Физика низких температур, 1995, т. 21, № 2, с. 193–199 УДК 538.945

Локальные переключения состояния в неоднородных ВТСП материалах

И. И. Кулик, О. П. Балкашин

Физико-технический институт низких температур им. Б. И. Веркина НАН Украины, Украина, 310164, Харьков, пр. Ленина, 47

Статья поступила в редакцию 11 июля 1994 г.

Проведены систематические исследования скачков тока (напряжения) и гистерезисных особенностей на ВАХ различных типов контактов с Bi–ВТСП материалами. Измерения выполнены в большом интервале температур (1,6–200 К) и в широком частотном диапазоне ВЧ облучения (0–80 ГГц). Полученные результаты объясняются в рамках тепловой модели.

Проведено систематичні дослідження стрибків струму (напруги) та гістерезісних особливостей ВАХ різних типів контактів з Bi–ВТНП матеріалами. Вимірювання виконано у великому інтервалі температур (1,6–200 К) та в широкому частотному діапазоні ВЧ опромінювання (0–80 ГГц). Одержані результати пояснюються в рамках теплової моделі.

Многие авторы отмечали существование значительных гистерезисных эффектов в электропроводности контактов из $Bi_2Sr_2CaCu_2O_y$. Неоднозначные вольт-амперные характеристики обнаружены для различных типов проводящих структур с концентрацией тока: туннельных контактов, контактов с непосредственной проводимостью, микромостиков [1–6]. Предлагалось несколько механизмов для объяснения наблюдаемых явлений: образование центров проскальзывания фазы, разрушение сверхпроводимости туннельных контактов между отдельными сверхпроводящими зернами, тепловые эффекты.

В настоящей работе мы провели систематические исследования скачкообразных и гистерезисных особенностей ВАХ различных типов контактов из ВТСП материалов. Измерения выполнены в большом интервале температур и широком частотном диапазоне ВЧ облучения. Полученные результаты позволяют интерпретировать наблюдаемые эффекты в рамках тепловой модели.

Техника эксперимента

Измерения электропроводности выполнялись на геометрических структурах двух конфигураций: мостиках на пленках $Bi_2Sr_2CaCu_2O_y$ и $YBa_2Cu_3O_\delta$, а также контактах металлической иглы с пленкой толщиной d от 1 до 100 мкм или керамикой из ВТСП материала. Иглы для получения контактов приготавливались из нормальных (Ag, Cu) или сверхпроводящих (Ta, Nb) металлов. Радиус острия игл доводился электрохимическим травлением до 1–3 мкм. Однако описываемые ниже особенности ВАХ удавалось наблюдать, как правило, более отчетливо после многократных касаний иглы поверхности керамики или после ее значительного углубления в пленку, что приводило к увеличению контактной площади острия и деформации структуры ВТСП. Мостики изготавливались механическим скрайбированием пленок и имели ширину $w < 30$ мкм и длину $l < 40$ мкм. Образцы размещались непосредственно в жидком гелии при температурах 1,6–4,2 К или в его парах в интервале 4,2–200 К.

Для регистрации ВАХ использовались как схема с источником тока, так и схема с заданным напряжением. Характеристики мостиков измерялись четырехзондовым методом, при этом контактные провода присоединялись к пленкам при помощи пятен серебряной пасты площадью ~ 1 мм^2. Контакты с пленками изучались квазичетырехзондовым методом: два провода присоединялись к различным местам на пленке, а два других — к металлической игле. Для контактов с массивной керамикой использовалась двухзондовая схема: одна пара проводов припаивалась к струбцине, обжимающей керамику с прокладками из индия, а другая пара — к игле. Высокочастотное электромагнитное излучение подводилось к образцу по коаксиальному кабелю (0,3–8 ГГц), заканчивающемуся петлей связи, либо по прямоугольному трехсантиметровому волноводу в диапазоне частот 9–80 ГГц. Температура измерялась полупроводниковым термометром, смонтированным вблизи образца.

© И. И. Кулик, О. П. Балкашин, 1995

Экспериментальные результаты

Основные экспериментальные результаты были получены на Bi-ВТСП материалах. Исходные образцы керамики и массивные мостики с геометрическими размерами превышающими 50 мкм имели температуру перехода в сверхпроводящее состояние ~ 85 K. С понижением температуры сопротивление уменьшалось, т. е. температурная зависимость проводимости имела металлический характер. На относительно узких мостиках ($w < 30$ мкм) и микроконтактах ВТСП со сверхпроводниками Nb и Ta стационарный эффект Джозефсона не наблюдался. Статическое сопротивление R_s этих образцов при нулевом смещении варьировалось в пределах 0,1–1 кОм при температуре $T = 4{,}2$ K.

Измеренные в наших экспериментах вольт-амперные характеристики микроконтактов практически совпадали с аналогичными характеристиками узких мостиков. Их видоизменения с изменением температуры и частоты электромагнитного облучения также подобны. Идентичными являются характеристики контактов, созданных с использованием игл из сверхпроводящих и нормальных металлов. Замена керамики на пленку ВТСП различной толщины также не меняет общий вид ВАХ. Поэтому приведенные далее экспериментальные результаты в основном относятся к микроконтактам Ta — пленка ВТСП на основе висмута.

Типичные вольт-амперные характеристики исследованных образцов показаны на рис. 1. На начальном участке ВАХ наблюдается область постепенного уменьшения избыточного тока. При смещениях $V \sim 5$ мВ в некоторых образцах можно наблюдать участок отрицательного дифференциального сопротивления. Данный участок ВАХ является обратимым при изменении направления развертки приложенного к контакту напряжения.

При напряжениях $V \geq 10$ мВ наблюдается разделение ВАХ на множество отдельных экспоненциальных ветвей, хорошо описывающихся функциональными зависимостями вида

$$I_n = I_0 \left[\exp\left(|V|/a_n\right) - 1\right],$$

характерными для контактов металл — полупроводник, где n — номер ветви, а постоянные a_n имеют величину порядка долей вольта. При изменении постоянного смещения переходы с одной ветви на другую, показанные стрелками на рис. 1, происходят скачками при достижении некоторых критических значений тока или напряжения, при этом сопротивление изменяется на 10–30%. В специальном эксперименте с использованием переменного напряжения смещения и регистрацией ВАХ на осциллографе с разрешением $\sim 10^{-5}$ с нам не удалось обнаружить какую-либо зависимость сигнала от времени в области скачка сопротивления. Каждый скачок сопротивления при переходе с одной экспоненциальной ветви на другую сопровождается глубоким гистерезисом ВАХ и имеет соответствующий ему обратный перескок с уменьшением смещения при существенно меньшем значении напряжения. Это соответствие бывает трудно проследить из-за электромагнитных наводок, вызывающих переход сразу через несколько устойчивых состояний. На рис. 1,*б* величинами I_{jf} и I_{jb} обозначены значения тока, протекающего через образец, для одной петли гистерезиса при прямом и обратном переходе. Как правило, первый скачок сопротивления происходит при токе через образец порядка нескольких десятков мкА.

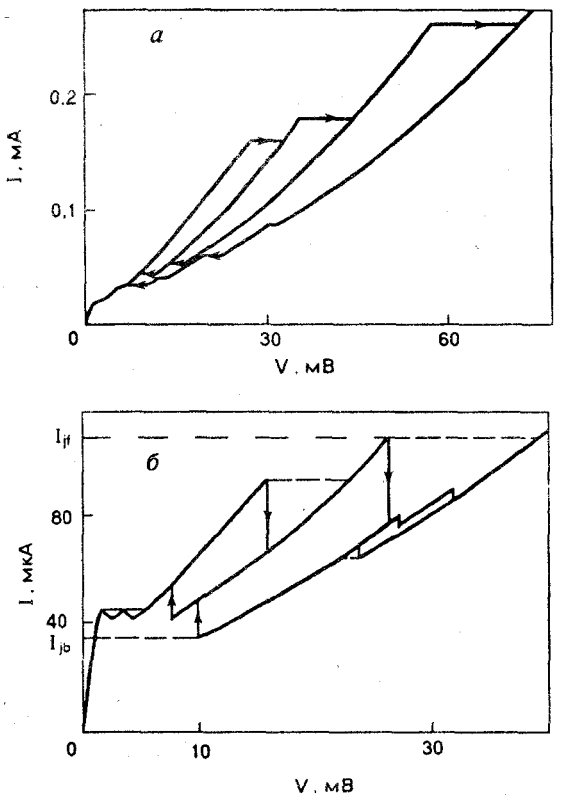

Рис. 1. Вольт-амперные характеристики контактов: Nb–Bi керамика, измеренная в режиме с источником тока (*а*); Ta–пленка Bi–ВТСП, измеренная в режиме с источником напряжения. Пунктиром изображена ВАХ этого же контакта, полученная с источником тока (*б*).

Существенные изменения ВАХ претерпевает при нагреве от 4,2 до 200 K. На начальном участке (рис. 2,*а*) наблюдается рост сопротивления, избыточный ток постепенно спадает до нуля при $T \sim T_c$, затем сопротивление образца начинает уменьшаться. При больших смещениях в области гистерезисных петель (рис. 2,*б*) с ростом температуры значения критических токов для прямого и обратного переходов постепенно сближаются и гистерезисная петля вырождается в обратимый ска-

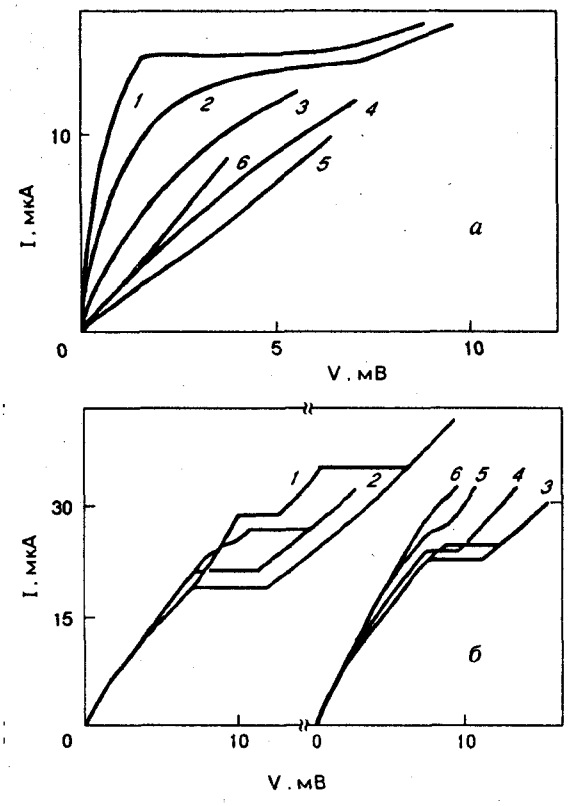

Рис. 2. Вольт-амперные характеристики при различных температурах T, K: область малых смещений — 4,2 (*1*), 18,2 (*2*), 32,1 (*3*), 55,5 (*4*), 126 (*5*), 200 (*6*) (*а*); область гистерезисной петли — 4,2 (*1*), 18,2 (*2*), 26,3 (*3*), 44 (*4*), 55 (*5*), 59,1 (*6*) (*б*).

чок сопротивления при $T \sim 40$ K. При дальнейшем повышении температуры обратимое переключение напряжения наблюдается при все бо́льших значениях тока. Постепенно уменьшаясь, оно исчезает при приближении температуры к T_c. Зави-

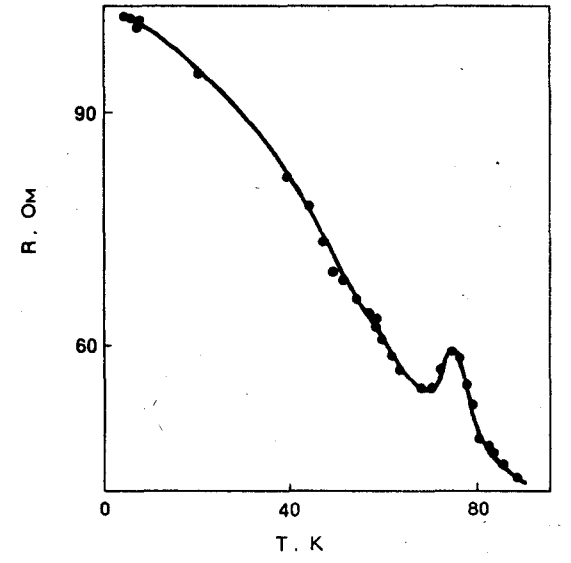

Рис. 3. Температурная зависимость статического сопротивления микроконтакта при большом смещении.

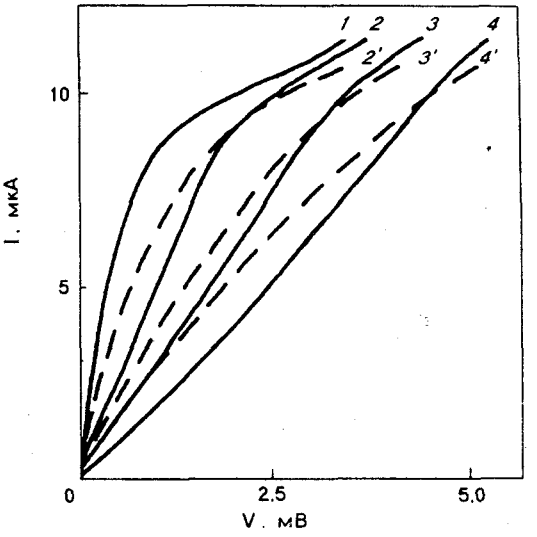

Рис. 4. Влияние внешнего облучения на начальный участок вольт-амперной характеристики: ВАХ без облучения (*1*); $f = 9{,}6$ ГГц (*1–4*); $f = 78$ ГГц (2′–4′). Мощность излучения возрастает от нулевого уровня в соответствии с порядком нумерации кривых, $T = 4{,}2$ K.

симость статического сопротивления микроконтакта от температуры $R_s(T)$, измеренная при постоянном смещении $V \sim 20$ мВ, приведена на рис. 3. Как видно из этого рисунка, на фоне монотонного уменьшения сопротивления наблюдается локальный максимум при приближении температуры к T_c. Для некоторых образцов указанная особенность имеет место в интервале температур $40\ \text{K} \lesssim T \lesssim 120$ K.

Исследования влияния высокочастотной модуляции приложенного к контакту напряжения выявили существование частотной дисперсии в поведении ВАХ при облучении в диапазоне от звуковых частот до 80 ГГц. При частотах облучения $f < f_0$, где $f_0 = 30$–50 ГГц для разных образцов, в области начального участка ВАХ наблюдается изменение знака кривизны кривой при постепенном увеличении мощности падающего на контакт излучения (рис. 4). На частотах, превышающих f_0, изменение знака кривизны не происходит.

При больших напряжениях в районе неоднозначности ВАХ постепенный рост мощности приводит к вырождению гистерезиса в обратимый скачок напряжения (при измерениях с источником тока), величина которого при дальнейшем увеличении интенсивности облучения уменьшается до нуля (рис. 5). Отмеченное выше значение частоты f_0 является граничным и для перестройки ВАХ в гистерезисной области. Для $f < f_0$ вырождение гистерезиса при увеличении мощности ВЧ облучения происходит в интервале токов $I_{jf} > I > I_{jb}$, как это можно видеть на рис. 5,*а*. Остающаяся на ВАХ ступенька напряжения при дальнейшем росте мощно-

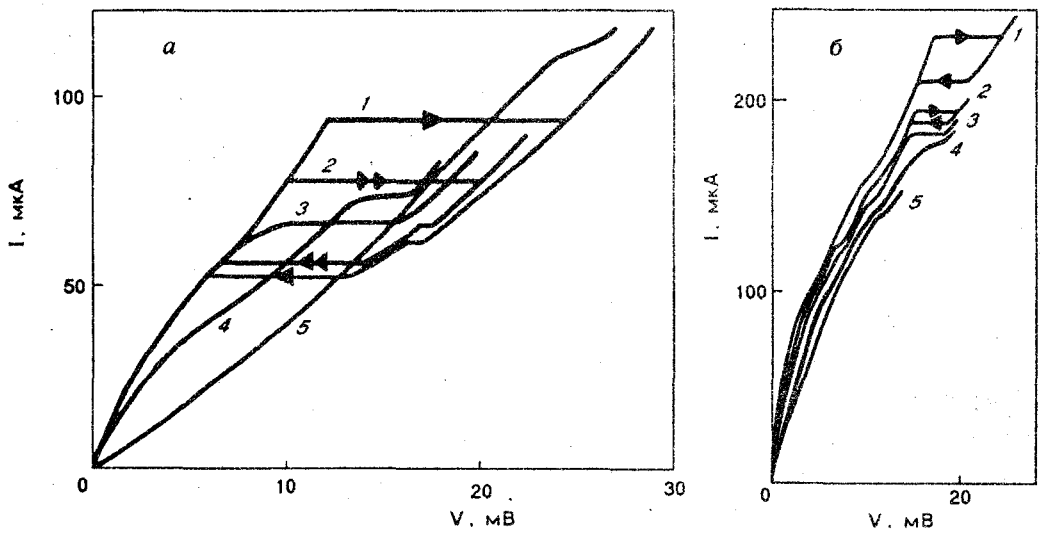

Рис. 5. Воздействие на неоднозначную область вольт-амперной характеристики внешнего облучения частотой f, ГГц: 9,6 (*а*); 78 (*б*); T = 4,2 К. Мощность излучения возрастает от нулевого уровня в соответствии с порядком нумерации кривых.

сти наблюдается при все бо́льших токах, при этом сопротивление образца уменьшается. В диапазоне частот $f > f_0$ вырождение гистерезиса имеет место при токах $I < I_{jb}$ (рис. 5,*б*), после чего скачок напряжения смещается в область меньших значений тока, а сопротивление образца увеличивается.

Описанные выше неоднозначные ВАХ наблюдались нами и на мостиках, приготовленных из поликристаллических пленок YBCO — ВТСП, однако обнаружить такие образцы удавалось значительно реже.

Обсуждение результатов

Независимость вида вольт-амперных характеристик от типа образца — (мостик или микроконтакт с нормальным (сверхпроводящим) металлом) свидетельствует о том, что наблюдаемые явления обусловлены свойствами самого ВТСП материала в небольшом объеме, в котором происходит концентрация транспортного тока. Как известно, исследованные нами образцы поликристаллических пленок и керамик представляют собой многосвязную неупорядоченную систему сверхпроводящих гранул с различными геометрическими размерами, соединенных слабыми джозефсоновскими связями со статистическим разбросом энергии связи межгранульных контактов. Пространственная неоднородность в металлооксидных сверхпроводниках, приготовленных по керамической технологии, усугубляется вследствие большой пористости (~ 20%) керамики и присутствия включений с полупроводниковым характером проводимости. Сильная пространственная неоднородность ВТСП обусловлена малой величиной длины когерентности параметра порядка $\xi = 3-30$ Å в этих материалах, поэтому любые структурные и фазовые неоднородности материала с размерами в несколько межатомных расстояний вызывают значительные пространственные вариации сверхпроводящей энергетической щели.

Наличие полупроводниковой фазы в наших образцах подтверждается экспоненциальной формой ВАХ на рис. 1 и термоактивационным характером зависимости $R(T)$ на рис. 3. Рассчитанные из подобных зависимостей величины полупроводниковой энергетической щели для различных образцов в диапазоне температур 40–80 К колеблются от долей до нескольких мэВ. Образование фазы с полупроводниковой проводимостью может быть вызвано как технологическими причинами, так и потерей слабосвязанного структурного кислорода при механическом разрушении ВТСП материала в процессе создания микроконтакта [7].

Как видно из начального участка ВАХ на рис. 1, 2, в наших образцах отсутствует сплошной сверхпроводящий токовый канал и проводимость осуществляется через полупроводниковую прослойку. Хотя для некоторых контактов ВАХ в этой области можно описать степенной функцией вида $V \sim I^{\alpha}$, где показатель степени α чуть больше двух, что характерно для перехода в резистивное состояние сетки слабых джозефсоновских связей [8], нестационарный эффект Джозефсона при СВЧ облучении этих контактов мы не наблюдали. С повышением температуры (см. рис. 2,*а*), с одной стороны, происходит уменьшение сверхпроводящей компоненты транспортного тока, а с другой — возрастает проводимость через полупроводниковую прослойку.

Как уже упоминалось, скачки сопротивления и гистерезисные петли с неоднозначной зависимостью тока (напряжения) от приложенного постоянного смещения на микроконтакте, наблюдаю-

щиеся при смещениях $V \geq 10$ мВ, постепенно исчезали при приближении к T_c. Никакие новые особенности при больших смещениях и температурах вплоть до T_c на ВАХ не возникали. Поэтому происхождение указанных особенностей следует отнести за счет разрушения сверхпроводящего состояния в отдельных гранулах. Из экспериментальных данных на рис. 2 следует, что с ростом температуры уменьшаются значения мощности электрического тока $P_c = I_j V_j$, рассеиваемой в контакте в области скачка сопротивления. Если считать, что скачки сопротивления имеют тепловую природу и температура в окрестности отдельной гранулы определяется температурой термостата (объемом с гелием) и джоулевым энерговыделением в этой области, то связь критической мощности с температурой термостата должна иметь вид $\beta P_c + T = T_c$. Подобная зависимость для одного из контактов приведена на рис. 6. Необходимо, однако, заметить, что для данного образца ВАХ имела линейный участок вплоть до первого скачка сопротивления. Как правило, линейная зависимость $P_c(T)$ видоизменялась вкладами от температурных зависимостей как сверхпроводящего тока, протекающего через слабые связи, так и проводимости полупроводниковой прослойки.

Тепловой механизм наблюдаемых эффектов подтверждается и аномальным поведением температурных зависимостей избыточного тока на начальном участке ВАХ и критической мощности P_c при переходе через λ-точку жидкого гелия вследствие существенного изменения условий теплоотвода от разогретой области контакта при $T < T_\lambda$.

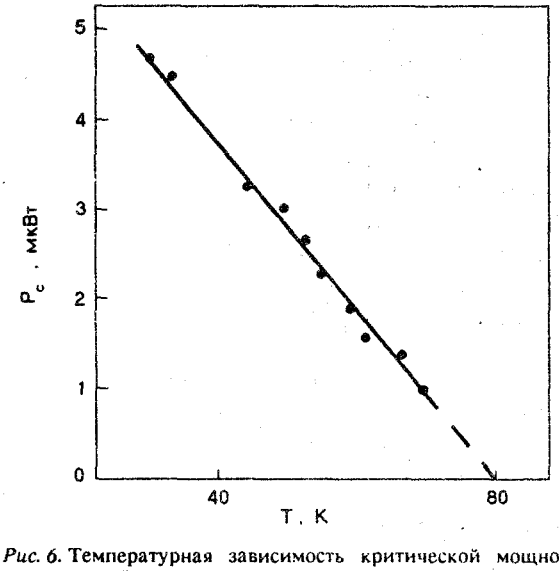

Рис. 6. Температурная зависимость критической мощности, рассеиваемой в микроконтакте, при первом переключении сопротивления.

Таким образом, эволюция состояния микроконтакта может быть представлена следующим образом. При малых смещениях по достижении критической плотности тока разрушается сверхпроводимость слабых межгранульных связей. В некоторых случаях, например см. рис. 1,*б*, образовавшаяся нормальная область расширяется с ростом смещения, и на ВАХ наблюдается участок с отрицательным дифференциальным сопротивлением, полностью обратимый при измерениях с источником напряжения. Благодаря присутствию последовательно включенного слоя с полупроводниковым характером проводимости начальный участок ВАХ всегда имел конечный наклон. Затем по мере роста тока увеличивается Джоулев разогрев полупроводниковых областей. Причем температура перегрева максимальна вблизи сверхпроводящих зерен из-за концентрации в них линий тока. При достижении T_c отдельные зерна начинают переходить в нормальное состояние и сопротивление образца скачкообразно возрастает даже при измерениях с источником напряжения. После разрушения сверхпроводимости какого-либо зерна происходит перераспределение транспортного тока в объеме ВТСП материала, однако Джоулева тепловыделения все еще достаточно для поддержания этого объема в нормальном состоянии. В дальнейшем перегретая область увеличивается за счет перехода в соседнем зерне и т. д. Для возвращения образца в сверхпроводящее состояние необходимо значительно уменьшить транспортный ток, чтобы вся нормальная область, включающая несколько зерен, охладилась до температуры ниже T_c. Безусловно, реальная ситуация в микроконтакте усложняется вследствие пространственного растекания тока от места контакта, наличия пустот в материале и изменения условий теплоотвода от горячей зоны при фазовых переходах в зернах. Наблюдавшаяся для некоторых контактов квазипериодичность скачков сопротивления, вероятнее всего, объясняется близкими геометрическими размерами различных сверхпроводящих зерен.

Отметим, что подобные ВАХ с гистерезисными петлями, охватывающими несколько резистивных переходов, наблюдали авторы работы [9] при тепловом разрушении сверхпроводящего состояния под влиянием транспортного тока в композитных проводниках на основе сплава Nb–Ti.

Далее остановимся на результатах экспериментов по ВЧ облучению контактов. Учитывая обнаруженную дисперсию отклика на частотах $f > 30$–50 ГГц, рассмотрим вначале данные для области частот $f < f_0$. Поведение вольт-амперных характеристик при различных уровнях мощности в этом диапазоне хорошо описывается процессом классического выпрямления переменного ВЧ тока устройством с нелинейной электропроводностью.

В квазистатическом приближении ВАХ нелинейного элемента при электромагнитном облучении определяется выражением вида [10,11]

$$\bar{I}(V) = \frac{\omega}{\pi} \int_{-\pi/2}^{\pi/2} I_0(V_0 + v_1 \sin \omega t)\, dt \ , \qquad (1)$$

где $I_0(V_0)$ — статическая ВАХ без облучения; v_1 — амплитуда гармонического сигнала, наведенного внешним полем, $v_1 \ll V_0$. Результаты расчета по формуле (1) показаны на рис. 7,*а* для нескольких значений переменного напряжения v_1. Расчет выполнялся для некоторой модельной ВАХ (кривая *1* на рис. 7,*а*), совпадающей по форме с экспериментальными кривыми при малых смещениях на контакте. Как видно из сравнения семейства кривых на рис. 7,*а* с экспериментальными данными для частоты излучения $f = 9{,}6$ ГГц на рис. 4, поведение ВАХ в области $V \to 0$ действительно определяется процессами классического детектирования электромагнитного излучения.

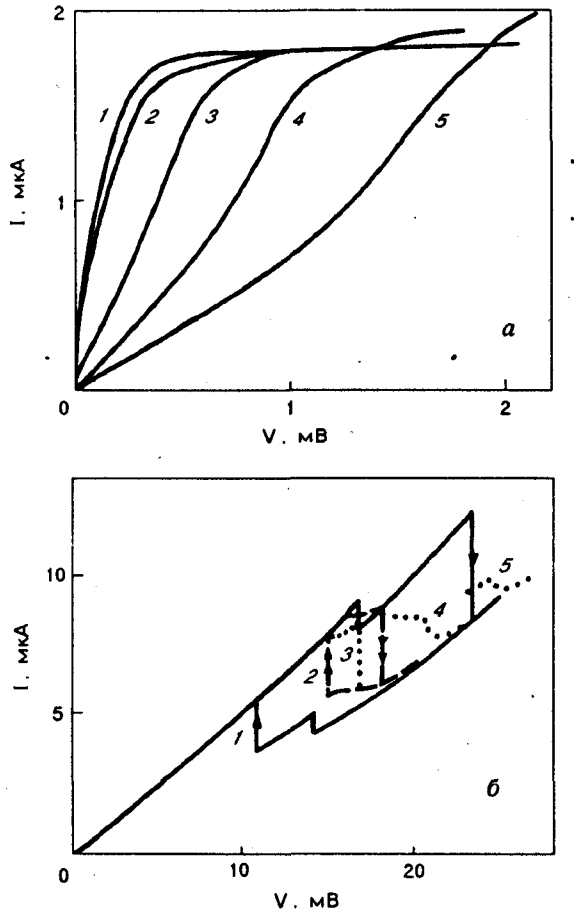

Рис. 7. Влияние модуляции напряжения смещения на ВАХ: *а* — результаты расчета для начального участка модельной ВАХ при амплитуде модуляции v_1, мВ: 0 (*1*); 0,2 (*2*); 0,4 (*3*); 1,0 (*4*); 1,8 (*5*); *б* — экспериментальные данные при модуляции смещения на звуковой частоте при амплитуде модуляции v_1, мВ: 0 (*1*); 0,36 (*2*); 0,5 (*3*); 1,0 (*4*); 1,3 (*5*).

Неоднозначность ВАХ в гистерезисной области затрудняет аналогичный расчет при больших смещениях на контакте, поэтому были выполнены специальные эксперименты по детектированию низкочастотного сигнала от звукового генератора ($f = 1{,}9$ кГц), результаты которых представлены на рис. 7,*б*. Как видно из этого рисунка, с ростом амплитуды низкочастотной модуляции v_1 гистерезисная петля вырождается в обратимый скачок при среднем между V_{jf} и V_{jb} значении напряжения либо тока, который при дальнейшем увеличении v_1 смещается в сторону больших напряжений. Такое поведение сигнала хорошо согласуется с модификацией ВАХ в гистерезисной области под действием СВЧ облучения при частотах $f < f_0$ (см. рис. 5,*а*).

При облучении в диапазоне частот $f > f_0$ наблюдается совершенно иное поведение ВАХ. С увеличением интенсивности облучения на начальном участке ВАХ растет дифференциальное сопротивление, а гистерезисная петля смещается в сторону меньших токов и напряжений (рис. 4, 5,*б*). Сравнивая эти данные с результатами, полученными для различных температур на рис. 2, следует заключить, что действие СВЧ облучения при $f > f_0$ сводится к разогреву контактной области или отдельных ее участков.

В работе [5] сообщалось о наблюдении эффектов переключения напряжения большой амплитуды в поликристаллических ВТСП пленках Bi системы. Характерные времена процесса переключения составляли ~ 1 мс. Авторы работы интерпретировали свои результаты на основе тепловой модели, как следствие перехода сверхпроводящих зерен в нормальное состояние.

В наших экспериментах зафиксированы значительно меньшие характерные времена $1/\tau = f_0 \sim 4 \cdot 10^{10}\ \text{с}^{-1}$, которые значительно короче времени тепловой релаксации отдельных зерен с геометрическими размерами ~ 1 мкм. Воспользовавшись стандартными значениями термодинамических характеристик Bi–ВТСП при $T \sim T_c$, можно оценить характерный геометрический размер d из выражения [12]

$$d \sim (\lambda / c\rho f_0)^{1/2} \sim 100\ \text{Å} \ , \qquad (2)$$

где использованы значения теплопроводности $\lambda = 0{,}04$ Дж/(см·с·К), теплоемкости $c = 0{,}2$ Дж/(г·К), плотности $\rho = 4{,}5$ г/см^3. Столь малый размер областей, которые перегреваются под влиянием ВЧ облучения, по-видимому, характерен для полупроводниковых прослоек, разделяющих сверхпроводящие зерна.

Основные выводы

Исходя из полученных в данной работе результатов можно сделать вывод, что причиной скачкообразных и гистерезисных особенностей на ВАХ поликристаллических ВТСП образцов является фазовая неоднородность исследованных материалов. Концентрация тока в отдельных сверхпроводящих гранулах вызывает их переход в нормальное состояние. Существенную роль при этом играет разогрев протекающим через гранулу током прилегающего к ней дефектного полупроводникового слоя материала.

Авторы благодарны И. К. Янсону за постоянное внимание и поддержку при выполнении данной работы.

Работа частично финансировалась из Государственного фонда фундаментальных исследований при Государственном комитете Украины по вопросам науки и технологий.

1. A. Th. A. M. de Waele, W. A. Draisma, H. J. van Schevicoven, R. W. van der Heijden, D. M. de Leeuv, C. A. H. A. Mutsaers, and G. P. J. Geelen, *Physica* **C153–155**, 621 (1988).
2. Л. Ф. Рыбальченко, В. В. Фисун, Н. Л. Бобров, М. Б. Космына, А. И. Мошков, В. П. Семиноженко, И. К. Янсон, *ФНТ* **15**, 95 (1989).
3. T. Walsh, J. Moreland, and R. H. Ono, *Phys. Rev.* **B43**, 11492 (1991).
4. О. В. Карпов, М. С. Чубаров, В. А. Шилов, *Письма в ЖТФ* **17**, 36 (1991).
5. В. Л. Бакуменко, Е. Д. Бекешко, Л. Н. Курбатов, В. И. Михасько, *Сверхпроводимость: физика, химия, техника* **4**, 1594 (1991).
6. О. П. Балкашин, И. И. Кулик, в кн.: *3-е Всесоюз. совещ. по высокотемпературной сверхпроводимости*, Харьков (1991), с. 81.
7. О. Ф. Поздняков, В. П. Редков, Ю. Г. Носов, В. Н. Осипов, В. Н. Гурин, в кн.: *3-е Всесоюз. совещ. по высокотемпературной сверхпроводимости*, Харьков (1991), с. 56.
8. В. Н. Скоков, В. П. Коверда, Н. М. Богданов, А. А. Дик, *Письма в ЖТФ* **16**, 70 (1990).
9. A. A. Akhmetov and V. P. Baev, *Cryogenics* **24**, 67 (1984).
10. J. R. Tucker, *IEEE J. Quantum Electron.* **QE-15**, 1234 (1979).
11. А. Н. Омельянчук, И. Г. Тулузов, *ФНТ* **9**, 284 (1983).
12. Г. Карлсроу, Д. Егер, *Теплопроводность твердых тел*, Наука, Москва (1964).

Local state changes in nonhomogeneous HTSC materials

I. I. Kulik and O. P. Balkashin

Systematic investigations of current (voltage) jumps and hysteresis singularities in the *I-V* curves of different Bi-based HTSC contacts were performed. The measurements were made in a wide temperature interval (1,6–200 K) at rf radiation frequency ranged from 0 to 80 GHz. The obtained results were explained in the framework of the heating model.