

УДК 53.043; 536.48; 621.382

ОПТИМИЗАЦИЯ ПРИГОТОВЛЕНИЯ СВЕРХПРОВОДЯЩИХ ЭПИТАКСИАЛЬНЫХ $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ ПЛЕНОК КАК БАЗОВЫХ ЭЛЕКТРОДОВ ДЛЯ ДЖОЗЕФСОНОВСКИХ ПЕРЕХОДОВ

И. И. Гундарева^{1,2}, В. Н. Губанков¹, Ю. Я. Дивин^{1,2}

¹Институт радиотехники и электроники им. В.А. Котельникова РАН, Москва

²Институт П. Грюнберга, Исследовательский центр г. Юлиха, ФРГ

Получена 20 марта 2013 г.

Аннотация. Исследовалось влияние технологических параметров приготовления на электрические и структурные свойства эпитаксиальных пленок, полученных из высокотемпературного сверхпроводника $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ распылением и предназначенных для использования в качестве базовых электродов джозефсоновских переходов. Определены параметры химической и термической обработки NdGaO_3 подложек, позволяющие достигать высоких, до $5 \cdot 10^6 \text{ A/cm}^2$ при температуре 78К, плотностей критических токов для c -ориентированных пленок с шириной в единицы микрометров. Для пленок с наклонными осями c получено, что критическая плотность тока пленок вдоль наклона уменьшается с понижением ширин до единиц микрон, а перпендикулярно наклону может достигать $1,3 \cdot 10^7 \text{ A/cm}^2$. Форма вольт-амперных характеристик $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ пленок при токах выше критического I_c хорошо описывается формулой $V = a(I - I_c)^b$ с величинами индексов b в диапазоне от 2 до 3 в зависимости от наклона оси c пленки и температуры отжига подложек в атмосфере кислорода.

Ключевые слова: высокотемпературная сверхпроводимость, эпитаксиальные пленки, джозефсоновские переходы.

Abstract. Effects of technological parameters on electrical and structural properties of epitaxial $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ thin films have been studied. The $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ thin films were fabricated by dc sputtering and intended to be used as base electrodes of

Josephson junctions. The parameters of chemical and thermal treatments of NdGaO_3 substrates were found, which guarantee the high, up to $5 \cdot 10^6 \text{ A/cm}^2$ at the temperature of 78K, values of the critical current densities for the c -axis $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ thin films with the widths of a few micrometers. In the case of the $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ films with tilted c -axes, the critical current density in the direction of the tilt decreased with a decrease of the film width and in perpendicular direction reached the values up to $1.3 \cdot 10^7 \text{ A/cm}^2$. Voltage-current characteristics of the $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ films above the critical currents I_c were found to be good described by an equation $V = a(I - I_c)^b$, where the b -indexes were ranging from 2 to 3 depending on the c -axis tilt and the temperature of substrate annealing in oxygen.

Keywords: high temperature superconductivity, epitaxial thin films, Josephson junctions.

Введение

Применения нестационарного эффекта Джозефсона [1] для генерации, обнаружения и анализа электромагнитного излучения были предложены буквально сразу после открытия этого эффекта [2]. Особый интерес представляет реализация детекторных и спектроскопических применений нестационарного эффекта Джозефсона в терагерцовом диапазоне частот. В последнее время этот диапазон, охватывающий область частот от 0,1 ТГц до 10 ТГц и являющийся промежуточным между микроволновой и инфракрасной областями спектра привлекает все большее внимание исследователей, специализирующихся в физике твердого тела, физике высоких энергий, телекоммуникациях, биологии, медицине и проблемах безопасности [3]-[5]. Общепринятые методы детектирования и спектроскопии, разработанные для более низких частот, в микроволновом диапазоне, или для более высоких частот, в инфракрасном диапазоне, существенно ухудшают свои параметры при применении их в промежуточном терагерцовом диапазоне [6].

Основные достижения в сверхпроводниковой электронике до последнего времени были связаны с использованием туннельных переходов из

низкотемпературных сверхпроводников, таких как Nb или NbN, с рабочими температурами, как правило, в области температур жидкого гелия. Ограничение сверху на частотный диапазон у туннельных переходов связано с наличием в спектре возбуждений сверхпроводника энергетической щели 2Δ . Для Nb и NbN эти граничные частоты $2\Delta/h$ составляют около 700 ГГц и 1200 ГГц, соответственно. Данное обстоятельство не позволяет существенно продвинуться вглубь терагерцового диапазона, используя переходы из традиционных низкотемпературных сверхпроводников. Кроме того, для эффективной работы ряда детекторов и спектроскопических методов, основанных на нестационарном эффекте Джозефсона, необходимо, чтобы джозефсоновские переходы описывались в рамках идеальной резистивной модели [2]. Приближение к резистивной модели возможно в реальных переходах с малой электрической емкостью при напряжениях V и частотах f , значительно ниже щелевых $2\Delta/e$ и $2\Delta/h$, соответственно. Это обстоятельство еще более ограничивает рабочие частоты таких устройств.

С открытием в 1986 году высокотемпературных сверхпроводников (ВТСП) [7], у которых щелевые частоты $2\Delta/h$ могут достигать нескольких десятков ТГц [8], появилась принципиальная возможность существенно расширить частотный диапазон сверхпроводящих приемных и спектроскопических устройств в область терагерцовых частот, а также повысить их рабочие температуры.

Джозефсоновские переходы из ВТСП в основном получают с помощью нанесения тонких ВТСП пленок на бикристаллические подложки, причем бикристаллическая граница между разориентированными пленками является джозефсоновским барьером [9]. ВТСП бикристаллические переходы из c -ориентированных $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ пленок позволяли реализовывать спектроскопические применения при рабочих температурах в десятки градусов К [10], однако они не обладали высокими значениями характерных напряжений $I_c R_n$, обусловленными величинами энергетических щелей ВТСП. Разработанные в последнее время бикристаллические переходы из $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ пленок с

взаимнонаклоненными осями c [11] обладают более высокими величинами критических плотностей тока и высокими, до 10 мВ, величинами $I_c R_n$ [12].

Использование таких переходов в качестве спектральных устройств предполагает сканирование напряжения в диапазоне до 10 мВ и выше так, что соответствующие джозефсоновские частоты достигают 5 ТГц и выше. В этом случае становится важной способность сверхпроводящих тонкопленочных электродов выдерживать значительные бездиссипативные токи и не вносить дополнительного вклада в напряжение V на переходе, по которому в джозефсоновском спектральном анализе определяются частоты, т.е. $f = 2eV/h$.

Существенным фактором в получении высококачественных эпитаксиальных ВТСП пленок является подготовка подложек для эпитаксиального роста. В работе [13] приведены технологические параметры химического и термического приготовления подложек для эпитаксиальных оксидных гетероструктурных пленок, однако электрические характеристики сверхпроводящих пленок на таких подложках не исследовались. В данной работе нами исследовалось влияние подготовки подложек из NdGaO_3 на вольт-амперные характеристики $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ тонких пленок с вертикальными и наклоненными осями c .

1. Приготовление эпитаксиальных пленок из $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$

Приготовление эпитаксиальных пленок производилось распылением стехиометрической мишени из $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ в атмосфере кислорода высокого давления [14] на подложки из галлата неодима NdGaO_3 . Выбор подложек был обусловлен наименьшим рассогласованием параметров решеток $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ и NdGaO_3 по сравнению с подложками из других материалов. Подложки с размерами $10 \times 10 \times 0,5 \text{ мм}^3$ имели рабочие поверхности (110) для получения c -ориентированных пленок, а также (230) или (320) - для пленок с наклонной на $11,3^\circ$ осью c , соответственно. Как следует из исследований микроструктуры эпитаксиальных $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ пленок, нанесенных на NdGaO_3 подложки с

наклонами плоскости (110) от 0 вплоть до 18°, оси c пленок остаются перпендикулярными плоскости (110) в подложке [15], [16].

Подложки поступали после химико-механической полировки, и перед распылением $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ проводились различные варианты очисток их поверхности. Сначала проводилась промывка подложки в ацетоне в течение 5-15 минут, затем протирка поверхности ватой в ацетоне и промывка в этаноле в течение 2-3 минут в ультразвуковой ванне. Более тонкая обработка поверхности подложки заключалась в ее промывке в деионизованной воде в ультразвуковой ванне в течение 10 минут, после чего, в течение 0,5 - 8 минут подложки подвергались травлению в буферизованном растворе плавиковой кислоты (ВНФ), аналогичном использованному в работе [13]. Далее, следовал высокотемпературный отжиг подложек, подобный использовавшемуся ранее в работах [13], [17], но при более широких изменениях параметров: температурах нагревателя от 800°C до 1000°C, при постоянном потоке кислорода в течение 20 - 240 минут и давлении 1 бар или 1 мбар.

Напыление пленок проводилось в атмосфере кислорода при давлениях от 2,5 до 4,0 мбар. При этом температура T_n нагревателя подложек составляла от 910°C до 990°C. Температуры T_n самих подложек можно оценить из температур T_n нагревателя по полуэмпирическому соотношению $T_n [K] \cong T_n[K]/2^{1/4} + 50$, где первое слагаемое обусловлено радиационными потерями в холодное окружение камеры при телесном угле в 2π стерадиан, а второе - дополнительным нагревом из-за излучения от газового разряда и теплопередачи по контакту нагреватель-подложка. Температуры термопары диаметром 0,3 мм, помещенной внутрь отверстия диаметром 0,5 мм в подложке из $NdGaO_3$ толщиной 1 мм, имели величины, согласующиеся с указанным соотношением с точностью до десятков градусов. Толщины t наносимых пленок составляли 60 - 200 нм. По мере нанесения пленок эффективная температура подложки увеличивалась на несколько десятков градусов.

Качество поверхности подложек и напыленных пленок контролировалось с помощью поляризационного оптического микроскопа (Karl Zeiss) и атомно-

силового микроскопа (АСМ) PicoSPM (Molecular Imaging). Предварительное тестирование электрического сопротивления нанесенных пленок производилось с помощью четырехконтактного зонда, у которого контакты располагались по углам квадрата с расстоянием 5 мм. При пропускании тока через два контакта вдоль одной стороны квадрата измерялось падение напряжения на двух контактах, расположенных на противоположной стороне квадрата. Затем такие же измерения проводились при расположении контактов, повернутых на 90° по отношению к предыдущим измерениям. Таким образом, оценивались сопротивления образцов в двух взаимноперпендикулярных направлениях.

Конфигурация образцов в виде мостиков приготавливалась из полученных пленок с помощью УФ литографии при использовании ПММА в качестве фоторезиста и жидкостного травления в 0,1% раствора брома в этаноле. Ширина w исследуемых мостиков варьировалась в диапазоне 2 - 18 мкм. Электрические контакты к образцам наносились с помощью распыления металлов Ag или Pt через маски или методом лифт-офф. Готовые образцы были смонтированы в штангу с гелием в качестве теплообменного газа, которая затем погружалась в дьюар с жидким азотом для выполнения измерений. Измерения электрических характеристик перехода проводились при температуре 78 К.

2. Морфология NdGaO_3 подложек и $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ пленок

После обработки в буферизованном растворе HF на поверхности подложек из (110) NdGaO_3 иногда наблюдался набор террас, высотой около размера элементарной ячейки NdGaO_3 (0,5 нм) и длиной около 150 нм (Рис. 1). Это обстоятельство обусловлено малыми, в десятую долю градуса, отклонениями реальной поверхности подложек от поверхности (110) с одной стороны, а с другой стороны свидетельствует о высокой степени очистки поверхности подложек в используемой рецептуре.

На подготовленные таким образом подложки наносились $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ пленки с вертикальной осью c , и проводилась оптимизация процесса эпитаксиального роста. Критерием для хорошей пленки является выраженный островковый рост c -ориентированных зерен и минимальное содержание a -ориентированных зерен. Лучший результат был получен при температуре нагревателя 950°C (эффективная температура подложки при этом была оценена в 810°C) и давлении кислорода $P = 3,4$ мбар.

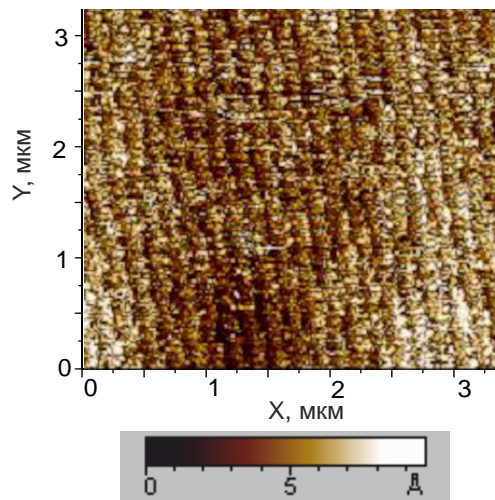


Рис. 1. Морфология подложки из $(110) \text{NdGaO}_3$ после обработки в ВНФ. Представлено топографическое изображение, полученное при помощи АСМ.

Дальнейшего улучшения качества $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ пленок можно было достичь с помощью оптимизации времени травления подложек в буферизованном растворе НФ. Время травления t варьировалось от 0,5 до 8 минут. На Рис.2 представлены АСМ-изображения для $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ пленок, которые были получены на подложках $(110) \text{NdGaO}_3$, подвергнутых обработке в ВНФ различной длительности. Пленки, полученные на подложках без дополнительной химической обработки (Рис.2а), имели значительное количество a -ориентированных зерен (сравнительно высокие образования прямоугольной формы на Рис. 2а). Кратковременная обработка подложек в ВНФ позволила существенно уменьшить количество a -ориентированных зерен и выявить доминирующий островковый рост c -ориентированных зерен (Рис.

2б). При дальнейшем повышении времени обработки подложек в ВНФ количество a -ориентированных зерен снова начинало возрастать (Рис. 2в).

Количество a -ориентированных зерен на размере площади пленки в 4×4 мкм² представлены на Рис. 3а как функция времени травления подложек в ВНФ.

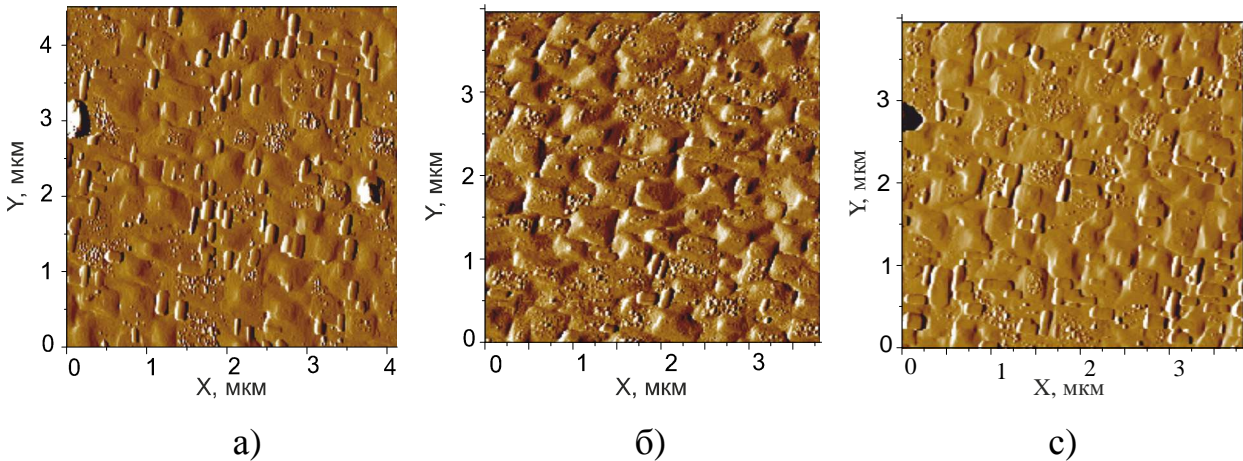


Рис. 2. Морфология пленок из $YBa_2Cu_3O_{7-x}$, напыленных на подложку (110) $NdGaO_3$, при различной обработке в ВНФ а) без обработки, б) 2 мин., с) 8 мин. Амплитудные изображения поверхности получены при помощи АСМ.

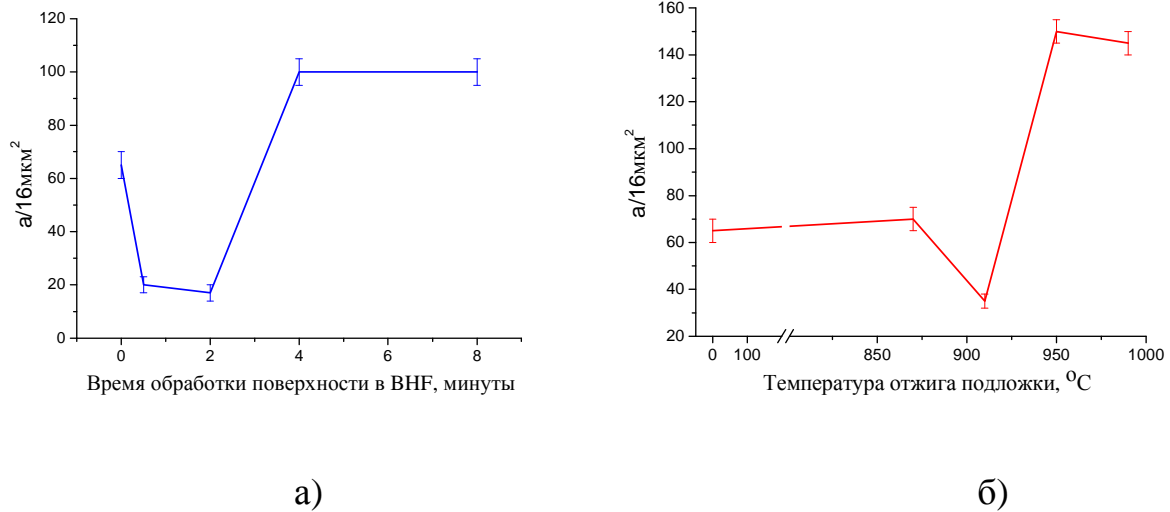


Рис. 3. Количество a -ориентированных зерен на площади в 16 мкм^2 у пленок из $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ в зависимости от времени обработки в ВНФ (а) и температуры отжига подложек из (110) $NdGaO_3$ (б).

Из Рис.3а следует, что существует оптимальное время травления в 1-2минуты, обеспечивающее малую концентрацию неосновных a -ориентированных зерен в преимущественно c -ориентированной пленке. Таким образом, наши результаты подтверждают выводы работы [13], что кратковременная

химическая обработка подложек в ВНФ улучшает качество наносимых на эти подложки пленок. Приведенные же в работе [13] режимы тепловой обработки подложек при 950-1000°С оказались не оптимальными для приготовления качественных $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ пленок на подложках из (110) NdGaO_3 . Нами получены зависимости концентрации a -ориентированных зерен в зависимости от температуры отжига подложек в атмосфере кислорода (Рис. 3б), которые свидетельствуют об увеличенной концентрации этих зерен как раз при высоких 950-1000° температурах и снижении этой концентрации при температурах отжига около 910 °С.

Использование подложек с малыми, 1-2°, наклонами поверхности относительно кристаллографической плоскости (110) подложки приводило к значительному изменению морфологии $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ пленок, свидетельствующему о переходе от островкового роста к послойному росту

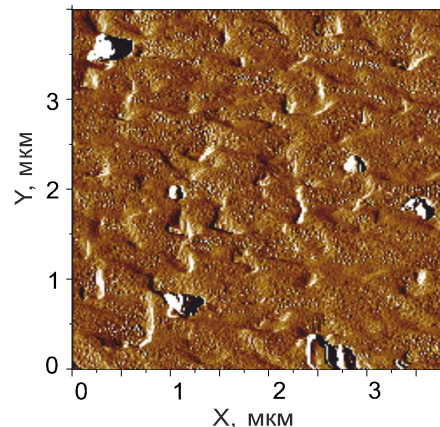


Рис. 4. Морфология пленки из $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$, напыленной на подложку из NdGaO_3 с рабочей поверхностью, полученной вращением плоскости (110) на 1.7° вокруг направления (001).

пленок (Рис. 4). При этом также заметно образование более крупных, с размерами до десятых долей микрона, и реже встречающихся преципитатов. Параметры нанесения пленки с наклонной осью c и подготовка подложки сохранились теми же, как для пленок на Рис. 2б, но время травления в ВНФ было увеличено до 5 минут.

Также проводилась оптимизация процесса распыления для $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ пленок со значительным наклоном оси c , что необходимо для создания бикристаллических переходов со взаимонаклоненными осями c . На Рис. 5 представлены АСМ-изображения пленок, полученных на подложке (230) NdGaO_3 при двух температурах нагревателя подложек.

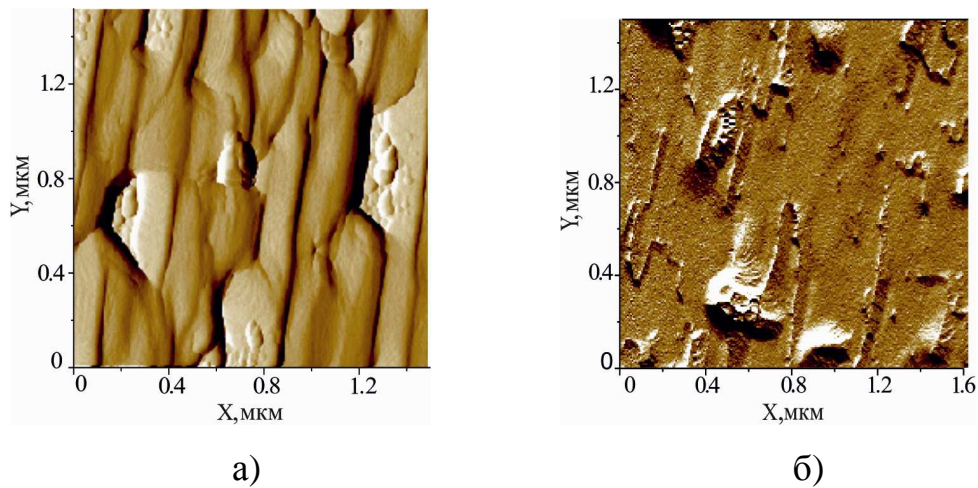


Рис. 5. Пленки из $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$, полученные на подложке из (230) NdGaO_3 при различных температурах нагревателя подложки: 950°C (а) и 910°C (б).

Пленка, показанная на Рис. 5а, наносилась при температуре 950°C, которая была ранее выбрана оптимальной для c -ориентированных пленок. Пленка состояла из набора террас, наклоненных на 11° к нормали к пленке, и ступеней между террасами, имевшими высоты, на порядок превосходящие размер $1,1 \text{ нм}$ у элементарной ячейки $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ в c -направлении. Последнее обстоятельство весьма распространено при росте $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ пленок с наклонными осями c и получило в англоязычной литературе название “step bunching“. Было обнаружено, что этим процессом можно управлять с помощью температуры подложки. На Рис. 5б представлена $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ пленка, полученная при пониженной (910°C) температуре подложки (230) NdGaO_3 . Поверхность пленки на Рис.5б имеет гораздо более сглаженные участки, чем пленка на Рис.5а. Из наших данных следует, что получение гладких пленок с наклонной осью должно происходить при более низких температурах по сравнению с ростом c -ориентированных пленок.

Также ступенчатая структура на поверхности $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ пленки с наклонной осью c зависела от температуры и продолжительности предварительного отжига NdGaO_3 подложек. На Рис. 6 показаны поверхности пленок, которые были получены на подложках (320) NdGaO_3 , подвергнутых предварительному отжигу в атмосфере кислорода при разных температурах и

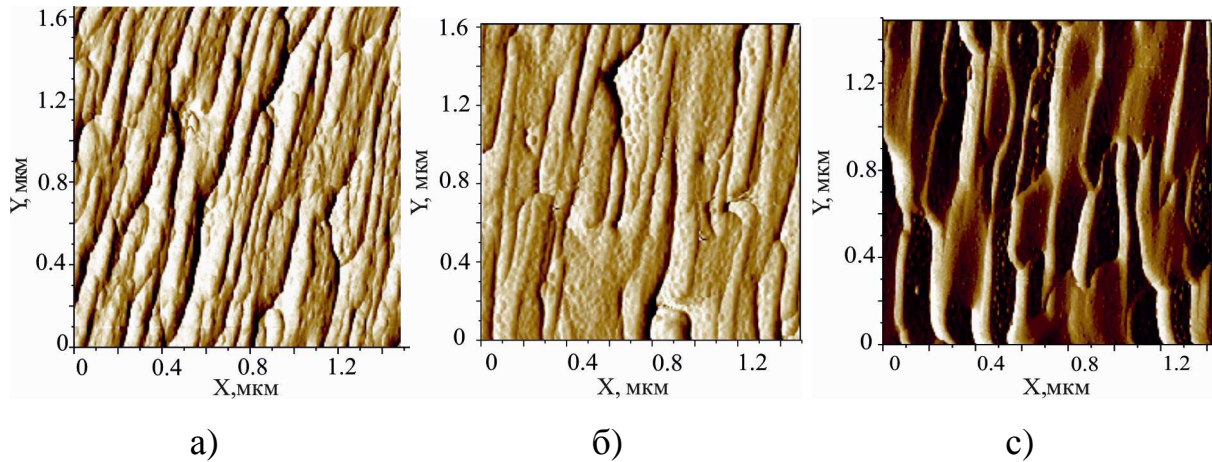


Рис. 6. Морфология $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ пленки на подложках (320) NdGaO_3 , подвергнутых предварительному отжигу в атмосфере кислорода при температуре $T = 800^\circ\text{C}$ и времени $t = 1$ час (а), $T = 950^\circ\text{C}$ и $t = 20$ мин. (б), $T = 950^\circ\text{C}$ и $t = 2$ часа (в).

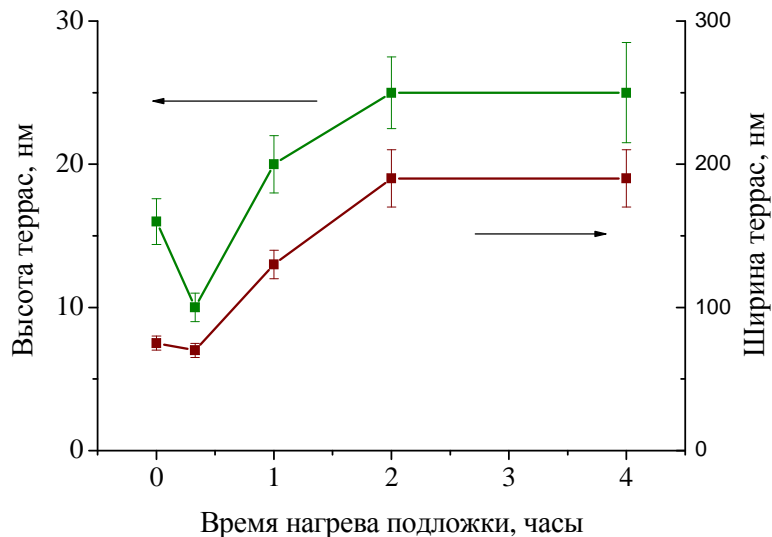


Рис. 7. Изменение высот ступеней (слева) и ширин террас (справа) на поверхности $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ пленок при увеличении времени отжига в кислороде подложек (320) NdGaO_3 при температуре 950°C .

временах. Отжиг подложки при более низкой температуре в 800 С в течение часа приводил к мелкой ступенчатой поверхности пленки с малыми высотами ступеней около 10 нм (Рис. 6а). Более высокотемпературный отжиг при 950С приводил к крупномасштабной ступенчатой структуре с высотами ступеней, возрастающими по мере увеличения температуры отжига (Рис. 6, б и в).

Эта тенденция в количественном виде представлена на Рис. 7, где показаны средние высоты и ширины террас на поверхности пленок как функция времени отжига подложек в кислороде при 950°С. Хорошо видно, что можно добиться уменьшения ступенчатой структуры пленки уже при начальном кратковременном (20 мин.) отжиге, но увеличение времени отжига приводит лишь к увеличению высот ступеней и ширин террас (Рис. 7). Ранее сообщалось, что ступенчатая структура (step bunching) возникает даже на самих подложках из NdGaO_3 при увеличении температуры и времени отжига их в атмосфере кислорода [17]. Ступенчатая структура на $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ пленках, наблюдаемая нами, является в этом случае лишь следствием ступенчатой структуры на подложках из NdGaO_3 , образованной высокотемпературным отжигом в кислороде.

3. Электрические характеристики $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ пленок

3.1. Зависимости сопротивления от температуры

Изменения в морфологии $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ пленок, вызванные химической и тепловой обработкой поверхности подложек из NdGaO_3 , отразились и в электрических характеристиках пленок, в частности, в зависимости их сопротивления от температуры $R(T)$ при переходе пленок из нормального состояния в сверхпроводящее. При увеличении времени травления от 0 до 2 минут для подложек с вертикальной осью с форма характеристики, критическая температура T_c и ширина области перехода на зависимости $R(T)$ не претерпевают существенного изменения (кривая 1,2 на Рис. 8а), в то время как при дальнейшем увеличении времени травления до 8 минут на характеристике $R(T)$ появляется перегиб, T_c уменьшается и ширина области перехода

увеличивается в 1.7 раза (кривая 3 на Рис. 8а). Для подложек с наклонной осью c даже непродолжительный отжиг в течение $t = 20$ минут (кривая 2 на Рис. 8б) привел к некоторому уменьшению критической температуры T_c , а форма кривой $R(T)$ и ширина области перехода изменились слабо по сравнению с соответствующей характеристикой для пленки на неотожженной подложке (кривая 1 на Рис. 8б). При дальнейшем увеличении времени отжига вплоть до 4 часов на зависимости $R(T)$ появляется ступенька, и ширина области перехода увеличивается в 2 раза (кривая 3 на Рис. 8б).

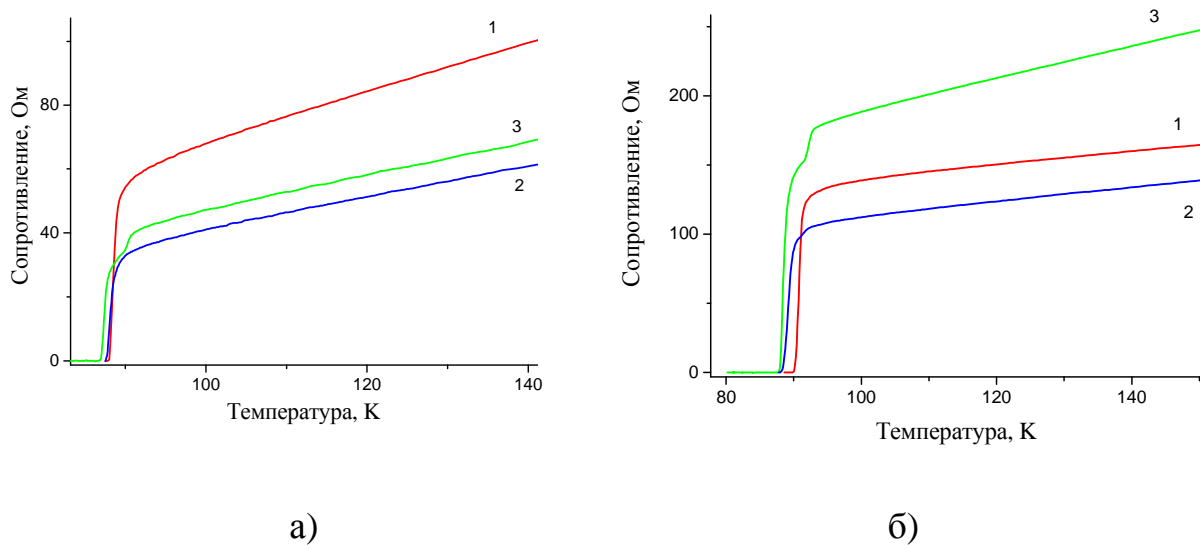


Рис. 8. Температурные зависимости сопротивления пленок из $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ при переходе пленок из нормального в сверхпроводящее состояние: а) пленки выращены на подложках из (110) NdGaO_3 , не подвергавшихся обработке в растворе ВНФ (кривая 1), а также подвергавшихся обработке в ВНФ в течение 2 минут (кривая 2) и 8 минут (кривая 3); б) пленки выращены на подложках из (320) NdGaO_3 , не подвергавшихся отжигу в кислороде (кривая 1), а также подвергавшихся отжигу в течение 20 минут (кривая 2) и 4 часов (кривая 3).

Резкость сверхпроводящего перехода на зависимостях $R(T)$ является подтверждением однородности сверхпроводящего материала. Наличие дополнительных ступеней на сверхпроводящем переходе $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ пленок, которые были получены на подложках из NdGaO_3 , подвергнутых длительной химической и термической обработке, следует рассматривать как следствие образования части сверхпроводящего материала с другой критической температурой. При этом электрическая однородность таких пленок естественно

ухудшается, и это обстоятельство будет сказываться на других характеристиках таких пленок в сверхпроводящем состоянии, а также влиять на качество джозефсоновских структур, изготавливаемых из таких пленок.

3.2. Критические плотности токов

Были измерены величины критических токов $I_c(78\text{K})$ у узких тонкопленочных мостиков, и определены соответствующие величины критических плотностей токов $j_c(78\text{K}) = I_c(78\text{K})/wt$, где величины ширины w и толщин t мостиков оценивались по данным АСМ. Основная ошибка в определении $j_c(78\text{K})$ была обусловлена погрешностью измерения реальных ширины w мостиков, которая из-за неоднородного подтравливания краев пленок под маской могла достигать величины $\delta w = \pm 0,5\text{мкм}$.

У c -ориентированных $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ пленок, выращенных при выбранных параметрах ($T = 950^\circ\text{C}$ и $P = 3,4$ мбар) на (110) NdGaO_3 подложках, при длительном времени травления в ВНФ критические плотности тока $j_c(78\text{K})$ несколько уменьшались от $5 \cdot 10^6$ А/см² до $4,2 \cdot 10^6$ А/см². Было также показано, что после кратковременного отжига подложек из (110) NdGaO_3 при температуре 910°C в течение 30 минут критическая плотность тока $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ пленки повысилась на 25% по сравнению с пленками на неотожженных подложках. В целом для c -ориентированных пленок, полученных как на термически обработанных, так и не подвергавшихся обработке подложках, критические плотности тока $j_c(78\text{K})$, измеренные для узких, шириной в несколько микрометров, мостиков из этих пленок, изменялись в достаточно узком диапазоне $(4,2 \div 6,3) \cdot 10^6$ А/см².

Значительное, более, чем в два раза, увеличение критической плотности тока наблюдалось у $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ пленок с наклоненными на $1,7^\circ$ осями c при измерениях в направлении, перпендикулярном плоскости наклона. У пленки, поверхность которой представлена на Рис.4, величины $j_c(78\text{K})$ достигали $(1,1 \div 1,3) \cdot 10^7$ А/см². Более совершенная структура пленки, представленная на Рис. 4, отразилась и в более высоких величинах критических плотностей тока.

Для $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ пленок с наклоненной на 11° осью c , которые были выращены на подложках (320) NdGaO_3 , отожженных в кислороде при высокой температуре, были обнаружены интересные размерные эффекты в электрических характеристиках. Измерены величины критических плотностей токов для мостиков различной ширины w в направлении вдоль наклона оси c пленок, т.е. в той конфигурации, в которой данные пленки будут использоваться в бикристаллических переходах. Результаты представлены на Рис. 9.

Для $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ пленок, полученных на подложках, не подвергавшихся отжигу или подвергавшихся таковому непродолжительно (менее 0,5 часа), плотности критических токов увеличивались от $2,5 \cdot 10^5 \text{ А/см}^2$ для ширины мостика $w = 4 \text{ мкм}$ до $1,2 \cdot 10^6 \text{ А/см}^2$ при $w = 17 \text{ мкм}$. С повышением времени отжига критическая плотность тока мостиков, как правило, возрастала, достигала максимума, затем уменьшалась, причем эти изменения, при их качественно подобном характере, были специфичными для каждого мостика.

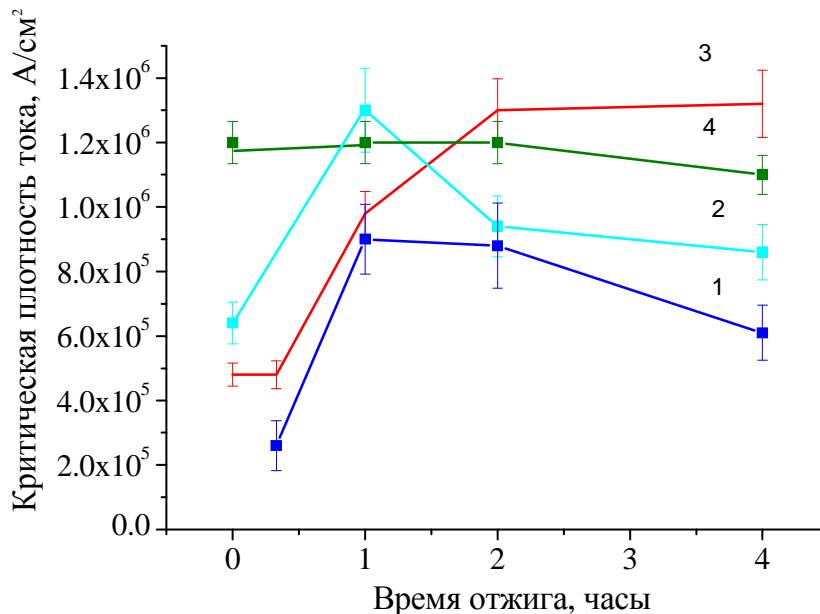


Рис. 9. Зависимости критической плотности тока для $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ мостиков различной ширины от времени предварительного отжига подложек из (320) NdGaO_3 в кислороде. Ширины мостиков w : 1- ($3,5 \pm 1,5$) мкм; 2- ($6,5 \pm 0,5$) мкм; 3- ($9,5 \pm 1,5$) мкм; 4- ($17,5 \pm 0,5$) мкм).

Наблюдаемая здесь размерная зависимость $j_c(w)$ не согласуется с представлениями о природе критического тока в однородной сверхпроводящей пленке, где плотность сверхтока имеет максимальные величины по краям пленки, а критический ток обусловлен входом магнитного вихря после преодоления потенциального барьера на краях пленки. Наблюдаемый размерный эффект для $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ пленок указывает на наличие в пленках внутренней структуры тока, которая может быть обусловлена структурой образованных зерен в пленке и барьерами для протекания тока между ними.

Подобные, но более интенсивные размерные эффекты в $j_c(w)$ наблюдались ранее в поликристаллических $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ пленках. Там сильный разброс проводимостей у границ между зернами приводил к крупномасштабным перколяционным процессам. При этом образовывалась некоторая критическая подсетка, по которой течет основной ток в пленке, с большим, много большим размера зерна, перколяционным размером, что и приводило к размерным эффектам в электрическом транспорте как в нормальном, так и в сверхпроводящем состоянии [18]. В нашем случае, зерна в эпитаксиальных $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ пленках с наклонной осью c имеют форму, узкую в направлении наклона оси c и удлиненную в перпендикулярном направлении, а также сильную электрическую анизотропию вдоль и поперек наклона оси c . Также проводимости границ между отдельными зернами могут иметь существенно различающиеся значения.

Все эти обстоятельства могут привести к неоднородному перколяционному протеканию тока в системе зерен в эпитаксиальных $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ пленках с наклонной осью c и, соответственно, размерным эффектам. Отжиг подложек приводит к образованию дополнительной неоднородности в виде ступенчатой структуры сначала на подложке, а затем и в выращенной на такой подложке пленке. При этом также изменяется и электрический транспорт между зернами. Перколяционный процесс еще более усложняется и это приводит, к более сложным размерным зависимостям в электрических характеристиках пленок (Рис. 9).

3.2. Вольт-амперные характеристики

Для $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ пленок с наклоненной и вертикальной осью c были измерены вольт-амперные характеристики (ВАХ), и проведен их анализ в соответствии со структурными данными пленок. Ниже приводятся ВАХ двух мостиков, изготовленных из $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ пленок с вертикальной осью c (Рис. 10). Кривая 1 представляет собой ВАХ 3мкм-мостика из $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ пленки,

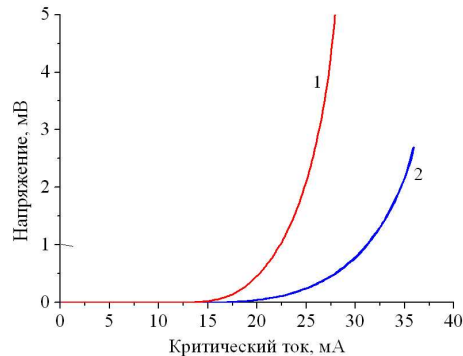


Рис. 10. ВАХ мостиков из $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ пленок, выращенных на подложках из (110) NdGaO_3 без химической обработки подложки (кривая 1) и после 2 минутной обработки в ВНФ (кривая 2). Ширины исследуемых мостиков: $w = 3$ мкм (кривая 1), $w = 3,5$ мкм (кривая 2).

выращенной на подложке из (110) NdGaO_3 без использования предварительной химической обработки. Морфология такой пленки показана на Рис. 2а. А кривая 2 относится к мостику из $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ пленки, выращенной на такой же подложке с обработкой в ВНФ. Такие пленки обладали минимальным количеством a -ориентированных зерен (Рис.2б). Хорошо видно, что токонесущая способность c -ориентированной $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ пленки, приготовленной на NdGaO_3 подложке с использованием кратковременного травления в ВНФ, улучшается, и при больших токах через пленку образуются меньшие напряжения, по сравнению с пленкой, полученной на подложке без химической обработки.

Обнаружено, что форма вольт-амперных характеристик c -ориентированных $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ пленок при токах выше критического I_c хорошо описывается формулой $V = a(I - I_c)^b$ с величинами индексов $b = 3,0 \pm 0,1$ для пленок как на необработанных химически подложках (кривая 1 на Рис. 10), так и для пленок

на обработанных химически подложках (кривая 2 на Рис. 10). Подгонка полученных ВАХ экспоненциальной функцией приводила к значительным ошибкам.

ВАХ для мостиков, изготовленных из $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ пленки с наклонной (на 11°) осью c и сформированных вдоль наклона оси c , показаны на Рис. 11. ВАХ таких $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ пленок при токах выше критического I_c также хорошо описываются формулой $V = a(I - I_c)^b$ с величинами индексов $b = 2,4 \pm 0,1$ для пленок на неотожженных подложках (кривая 1 на Рис. 11), $b = 2,0 \pm 0,1$ для пленок на подложках, отожженных кратковременно в кислороде (кривая 3 на Рис. 11) и $b = 3,0 \pm 0,1$ для пленок на подложках, отожженных в течение 4 часов.

Согласно существующим теоретическим моделям, резистивное состояние (при токах $I > I_c$) в ВТСП материалах обусловлено движением вихрей [18]. При этом ВАХ может иметь нелинейный вид, который зависит от размерности

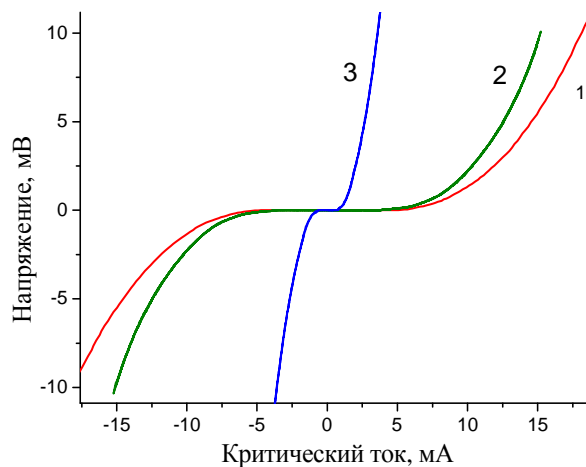


Рис. 11. ВАХ мостиков из $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ пленок, выращенных на подложках из (320) $NdGaO_3$, не подвергавшихся отжигу в кислороде (кривая 1), а также подвергавшихся отжигу в течение 20 минут (кривая 3) и 4 часов (кривая 2). Ширины исследуемых мостиков: $w = 5$ мкм (кривая 1), $w = 4$ мкм (кривая 2), $w = 2$ мкм (кривая 3).

сверхпроводящего материала и топологии индуцированного движения вихрей [18]. При повышении тока I происходит частичное освобождение вихрей из центров пиннинга в резистивном состоянии, и все больше вихрей вовлекается в

движение, что и приводит к нелинейной ВАХ. Полученные нами ВАХ в резистивном состоянии $V = a(I - I_c)^b$ согласуются по функциональному виду с ВАХ, приведенными в работе [18] и выведенными исходя из общих представлений о скайлинге в области непрерывного фазового перехода.

4. Выводы

Изучено влияние технологических параметров приготовления на электрические и структурные характеристики $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ пленок на подложках из $NdGaO_3$. Проведены оптимизации процесса распыления $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ на постоянном токе в атмосфере кислорода и химико-термической подготовки поверхности подложек. Получены c -ориентированные $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ пленки с различными концентрациями a -ориентированных доменов, которые минимизировались с помощью изменения времени травления подложек в буферизованном растворе HF и температуры предварительного отжига в кислороде. Показано, что критические плотности тока $j_c(78K)$ c -ориентированных $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ пленок при оптимальных параметрах распыления достигают величин $(5,3 \pm 1) \cdot 10^6$ А/см², а для пленок с небольшим наклоном оси c – до $1,3 \cdot 10^7$ А/см². Величины $j_c(78K)$ у таких пленок слабо зависели от использовавшихся химических и термических обработок поверхности подложек.

Величины критических плотностей токов у мостиков из $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ пленок со значительным наклоном оси c в 11° существенно зависели от размеров мостиков и времени отжига подложки в кислороде. Указывается на возможность крупномасштабных перколяционных процессов в таких пленках. Обнаружено, что форма вольт-амперных характеристик $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ пленок при токах выше критического I_c хорошо описывается формулой $V = a(I - I_c)^b$ с величинами индексов b в диапазоне от 2 до 3 в зависимости от наклона оси c пленки и температуры отжига подложек в атмосфере кислорода.

Выявленные закономерности между технологическими параметрами приготовления и электрическими характеристиками тонких $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ пленок

на подложках из NdGaO_3 могут быть использованы для создания на их основе высококачественных джозефсоновских переходов.

Настоящая работа частично финансировалась РФФИ (гранты №11-07-00544-а, 11-07-12023-офи-м и 11-02-91321-сиг_а), Министерством образования и науки РФ (контракт №11.519.11.4005), а также в рамках гранта HRJRG-207 Ассоциации Гельмгольца немецких исследовательских центров (ФРГ).

Литература

1. B.D. Josephson. Possible new effects in superconductive tunneling. // Phys. Lett., 1962, v.1, p.251-253.
2. К.К. Лихарев, Б.Т. Ульрих. Системы с джозефсоновскими контактами // М.: МГУ.- 1978.
3. D.L. Woolard, E.R. Brown, M. Pepper, M. Kemp. Terahertz Frequency Sensing and Imaging: A Time of Reckoning Future Applications?// Proc. IEEE, 2005, V.93.- No.10.-P.1726-1743.
4. M. Tonouchi. Cutting-edge terahertz technology// Nature Photonics, 2007, v.1, p.97-105.
5. Assessment of Millimeter-Wave and Terahertz Technology for Detection and Identification of Concealed Explosives and Weapons // Washington, D.C.: The National Academies Press, 2007, 88 pages. ISBN: 0-309-66849-2.
6. G.W. Chantry, Submillimetre Spectroscopy // London: Academic Press, 1971.
7. J.G. Bednorz, K.A. Müller. Possible high- T_c superconductivity in the Ba-La-Cu-O system // Z. Phys. B: Condens.Matter., 1986, v.64, p.189-193.
8. A. Damascelli, Z. Hussain, Z.-X. Shen. Angle-resolved photoemission studies of the cuprate superconductors // Rev. Mod. Phys., 2003, v.75, p.473-541.
9. H. Hilgenkamp, J. Mannhart. Grain boundaries in high- T_c superconductors // Rev. Mod. Phys., 2002, v.74, p.485-549.
10. Ю.Я. Дивин, И.М. Котелянский, В.Н. Губанков. Бикристаллические джозефсоновские переходы из c -ориентированных $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ пленок для

терагерцовой Гильберт-спектроскопии// Радиотехника и электроника, 2003, т.48, №10, с.1238-1249.

11. Y.Y. Divin, U. Poppe, C.L. Jia, P.M. Shadrin, K. Urban. Structural and electrical properties of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ [100]-tilt grain boundary Josephson junctions with large $I_c R_n$ -product on SrTiO_3 bicrystals. // Physica C, 2002, v.372, p.115-118.
12. Y. Divin, U. Poppe. Towards “ideal” high- T_c Josephson junction: [100]-tilt $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ bicrystal boundary // Physics Procedia, 2012, v.36, pp.42 – 47.
13. V. Leca. Heteroepitaxial growth of copper oxide superconductors by pulsed laser deposition. Ph.D. thesis University of Twente, Enschede, The Netherlands, 2003, ISBN 90-365-1928-4.
14. U. Poppe, N. Klein, U. Dähne, H. Soltner, C.L. Jia, B. Kabius, K. Urban, A. Lubig, K. Schmidt, S. Hensen, S.Orbacn, G. Müller, H. Piel. Low-resistivity epitaxial $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ thin films with improved microstructure and reduced microwave losses. // J. Appl. Phys., 1992, v.71, p.5572-5578.
15. Yu.Ya. Divin, U. Poppe, J.W. Seo, B. Kabius, K. Urban. Epitaxial $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ thin films with tilted c -axis orientation // Physica C, 1994, v.235-240, p.675-676.
16. P.B. Mozhaev, I.M. Kotelyanskii, V. A. Luzanov, J. E. Mozhaeva, T. Donchew, E. Mateev, T. Nurgaliev. I.K. Bdikin, B.Zh. Narymbetov. Morphology, structure and electrical properties of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ films on tilted NdGaO_3 substrates, deposited by DC-sputtering// Physica C, 2005, v. 419, p. 53-60.
17. R. Dirsyte, J. Schwarzkopf, G. Wagner, J. Lienemann, M. Busch, H. Winter, R. Fornari. Surface termination of the NdGaO_3 (1 1 0)// Applied Surface Science, 2009, v.255, p.8685–8687.
18. А.С. Афанасьев, В.Н. Губанков, Ю.Я. Дивин, П.М. Шадрин. Размерные эффекты в электропроводности тонкопленочных мостиков из высокотемпературных сверхпроводников. Письма в ЖЭТФ, 1989 т.49, вып.12, стр.674-677.
19. L.F. Cohen, H.J. Jensen. Open questions in the magnetic behaviour of high-temperature superconductors. Rep. Prog. Phys., 1997, v.60, 1581-1672.