

УДК 621.382

ОДНОВРЕМЕННАЯ РЕГИСТРАЦИЯ РЕЗИСТИВНЫХ ПЕРЕХОДОВ ДВУХ- И ЧЕТЫРЕХ-ЗОНДОВЫМ МЕТОДАМИ В ОБРАБОТАННОМ ЛАЗЕРОМ Sr-Ru-O

А.М. ГУЛЯН¹, В.Р. НИКОГОСЯН², Д. ВАН ВЕХТЕН³, К.С. ВУД⁴

¹ Физикс Арт Франтьерс, Аштон, Мэриленд, США

² Институт физических исследований НАН Армении, Аштарак

³Офис ВМФ США, Арлингтон, Вирджиния, США

⁴Лаборатория ВМФ США, Вашингтон, округ Колумбия, США

(Поступила в редакцию 23 июля 2007 г.)

Для подтверждения ранее полученных данных о возможном существовании высокотемпературной сверхпроводимости в обработанных лазером образцах Sr-Ru-O, проведены одновременные резистивные измерения двухзондовым и четырехзондовым методами, используя образцы с полосковой геометрией обработки поверхности, в отличие от мостиковой, которая применялась в первых образцах. В одном из образцов был зарегистрирован переход сверхпроводящего типа с началом при ~250 K, что согласуется с ранее полученными результатами. Представлены также новые данные об изготовлении образцов.

1. Введение

В предыдущей работе [1] приведены экспериментальные данные, обосновывающие предположение о возникновении сверхпроводимости в обработанной лазером, легированной системе Sr-Ru-O при температурах выше 200 K, в частности, четырехзондовые резистивные переходы до состояния с $R=0$. Хотя такие наблюдения являются необходимым условием для доказательства сверхпроводимости, измерение четырехзондовым методом имеет недостаток: в образцах с размерностью больше единицы ток может, в принципе, течь по пути, вдоль которого не генерируется напряжение между вольтовыми контактами. Простой пример тому – трещина, которая может возникнуть при охлаждении (показано на рис.1) и привести к ошибочным выводам.

По этой причине измерения четырехзондовым методом могут вызывать споры. Дополнительные двухзондовые измерения¹, несмотря на недоста-

¹ Мы признательны Dr.T. Geballe и участникам его семинара в Стенфорде за предложение идеи двухзондовых измерений.

ток, обусловленный добавочным сопротивлением контактов, имеют то преимущество, что измеряют разность напряжения непосредственно вдоль пути тока. Таким образом, одновременные двух- и четырехзондовые измерения весьма желательны как дополняющие друг друга.

2. Изготовление образца

При обработке предыдущих образцов применялась так называемая Х-геометрия, которая приведена на рис.1. Новый образец для двухзондовых измерений был изготовлен в другой геометрии (обработанная лазером зона имеет вид прямоугольной полоски) из тонкой неполированной (сколотой) пластины толщиной около 100 мкм из объемного монокристалла² Sr_2RuO_4 (рис.2). Те же металлические пленки были напылены на поверхность пластины и обработаны лазером, как описано в [1]. Тщательный EDX (энергодисперсионный рентгеновский) анализ наших предыдущих образцов показал, что имеется тонкий слой Ni-Fe-Cr (нихрома) под слоем серебра³. Изготовители обработанных лазером образцов напылили этот слой, чтобы усилить адгезию пленок серебра к кристаллам.

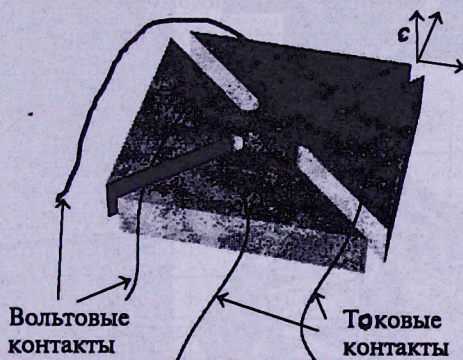


Рис.1. В образцах с Х-геометрией, исследованных в [1], трещина могла привести к результату, похожему на «сверхпроводящий переход».

Мишень для напыления нихрома имела номинальный состав Ni ~ 10%, Fe ~ 68%, Cr ~ 17% и 5% – другие примеси (весовые проценты), а номинальная толщина напыленного слоя была 40–70 нм.

В [1] было разъяснено, что начальной целью являлось не получение или исследование высокотемпературной сверхпроводимости, а выполнение отдельного прикладного проекта [2] по использованию низкотемпературной триплетной сверхпроводимости, известной в Sr-Ru-O с 1990-ых [3]. Напыление слоя нихрома предназначалось для достижения этой начальной цели.

² Мы признательны Dr.Y. Maeno (Kyoto U.) за предоставление высококачественных монокристаллов.

³ Обнаружению этого мы обязаны Dr. S.-F. Cheng (NRL).

Однако для нынешней цели – выявления высокотемпературной сверхпроводимости в полученных образцах, нихром является усложняющим фактором. Были приложены большие усилия, чтобы избежать загрязнений магнитными примесями, а присутствие нихрома изначально не было замечено. Теперь, после его обнаружения, возникает вопрос, который уже поднят относительно напыленного Ag: влияет ли нихром каким-то образом на результаты? Его присутствие несомненно влияет и на магнитные измерения, и на объяснения. Оба вопроса должны быть отложены, пока высокотемпературная сверхпроводимость не будет доказана без каких-либо сомнений.

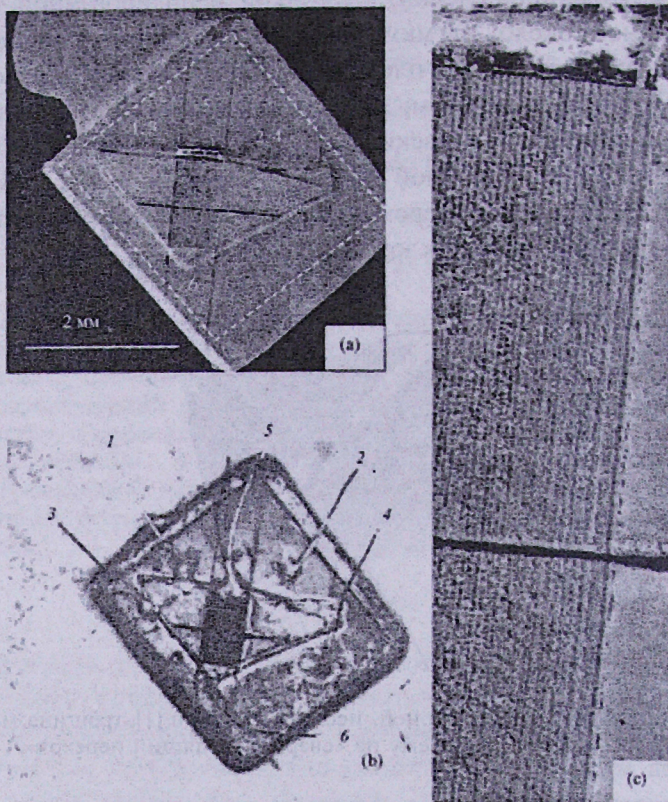


Рис.2. Образец L13C128G1 с полосчатой геометрией: микрофотография и расположение контактов для одновременных двух- и четырех-зондовых измерений: токовые (1 и 2) и контакты для измерения напряжения (3 и 4), соответственно связанные через высокопроводящую пленку серебра, служат для двухзондовых измерений, контакты (5 и 6) связаны только через образец и создают (совместно с 1 и 2) цепь для четырехзондовых измерений.

В новом образце, показанном на рис.2, обработанная лазером область имеет бороздки в вертикальном (продольном) направлении. В горизонтальном (поперечном) направлении есть канавка, глубина которой меньше толщины образца. Канавка была сделана, чтобы воссоздать все условия, которые были в первых образцах. В ранее исследованных образцах с X-геомет-

рией [1] были четыре полудиагональные канавки, направленные к центру (см. рис.1). В данной X-геометрии они могли содействовать или быть полностью ответственны за резистивный переход, позволяя сверхтоку течь только по стенкам канавки и обнуляя выходное напряжение. Более того, лазерный факел обычно имеет максимальное влияние на стенки внутри канавки и именно там сильнее всего модифицирует свойства материала. Поскольку открытие переходов в начальных образцах было случайным, минимизация отклонений от условий, использованных при создании начальных образцов, увеличивает шанс воспроизведения их своеобразных свойств.

Дополнительные лазерные разрезы образуют четыре серебряные контактные площадки, связанные через образец (рис.2а): левую и правую треугольные площадки (обозначенные как 1, 3 и 2, 4, соответственно) и верхнюю (5) и нижнюю (6) прямоугольные площадки в центре. Области вне пунктира были механически удалены, чтобы электрическая связь всех площадок была только через образец. Контактные провода были установлены с помощью серебряной пасты, как показано на рис.2б.

3. Резистивные измерения

Для измерений мы применяли постоянный ток в 1 мА, изменяя его полярность каждые 12 секунд, чтобы исключить возможные термоэлектри-

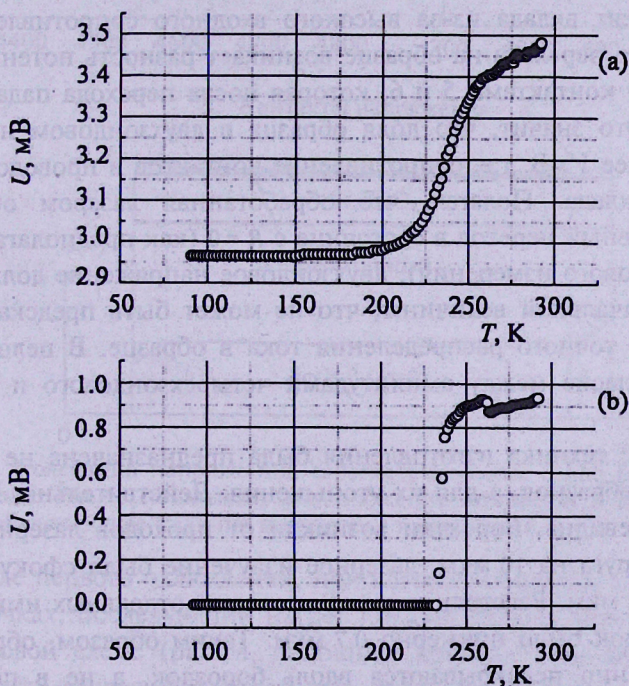


Рис.3. Переходы в двухзондовой (а) и четырехзондовой (б) конфигурации при первом охлаждении. Переходы зарегистрированы одновременно. По оси Y: напряжение между токовыми контактами 3 и 4 (а) и напряжение между контактами 5 и 6 (б).

ческие эффекты численным вычитанием отрицательной ветви выходного напряжения от положительной. Напряжение измерялось в продольной геометрии между контактами 3 и 4 на рис.2b (двухзондовое измерение с током, приложенным к площадкам 1 и 2) и в поперечной геометрии между контактами 5 и 6 (четырёхзондовое измерение с током, приложенным к контактам 1 и 2). Очень важно, что измерения производились одновременно, то есть с использованием различных цепей во время одного теплового цикла. Результаты показаны на рис.3.

4. Обсуждение

Рассмотрим более подробно полученные экспериментальные данные и убедимся, что переход в двухзондовой схеме не относится к контактам. Во-первых, заметим, что *резистивные переходы в обеих схемах начинаются одновременно* (и, следовательно, при той же температуре), так что очень вероятно, что переходы вызваны одним и тем же механизмом. Затем, как следует из рис.3а, выше перехода значение напряжения между токовыми контактами в двухзондовой схеме было порядка 3,5 мВ. Это значение обусловлено образцом, контактами между образцом и проводами и самими проводами. На переходе оно уменьшается на 0,5 мВ. В противоположность этому, напряжение при четырехзондовом измерении (рис.3b) обусловлено только распределением электрического потенциала в образце. (В этом случае контакты не вносят вклада из-за высокого входного сопротивления нановольтметра.) Выше перехода на образце возникает разность потенциалов порядка 1 мВ между контактами 5 и 6, которая после перехода падает практически до нуля. Это значит, что доля образца в двухзондовом напряжении составляет не менее 1 мВ, т.е. сопротивление контактов и проводов не имеет существенного вклада. Полагая, что обработанная лазером область испытывает резистивный переход в состояние с $R = 0$ (как предполагают результаты четырехзондового измерения), двухзондовое напряжение должно падать на долю своей начальной величины, что не может быть предсказано более точно без знания точного распределения тока в образце. В целом есть количественное согласие между амплитудами четырехзондового и двухзондового переходов.

Повторяем, техника изготовления была предназначена не для создания однородных образцов, а для их утоньшения. Действительно, неоднородность образца очевидна. Бороздки возникли от проходов лазерного луча и отстоят друг от друга на 10 мкм, лазерное излучение было сфокусировано в пятно размером 3 мкм. Расстояние между пятнами отдельных импульсов лазера вдоль бороздок было примерно 0,7 мкм. Таким образом, обработанные области существенно перекрываются вдоль бороздок, а не в перпендикулярном к ним направлении. Это предполагает, что более непрерывные сверхпроводящие линии образуются вдоль бороздок. Заметим, что направление между площадками 3 и 4 перпендикулярно к созданным лазером борозд-

кам (рис.2с), в то время как между площадками 5 и 6 направление в основном вдоль бороздок.

Что происходит при низких температурах после очевидного обнуления напряжения при четырехзондовом измерении? Как показывает рис.4, амплитуда напряжения при четырехзондовом измерении падает в 300 раз, но не до уровня шума: некоторые колебания тока все еще наблюдаются. Это происходит потому, что контакты для измерения напряжения не были помещены прямо на обработанный участок, а на небольшом расстоянии от него, в частности, контакт 6 (см. рис.2). Таким образом, как видно из рис.4с, после перехода вольтметр должен все еще чувствовать маленькое падение напряжения вдоль необработанной области между контактами и обработанным участком, как это и происходит (рис.4б).

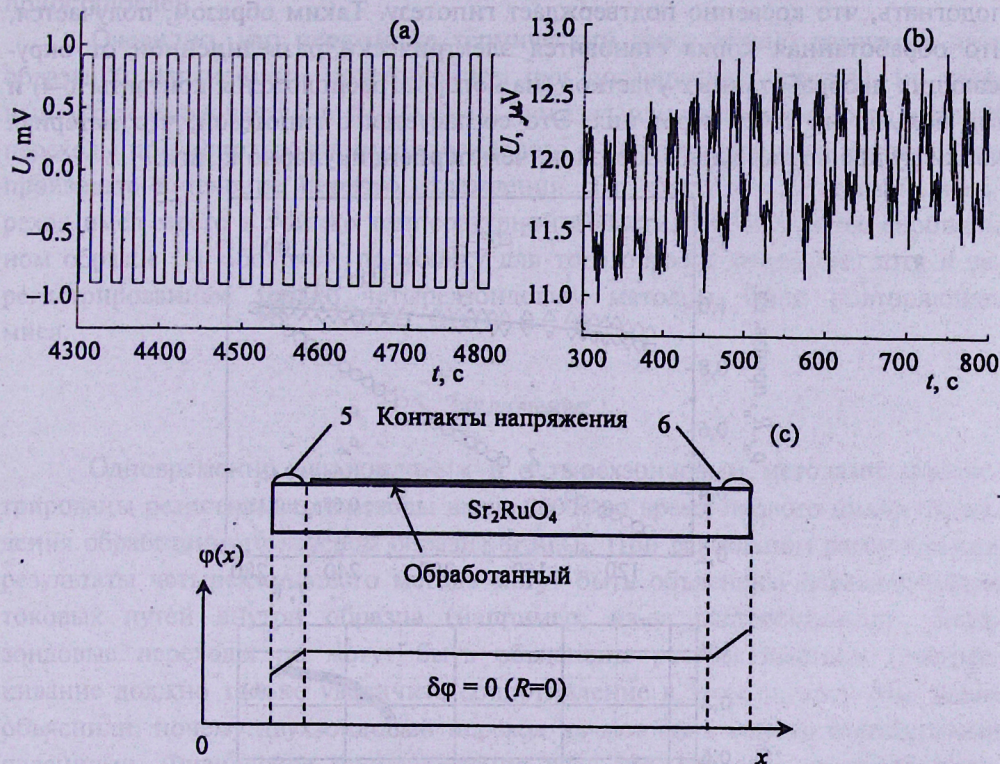


Рис.4. Колебания напряжения, зарегистрированные выше (а) и ниже (б) перехода. Рис.4с показывает расположение контактов и распределение $\phi(x)$, объясняющее наличие ненулевого напряжения.

После первого охлаждения, при котором переходы были явно видны в обоих цепочках, последующий нагрев показал сильно отличающийся наклон в двухзондовой схеме (рис.5а, сплошная кривая). При дальнейшем термоциклировании кривая $R(T)$ сместилась вверх на 0,2 Ома. Такое смещение в сопротивлении может быть связано с появлением в цепи двухзондового измерения дополнительного, не зависящего от температуры, сопротивления, например, изменением сопротивления контактов из серебряной пасты. Ги-

гипотеза о том, что эти последние кривые являются результатом тока, проходящего почти целиком через основной кристалл, лежащий внизу, а не через обработанную лазером корку, проверена следующим образом (рис.5а). Значения ρ_{ab} и ρ_c (удельные сопротивления кристалла в направлениях, перпендикулярных оси c кристалла и вдоль нее) у Sr_2RuO_4 имеют сильно отличающиеся температурные наклоны [4] и отличаются при комнатной температуре в 140 раз. Мы их сперва нормализовали по их значению при наивысшей температуре $T=280\text{ K}$ (рис.5а, кривые 1,2). Затем таким же образом нормализованные данные двухзондового сопротивления были подогнаны как линейная весовая сумма от ρ_{ab}^n и ρ_c^n , предполагая температурную независимость геометрических факторов и токовых путей (рис.5а, кривые 3,4). Как видно из рисунка, применением такой процедуры данные удается хорошо подогнать, что косвенно подтверждает гипотезу. Таким образом, получается, что обработанная корка становится электрически разъединенной от окружающих необработанных участков (на которых расположены контакты 1–4) и ток больше не течет через них. Это согласуется с гипотезой, что материал корки лучше связан вдоль бороздок, чем перпендикулярно к ним.

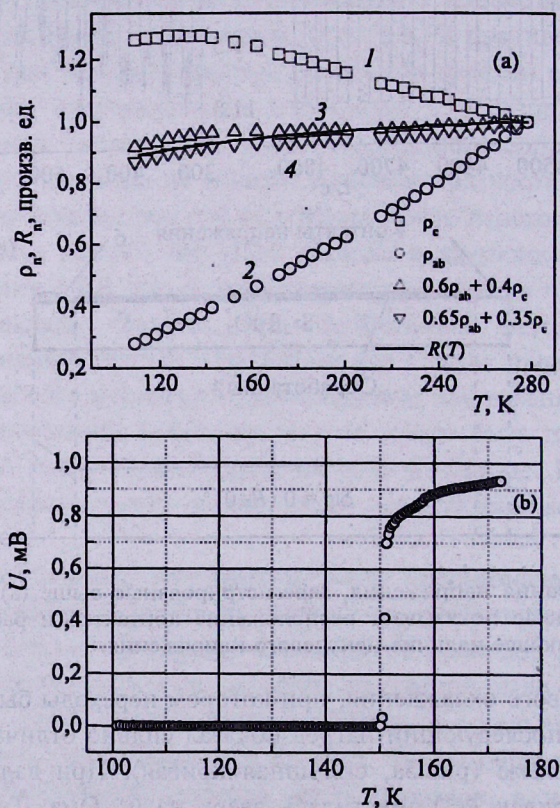


Рис.5. а) Представление нормализованного значения $R(T)/R(280\text{K})$ образца L13C128G1 при втором охлаждении в виде весовой суммы нормализованных значений $\rho_c(T)/\rho_c(280\text{K})$ и $\rho_{ab}(T)/\rho_{ab}(280\text{K})$. б) Напряжение между контактами 5 и 6 при первом нагреве.

Таким образом, не удивительно, что в направлении вдоль бороздок (контактные площадки 5 и 6) падение напряжения все еще зашунтировано возможными линиями сверхпроводящего тока (рис.5b), в то время как в перпендикулярном направлении сверхток не течет. Похоже, что растрескивание, которое вызывает рассоединение двухзондовой схемы, также уменьшает критический ток вдоль бороздок. Это должно объяснить видимое уменьшение T_c до 150 K в данных четырехзондового метода (по этой причине регистрация была остановлена при 170 K). Следующий цикл (второе охлаждение) производился спустя несколько дней. При возобновлении записей у нас была возможность проследить только один резистивный канал (мы выбрали двухзондовый, рис.5а, сплошная линия). Последующие циклы показали дальнейшее увеличение сопротивления, так что эксперимент был приостановлен.

Очевидно, что первый же термический цикл сильно разрушил этот образец (с дальнейшим повреждением при последующих циклах), но главный успех заключается в том, что он показал одновременные резистивные переходы при использовании двухзондового и четырехзондового методов, что произошло в течение первого охлаждения. Тот факт, что резистивный переход имел место в той же температурной области, как и в ранее сообщенном образце [1], ободряет, поскольку для того образца переходы, хотя и зарегистрированные только четырехзондовым методом, были повторяющимися.

5. Заключение

Одновременно двухзондовым и четырехзондовым методами зарегистрированы резистивные переходы выше 200 K во время первого цикла охлаждения обработанного лазером образца Sr_2RuO_4 . При отдельном рассмотрении результаты четырехзондового метода могут быть объяснены переключением токовых путей внутри образца (например, из-за растрескивания). Двухзондовые переходы не могут быть объяснены растрескиванием (растрескивание должно только увеличить сопротивление в этом случае). Мы также объяснили, почему двухзондовый переход не мог быть вызван контактными явлениями. Физическое происхождение всех наблюдаемых сигналов представляет существенный интерес для изучения высокотемпературной сверхпроводимости.

Данная работа поддержана частично грантами ONR N0001403WX20850, ONR ROPO и NATO SF 974082. Мы также выражаем глубокую благодарность многим нашим коллегам за их помощь, поддержку и интерес к данной работе.

ЛИТЕРАТУРА

1. A.M.Gulian, K.S.Wood, D.Van Vechten, J.Claassen, R.J.Soulen, Jr., S.Qadri, M.Osofsky, A.Lucarelli, G.Luepke, G.R.Badalyan, V.S.Kuzanyan, A.S.Kuzanyan, V.R.Nikoghosyan. <http://lanl.gov/cond-mat/0509313>.
2. A.M.Gulian, K.S.Wood. J. Opt. B, 5, S619 (2003).
3. Y.Maeno, H.Hashimoto, K.Yoshida. S.Nishizaki, T.Fujita, J.G.Bednorz, F.Lichtenberg. Nature (London), 372, 532 (1994).
4. A.P.Mackenzie, Y.Maeno. Rev. Mod. Phys., 75, 657 (2003).

ԼԱԶԵՐՈՎ ՄՇԱԿՎԱԾ Sr-Ru-O-ՈՒՄ ՌԵԶԻՍՏԻՎ ԱՆՑՄԱՆ ՄԻԱԺԱՍՏԱՆԱԿ ԳՐԱՆՑՈՒՄ ԵՐԿ- ԵՎ ԶԱՌԱՀՊԱԿԱՅԻՆ ՄԵԹՈԴՆԵՐՈՎ

Ա.Մ. ԳՈՒԼԻԱՆ, Վ.Ռ. ՆԻԿՈՂՈՍՅԱՆ, Դ. ՎԱՆ ՎԵԽՏԵՆ, Կ.Ս. ՎՈՒԴ

Լազերով մշակված Sr-Ru-O մնուլներում բարձրջերմաստիճանային գերհաղորդականության հնարավորության վերաբերյալ նախկինում ստացված տվյալները հաստատելու նպատակով իրագործվել են դիմադրության միաժամանակյա չափումներ երկհպակային և քառահպակային մեթոդներով, օգտագործելով մնուլների մակերևույթի մշակման շերտավոր ձևը, ի տարբերություն առաջին մնուլներում կիրառված կամրջակային ձևից: Նմուշներից մեկում գրանցվել է մոտ 250 Կ-ում սկսվող գերհաղորդականությանը մնամ անցում, որը համընկնում է նախորդ մնուլների վրա ստացված տվյալների հետ: Ներկայացված են նաև մոր տվյալներ մնուլների պատրաստման մասին:

SIMULTANEOUS RECORDING OF TWO- AND FOUR-PROBE RESISTIVE TRANSITIONS IN LASER-PROCESSED Sr-Ru-O

A.M. GULIAN, V.R. NIKOGHOSYAN, D. VAN VECHTEN, K.S. WOOD

To confirm previously reported evidence of high-temperature superconductivity in laser processed Sr-Ru-O, we performed simultaneous two-probe and four-probe resistive measurements, using bar-geometry samples. A superconducting-type transition with an onset at about 250K was recorded in one of the samples, consistent with our previously reported measurements in the X-bridge geometry. Some new data on samples preparation are also presented.