

关于 MgB_2/Al_2O_3 超导薄膜电阻转变 和各向异性的研究*

史力斌^{1)†} 任骏原¹⁾ 张凤云¹⁾ 张国华²⁾ 余增强³⁾

1) 渤海大学物理系, 锦州 121000)

2) 北京科技大学应用科学学院物理系, 北京 100083)

3) 北京大学物理学院, 北京 100871)

(2006 年 12 月 2 日收到, 2006 年 12 月 25 日收到修改稿)

利用电子束蒸发方法将 MgB_2 超导薄膜沉积到 $Al_2O_3(001)$ 衬底上. 采用标准的四引线法研究了磁场平行和垂直超导薄膜 ab 平面下的电阻转变. 一个激活能模型 $U(T, H) = U_0(1 - T/(T_c + \delta))(1 - H/H_{c2}(0))^n$ 被建立用来分析超导薄膜磁通线的激活能和电阻转变. 结果表明该模型能够在整个转变温度范围描述超导体磁通线的激活能和电阻转变. 另外, 利用多项式 $H_{c2}(t) = H_{c2}(0) + At + Bt^2$ 分析了 MgB_2/Al_2O_3 超导薄膜的上临界磁场, 获得了该超导薄膜的各向异性参数 $\gamma = H_{c2}^{ab}(0)/H_{c2}^c(0) = 2.26$.

关键词: MgB_2/Al_2O_3 , 超导体, 电阻转变, 各向异性

PACC: 7000, 7470, 7460, 7430E

1. 引 言

Akimitsu 发现了 MgB_2 超导材料具有超导电性, 从而掀起了研究 MgB_2 的热潮^[1-4]. MgB_2 超导材料具有很多新奇的特点. 首先, MgB_2 仅仅由 Mg 和 B 两种元素构成, 具有六角形的晶格结构, 满足第 191 号空间群, 其结构简单, 易于加工. 其次, MgB_2 属于 S-wave 超导体, 满足 BCS 理论, 其超导转变温度高达 39 K, 达到了 BCS 理论所预言的极限. 再次, MgB_2 在常温是很好的金属, 具有比铜酸盐超导体更大的相干长度, 因此对于 MgB_2 超导体不必考虑由颗粒边界引发的弱连接问题. 另外, MgB_2 超导体有两个不同的费米面, 对应该超导材料有两个不同的能隙结构. 这些特点结合 MgB_2 具有低的生产成本和轻的重量, 使其不论在理论研究还是在应用方面都具有十分重要的价值.

对于 MgB_2 第二类超导体, 电阻转变包含着极其丰富的物理内容, 由超导态向正常态的转变伴随着磁通线从磁通固态到磁通液态的转变. 通过分析

超导体的电阻转变可以获得超导体磁通动力学的重要信息. 超导体的磁通动力学不管是对基础研究还是对应用都具有十分重要的意义. 由于超导体磁通运动的复杂性, 目前人们对超导体磁通动力学还缺乏全面了解^[5-8]. 很多磁通动力学模型不能在整个温度范围内定量分析超导体的电阻转变.

通过分析超导体的电阻转变可以获得超导体的上临界磁场, 研究超导体上临界磁场的各向异性对超导体的应用也具有重要意义. 超导体上临界磁场的各向异性参数可以写为 $\gamma = H_{c2}^{ab}/H_{c2}^c = \lambda_c/\lambda_{ab} = (m_c/m_{ab})^{0.5} = \xi_{ab}/\xi_c$. H_{c2}^{ab} 和 H_{c2}^c 分别是磁场平行和垂直于超导体 ab 平面时的上临界磁场. λ , m , ξ 分别表示超导体的穿透深度, 有效质量和相干长度. 实验表明, 通过对超导单晶, 多晶, 薄膜等样品的分析可以获得超导体的各向异性参数. 对于高温超导体, 层状结构使其具有很强的各向异性^[9-11]. 例如, 对于 YBCO $\gamma \approx 6$; 对于 TBCCO $\gamma > 10$. 实验中也发现 MgB_2 的各向异性没有高温超导体明显^[12-14], $\gamma = 1.7-5.5$. 目前, 有关 MgB_2 超导材料的各向异性的研究正在进行当中.

* 国家自然科学基金(批准号: 30174006)资助的课题.

† E-mail: address: slb0813@sohu.com

本文利用电子束蒸发方法获得了 $\text{MgB}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ 超导薄膜,并且采用标准的四引线法对 $\text{MgB}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ 的电阻转变和各向异性的性质进行了系统地分析和讨论.

2. 实 验

实验中使用的 $\text{MgB}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ 薄膜是由电子束蒸发方法得到的,其制备过程如下:利用电子束蒸发在 $\text{Al}_2\text{O}_3(001)$ 衬底上交替沉积多层的 Mg 膜和 B 膜,实验中 Mg 膜和 B 膜的厚度比例为 1.5:1,其各层的厚度及沉积速率由镀膜机腔内的石英振荡器进行原位监控,沉积时衬底温度保持在室温,腔内气压小于 2×10^{-6} Pa,外退火的处理在管式炉中进行,将蒸镀好的前驱 Mg/B 多层膜和 Mg 条一起放入 Ta 盒,抽真空并用高纯 Ar 气反复清洗若干次后,充入 25 kPa 的 Ar 作为保护气体.管式炉快速(8—10 min)升温至设定温度(670—850℃),保温 30 min 后,迅速冷却至室温.肉眼观察所得样品均匀平整,褐色,呈金属光泽,该薄膜的厚度为 400 nm,样品的典型尺寸为 $10 \text{ mm} \times 10 \text{ mm}$.为了分析超导薄膜的表面形貌特征,用扫描电子显微镜(SEM)观察了 $\text{MgB}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ 超导薄膜的表面.由电子显微镜图片(见图 1)可以看出 $\text{MgB}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ 超导薄膜由颗粒构成,表面相对平整.

对于 c -轴方向生长的 $\text{MgB}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ 超导薄膜,薄膜的表面是超导体的 ab 平面.为了分析磁场对该超导薄膜电阻转变的影响,利用英国 Cryogenic 公司生产的低温强磁场测量系统,我们采用了标准的四引线方法对 $\text{MgB}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ 超导薄膜进行了磁场平行于薄膜平面(H_{\parallel})和磁场垂直于薄膜平面(H_{\perp})两种情况下的 $R-T$, $R-H$ 曲线的测量.在测量中银胶用来连接铜线和超导薄膜的表面,通过样品的电流保持恒定 $I = 1 \text{ mA}$,通过计算机监测样品两端的电压的变化来实现对样品的电阻测量. $R-T$ 曲线的测量程序如下:在 $T > T_c$ 时给薄膜外加一恒定磁场 H_1 ,保持磁场不变,使样品缓慢降温,在降温过程中测量 $H = H_1$ 时的 $R-T$ 曲线,然后将样品升温至 $T > T_c$,在 $T > T_c$ 时将外磁场由 H_1 变为 H_2 ,保持 H_2 不变,使样品缓慢降温测量 $H = H_2$ 时的 $R-T$ 曲线.依此测量可以得到一系列不同磁场下的 $R-T$ 曲线. $R-H$ 曲线的测量程序为:在 0 场中将样品由 $T > T_c$ 的某一温度缓慢冷却至测量温度 T_1 ,温度稳定后,扫场

测量 $T = T_1$ 时的 $R-H$ 曲线,扫场速度为 $0.015 \text{ T} \cdot \text{s}^{-1}$,测量完毕将磁场降为零,并且样品温度升至 $T > T_c$.缓慢冷却至 T_2 ,测量出 $T = T_2$ 时的 $R-H$ 曲线,再重复测量出不同温度下的 $R-H$ 曲线.

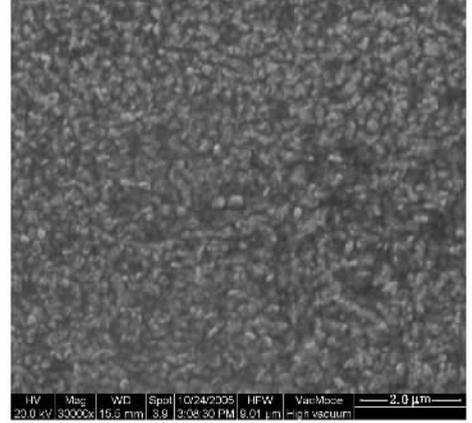


图 1 $\text{MgB}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ 的 SEM 图片

3. 电阻转变

图 2 显示了实验中测量的 $\text{MgB}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ 在不同磁场下的 $R-T$ 曲线.在图中把正常态电阻和转变电阻延长线的交点所对应的电阻定义为超导体的起始转变电阻, $R = R_N$.图中的点线表示的电阻是超导体起始转变电阻的一半,在本文中把超导体起始转变电阻下降到一半所对应的温度定义为超导体的转变温度.从图中可以看出在一定磁场中电阻随温度变化出现展宽现象,这种电阻展宽现象随磁场的增加变得更加明显.从图中也可以看到当磁场平行于薄膜 ab 平面和磁场垂直于薄膜 ab 平面时电阻随温度变化显现出不同的特点,这表明 $\text{MgB}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ 具有各向异性的特点.这是由于当磁场平行于薄膜 ab 平面时,超导体内的磁通线与薄膜表面平行,有较大的尺寸. ab 平面间的弱耦合超导区对磁通线能够起到有效的钉扎作用,使磁通线很难移动.当磁场垂直于薄膜的 ab 平面时,磁通线与薄膜的 ab 平面垂直,具有小的尺寸,在电流的驱动下容易发生移动.通过与文献中报道的高温超导薄膜的 $R-T$ 曲线比较^[15-18],可以看出 MgB_2 超导薄膜的电阻展宽现象没有高温超导薄膜明显,这是由于很高的超导转变温度,使得高温超导体具有很强的热涨落.

对于 $\text{MgB}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ 我们也研究了在某一恒定的

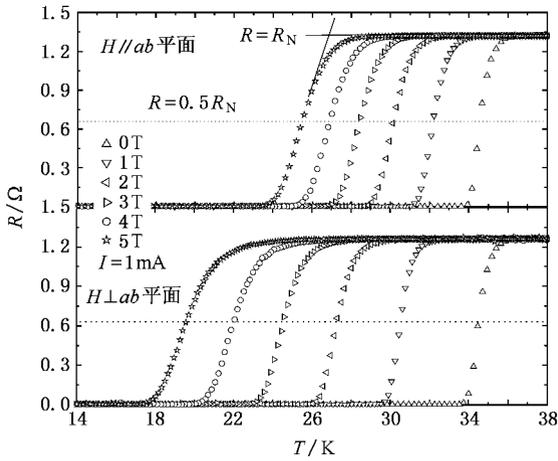


图2 $\text{MgB}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ 超导薄膜在不同磁场中的电阻随温度变化(上图表示的是磁场平行薄膜 ab 平面的结果,下图表示的是磁场垂直薄膜 ab 平面的结果. R_N 表示的是超导薄膜的起始转变电阻,图中点状线表示的电阻是起始转变电阻的一半)

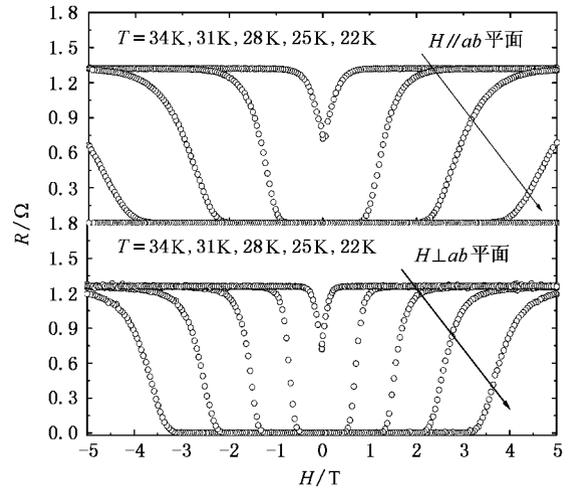


图3 $\text{MgB}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ 超导薄膜在不同温度下的电阻随磁场变化(上图表示的是磁场平行薄膜 ab 平面的结果,下图表示的是磁场垂直薄膜 ab 平面的结果)

温度下,薄膜电阻随磁场的变化关系(图3)。实验中我们分别分析了磁场与超导薄膜 ab 平面平行和垂直的两种情况。在图3中把起始转变电阻下降到一半所对应的磁场定义为超导体在该温度下的上临界磁场。两种情况有共同的特点是在较低温度时超导薄膜的上临界磁场较大,随着温度的升高,超导薄膜的上临界磁场降低。实验结果也表明在磁场平行于超导薄膜的 ab 平面时,在一定温度下的上临界磁场要高于磁场垂直于 ab 平面时的上临界磁场。从图3的实验结果表明超导体随着磁场的增加,有效激活能减小,磁通运动增强,在宏观上表现为超导薄膜的电阻增加。当磁场增加到一定值时,有效激活能为零,磁通脱离束缚,此时对应超导体处于正常态,电阻随磁场变化减小。

超导体的电阻转变可以用热助磁通流动来解释^[5]。按照超导体的热助磁通流动理论,磁通线的蠕动率可以写为

$$r = 2\omega \exp(-U(T, H)/k_B T) \sin(\pi J(T, H)/k_B T J_c), \quad (1)$$

ω 是磁通线的特征频率, k_B 是玻尔兹曼常数, J 和 J_c 分别是超导体的电流密度和临界电流密度, $U(T, H)$ 是磁通线的激活能。由方程(1)可以进一步得到超导体电阻率与激活能的关系

$$\rho = \rho_0 \exp(-U(T, H)/k_B T),$$

其中 $\rho_0 = 2vB U(T, H)/k_B T J_c$, v 是磁通线移动的速度, B 是磁感应强度。由电阻率与激活能的关系可

以把电阻与激活能的关系写为

$$R/R_0 = \exp(-U(T, H)/k_B T), \quad (2)$$

R_0 近似等于超导体的起始转变电阻($R_0 \approx R_N$)。由上述电阻与激活能的依赖关系可以得到

$$U(T, H)/k_B = -T \ln(R/R_0),$$

这结果显示在图4中(见图4中的符号线)。在图4中可以看出随着温度和磁场的增加磁通线的激活能降低。如果认为 $T \rightarrow T_c$ 或 $H \rightarrow H_{c2}(0)$ 时 $U \rightarrow 0$, 一个激活能模型能被建立用来分析实验结果

$$U(T, H) = U_0 (1 - T/(T_c + \delta)) (1 - H/H_{c2}(0))^m, \quad (3)$$

U_0 是 $T = 0 \text{ K}$ 和 $H = 0 \text{ T}$ 时的激活能, δ 是超导转变宽度的一半, T_c 是超导体的中点转变温度, $H_{c2}(0)$ 是超导体在绝对零度时的上临界磁场, m 和 n 是拟合参数。在本文 δ , T_c , $H_{c2}(0)$ 可以通过分析图2中的超导薄膜的电阻转变获得,对于 $H_{c2}(0)$ 的结果可详见下节的各向异性部分。为了确定方程(3)中的参数,首先通过拟合图4中激活能在 $H = 0 \text{ T}$ 时的数据可以确定参数 $n = 4$ 和 $U_0 = 5 \times 10^6 k_B$ 。其次通过拟合激活能在磁场 $H = 1, 2, 3, 4, 5 \text{ T}$ 的数据参数 m 能被得出,当磁场平行于薄膜 ab 平面时 $m = 25$, 当磁场垂直于薄膜 ab 平面时 $m = 16$ 。在图4中可以看出我们的激活能模型能够与 $-T \ln(R/R_0)$ 结果进行很好的拟合。

通过对激活能数据拟合可以看到参数 m 联系着磁场的方位。为使该激活能模型能够适合不同方

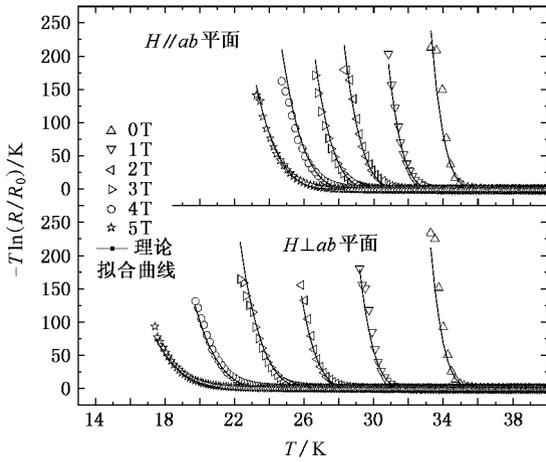


图 4 磁通线激活能与温度的依赖关系(图中符号是 $-T \ln(R/R_0)$ 的结果. 实线是激活能模型的拟合曲线. 上图表示的是磁场平行薄膜 ab 平面的结果, 下图表示的是磁场垂直薄膜 ab 平面的结果)

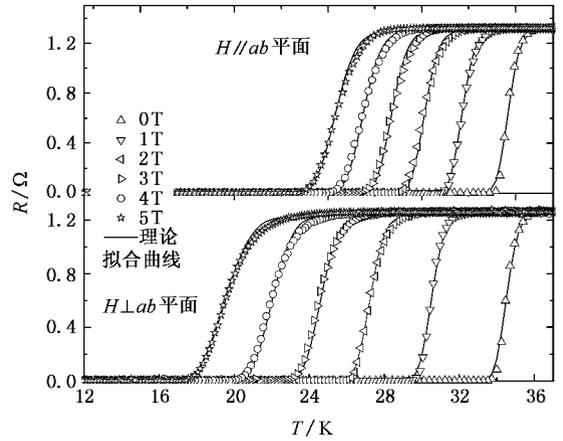


图 5 MgB_2/Al_2O_3 超导薄膜在不同磁场中的电阻随温度变化曲线(符号线是实验数据, 实线是理论拟合曲线. 上图表示的是磁场平行薄膜 ab 平面的结果, 下图表示的是磁场垂直薄膜 ab 平面的结果)

位的磁场, 各向异性角参量被引入 $\epsilon = \sin^2 \theta + 1.25^2 \cos^2 \theta$ 和 $m = 16\epsilon$. θ 是薄膜 ab 平面与磁场的夹角. 知道了激活能模型的最终表达式, 转变电阻与温度的依赖关系可以写为

$$R = R_0 \exp\left(-U_0(1 - T(T_c + \delta))^n \times (1 - H/H_c(0))^{6\epsilon} / k_B T\right) \quad (4)$$

利用方程(4)可以拟合电阻随温度变化的实验数据. 图 5 中的符号线是实验中测量的实验数据, 实线是用方程(4)的拟合曲线. 通过拟合 MgB_2/Al_2O_3 电阻随温度的变化, 参数 R_0 能够被得出, 当磁场平行薄膜 ab 平面时 $R_0 = 1.28\Omega$, 当磁场垂直于薄膜 ab 平面时 $R_0 = 1.22\Omega$. 从图 5 可以看出我们提出的激活能模型在整个转变温度范围内能够很好地描述超导薄膜电阻随温度的变化.

为了进一步证实激活能模型的有效性, 我们用激活能模型标度 $R(T)$ 曲线和 $-T \ln(R/R_0)$ 曲线, 从图 6, 7 中可以看出在整个转变温度范围内电阻和激活能曲线能被标度到相同的高度. 在图 6 和图 7 中不同磁场下的符号线的长度近似等于超导体的转变宽度. 图 6, 7 的结果表明我们建立的激活能模型能够很好地标度超导体磁通线的激活能和电阻随温度的变化, 这表明激活能模型是合理的.

4. 各向异性

超导体在转变温度所对应的磁场是超导体的上

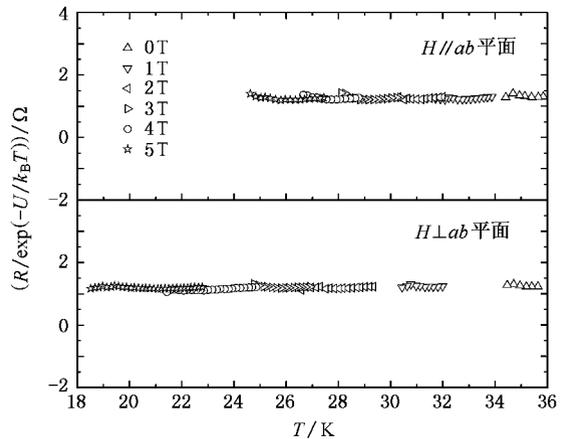


图 6 MgB_2/Al_2O_3 超导薄膜在不同磁场中 $R/\exp(-U/k_B T)$ 与温度的依赖关系(上图表示的是磁场平行薄膜 ab 平面的结果, 下图表示的是磁场垂直薄膜 ab 平面的结果)

临界磁场. 通过对图 2 的数据进行分析可以获得 MgB_2/Al_2O_3 在不同约化温度下的上临界磁场: 当磁场平行于超导薄膜 ab 平面时, $H_{c2}^{ab}(1) = 0$; $H_{c2}^{ab}(0.93) = 1\text{ T}$; $H_{c2}^{ab}(0.87) = 2\text{ T}$; $H_{c2}^{ab}(0.82) = 3\text{ T}$; $H_{c2}^{ab}(0.78) = 3\text{ T}$; $H_{c2}^{ab}(0.74) = 5\text{ T}$. 当磁场垂直于超导薄膜 ab 平面时, $H_{c2}^c(1) = 0$; $H_{c2}^c(0.88) = 1\text{ T}$; $H_{c2}^c(0.79) = 2\text{ T}$; $H_{c2}^c(0.71) = 3\text{ T}$; $H_{c2}^c(0.64) = 4\text{ T}$; $H_{c2}^c(0.57) = 5\text{ T}$. 为了能够获得该超导材料在绝对零度时的上临界磁场, 一个多项式被用来拟合不同约化温度下的上临界磁场的的数据,

$$H_c(t) = H_c(0) + At + Bt^2, \quad (5)$$

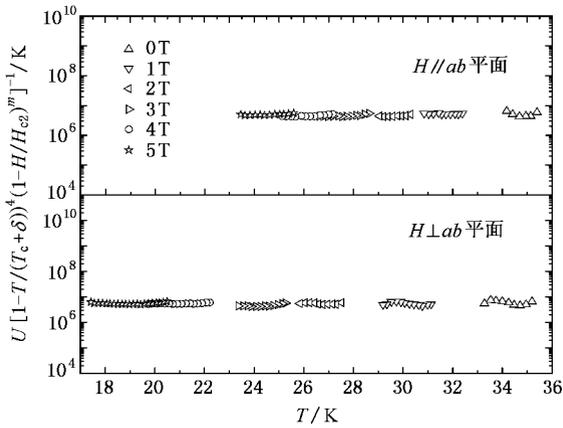


图7 $\text{MgB}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ 超导薄膜在不同磁场中 $U[(1 - T/(T_c + \delta))^4 \times (1 - H/H_{c2}(0))^m]^{-1}$ 与温度的依赖关系(上图表示的是磁场平行薄膜 ab 平面的结果,参数 $m = 25$. 下图表示的是磁场垂直薄膜 ab 平面的结果,参数 $m = 16$)

其中 A, B 是与磁场方向和超导材料性质相关的参数, $t = T/T_c(0)$ 是约化温度. 通过用此多项式分析不同约化温度下的上临界磁场的的数据(见图8),我们可以获得 $H_{c2}^{ab}(0) = 37.78 \text{ T}$, 其中参数 $A = -63.04 \text{ T}$, $B = 25.27 \text{ T}$ 和 $H_{c2}^c(0) = 16.73 \text{ T}$ 参数 $A = -25.70 \text{ T}$, $B = 8.96 \text{ T}$. 从而我们可以获得该材料的各项异性参数 $\gamma = H_{c2}^{ab}(0)/H_{c2}^c(0) = 2.26$. 文献

上报道的 MgB_2 单晶和多晶的 $\gamma = 2.5 - 5.5^{[13,14]}$. 我们的结果小于文献上报道的 MgB_2 单晶和多晶的结果,是由于 MgB_2 薄膜晶粒取向的不一致和存在颗粒边界导致低估了该材料的各向异性. 通过用各向异性的 Ginzburg-Landau 方程 $H_{c2}^c(0) = \Phi_0/2\pi\xi_{ab}^2(0)$ 和 $H_{c2}^{ab}(0) = \Phi_0/2\pi\xi_{ab}(0)\xi_c(0)$, $\Phi_0 = 2.07 \times 10^{-15}$, Φ_0 是磁通量子, MgB_2 超导材料在 ab 平面和 c 轴方向的相干长度也可以被近似获得 $\xi_{ab}(0) = 4.44 \text{ nm}$, $\xi_c(0) = 2.23 \text{ nm}$. 通过与文献 [12, 14] 的结果进行比较可以证实我们的结果是合理的.

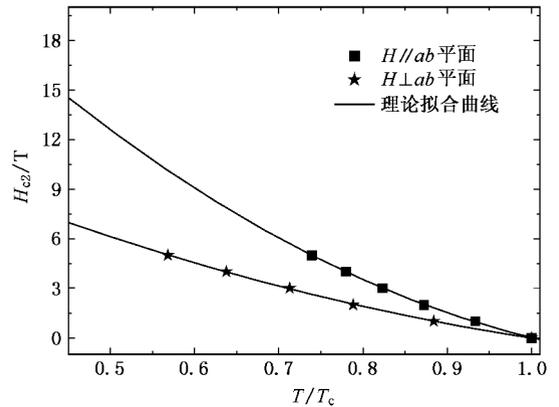


图8 $\text{MgB}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ 超导薄膜的上临界磁场与约化温度的依赖关系(■★是实验数据, —是多项式 $H_{c2}(t) = H_{c2}(0) + At + Bt^2$ 拟合曲线)

[1] Nagamatsu J, Nakagawa N, Muranaka T, Zenitani Y, Akimitsu J 2001 *Nature* **410** 63
 [2] He L H, Hu G Q, Zhang P L, Yan Q W 2001 *Chin. Phys.* **10** 343
 [3] Zhao Z W, Wen H H, Li S L, Ni Y M, Ren Z A, Che G C, Yang H P, Liu Z Y, Zhao Z X 2001 *Chin. Phys.* **10** 340
 [4] Wang S F, Jin B B, Liu Z, Zhou Y L, Chen Z H 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 2325 [in Chinese] 王淑芳, Jin B B, 刘震, 周岳亮, 陈正豪 2005 *物理学报* **54** 2325
 [5] Lu X F, Gao H, Wang Z, Zhang Y Z, Shan L, Lu R T, Yan S L, Wen H H 2005 *Physica C* **423** 175
 [6] Xu X, Fu L, Wang L, Zhang Y 1999 *Phys. Rev. B* **59** 608
 [7] Espinosa-Arronte B, Andersson M 2005 *Phys. Rev. B* **71** 024507
 [8] Patnaik S, Gurevich A, Kaushik S D, Choi J, Eom C B, Larbalestier D C 2004 *Phys. Rev. B* **70** 064503
 [9] Neri D, Silva E, Sarti S, Marcon R 1998 *Phys. Rev. B* **58** 14581
 [10] Nowak E R, Anders S, Jaeger H M 1996 *Phys. Rev. B* **54** 12725

[11] Palstra T T M, Batlogg B B, Schneemeyer L F 1988 *Phys. Rev. B* **38** 5102
 [12] Patnaik S, Cooley L D, Gurevich A 2001 *Supercond. Sci. Technol.* **14** 315
 [13] Shi Z X, Tokunaga M, Tamegai T 2003 *Phys. Rev. B* **68** 104513
 [14] Pradhan A K, Shi Z X, Tokunaga M, Tamegai T 2001 *Phys. Rev. B* **64** 212509
 [15] Kim D H, Gray K E, Kampwirth R T, McKay D M 1990 *Phys. Rev. B* **42** 6249
 [16] Daole Y, Zhi Q, Hengyi X, Furen W 2003 *Phys. Rev. B* **67** 092503
 [17] Hussey N E, Takagi H, Takeshita N, Mori N, Iye Y 1999 *Phys. Rev. B* **59** R11 668
 [18] Burlachkov L, Mogilko E, Schlessinger Y, Strelniker Y M, Havlin S 2003 *Phys. Rev. B* **67** 104509

A study on resistive transition and anisotropy of $\text{MgB}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ superconducting thin films^{*}

Shi Li-Bin^{1)†} Ren Jun-Yuan¹⁾ Zhang Feng-Yun¹⁾ Zhang Guo-Hua²⁾ Yu Zeng-Qiang³⁾

¹⁾ Department of Physics, Bohai University, Jinzhou 121000, China)

²⁾ Department of Physics, School of Applied Science, University of Science and Technology Beijing, Beijing 100083, China)

³⁾ School of Physics, Peking University, Beijing 100871, China)

(Received 2 December 2006 ; revised manuscript received 25 December 2006)

Abstract

MgB_2 thin films were deposited by e-beam on $\text{Al}_2\text{O}_3(001)$ substrates. Resistive transition of the $\text{MgB}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ was investigated in different magnetic fields applied parallel or perpendicular to the ab plane of the films by the standard four-probe method. An activation energy model is suggested to analyze quantitatively the activation energy of flux lines and resistive transition in whole transition temperature range. The anisotropy parameter $\gamma = H_{c2}^{ab}(0)/H_{c2}^c(0) = 2.26$ was obtained by analyzing the upper critical field using the polynomial $H_{c2}(t) = H_{c2}(0) + At + Bt^2$.

Keywords : $\text{MgB}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$, superconductor, resistive transition, anisotropy

PACC : 7000, 7470, 7460, 7430E

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 10174006)

[†] E-mail : address : slb0813@sohu.com