

УДК 539.292

©1994

## ЧЕТНЫЙ ЭФФЕКТ ПОЛЯ В ПЛЕНКАХ $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$

*В.В. Леманов, В.В. Макаров, А.Б. Шерман*

В пленках  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  на сегнетоэлектрической керамической подложке  $\text{Ba}_{0.2}\text{Sr}_{0.8}\text{TiO}_3$  под действием приложенного перпендикулярно к поверхности электрического поля независимо от его знака происходит уменьшение сопротивления и повышение температуры перехода в сверхпроводящее состояние. Величина сдвига температуры в поле 12 kV/cm составляет 0.03 K. Максимум относительного уменьшения сопротивления находится в области перехода и составляет приблизительно 1 %. Результаты эксперимента объясняются влиянием упругой деформации, возникающей в подложке приложении поля.

Известно, что электропроводностью ВТСП-пленок как в нормальном, так и в сверхпроводящем состоянии можно управлять с помощью электрического поля, приложенного через слой диэлектрика к поверхности пленки (см. обзор [1]). Знак эффекта определяется знаком поля, т.е. эффект является нечетным. Считается, что изменение электропроводности в этом случае обусловлено изменением концентрации носителей заряда под действием электрического поля.

Изменение сопротивления ВТСП-пленки при приложении поля может быть также связано с ее деформацией, возникающей в результате пьезоэффекта или электрострикции подложки. Как показано в прямых экспериментах по влиянию одноосного и всестороннего давления на свойства YBCO-пленок [2,3], их деформация приводит к изменению сопротивления в нормальном состоянии и сдвигу температуры сверхпроводящего перехода  $T_c$ . Вклад упругой деформации в эффект поля в пленках ВТСП обсуждался лишь в одной работе [1]. В пленке YBCO, выращенной на подложке  $\text{SrTiO}_3$ , при приложении электрического поля наблюдался не зависящий от знака поля рост сопротивления в нормальной фазе вблизи  $T_c$ , что связывалось с электрострикционной деформацией подложки.

В настоящей работе для исследования эффекта поля в YBCO в качестве подложек использовались керамические пластины  $\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{TiO}_3$ , в которых величина  $x$  подбиралась таким образом, чтобы ниже 100–120 K они находились в сегнетоэлектрической фазе.

### 1. Методика измерений и экспериментальные результаты

Текстурированные с-ориентированные пленки  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  изготавливались методом магнетронного распыления на керамических подложках  $\text{Ba}_{0.2}\text{Sr}_{0.8}\text{TiO}_3$ . Толщина подложки 0.5 mm, толщина пленки 0.2  $\mu\text{m}$ .

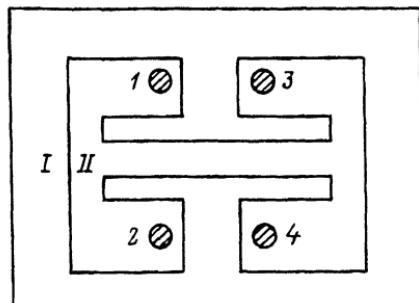


Рис. 1. Схема структуры.

I — керамическая подложка  $Ba_{0.2}Sr_{0.8}TiO_3$ ,  
II — пленка  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ , 1-4 — медные электроды. Размеры пленки ограничены сторонами прямоугольника  $5 \times 3.5$  мм, ширина проводящего канала между контактными площадками  $0.5$  мм.

Для измерения электропроводности на пленку напылялись четыре медных электрода. Распределение токов в пленке зависит от распределения контактного сопротивления на границе электрод-пленка. В процессе эксперимента, особенно под влиянием температурных и электрострикционных деформаций, может происходить изменение этого распределения, что приведет к появлению паразитных сигналов. Для того чтобы ослабить влияние контактов на результаты измерений, пленкам с помощью фотолитографии придавалась форма, показанная на рис. 1. Размеры пленки ограничены сторонами прямоугольника  $5 \times 3.5$  мм, ширина проводящего канала между контактными площадками  $0.5$  мм.

Одна пара электродов (например, 1 и 3) служила для пропускания тока через пленку, а другая — для измерения напряжения  $V$ . На противоположную поверхность подложки также напылялся медный электрод (затвор), с помощью которого к образцу прикладывалось управляющее напряжение  $V_G$ . Ширина этого электрода  $1$  мм, так что она несколько превышала ширину проводящего канала. В качестве второго электрода для подачи управляющего напряжения использовался один из токовых электродов на пленке. Зарядка полученного таким образом конденсатора осуществлялась от источника напряжения, параллельно выходу которого подключался конденсатор большой емкости ( $1 \mu F$ ). В момент измерения источник отключался и напряжение на образце поддерживалось зарядом, накопленным в конденсаторе. Это позволяло избежать помех от источника питания. Постоянная времени  $RC$ -цепи образец — конденсатор составляла более  $10^6$  с.

Измерялась зависимость напряжения на пленке  $V$  при протекании постоянного тока  $0.5$  мА от напряжения на затворе  $V_G$ . Измерялись также петли гистерезиса поляризации подложки на частоте  $50$  Гц.

Исследованные пленки в нормальном состоянии имели электропроводность металлического типа. При понижении температуры наблюдался переход, при котором сопротивление пленки падало более чем в  $20$  раз. Однако во всей исследованной температурной области (до  $64$  К) сопротивление пленки продолжало подчиняться закону Ома и не зависело от магнитного поля. Это, по-видимому, означает, что и ниже температуры перехода в пленке сохраняются участки с нормальной проводимостью (контакты), включенные последовательно со сверхпроводящими участками (гранулами). Можно предположить, что это связано с тем, что пленки были выращены на керамических подложках. Тогда контакты, унаследованные от межзеренных границ керамической подложки, имеют более низкие температуры сверхпроводящего перехода, чем сами гранулы. В дальнейшем под температурой сверхпроводящего перехода  $T_c$  мы будем понимать температуру перехода

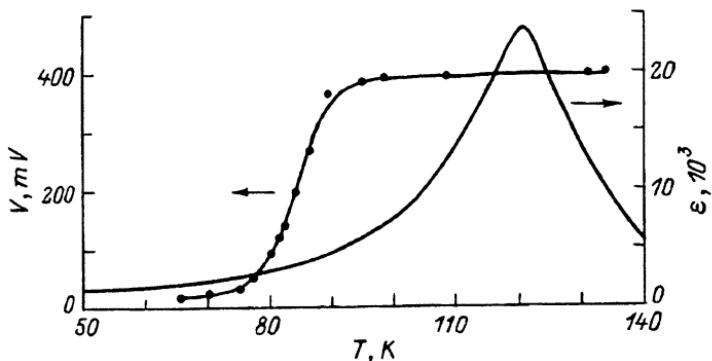


Рис. 2. Температурная зависимость напряжения на пленке YBCO при токе 0.5 mA и диэлектрическая проницаемость подложки  $\text{BaSrTiO}_3$ .

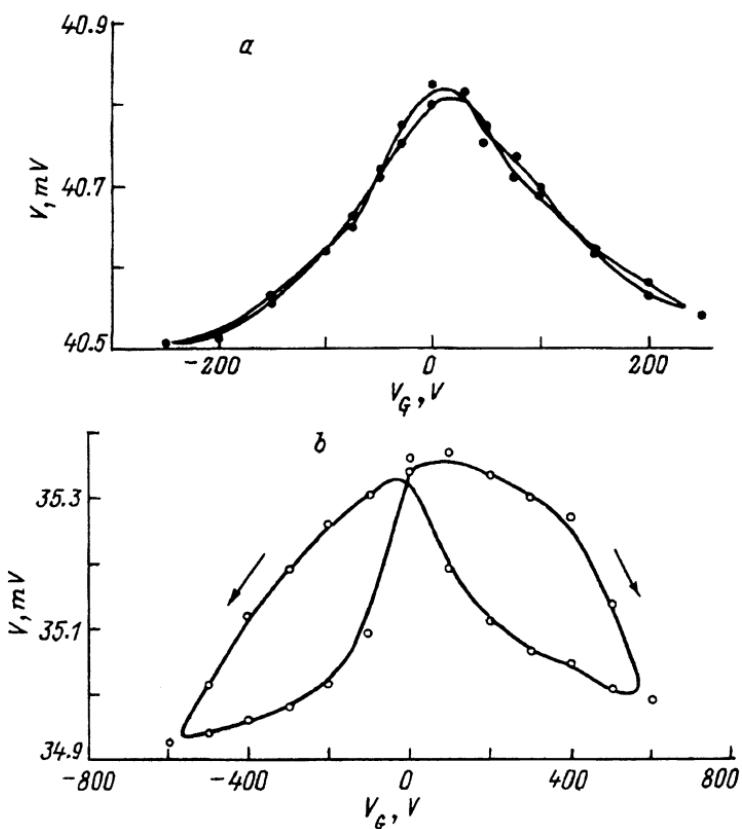


Рис. 3. Зависимость напряжения на пленке  $V$  от потенциала затвора  $V_G$ . Потенциал затвора изменяется в пределах  $-600 \div +600$  (a) и  $-250 \div +250$  V (b).  $T = 77$  K, измерительный ток 0.5 mA.

для гранул, т.е. начало падения сопротивления. В исследованных пленках  $T_c$  находится около 92 К. На рис. 2 приведены температурные зависимости напряжения на пленке и диэлектрической проницаемости подложки. Из этого рисунка следует, что сегнетоэлектрический фазовый переход в подложке происходит при  $T_c^F = 120$  К.

На рис. 3 показаны результаты измерения напряжения  $V$  на пленке при прохождении через нее тока 0.5 mA при температуре 77 K. Потенциал затвора  $V_G$  изменялся от -250 до +250 V (a) и от -600 до +600 V (b).

На рис. 4 приведены петли гистерезиса поляризации  $P$  при  $T = 77$  K. Сравнение рис. 3, a и 4 показывает, что полевые зависимости  $V$  и  $P$  существенно различаются между собой. На зависимости  $P(V_G)$  наблюдается заметный гистерезис, практически отсутствующий на зависимостях  $V(V_G)$ . Однако при изменении  $V_G$  в пределах  $\pm 600$  V гистерезис появляется и на графике  $V(V_G)$  (рис. 3, b).

Напряжение  $V$  и, следовательно, сопротивление пленки падают с ростом напряжения  $V_G$ . Вид зависимости  $V(V_G)$  мало меняется при изменении знака  $V_G$ , т.е. эффект преимущественно четный. Четная и нечетная составляющие  $V$  определяются соответственно формулами

$$V_e(V_G) = [V(+V_G) + V(-V_G)]/2,$$

$$V_0(V_G) = [V(+V_G) - V(-V_G)]/2.$$

Зависимость  $V(V_G)$  при  $V_G = 0$ , как следует из рис. 3, оказывается однозначной, что позволяет вести отсчет изменений  $V_e$  и  $V_0$  при любом знаке поля от их значений при  $V_G = 0$ . Рассчитанные таким образом зависимости  $\Delta V(V_G) = V(V_G) - V(0)$  для четной  $\Delta V_e$  и нечетной  $\Delta V_0$  составляющих  $\Delta V$  построены на рис. 5.

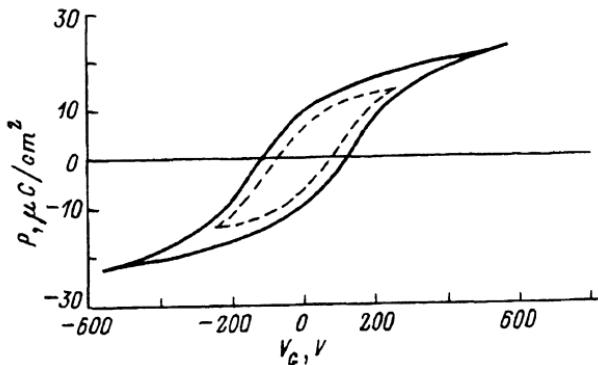


Рис. 4. Зависимость поляризации подложки от потенциала затвора.  $T = 77$  K.

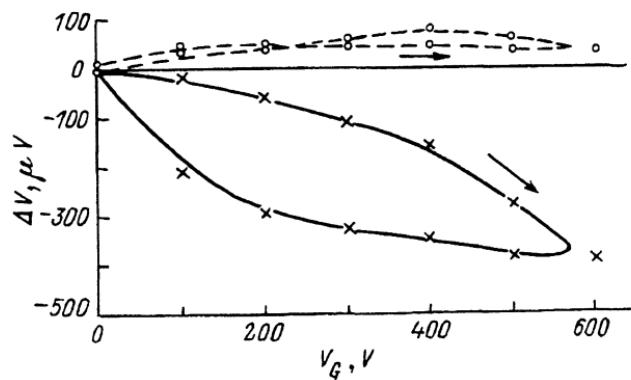


Рис. 5. Зависимость изменения напряжения на пленке от потенциала затвора  $V_G$ .  $T = 77$  K, измерительный ток 0.5 mA. Сплошная линия — четный эффект  $\Delta V_e$ , штриховая — нечетный эффект  $\Delta V_0$ .

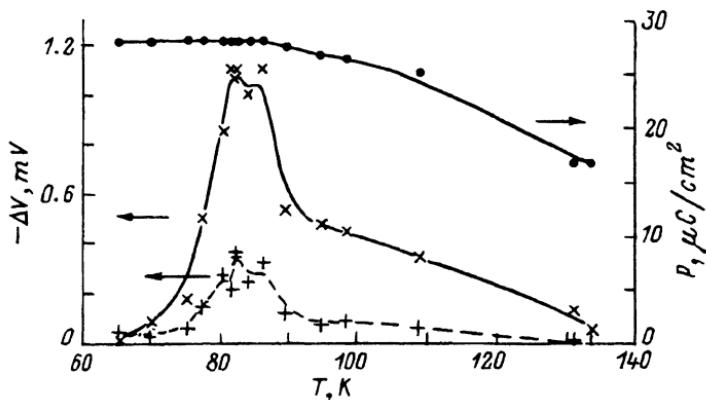


Рис. 6. Температурные зависимости изменения напряжения на пленке и максимальной поляризации подложки при изменении потенциала затвора от 0 до 600 В.

Измерительный ток 0.5 mA. Сплошная линия — четный эффект  $\Delta V_e$ , штриховая — нечетный эффект  $\Delta V_0$ .

На рис. 6 построены температурные зависимости  $\Delta V_e$  и  $\Delta V_0$ , измеренные при  $V_G = 600$  В. Там же приведена температурная зависимость максимальной поляризации  $P$ , измеренной при  $V_G = 600$  В. Основные результаты состоят в следующем.

Величины  $\Delta V_e$  и  $\Delta V_0$  выше  $T_c^F$  малы и приближаются к нулю. С понижением температуры их абсолютные величины растут одновременно с ростом  $P$ . Однако ниже  $T_c$  их рост резко усиливается и наблюдаются пики  $|\Delta V_e|$  и  $|\Delta V_0|$ . При дальнейшем понижении температуры  $|\Delta V_0|$  падает медленнее, чем  $|\Delta V_e|$ . В результате при температуре около 65 К эффект становится в основном нечетным.

## 2. Обсуждение результатов

Из результатов эксперимента можно заключить, что выше температуры сверхпроводящего перехода наблюдается корреляция между температурной зависимостью эффекта поля и температурной зависимостью поляризации. Поскольку наблюдаемый эффект поля преимущественно четный, можно предполагать, что он действительно связан с деформацией подложки под действием поля.

В то же время в области сверхпроводящего перехода, в которой поляризация подложки остается практически постоянной, наблюдается наиболее сильная температурная зависимость эффекта. В этой же области происходит наиболее быстрое изменение сопротивления пленки. Можно ожидать, что оба этих явления связаны между собой.

Для того чтобы проследить связь температурных зависимостей изменений напряжения  $\Delta V_e$  и  $\Delta V_0$  с температурной зависимостью сопротивления, построим температурные зависимости  $|\Delta V_e|$ ,  $|\Delta V_0|$  и производной  $dV/dT$  в относительных единицах при  $V_G = 600$  В (рис. 7).

Оказывается, что четная и нечетная составляющие изменения напряжения имеют сходные температурные зависимости почти во всей температурной области. Это говорит о том, что оба эффекта имеют в основном одинаковое происхождение. Поскольку четная составляю-

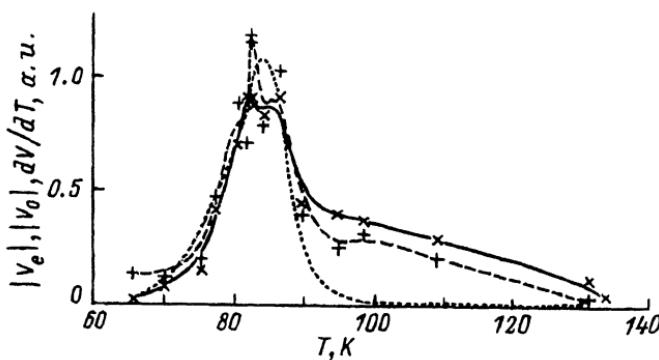


Рис. 7. Температурные зависимости относительных изменений напряжения на пленке  $\Delta V_e(T)$  и  $\Delta V_0(T)$  при изменении потенциала затвора  $V_G$  от 0 до 600 В и температурная зависимость производной  $dV/dT$ .

Сплошная линия — четный эффект  $\Delta V_e$ , штриховая — нечетный эффект  $\Delta V_0$ , пунктир —  $dV/dT$ .

щая вносит основной вклад в зависимость напряжения от поля, остановимся в первую очередь на природе этой составляющей.

В области вблизи максимума температурная зависимость  $|\Delta V_e|$  практически совпадает с температурной зависимостью  $dV/dT$ . Это совпадение указывает на то, что функцию  $V(V_G)$  ниже  $T_c$  можно представить как  $V(T_c)$ , где  $T_c = T_c(V_G)$ . Это вытекает из соотношения  $dV = -(dV/dT)dT_c$ . Подставляя максимальные экспериментальные значения  $dV/dT = 30 \text{ mV/K}$  и  $\Delta V_e = -1 \text{ mV}$ , находим, что под действием напряжения  $V_G = 600 \text{ V}$  температура сверхпроводящего перехода повышается на  $\Delta T_c \approx 0.03 \text{ K}$ .

Итак, мы нашли, что зависимость изменения напряжения на пленке от напряжения затвора  $\Delta V(V_G)$  представляет собой в основном четный эффект, связанный с повышением  $T_c$  под действием напряжения  $V_G$ . Кажется разумным предположить, что этот эффект вызывается влиянием на  $T_c$  деформации пленки, возникающей вследствие деформации подложки под действием электрического поля.

Влияние деформации на температуру сверхпроводящего перехода пленки  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  было исследовано в работе [2]. Там же было найдено соотношение, позволяющее оценить сдвиг  $T_c$  под действием механического напряжения в плоскости пленки  $\sigma_1$ :  $\Delta T_c/\Delta\sigma_1 = -0.05 \text{ K/kbar}$ . Напряжение  $\Delta\sigma_1$  связано с деформацией  $\Delta S_1$  соотношением  $\Delta\sigma_1 = c_{11}\Delta S_1$ , где жесткость  $c_{11} = 2.74 \cdot 10^3 \text{ kbar}$  [2]. Таким образом, повышению температуры на величину  $\Delta T_c = 0.03 \text{ K}$  соответствует деформация сжатия пленки  $\Delta S_1 \approx -2 \cdot 10^{-4}$ .

Оценим теперь по порядку величины изменение деформации  $\Delta S_1$ , которое создает поле в нашем эксперименте. Рассмотрим изменение деформации сегнетоэлектрической пластины под действием перпендикулярного поля. Будем считать, что кристаллиты подложки в сегнетоэлектрической фазе имеют тетрагональную симметрию. В этом случае под действием поля в них будут происходить только  $90^\circ$  и  $180^\circ$  переключения поляризации. Если симметрия тригональная, то будут наблюдаться  $70^\circ$  и  $110^\circ$  переключения. Качественно это картины не

изменит. Предположим, что пластина состоит из доменов двух типов с направлениями поляризации, перпендикулярным и параллельным плоскости пластины. Переполяризация многодоменного сегнетоэлектрика происходит в результате смещения  $180^\circ$  и  $90^\circ$  доменных стенок под действием приложенного поля. Все смещения  $180^\circ$  стенок, как известно, не дают вклада в изменение деформации. Поэтому мы будем рассматривать только те изменения поляризации  $\Delta P$ , которые связаны со смещениями  $90^\circ$  стенок. Тогда отношение  $\Delta P/P_s$  определяет относительный объем доменов с перпендикулярной поляризацией. Изменение деформации можно представить в виде

$$\Delta S_1 = (S_2 - S_1)(\Delta P/P_s), \quad (1)$$

где  $S_1$  и  $S_2$  — спонтанные деформации при поляризации, параллельной и перпендикулярной плоскости подложки соответственно;  $P_s$  — спонтанная поляризация. Спонтанные деформации в свою очередь могут быть выражены через компоненты тензора электрострикции  $Q_{ik}$  и спонтанную поляризацию  $P_s$  следующим образом:  $S_1 = Q_{11}P_s^2$ ,  $S_2 = Q_{12}P_s^2$ . В результате получаем

$$\Delta S = (Q_{12} - Q_{11})P_s\Delta P. \quad (2)$$

Произведения  $Q_{11}P_s$  и  $Q_{12}P_s$  могут быть выражены через пьезоэлектрические коэффициенты  $Q_{11}P_s = (1/2)g_{33}$ ,  $Q_{12}P_s = (1/2)g_{31}$

$$\Delta S = (1/2)(g_{31} - g_{33})\Delta P. \quad (3)$$

Поскольку нам не известны пьезоэлектрические коэффициенты для керамики  $Ba_xSr_{1-x}TiO_3$ , мы для оценки воспользуемся их значениями для керамики  $BaTiO_3$ :  $g_{33} = 114$ ,  $g_{31} = -47 \text{ cm}^2/\text{C}$  [4].

Выше уже отмечалось, что после выключения напряжения  $V_G$  сохраняется заметная остаточная поляризация, но отсутствует остаточное напряжение  $\Delta V_e$ . Это означает, что остаточная поляризация не создает деформацию, т.е., по-видимому, вызвана главным образом  $180^\circ$  смещениями доменных стенок. Отсутствие гистерезиса на зависимости  $\Delta V_e(V_G)$  при изменении  $V_G$  в пределах  $\pm 250 \text{ V}$  также указывает на то, что при таких напряжениях изменение  $V$  связано только с обратимой составляющей поляризации. Поэтому исключим из полной поляризации остаточную. Предположим теперь, что в изменение деформации при росте  $V_G$  от 0 до  $250 \text{ V}$  дает вклад все изменение поляризации, превышающее остаточную:  $\Delta P(250 \text{ V}) = |P(250 \text{ V})| - |P(0)|$ . Иными словами, мы предполагаем, что весь рост  $|P|$  выше  $|P(0)|$  создается только  $90^\circ$  смещениями доменных стенок. При  $P(250 \text{ V}) = 15$  и  $P(0) = 7 \mu\text{C}/\text{cm}^2$  из (3) находим  $\Delta S \approx -5 \cdot 10^{-4}$ . Максимальная величина  $\Delta V$  при  $V_G = 250 \text{ V}$  равна  $0.7 \text{ mV}$ , т.е. примерно в полтора раза меньше, чем при  $V_G = 600 \text{ V}$ . Поэтому также в полтора раза оказываются меньше и соответствующие значения температурного сдвига и деформации под действием поля:  $\Delta T_c = 0.02 \text{ K}$  и  $\Delta S_1 \approx -1.5 \cdot 10^{-4}$ . Таким образом, величина  $\Delta S_1$ , рассчитанная из изменения  $\Delta P$ , по порядку величины совпадает с экспериментальной.

Знак нечетной составляющей  $\Delta V$  совпадает со знаком обычного эффекта поля в случае дырочной проводимости. Такой эффект, как уже

упоминалось, наблюдался в YBCO и объяснялся влиянием изменения концентрации носителей заряда на пиннинг вихрей. Однако при этом величина  $\Delta V_0$  монотонно падала ниже  $T_c$  [1], а не проходила через максимум, как в нашем эксперименте. Появление нечетной составляющей может быть связано также с образованием областей пространственно-го заряда в подложке вблизи контактов с пленкой  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$  и медным электродом (затвором). В результате распределение напряженности электрического поля в сегнетоэлектрике, а следовательно, и связанные с ним эффекты могут зависеть от знака приложенного напряжения. В пользу такого объяснения говорит тот факт, что как четный, так и нечетный эффекты имеют почти одинаковую температурную зависимость. В то же время ниже температуры максимума  $|\Delta V_0|$  не стремится, как  $|\Delta V_e|$ , к нулю, а перестает зависеть от температуры. Возможно, что в этой температурной области действительно проявляется обычный эффект поля.

Обратимся теперь к результатам для  $T > T_c$ . В [3] установлена связь между всесторонним давлением  $P_h$  и изменением сопротивления монокристалла  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ :  $dR/R \approx -10^{-2} P_h$  (kbar). Предположим, что этим же соотношением можно описать изменение сопротивления при сжатии в плоскости, если вместо давления  $P_h$  взять напряжение  $\Delta\sigma_1$ . Основанием для этого может служить тот факт, что как всестороннее сжатие, так и сжатие по двум направлениям в плоскости  $ab$  приводят к одному сдвигу  $T_c$  в  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ , если  $\Delta\sigma_1 = P_h$  [2]. Тогда, подставляя  $\Delta\sigma_1 \approx 0.4$  kbar, соответствующую найденной выше при  $V_G = 250$  V величине  $\Delta S_1 \approx -1.5 \cdot 10^{-4}$ , получаем  $\Delta R/R \approx -0.004$ . Это значение также по порядку величины совпадает со значением  $\Delta V/V \approx -0.001$ , полученным в нашем эксперименте вблизи  $T_c$ .

Как уже отмечалось выше, хотя при понижении температуры ниже  $T_c$  начинается падение сопротивления пленки, в ней сохраняются нормальные участки — контакты между гранулами, сопротивление которых и определяет сопротивление пленки. Таким образом, падение сопротивления на переходе вызвано постепенным переключением последовательно включенных контактов в сверхпроводящее состояние. Эти контакты, по всей видимости, представляют собой прослойки с пониженной концентрацией кислорода, что, как известно, приводит к росту как сопротивления в нормальной фазе, так и температуры сверхпроводящего перехода. Следовательно, измеряемый четный эффект поля во всем температурном диапазоне отражает влияние деформации на сопротивление контактов, а наблюдаемый сдвиг  $T_c$  отражает сдвиги температур перехода контактов в сверхпроводящее состояние.

Таким образом, в работе показано, что сопротивление пленок  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ , выращенных на сегнетоэлектрической керамической подложке  $\text{Ba}_{0.2}\text{Sr}_{0.8}\text{TiO}_3$ , падает под действием приложенного перпендикулярно к их поверхности электрического поля. Поле вызывает сжатие подложки, что в свою очередь приводит к сжатию пленки. В результате уменьшается сопротивление межгранулярных контактов, в основном определяющих сопротивление пленки. Ниже температуры начала сверхпроводящего перехода деформация повышает температуры перехода контактов в сверхпроводящее состояние.

Отметим в заключение, что в работе [5], где в качестве подложки для пленок YBCO использовались монокристаллы  $\text{BaTiO}_3$ , наблюдался

только нечетный эффект. В пределах точности эксперимента четный эффект зарегистрировать не удалось. Это можно объяснить тем, что в процессе поляризации монокристалла BaTiO<sub>3</sub> в электрическом поле вдоль <001> происходят 70° переключения доменов, при которых изменяется только знак компоненты поляризации, нормальной к плоскости подложки. Такие переключения не приводят к деформации подложки.

Авторы благодарят Е.П. Смирнову за предоставленные сегнетоэлектрические подложки и измерение диэлектрической проницаемости.

Работа выполнена в рамках Проекта № 92176 Государственной программы «Высокотемпературная сверхпроводимость».

### Список литературы

- [1] Mannhart J. Mod. Phys. Lett. 1992. V. 6. N 10. P. 555–571.
- [2] Belenky G.L., Green S.M., Roytburd A., Lobb C.J. Hagen S.J., Greene R.L., Forrester M.G., Talvacchio J. // Phys. Rev. B. 1991. V. 44. N 18. P. 10117–10120.
- [3] Almasan C.C., Han S.H., Lee B.W., Paulius L.M., Maple M.B., Veal B.W., Downey J.W., Paulikas A.P., Fisk Z., Schirber J.E. // Phys. Rev. Lett. 1992. V. 69. N 4. P. 680–683.
- [4] Яффе Б., Кук В., Яффе Г. Пьезоэлектрическая керамика. М.: Мир, 1974.
- [5] Леманов В.В., Холкин А.Л., Шерман А.Б. // Письма в ЖЭТФ. 1992. Т. 56. № 4. С. 580–584.

Физико-технический институт  
им. А.Ф. Иоффе РАН  
Санкт-Петербург

Поступило в Редакцию  
28 февраля 1994 г.