теории Гинзбурга–Ландау и связан с поведением вихревой системы, поскольку, с одной стороны, вблизи  $T_c$  длина когерентности соизмерима с размером гранул. С другой стороны, длина когерентности зависит от температуры и уменьшается при ее понижении, т.е. наблюдается размерный кроссовер в вихревой системе.

### Выводы

1. Разработана и усовершенствована золь-гель методика создания гранулированных пленок NbN–SiO<sub>2</sub> с

заведомо заданным размером гранул. Подобрана оптимальная температура нитрирования.

2. Определены критические температуры сверхпроводящего перехода (около 4,5 К) и верхние критические параллельные и перпендикулярные магнитные поля (4,4 Тл) для пленок 80%NbN–20%SiO<sub>2</sub> разной толщины. Обнаружен размерный кроссовер от 2D к 3D поведению температурной зависимости верхнего критического параллельного магнитного поля.

3. Показано, что в области слабых магнитных полей резистивные переходы хорошо описываются законом Аррениуса. Зависимость энергии активации от магнитного поля подчиняется степенному закону  $U \sim H^{-1/3}$  в слабых полях и изменяется на  $U \sim H^{-4}$  с увеличением магнитного поля. С нашей точки зрения, наиболее вероятным механизмом уширения резистивных переходов в слабых магнитных полях является крип магнитного потока.

4. В сильных магнитных полях обнаружены начальные признаки, характерные для индуцированного магнитным полем фазового перехода сверхпроводник–изолятор.

Работа выполнена при поддержке гранта Национальной академии наук Украины для молодых ученых «Индукцированные магнитным полем фазовые переходы в магнитных и немагнитных наноструктурах» (грант № 15–2009) и целевой комплексной программой фундаментальных исследований НАН Украины «Фундаментальные проблемы наноструктурных систем, наноматериалов, нанотехнологий» (грант № 26/10-Н).

1. V.N. Zhitomirsky, I. Grimberg, L. Rapoport, N.A. Travitzky, R.L. Boxman, and S. Goldsmith, *Thin Solid Films* **326**, 134 (1998).
2. B. Kościelska and A. Winiarski, *J. Non-Cryst. Solids* **354**, 4349 (2008).
3. M. Larsson, P. Hollman, P. Hendequist, S. Hogmark, U. Wahlstrom, and L. Hultman, *Surf. Coat. Technol.* **86/87**, 351 (1996).
4. K. Baba, R. Hatada, K. Udoh, and K. Yasuda, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.* **B127**, 841 (1997).
5. I. Hotovy, J. Huran, D. Buc, and R. Srnanek, *Vacuum* **50**, 45 (1998).
6. J. Bantista, *IEEE Trans. Mag.* **21**, 640 (1985).
7. J.-C. Villegier, B. Delaet, Ph. Feautrier, L. Frey, C. Delacour, and V. Bouchiat, *J. Phys.: Conference Series* **43**, 1373 (2006).
8. J.B. Walker, *IEEE Trans. Appl.* **25**, 885 (1977).
9. I.S. Beloborodov, A.V. Lopatin, V.M. Vinokur, and K.B. Efetov, *Rev. Mod. Phys.* **79**, 469 (2007).
10. Б.И. Белевцев, *ВФН* **160**, 65 (1990).
11. В.Ф. Гантмахер, В.Т. Долгополов, *ВФН* **180**, 1 (2010).
12. R.W. Simon, B.J. Dalrymple, D. Van. Vechten, W.W. Fuller, and S.A. Wolf, *Phys. Rev.* **B36**, 1962 (1987).
13. R. Fazio and H.S.J. van der Zant, *Phys. Rep.* **355**, 235 (2001).

14. А.М. Глухов, О.Г. Турутанов, В.И. Шнырков, А.Н. Омелянчук, *ФНТ* **32**, 1477 (2006) [*Low Temp. Phys.* **32**, 1123 (2006)].
15. A.M. Glukhov, A.S. Pokhila, I.M. Dmitrenko, A.E. Kolinko, and A.P. Panchevka, *Physica* **B240**, 242 (1997).
16. B. Kościelska, L. Murawski, and L. Wicikowski, *Mat. Sci.-Poland* **23**, 93 (2005).
17. Yu. Yeshurun and A.P. Malozemoff, *Phys. Rev. Lett.* **60**, 2202 (1988); A.P. Malozemoff, Yu. Yeshurun, L. Krusin-Elbaum, T.K. Worthington, D.C. Cronmeyer, T. Dinger, T.R. Foltzberg, T.R. McGuire, and P.H. Kes, *High-Temperature Superconductivity*, World Scientific, Singapore, vol. 9, p. 112 (1988).
18. P.W. Anderson, *Phys. Rev. Lett.* **9**, 309 (1962); Y.B. Kim, *Rev. Mod. Phys.* **36**, 39 (1964).
19. D.H. Kim, K.E. Gray, R.T. Kampwirth, K.C. Woo, D.M. McKay, and J. Stein, *Phys. Rev.* **B41**, 11642 (1990).
20. M.P.A. Fisher, *Phys. Rev. Lett.* **65**, 923 (1990).
21. V.M. Galitski and A.I. Larkin, *Phys. Rev.* **B63**, 174506 (2001).
22. Y. Strelniker, A. Frydman, and S. Havlin, *Phys. Rev.* **B76**, 224528 (2007).

Superconductivity of 80NbN–20SiO<sub>2</sub> granulated filmsO.I. Yuzepovich, B. Kościelska, S.V. Bengus,  
and A. Witkowska

A possibility of creation of granulated NbN–SiO<sub>2</sub> films with a controlled granule size has been demonstrated using the sol-gel method. A comprehensive study of structural and transport properties of 80%NbN–20%SiO<sub>2</sub> granular films of different thickness has been carried out. It is found that to observe the superconducting transition requires samples of more than 750 nm thickness. The critical temperatures of superconducting transitions and the upper critical magnetic fields for the films of different thickness are approximately equal 4.5 K and 4.4 T. A crossover from 2D to 3D behavior of the temperature dependence of the upper critical magnetic field is revealed. Resistive transitions at low magnetic fields comply with the Arrhenius law. The broadening of resistive transitions in magnetic field is most probably induced by the magnetic flux creep. The magnetic field dependence of activation energy is obtained. Initial signs of the magnetic field-induced superconductor–insulator transition are observed at high magnetic fields.

PACS: **74.25.–q** Properties of superconductors;  
**74.81.–g** Inhomogeneous superconductors  
and superconducting systems, including electronic inhomogeneities;  
81.20.Fw Sol-gel processing, precipitation.

Keywords: sol-gel method, granular film, superconductivity, superconductor–insulator transition.