

05.4

Сверхпроводящий ток в тонкой пленке полифталидилиденбифенилена

© А.Н. Ионов, А.Н. Лачинов, Р. Ренч

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, С.-Петербург
Институт физики молекул и кристаллов РАН, Уфа
Institut für Experimentalphysik, Freie Universität Berlin, D-14195-Berlin

Поступило в Редакцию 14 марта 2002 г.

Показано, что в структурах сверхпроводник–поли(3, 3'-фталидилиден-4, 4'-бифенилен)–сверхпроводник наблюдаются джозефсоновские осцилляции в поперечном току слабом магнитном поле. При этом в качестве слабой связи выступают точечные контакты на интерфейсной границе полимер/сверхпроводник. Экспериментально обнаружено, что характерный масштаб джозефсоновских осцилляций зависит от отношения величины I/I_c (здесь I_c — критический ток).

В работе [1] было установлено, что тонкая ($d \cong 1 \mu\text{m}$) пленка поли(3, 3'-фталидилиден-4, 4'-бифенилена)/poly(3, 3''-phthalidylidene-4, 4''-biphenylene) (PPB)/, структурная формула которой представлена в [2], переключается в высокопроводящее состояние в электрическом поле относительно невысокой напряженности $E \approx 10^2 \text{ V/cm}$, что более чем на 4 порядка меньше пробивного напряжения, если к металлическим электродам приложить небольшое ($P < 10^5 \text{ Pa}$) одноосное механическое давление, необходимое для обеспечения надежного механического контакта металл-полимер. Было также показано, что если металлические электроды находились в сверхпроводящем состоянии (S), то проводимость такой сэндвич-структуры не превышала $1 \text{ m}\Omega$, что являлось пределом разрешения используемой аппаратуры.

В настоящем сообщении приводятся доказательства того, что в S-PPB-S структуре сквозь пленку PPB толщиной до $1.0 \mu\text{m}$ протекает сверхпроводящий ток.

В качестве полимерного образца использовались пленки PPB толщиной $\sim 1 \mu\text{m}$, приготовленные тремя способами:

- 1) пленка PPB наносилась из 5–7% раствора циклогексанона непосредственно на полированную поверхность одного из электродов методом растекания;

2) пленка наносилась методом центрифугирования на поверхности одного из электродов;

3) предварительно полученная свободная пленка РРВ заключалась между поверхностями полированных электродов.

В последнем случае применялся метод, традиционно используемый в электронной микроскопии. После центрифугирования полимера из раствора в циклогексаноне на предметное стекло и после непродолжительной во времени сушки при комнатной температуре предметное стекло с пленкой помещалось в воду, где происходило ее отделение от стекла за счет действия капиллярных сил. Плавающую пленку на поверхности воды можно было перенести либо на предметную рамку, либо на металлический электрод.

Далее независимо от метода приготовления полимерная пленка выдерживалась в сушильном шкафу при температуре 100°C в течение 60 min для удаления остатков растворителя. Толщина (d) полимерной пленки определялась с помощью интерференционного микроскопа типа МИИ-4. В качестве электродов использовались олово и ниобий с чистотой по примесям не менее 99.99%. Электроды из олова и ниобия имели форму дисков толщиной 2.0 mm и диаметрами 3.0 и 5.0 mm соответственно. Электроды находились в обоймах из диэлектрического материала, которые образовывали единую поверхность с металлическими электродами. Полимер находился между двумя металлическими электродами, образуя таким образом сэндвич-структуру. Второй электрод, который был без полимерного покрытия, прижимался к полимерной пленке с небольшим усилием, необходимым для обеспечения надежного электрического контакта. Состояние поверхности электродов контролировалось с помощью интерференционного микроскопа, а в выборочных местах и атомно-силовым микроскопом. Величина шероховатости поверхности не превышала $0.1 \mu\text{m}$.

Проводящее состояние регистрировалось без использования внешнего источника ЭДС методом, описанным в [1]. При этом величина шумового напряжения, приложенного к сэндвич-структуре, при котором осуществлялась регистрация проводящего состояния, не превышала 0.5 V/cm , что почти на семь порядков меньше пробивного напряжения диэлектрических полимерных пленок. Низкотемпературные измерения сопротивления, а также исследования влияния слабого магнитного поля на проводимость осуществлялись 2-зондовым методом в гелиевом криостате без специальной экранировки от внешнего магнитного поля.

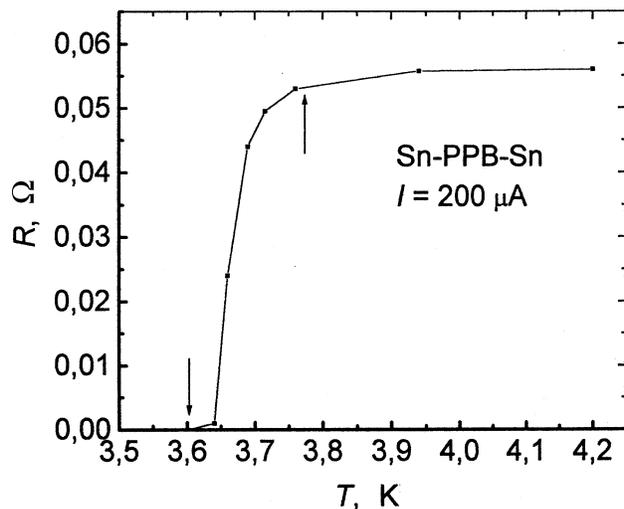


Рис. 1. Температурная зависимость сопротивления сэндвич-структуры Sn-PPB-Sn. Стрелками отмечена область сверхпроводящего перехода.

Слабое магнитное поле создавалось сверхпроводящим соленоидом, а его контроль осуществлялся с помощью InSb датчика Холла.

На рис. 1 представлена температурная зависимость сопротивления сэндвич-структуры Sn-PPB-Sn. При $T \leq T_c$, где $T_c = 3.7$ К — температура перехода олова в сверхпроводящее состояние, происходит исчезновение контактного сопротивления PPB/Sn. Как видно из рисунка, падение сопротивления нерезкое, что характерно для тонких проводящих каналов и точечных сверхпроводящих контактов (SoS). При $T \leq 3.6$ К сопротивление не регистрируется, что согласуется с результатом, полученным в [1]. Аналогичное поведение зависимости $R(T)$ в структурах со сверхпроводящими электродами было обнаружено для пленок полимида [3,4] и полиметилсилоксона [5].

Рассмотрим поведение вольт-амперных характеристик (CVC) таких структур. На рис. 2 показана CVC при $T = 3.45$ К. Как видно из рисунка, CVC сэндвич-структуры имеют джозефсоновский вид, при котором падение напряжения не регистрируется вплоть до некоторого критического тока $I_c = 1.25$ mA, после чего оно появляется

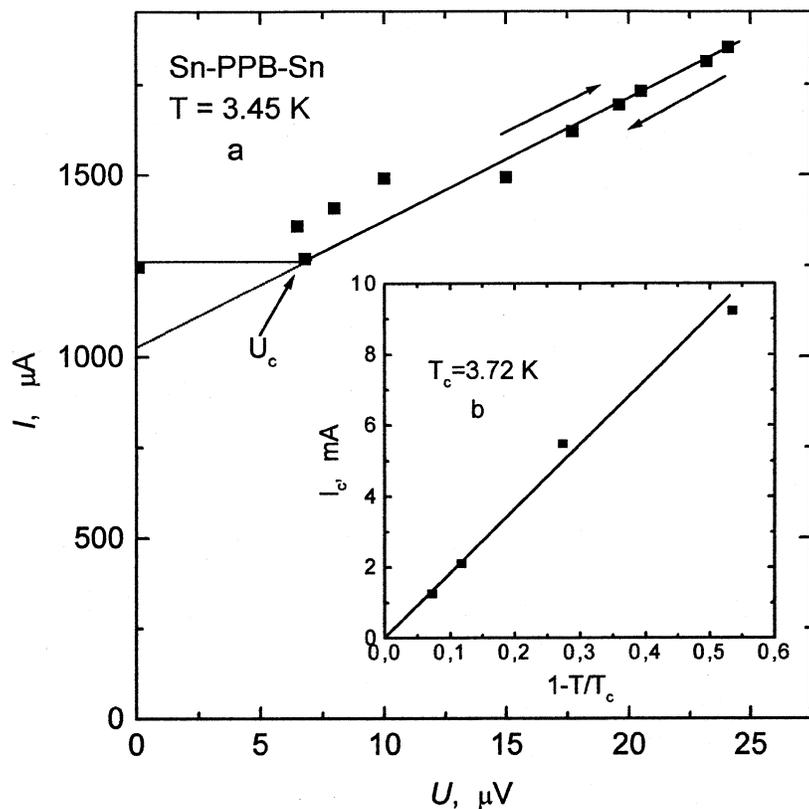


Рис. 2. Типичная вольт-амперная характеристика для S-PPB-S структур (здесь S — сверхпроводник), где пленка PPB была приготовлена различными методами. Пунктирной линией показана величина избыточного сверхпроводящего тока. На вставке приведена экспериментальная зависимость $I_c(T)$ от $(1 - T/T_c)$ для Sn-PPB-S структуры.

скачком при $V = V_c$. При $V > V_c$ CVC еще далека от омической, что характерно для резистивного состояния, когда наряду с нормальными электронами присутствуют и сверхпроводящие. Величину избыточного сверхпроводящего тока можно оценить по экстраполяции CVC к $V = 0$

(рис. 2). Безгистерезисное поведение CVC при $T < T_c$ характерно для тех случаев, когда элементами слабой связи между сверхпроводниками является либо точечный контакт, либо нормальный металл с наведенной в нем сверхпроводимостью за счет эффекта близости (N_s) [6,7]. Чтобы идентифицировать слабую связь, была исследована зависимость критического тока от температуры. Известно, что если экспериментально полученную зависимость $I_c(T)$ анализировать по следующей формуле:

$$I_c(T) = \text{const}(1 - T/T_c)^n, \quad (1)$$

то показатель степени n может указывать на вид слабой связи. Так, для SN_sS связи $n = 2$ [8], в то время как для точечного контакта между двумя сверхпроводниками $n = 1$ [7].

На вставке рис. 2 приведена экспериментальная зависимость $I_c(T)$ от $(1 - T/T_c)$ для Sn-PPB-Sn структуры. Как видно, в нашем случае с хорошей точностью $n = 1$ при параметре $T_c = 3.72$ К, что соответствует T_c чистого олова. Таким образом, из анализа CVC сэндвич-структур следует, что слабая связь между сверхпроводниками осуществляется через точечный контакт, в роли которого выступает непосредственно сам полимер. Точно такой же результат был получен при исследовании CVC сэндвич-структуры с полидиметилсилоксаном [3]. Если для наглядности нашу структуру представить как $SoP^s oS$, то это означает, что носители тока проходят через полимер по тонким проводящим нитям без диссипации энергии. Последнее возможно в двух случаях:

1) при баллистическом транспорте, когда длина свободного пробега носителя тока между двумя неупругими столкновениями в полимере $l \gg d$ [9–11];

2) когда полимерный канал обладает сверхпроводимостью, причем $I_c^p > I_c^{SnOP}$ (здесь I_c^p — критический ток сверхпроводящего полимерного канала, а I_c^{SnOP} — критический ток точечного контакта между массивным сверхпроводником и полимером).

Доказательства наличия тока куперовских пар, а также многоканальной проводимости сквозь полимер можно получить при исследовании эффекта Джозефсона в Sn-PPB-Sn и Nb-PPB-Nb структурах. На рис. 3, *a, b, c, d* представлены джозефсоновские осцилляции напряжения при $I \geq I_c$ в зависимости от слабого магнитного поля ($H \ll H_c$, где H_c — критическое магнитное поле для объемного сверхпроводника) при $H \perp I$. Как видно из рис. 3, джозефсоновские осцилляции

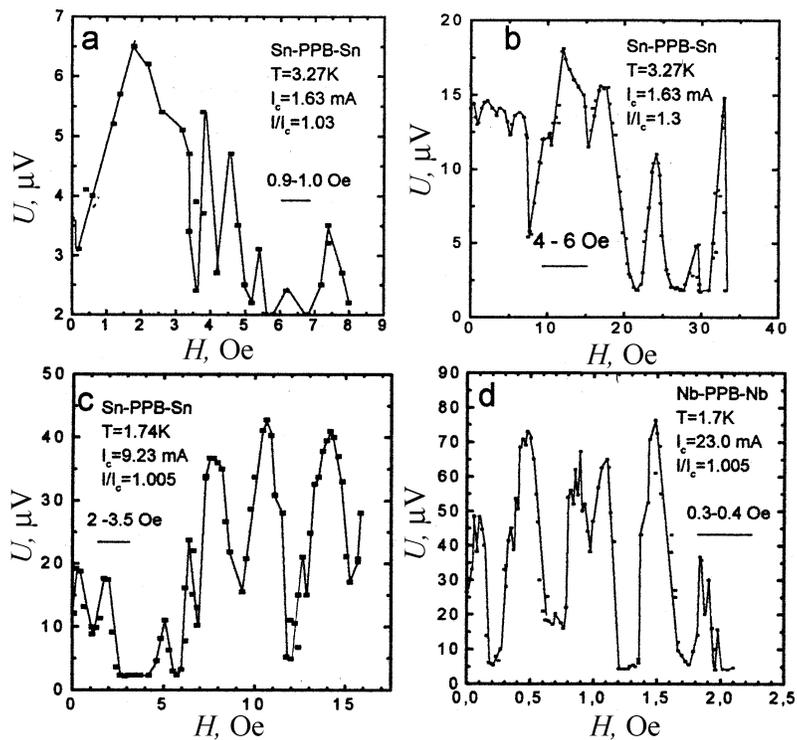


Рис. 3. Осцилляции напряжения в слабом поперечном магнитном поле на S-PPB-S структурах, обусловленные сетью n -параллельных пар последовательно включенных джозефсоновских контактов.

напряжения от магнитного поля имеют сложный вид в сравнении с фраенгоферовской дифракционной картиной одиночного джозефсоновского перехода. Здесь необходимо отметить, что резистивное состояние не разрушает когерентности волновых функций сверхпроводящих электронов на джозефсоновских контактах, находящихся на сверхпроводящем контуре, поэтому при изменении внешнего магнитного поля напряжение на контуре осциллирует с тем же периодом, что и критический ток, но в противофазе с осцилляциями последнего [12]. Наблюдаемая картина осцилляций $V(H)$ характерна для N -параллельно

включенных джозефсоновских переходов, находящихся на контуре-сквиде, но с тем существенным отличием, что в нашем случае нет определенного периода $V(H)$. Похожая картина осцилляций $V(H)$ наблюдается на границе зерен высокотемпературного сверхпроводника, где она обусловлена большим количеством параллельно включенных джозефсоновских контактов [13]. Из сравнения рис. 3, *a* и *b* следует, что с ростом отношения I/I_c увеличивается характерный масштаб осцилляции $V(H)$. Как известно, для двух параллельно включенных джозефсоновских контактов период осцилляций $\Delta H = \Phi_0/S$, здесь $\Phi_0 = 2.07 \cdot 10^{-15} \text{ Тм}^2$ — квант магнитного потока, а S — площадь между двумя джозефсоновскими переходами, которую пронизывает магнитный поток. Учитывая, что толщина полимерной пленки около $1 \mu\text{м}$, можно сделать оценку расстояния L между переходами. Так, для случая, приведенного на рис. 3, *a* для Sn-PPB-Sn, где отношение $I/I_c = 1.03$, получим $L \approx 20 \mu\text{м}$, в то время как для величины отношения $I/I_c = 1.3$ (рис. 3, *b*) $L \cong 5 \mu\text{м}$. Кроме того, масштаб осцилляций зависит от контактирующего с PPB сверхпроводника. Так, например, масштаб осцилляций $V(H)$ у Nb-PPB-Nb структуры меньше, чем у Sn-PPB-Sn структур.

Необходимо также отметить, что когда один из электродов сэндвич-структуры находится в нормальном состоянии, то джозефсоновская осцилляция $V(H)$ не наблюдается. Такое поведение не исключает бездиссипативный транспорт носителей в полимере, однако это, по-видимому, исключает сверхпроводящее состояние в полимере за счет куперовского спаривания электронов в рамках классической теории БКШ (BCS). Этот вывод отличается от того, что был получен при исследовании органических молекулярных полупроводников, таких как пентазен [14,15], где сверхпроводящее состояние, по-видимому, обусловлено фононным механизмом спаривания электронов, описываемым теорией БКШ.

В заключение, независимо от метода приготовления полимерных пленок в S-PPB-S структурах наблюдается ток куперовских пар. При этом элементами слабой связи являются точечные контакты на границе полимер/сверхпроводник. Как пример, бездиссипативный транспорт носителей заряда сквозь полимер может быть связан с баллистическим механизмом переноса. Вид джозефсоновских осцилляций напряжения в поперечном магнитном поле указывает на многоканальную проводимость в полимере. Авторы выражают благодарность В.А. Закревскому

за обсуждение молекулярной структуры РРВ, а также В.М. Сарыгиной за помощь в приготовлении образцов.

Работа выполнена при частичной финансовой поддержке РФФИ № 00-03-33060 и Президиума РАН (проект в рамках программы „Низкоразмерные квантовые структуры“).

Список литературы

- [1] *Закревский В.А., Ионов А.Н., Лачинов А.Н.* // Письма в ЖТФ. 1998. Т. 24. В. 13. С. 89–94.
- [2] *Lachinov A.N.* // *Sensor and Actuators A*. 1993. V. 39. P. 1–6.
- [3] *Ионов А.Н., Закревский В.А., Лазебник И.М.* // Письма в ЖТФ. 1999. Т. 25. В. 17. С. 36–43.
- [4] *Ionov A.N., Zakrevskii V.A., Lazebnik J.M.* et al. // *Cond-Mat/0006016*. 2000.
- [5] *Ионов А.Н., Закревский В.А.* // Письма в ЖТФ. 2000. Т. 26. В. 20. С. 34–39.
- [6] *Солимар Л.* Туннельный эффект в сверхпроводниках и его применение. М.: Мир, 1974.
- [7] *Асламазов Л.Г., Ларкин А.И.* // Письма в ЖТФ. 1969. Т. 9. № 2. С. 150–154.
- [8] *DeGennes P.G.* // *Rev. Mod. Phys.* 1964. V. 36. P. 225.
- [9] *Thomas M., Blank H.R., Wong K.C.* et al. // *Phys. Rev. B*. 1998. V. 58. N 17. P. 11 676.
- [10] *Landauer R.* // *Phil. Mag.* 1970. V. 21. P. 863–867.
- [11] *De Picciotto R., Syorner H.L., Pfeiffer L.N.* et al. // *Nature*. 2001. V. 51. P. 411.
- [12] *Omar M.N., De Bruyn Ouboter R.* // *Commun. Leiden*. 1966. V. 32. N 352b. P. 2044–2049.
- [13] *Early E.A., Steiner R.L., Clark A.F.* et al. // *Phys. Rev. B*. 1994. V. 50. N 13. P. 9409–9418.
- [14] *Schoen J.H., Hwang H.Y., Kloc Ch., Haddon R.C., Batlogg B.* // *Science*. 2001. V. 292. P. 252–254.
- [15] *Schoen J.H.* // *Appl. Phys. Lett.* 2001. V. 79. N 14. P. 2208–2210.