

## SINTESIS FILM TIPIS SUPERKONDUKTOR $MgB_2$ DENGAN TEKNIK *PULSED LASER DEPOSITION*

E. Sukirman<sup>1</sup>, M. Ohkubo, Y. Nakagawa<sup>2</sup>, H. Yamasaki<sup>2</sup> dan S. Kashiwaya<sup>2</sup>

<sup>1</sup>*Puslitbang Iptek Bahan (P3IB) - BATAN*

*Kawasan Puspipetek, Serpong, Tangerang 15314*

<sup>2</sup>*National Institute of Advanced Industrial Science and Technology  
Tsukuba, Japan*

### ABSTRAK

**SINTESIS FILM TIPIS SUPERKONDUKTOR  $MgB_2$  DENGAN TEKNIK *PULSED LASER DEPOSITION*.** Film tipis superkonduktor  $MgB_2$  telah disintesis dengan teknik *pulsed laser deposition* pada *substrate*  $Al_2O_3$  (001). Sifat listrik film dikarakterisasi dengan metode *four point probe*, strukturmikro diamati dengan SEM, fasa bahan dianalisis secara kualitatif dan kuantitatif berturut-turut dengan XRD dan EDAX. Hasil analisis menunjukkan bahwa film menampilkan suhu transisi kritis  $T_{c,0} = 10$  K, ukuran butir lebih kecil dari  $10 \mu m$  dan acak sehingga  $MgB_2$  dan fasa-fasa lain yang diduga kuat ada di dalam film tidak teramati dengan XRD, namun persen atom Mg, B dan O dapat dideteksi dengan EDAX, film masih kekurangan magnesium dan terkontaminasi oksigen. Untuk mengimbangi hilangnya unsur Mg akibat penguapan dan menjaga agar Mg tidak teroksidasi, perlu dilakukan optimasi tekanan gas argon dan plasma magnesium di dalam kamar deposisi.

**Kata kunci :** superkonduktor  $MgB_2$ , teknik *pulsed laser deposition*, film tipis.

### ABSTRACT

**SYNTHESIS OF  $MgB_2$  SUPERCONDUCTOR THIN FILM BY PULSED LASER DEPOSITION TECHNIQUE.** The thin film of  $MgB_2$  superconductor was synthesized by pulsed laser deposition technique on the *substrate* of  $Al_2O_3$  (0001). The electrical property of the film was characterized by four point probe method, the micro structure was observed by SEM, the film were analyzed qualitatively and quantitatively by XRD and EDAX, respectively. The result show that the film indicates a critical transition temperature,  $T_{c,0}$  of 10 K, the grains size are less than  $10 \mu m$  and randomly oriented so the  $MgB_2$  and the other phase are not able to be detected by XRD, although the atomic percentage of Mg, B and O elements are able to be observed by EDAX, the film are still deficient in magnesium and contaminated by oxygen. To prevent the magnesium from evaporation and oxidation, optimization the magnesium plasma and the background pressure of argon gas in the deposition chamber are needed.

**Key words :**  $MgB_2$  superconductor, pulsed laser deposition technique, thin film.

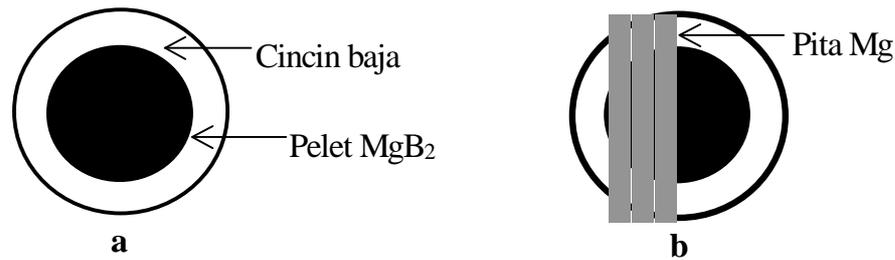
### PENDAHULUAN

Superkonduktor baru  $MgB_2$  dengan suhu transisi kritis  $T_{c,0} = 39$  K telah ditemukan pada bulan Januari 2001 [1].  $MgB_2$  adalah senyawa intermetalik, struktur kristal lebih sederhana dibandingkan dengan superkonduktor oksida, bersifat isotropis, dan memiliki kontak listrik (*link*) antara butir yang kuat, sehingga bahan ini memiliki prospek yang baik untuk berbagai aplikasi industri, yakni bidang elektronika, energi, transportasi, dan kedokteran. [2].

Eksperimen tentang sintesis film tipis superkonduktor  $MgB_2$  dengan suhu transisi kritis  $T_{c,0} \approx 39$  K sudah banyak dilaporkan, diantaranya didasarkan pada teknik *electron beam evaporation* (EBE). Pertama film tipis B dibuat dengan EBE pada *substrate*  $Al_2O_3$ , kemudian dengan tekanan tinggi Mg didifusikan ke dalam B pada suhu  $890^\circ C$  selama 20 menit [3]. Teknik

ini dapat menghasilkan film tipis  $MgB_2$  dengan superkonduktivitas yang setara dengan superkonduktivitas  $MgB_2$  *bulk*, tetapi kurang efisien karena prosesnya *ex-situ* dan harus dilakukan pada suhu dan tekanan Mg yang tinggi.

Hingga sekarang sudah ada beberapa laporan yang berhasil membuat film tipis superkonduktor  $MgB_2$  dengan teknik *pulsed laser deposition* (PLD)[4-6], tetapi  $T_{c,0}$  masih lebih kecil dari 39 K. Hal ini kemungkinan karena terbentuknya fasa-fasa lain selain  $MgB_2$  pada saat deposisi, sehingga dihasilkan film dengan  $T_{c,0}$  yang lebih rendah. Yang tergolong berhasil dalam mendapatkan film tipis superkonduktor  $MgB_2$  dengan teknik PLD adalah Brinkman [4] dan Christen [5], mereka menggunakan pengungkung Mg yang tebal untuk menjaga agar Mg tidak berdifusi ke luar selama proses *anil*. Ada dua



**Gambar 1.** Pelet  $MgB_2$  ditempatkan di dalam lobang cincin baja (a), dan pita Mg direkatkan dengan pasta perak pada cincin baja sedemikian sehingga sebagian permukaan pelet tertutupi pita Mg (b)

masalah yang dihadapi dalam pembuatan film tipis superkonduktor  $MgB_2$ , yakni Mg mudah teroksidasi dan mudah menguap bahkan pada suhu rendah mulai  $200^\circ C$  [7]. Masalah pertama diatasi dengan melakukan proses deposisi dalam ruang hampa (sekitar  $10^{-7}$  Torr). Sedangkan untuk mengimbangi (mengganti) Mg yang hilang karena penguapan, maka setelah proses deposisi selesai dilanjutkan dengan proses *anil* dalam lingkungan plasma yang kaya Mg. Proses *anil* tersebut dapat dilakukan secara *in-situ* atau *ex-situ*.

Dalam eksperimen sekarang dilakukan ablasi laser pada target  $MgB_2+Mg$  dilanjutkan dengan *anil* secara *in-situ* dengan tujuan mendapatkan film tipis  $MgB_2$  untuk pembuatan detektor radiasi kelak. Tambahkan logam Mg dimaksudkan agar plasma yang terbentuk tidak mengalami kekurangan unsur Mg akibat banyaknya penguapan. Dalam eksperimen ini juga dipelajari tentang bagaimana pengaruh tekanan gas argon, suhu deposisi dan suhu *anil* secara *in-situ* dalam pendeposisian film tipis superkonduktor  $MgB_2$  dengan teknik PLD.

## BAHAN DAN TATA KERJA

Eksperimen ini terdiri dari dua bagian, yakni preparasi target  $MgB_2+Mg$  dan penentuan parameter deposisi yang paling cocok untuk menumbuhkan film tipis  $MgB_2$  dengan teknik PLD. Seluruh kegiatan eksperimen dilakukan di *Spectroscopic Photon Sensing Group, Photonics Research Institute, National Institute of Advanced Industrial Science and Technology*, Tsukuba, Jepang.

### Preparasi Target $MgB_2+Mg$

Disiapkan suatu campuran yang terdiri dari 50 % vol serbuk Mg (*Alfa Aesar* : 99,6 %) dan 50 % vol serbuk  $MgB_2$  (*Alfa Aesar* : 98,0 %). Campuran serbuk tersebut diaduk (digerus) secara hati-hati dan ditekan dengan tekanan  $5 \text{ ton/cm}^2$  sehingga diperoleh pelet, diameter 20 mm dan ketebalan 2,7 mm. Pelet *disinter* pada  $750^\circ C$  dalam aliran gas nitrogen selama 5 jam diikuti dengan pendinginan ke suhu ruang, maka diperoleh  $MgB_2$  berbentuk pelet. Pelet  $MgB_2$  ditempatkan pada pemegang target berbentuk cincin dari baja, diameter luar dan dalam berturut-turut 30 dan 19 mm. Sebagian permukaan pelet

$MgB_2$  ditutup dengan pelat Mg lebar 3,3 mm dan tebal 0,5 mm, sehingga dengan 3 pelat Mg dapat menutup 50 % permukaan  $MgB_2$  (Gambar 1).

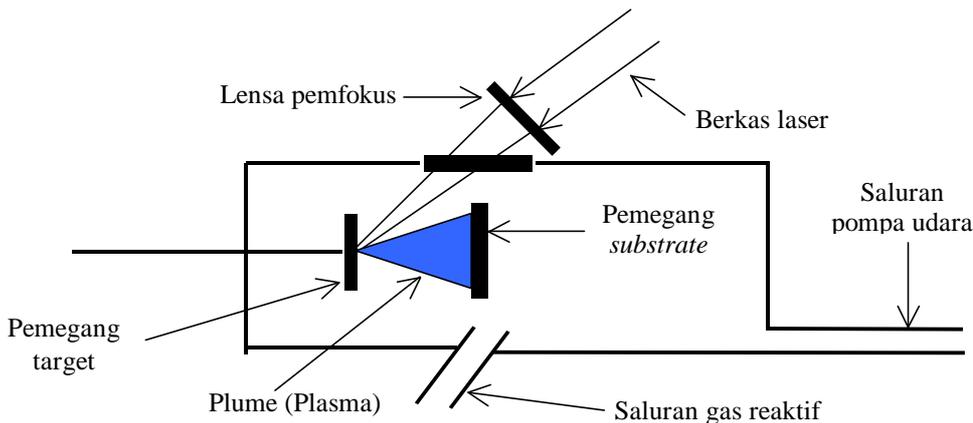
## Prinsip Kerja PLD

Penumbuhan film tipis dengan teknik PLD dilakukan pada kamar deposisi (*deposition chamber*). Secara konseptual dan eksperimental, kamar deposisi sangat sederhana seperti ditunjukkan pada Gambar 2. Kamar deposisi terdiri dari pemegang target (*target holder*), pemegang *substrate* (*substrate holder*), saluran pemompa udara dan saluran gas reaktif.

Sinar laser berenergi tinggi dari mesin pembangkit laser diarahkan pada target di dalam kamar deposisi. Laser berinteraksi dengan bahan target menghasilkan *laser plume* (plasma) berbentuk kerucut. Jarak antara target dan *substrate* diatur sedemikian sehingga *substrate* berada pada posisi bidang dasar kerucut tersebut. *Laser plume* terdiri dari atom-atom dan partikel-partikel dalam wujud uap atau gas yang kemudian menempel pada *substrate* dalam bentuk film tipis. Dengan adanya saluran gas reaktif, penumbuhan film tipis dapat dilakukan dalam lingkungan berbagai jenis gas seperti oksigen dan argon tergantung jenis target dan film yang diinginkan [8].

## Deposisi Film Tipis Superkonduktor $MgB_2$

Deposisi film tipis superkonduktor  $MgB_2$  pada *substrate* dengan teknik PLD, bergantung pada banyak parameter yakni : target, tekanan udara dalam kamar deposisi sebelum proses pelapisan, tekanan dan fluksi gas reaktif (dalam eksperimen ini digunakan gas argon), suhu dan waktu deposisi, suhu dan waktu *anil*, jarak antara target dan *substrate*, frekuensi dan energi laser untuk deposisi dan *anil*. Jadi sekurang-kurangnya ada 12 parameter yang harus diubah dan dikombinasikan agar diperoleh film tipis superkonduktor  $MgB_2$ . Parameter-parameter tersebut diubah secara tidak bergantung kecuali waktu deposisi dan frekuensi pulsa laser, kedua parameter tersebut diubah secara berlawanan. Parameter deposisi, parameter *anil* dan satuan pengubah ditunjukkan pada Tabel 1. Deposisi film  $MgB_2$  dilakukan sebagai berikut :



Gambar 2. Diagram skema kamar deposisi pulsed laser deposition (PLD).

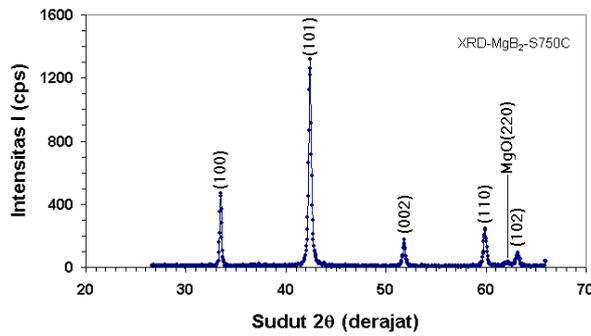
1. Digunakan laser KrF, panjang gelombang = 248 nm, energi  $E = 400-450$  mJ dengan frekuensi  $f = 5-30$  Hz, target :  $MgB_2+nMg$  ( $n$  adalah jumlah pelat Mg yang nilainya : 0, 1, 2, 3) dan *substrate* : kristal tunggal  $Al_2O_3(001)$ .
2. *Substrate* direkatkan dengan pasta perak pada pemegang *substrate* tepat di atas target pada jarak  $d = 23,0-50,0$  mm.
3. Kamar deposisi divakumkan hingga tekanan  $P = 10^{-6}-10^{-7}$  Torr. Sebelum deposisi film dimulai, permukaan target ditembak dulu dengan sinar laser selama 1 menit, maksudnya untuk menghilangkan impuritas yang mungkin ada pada permukaan target.
4. Penumbuhan film dilakukan pada kondisi dimana *plume* berwarna biru dan deposisi film dilakukan pada besaran suhu, yakni  $T = 25-500^\circ C$ .
5. Target ditembak dengan berkas sinar laser selama  $t = 5-30$  menit. Setelah deposisi dilanjutkan dengan proses anil, sebagai berikut :
  - a. Suhu *substrate* dinaikan hingga suhu *anil*, dalam eksperimen ini dicoba empat besaran suhu *anil* yakni  $T = 580, 590, 600, 610^\circ C$ , ditahan pada suhu tersebut selama 5-6 menit, kemudian dilakukan pendinginan cepat ke suhu ruang.
  - b. Anil dilakukan pada kondisi dimana *plume* berwarna biru.
  - c. Gas argon dialirkan ke dalam kamar deposisi sejak suhu *substrate*  $200^\circ C$ .
  - d. Pada suhu *substrate* mulai  $350^\circ C$  hingga suhu anil dan turun lagi hingga  $350^\circ C$ , *substrate* berada dalam lingkungan plasma magnesium, hal ini dicapai dengan menembaki pelat logam Mg dengan sinar laser frekuensi  $f = 5-10$  Hz dan energi sama dengan energi ketika deposisi.

## HASIL DAN PEMBAHASAN

Warna permukaan pelet  $MgB_2$  hasil sinter tidak berwarna hitam melainkan kecoklat-coklatan, hal ini karena ada sebagian Mg yang menguap dari pelet. Oleh karena itu, lapisan luar pelet dihilangkan kira-kira setebal 1-2 mm dengan cara diasah. Diterapkannya periode *sintering* yang pendek dimaksudkan untuk meminimumkan penguapan Mg dari pelet. Gambar 3 adalah pola difraksi sinar-x dari pelet  $MgB_2$  yang telah disinter pada  $750^\circ C$ . Analisis dengan metode *Hanawalt* menunjukkan bahwa  $MgB_2$  memiliki sistem kristal heksagonal, dengan parameter kisi :  $a = b = 3,083 \text{ \AA}$  dan

Tabel 1. Parameter deposisi, nilai dan satuan pengubah untuk menumbuhkan film tipis superkonduktor  $MgB_2$  dengan teknik pulsed laser deposition (PLD)

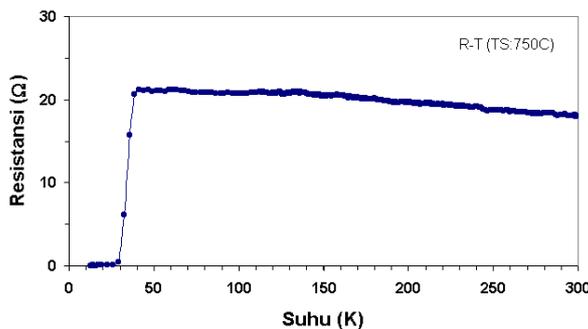
No.	Parameter	Nilai dan satuan pengubah		
		Minimum	Maximum	Satuan
1.	Target : $MgB_2+nMg$	$n = 0$	$n = 3$	pelat
2.	Tekanan udara ( $P_u$ )	$7 \times 10^{-6}$	$2 \times 10^{-7}$	Torr
3.	Fluksi gas argon ( $\phi$ )	10	30	ml/menit
4.	Tekanan gas argon ( $P_a$ )	0,20	1,0	Torr
5.	Suhu deposisi ( $T$ )	25	500	$^\circ C$
6.	Waktu deposisi ( $t$ )	5	30	menit
7.	Suhu anil ( $T$ )	580	610	$^\circ C$
8.	Waktu anil ( $t$ )	5	6	menit
9.	Jarak target- <i>substrate</i> ( $d$ )	23,0	50,0	mm
10.	Energi laser ( $E$ )	400	450	mJ
11.	Frekuensi pulsa laser untuk deposisi ( $f$ )	5	30	Hz
12.	Frekuensi pulsa laser untuk anil ( $f$ )	5	10	Hz



Gambar 3. Pola difraksi sinar-x dari pelet  $MgB_2$ , radiasi  $CuK\alpha-\lambda=1,5405 \text{ \AA}$ , tidak terdeteksi adanya puncak asing kecuali puncak  $MgO(220)$ .

$c = 3,521 \text{ \AA}$ . Sifat listrik bahan diukur dengan *four point probe*, Gambar 4 menunjukkan kurva resistansi ( $R$ ) terhadap suhu ( $T$ ) pelet  $MgB_2$ , tampak bahwa pelet  $MgB_2$  adalah superkonduktor dengan suhu transisi superkonduksi  $T_{c,0} \approx 26 \text{ K}$  dan suhu awal transisi  $T_{c,on} = 39 \text{ K}$ .

Pada mulanya *plume* yang ditimbulkan oleh ablasi laser pada target  $MgB_2$  berwarna hijau, sama dengan ketika ablasi laser pada target  $MgO$  [4]. Ini menunjukkan bahwa selama ablasi laser tersebut,  $Mg$  teroksidasi menjadi  $MgO$ . Oleh karena itu, film yang terbentuk pada



Gambar 4. Kurva yang menunjukkan hubungan antara resistansi ( $\Omega$ ) terhadap suhu ( $K$ ) pada pelet  $MgB_2$ , diukur dengan metode *four point probe*.

*substrate* akan terkontaminasi senyawa  $MgO$ . Jika target  $MgB_2$  tidak teroksidasi, maka *plume* akan terlihat berwarna biru. Agar ablasi laser terbebas dari pengaruh oksigen, maka dialirkan gas argon dengan tekanan diatur sedemikian rupa sehingga diperoleh *plume* berwarna biru.

Dengan memvariasikan tekanan gas argon, maka secara mencolok teramati adanya perubahan warna *plume* dari hijau pada tekanan rendah ( $P < 0,5 \text{ Torr}$ ), menjadi biru pada tekanan tinggi ( $P \geq 0,5 \text{ Torr}$ ). Keduabelas parameter deposisi dan *anil* tersebut diubah-ubah dan dikombinasikan sehingga dapat diuji coba 140 cuplikan film tipis  $MgB_2$  dan film  $MgB_2$  yang paling baik dalam eksperimen ini adalah film dengan parameter deposisi dan parameter *anil* seperti ditunjukkan pada Tabel 2.

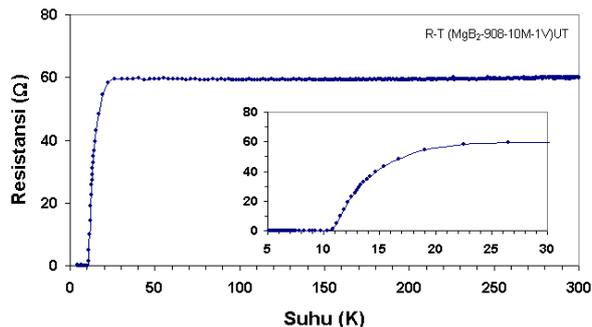
Gambar 5 adalah kurva yang menunjukkan hubungan antara resistansi  $R$  ( $W$ ) terhadap suhu  $T$  ( $K$ ) dari film tipis superkonduktor  $MgB_2$  yang ditumbuhkan pada *substrate*  $Al_2O_3$  (001) menggunakan teknik PLD dengan menerapkan proses *anil* secara *in-situ* berdasarkan data parameter deposisi dan *anil* pada Tabel 2. Pengukuran resistansi dilakukan menggunakan metode *four point probe ac*. Transisi superkonduksi dimulai pada  $T_{c,on} = 26,5 \text{ K}$  dan resistansi menjadi nol pada  $T_{c,0} = 10 \text{ K}$ .

Jadi suhu transisi superkonduksi  $MgB_2$ -film menyusut hingga  $10 \text{ K}$  dari  $26,5 \text{ K}$  pada  $MgB_2$ -*bulk* (pelet), hal ini mungkin karena masih kecilnya ukuran butir kristal  $MgB_2$  (akibat penumbuhan kristal belum optimal) dan adanya fasa kedua seperti  $MgO$  (akibat masih terkontaminasi oksigen). Indikasi bahwa film mengandung fasa kedua terlihat jelas pada *inset* Gambar 5 (perbesaran untuk daerah suhu  $5\text{-}30 \text{ K}$ ), dimana penurunan resistansi dari keadaan normal ( $60 \Omega$ ) ke keadaan superkonduktor ( $0 \Omega$ ) terjadi pada selang harga suhu yang lebar ( $16,5 \text{ K}$ ).

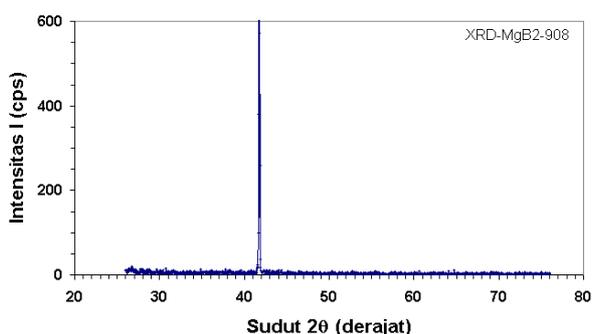
Foto permukaan film dengan SEM ditunjukkan pada Gambar 7, tampak bahwa daerah yang hitam (gelap) adalah matriks dan yang putih adalah partikel-partikel. Data analisis energi dispersi sinar-x menunjukkan bahwa matriks dan partikel masing-masing mengandung unsur  $B$ ,  $Mg$  dan  $O$  (Tabel 3). Konsentrasi  $Mg$  cukup tinggi di

Tabel 2. Nilai parameter deposisi yang paling cocok untuk menumbuhkan film tipis superkonduktor  $MgB_2$  dengan teknik *pulsed laser deposition* (PLD).

No.	Parameter	Nilai	Satuan
1.	Target : $MgB_2+nMg$	$n = 3$	lempeng $Mg$
2.	Tekanan udara ( $P_u$ )	$7 \times 10^{-7}$	Torr
3.	Fluksi gas argon ( $\phi$ )	25	ml/menit
4.	Tekanan gas argon ( $P_a$ )	0,75	Torr
5.	Suhu deposisi ( $T$ )	200	$^{\circ}C$
6.	Waktu deposisi ( $t$ )	7	menit
7.	Suhu anil ( $T$ )	580	$^{\circ}C$
8.	Waktu anil ( $t$ )	5	menit
9.	Jarak target- <i>substrate</i> ( $d$ )	35,0	mm
10.	Energi laser ( $E$ )	450	mJ
11.	Frekuensi pulsa laser untuk deposisi ( $f$ )	10	Hz
12.	Frekuensi pulsa laser untuk anil ( $f$ )	5	Hz



**Gambar 5.** Kurva yang menunjukkan hubungan antara resistansi ( $\Omega$ ) terhadap suhu (K) pada film tipis  $MgB_2$ .  $T_{c,0} = 10$  K tampak jelas pada inset



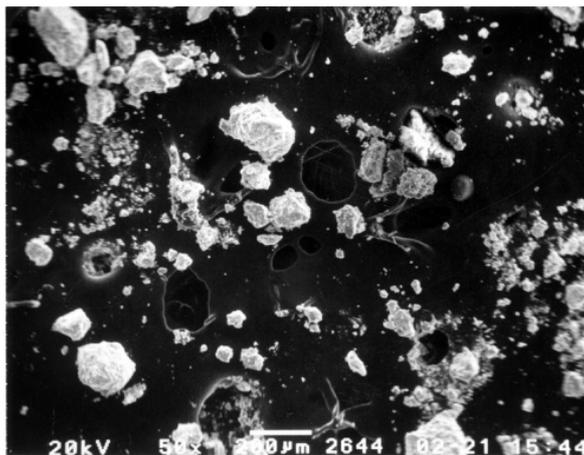
**Gambar 6.** Pola difraksi sinar-x dari film tipis  $MgB_2$ , radiasi  $CuK\alpha$ - $\lambda=1,5405$  Å, yang terdeteksi hanya puncak difraksi *substrate*  $Al_2O_3$  (001).

dalam partikel, namun masih sangat rendah di daerah matriks dan di permukaan film secara keseluruhan. Jadi film masih kekurangan magnesium dan terkontaminasi oksigen, sehingga kristalisasi senyawa  $MgB_2$  berlangsung tidak sempurna.

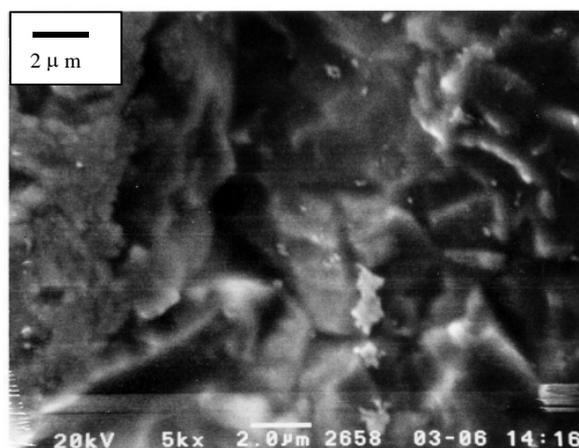
Untuk mengidentifikasi fasa (struktur kristal) film, maka dilakukan karakterisasi dengan difraksi sinar-x, menggunakan radiasi  $CuK\alpha$ . Intensitas difraksi dicacah mulai dari sudut  $2\theta = 26^\circ - 76^\circ$  dengan lebar langkah  $\Delta\theta : 0,04^\circ$ , lama cacahan per titik  $t = 2$  detik dan hasilnya ditunjukkan pada Gambar 6. Tampak bahwa hanya ada satu puncak yang dapat diamati, yakni puncak dari *substrate*  $Al_2O_3$  bidang (001). Tidak teramatinya puncak-puncak  $MgB_2$  menunjukkan bahwa film yang terbentuk pada *substrate* adalah polikristal dengan ukuran butir yang sangat kecil akibat proses *anil* yang belum optimal.

**Table 3.** Data EDAX (*energy dispersive analysis of x-rays*) dari film tipis  $MgB_2$  menunjukkan kuantitas unsur B, Mg dan O masing-masing pada daerah permukaan secara keseluruhan, matriks dan partikel.

Unsur	Persen atom (%)		
	Seluruh daerah	Matriks	Partikel
B	78,29	86,50	66,45
O	14,63	13,26	6,03
Mg	7,08	0,24	27,51



**Gambar 7.** Foto SEM dari permukaan film tipis  $MgB_2$  hasil ablasi laser pada  $200^\circ C/7$  menit dan *anil* pada  $580^\circ C/5$  menit dengan pembesaran : 50 kali.



**Gambar 8.** Foto SEM dari permukaan film tipis  $MgB_2$  hasil ablasi laser pada  $200^\circ C/7$  menit dan *anil* pada  $580^\circ C/5$  menit dengan pembesaran 5.000 kali.

Demikian pula puncak dari fasa lain yang mungkin ada seperti  $MgO$  tidak teramati karena jumlahnya terlalu sedikit untuk bisa diamati dengan difraksi sinar-x. Struktur mikro dengan pembesaran  $5 \times 10^3$  kali ditunjukkan pada Gambar 8, tampak bahwa orientasi butir-butir masih acak dan berukuran sekitar  $2 \mu m$ .

## KESIMPULAN

Film tipis superkonduktor  $MgB_2$  telah disintesis pada *substrate*  $Al_2O_3$  (001). Film menampilkan suhu transisi kritis  $T_{c,0} = 10$  K, masih di bawah suhu transisi kritis  $MgB_2$  dalam wujud pelet, yakni  $T_{c,0} = 26$  K. Salah satu penyebabnya adalah karena film masih kekurangan magnesium. Oleh karena itu diperlukan perlakuan khusus untuk mengimbangi hilangnya unsur Mg akibat penguapan dan menjaga agar tidak terjadi oksidasi Mg, yakni dengan optimasi tekanan gas argon dan plasma magnesium di dalam kamar deposisi.

## UCAPAN TERIMA KASIH

Riset ini dibiayai oleh *the National Institute of Advanced Industrial Science, Japan* di bawah payung *the Scientist Exchange Program in Nuclear Energy Research*. Saya mengucapkan terimakasih kepada Dr. Ukibe, Mr. H. Pressler, Mrs. Kajiwara, dan Dr. B. Pijambudi atas bantuannya.

## DAFTAR PUSTAKA

- [1]. J. NAGAMATSU, N. NAKAGAWA, T. MURANAKA, Y. ZENITANI, and J. AKIMITSU, *Nature* **410** (2001) 63.
- [2]. S.L. BUDKO, G. LAPERTOT, C. PETROVIC, C.E. CUNNINGHAM, N. ANDERSON, and P.C. CANFIELD, *Phys. Rev. Lett.* **86** (2001) 1877.
- [3]. W.N. KANG, H.J. KIM, E.M. CHOI, C.U. JUNG, S.I. LEE, *Science* **292** (2001) 1521.
- [4]. A. BRINKMAN, D. MIJATOVIC, G. RIJNDERS, V. LECA, H.J.H. SMILDE, I. OOMEN, A.A. GOLUBOV, F. ROESTHUIS, S. HARKEMA, H. HILGENKAMP, D.H.A. BLANK, and H. ROGALLA, *Physica C* **353** (2001) 1.
- [5]. H.M. CHRISTEN, H.Y. ZHAI, C. CANTONI, M. PARANTHAMAN, B.C. SALES, C. ROULEAU, D.P. NORTON, D.K. CHRISTEN, and D.H. LOWNDES, *Physica C* **353** (2001) 157.
- [6]. D.H.A. BLANK, H. HILGENKAMP, A. BRINKMAN, D. MIJATOVIC, G. RIJNDERS, and H. ROGALLA, *Appl. Phys. Letters* **79** (2001) 394.
- [7]. G. GRASSANO, W. RAMADAN, V. FERRANDO, E. BELLINGERI, D. MARRE, C. FERDEGHINI, G. GRASSO, M. PUTTI, P. MANFRINETTI, A. PALENZONA, and A. CHINCARINI, *Supertcond. Sci. Technol.* **14** (2001) 762-764.
- [8]. D.B. CHRISEY and G.K. HUBLER, *Pulsed Laser Deposition of Thin Films*, John Wiley & Sons, INC., New York, (1994).