

Слабая биэпитаксиальная джозефсоновская связь в пленке $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ на $\text{BaZrO}_3 / \text{CeO}_2 / \text{SrTiO}_3$

© Ю.А. Бойков, З.Г. Иванов*, Т. Клаесон*

Физико-технический институт им. А.Ф.Иоффе Российской академии наук,
194021 Санкт-Петербург, Россия

* Physics Department, Chalmers University of Technology,
S-41296 Goteborg, Sweden

(Поступила в Редакцию 20 января 1997 г.)

Метод лазерного испарения использован для формирования трехслойной биэпитаксиальной гетероструктуры $(001)\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta} / (110)\text{BaZrO}_3 / (001)\text{CeO}_2$ на $(100)\text{SrTiO}_3$. Анализ эпитаксиальных соотношений между слоями, входящими в гетероструктуру, проведен на основе полученных рентгеновских данных. Произведение $I_c R_n$ для сформированных биэпитаксиальных джозефсоновских контактов находилось в пределах 1–1.5 мВ при 4.2 К и 30–60 μV при 77 К. Нормальное сопротивление $R_n = 2\text{--}5 \Omega$ практически не зависело от температуры. Четко выраженный основной максимум и искаженные последующие наблюдались на зависимости I_c от магнитного поля. Взаимодействие переменного тока Джозефсона с самонаведенными в области 45° кристаллографической границы электромагнитными волнами и с внешним СВЧ-излучением ($f = 11 \text{ GHz}$) привело к появлению ступеней тока на вольт-амперных характеристиках для биэпитаксиальных контактов при соответствующих напряжениях.

К настоящему времени разработано несколько типов биэпитаксиальных многослойных гетероструктур, которые могут быть использованы для введения 45° кристаллографической границы в тонкий эпитаксиальный слой $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ (YBCO) [1–3]. Монокристаллические подложки $(100)\text{SrTiO}_3$ (STO) [3], $(110)\text{NdGaO}_3$ (NGO) [2], обеспечивающие малое рассогласование в параметрах кристаллических решеток при сопряжении с $(001)\text{YBCO}$, а также сапфир [4] и кремний на сапфире [5] были использованы для формирования джозефсоновских контактов на основе эпитаксиальной пленки высокотемпературного сверхпроводника.

В отличие от бикристаллических джозефсоновских контактов [6] и контактов на ступеньках [7] для формирования биэпитаксиальных контактов не требуется специально приготовленной подложки. Двумерная сеть биэпитаксиальных джозефсоновских контактов может быть сформирована на заданном участке подложки.

Среди недостатков 45° биэпитаксиальных контактов, как правило, отмечают неоднородное распределение сверхпроводящего тока в плоскости контакта и низкие значения характеристического напряжения $V_c = I_c R_n$ (где I_c — критический ток, а R_n — нормальное сопротивление контакта) при 77 К [8]. Высокий уровень механических напряжений [6], нарушение стехиометрии в катионной и кислородной подрешетках в области кристаллографической границы [5], анизотропия и особенности симметрии волновой функции спаренных куперовских электронов [9] были названы в качестве механизмов, ответственных за существенную зависимость плотности критического тока в YBCO-пленке от разориентации кристаллитов [10].

Разработка новых биэпитаксиальных гетероструктур с улучшенными параметрами, совместимых с широким кругом материалов, используемых в микроэлектронике, является весьма важной задачей как для более глу-

бокого понимания особенностей формирования слабых джозефсоновских связей в тонких пленках высокотемпературных сверхпроводников, так и для их успешного использования в микроэлектронике.

1. Эксперимент

Метод лазерного испарения (KrF , $\lambda = 248 \text{ nm}$, $\tau = 30 \text{ ns}$) был использован для выращивания биэпитаксиальной гетероструктуры $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta} / \text{BaZrO}_3 / \text{CeO}_2$ на поверхности $(100)\text{STO}$. Тонкий (10 nm) промежуточный слой BaZrO_3 (BZO) был использован для того, чтобы обеспечить 45° относительный азимутальный разворот двух монокристаллических кристаллитов YBCO-пленки. Слой CeO_2 (CeO) (100 nm) выполнял роль буфера между BZO и STO. Пленки YBCO и диэлектриков, входящих в гетероструктуру, выращивались в атмосфере кислорода $P_{\text{O}} = 0.2 \text{ mbar}$ непосредственно в процессе лазерного испарения соответствующих мишеней. В качестве мишеней использовались шайбы стехиометрического состава, приготовленные по стандартной керамической технологии. Двухслойный эпитаксиальный буфер STO/YBCO (10 nm/10 nm) был введен между YBCO-пленкой и BZO/CeO/STO, чтобы уменьшить нарушение стехиометрии в области биэпитаксиальной кристаллографической границы [5].

Температура подложки T_s в процессе выращивания YBCO- и CeO-пленок равнялась 760°C . Чтобы обеспечить формирование эпитаксиального слоя цирконата бария на поверхности CeO, было проведено специальное исследование зависимости его структуры от T_s . При формировании биэпитаксиальных гетероструктур промежуточный слой BZO выращивался при $T_s = 735^\circ\text{C}$. Плотность лазерного излучения на поверхности мишени равнялась 2 J/cm^2 .

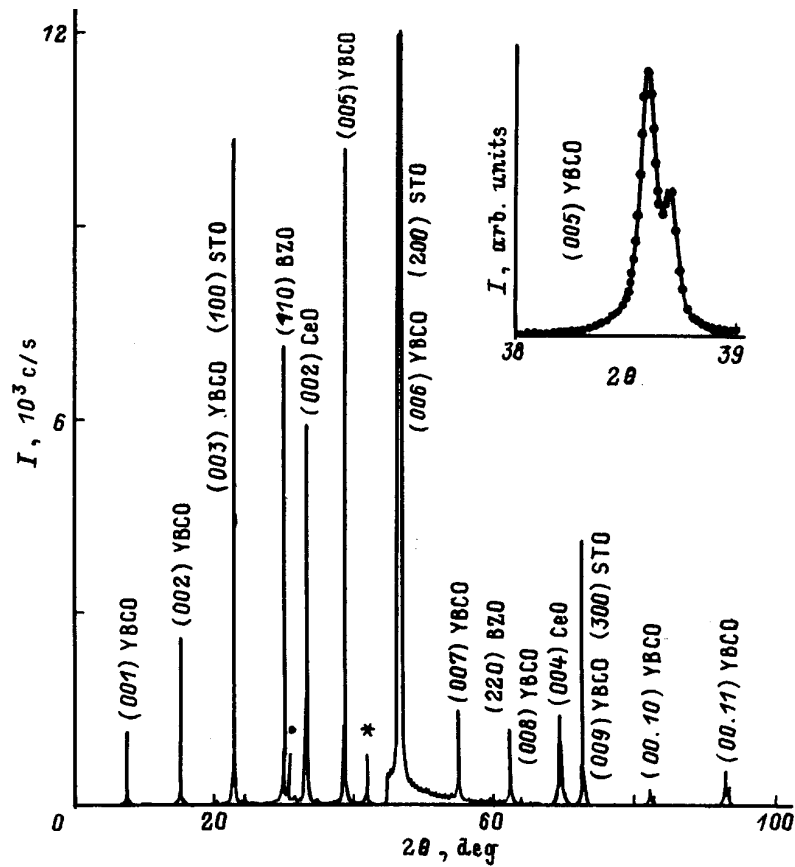


Рис. 1. Рентгеновая дифрактограмма ($\theta/2\theta$, $\text{CuK}\alpha$) для трехслойной эпитаксиальной гетероструктуры $(001)\text{YBCO}/(110)\text{BZO}/(001)\text{CeO}$ (240 nm/80 nm/100 nm), выращенной на $(100)\text{STO}$. На вставке — $\text{CuK}\alpha$ -дублет, четко разрешающийся для $(005)\text{YBCO}$ -пика. Точка указывает $(004)\text{YBCO}$ -дифракционный пик, звездочка — $(200)\text{STO}$ -пик для $\text{CuK}\beta$.

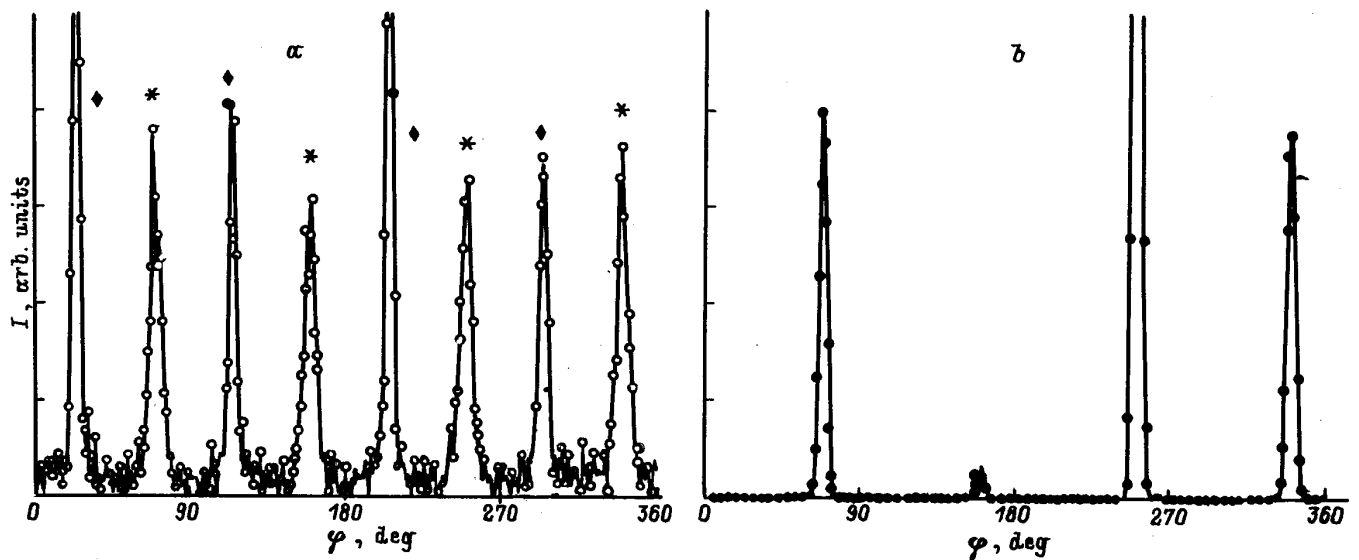


Рис. 2. Рентгеновские дифрактограммы (ϕ -скан, $\text{CuK}\alpha$) для $(117)\text{YBCO}$ (a) и $(113)\text{CeO}$ (b) для биэпитаксиальной гетероструктуры $(001)\text{YBCO}/(110)\text{BZO}/(001)\text{CeO}$ (240 nm/10 nm/100 nm) на $(100)\text{STO}$ -подложке. Звездочки указывают рефлексы от $\text{YBCO}/\text{BZO}/\text{CeO}$, ромбы — рефлексы от YBCO/CeO .

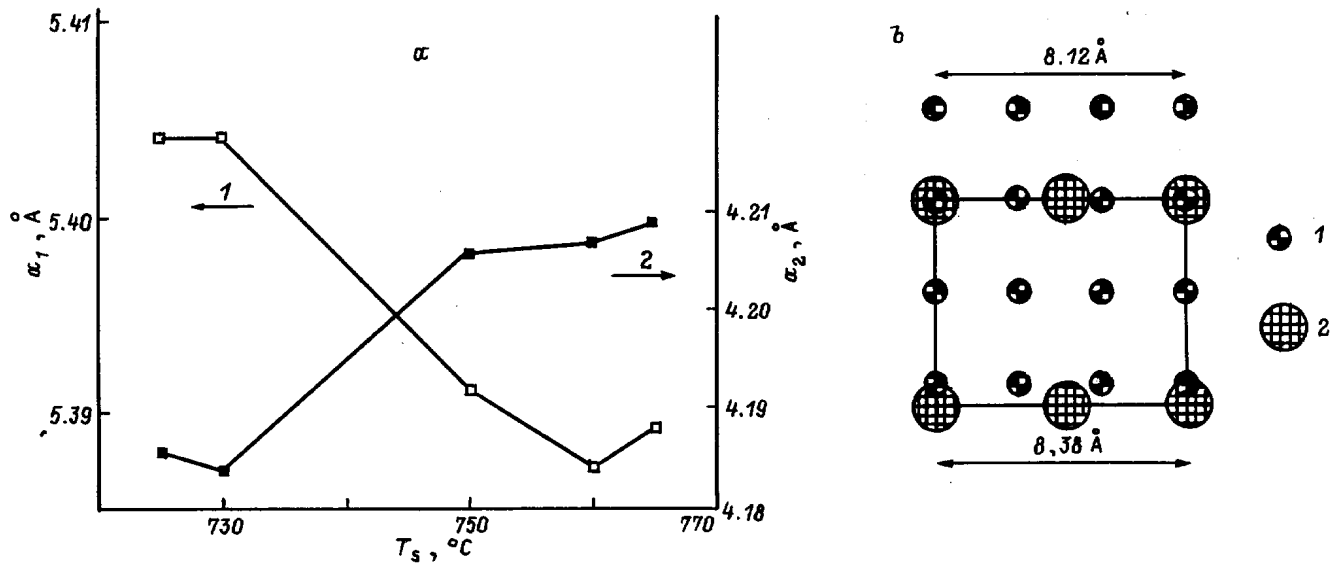


Рис. 3. а) Изменение параметра элементарной ячейки пленок CeO (1) и BZO (2) при увеличении T_s для цирконата бария. б) Схема сопряжения кислородных подрешеток при (110)[001]BZO// (001)[010]CeO (1 — ионы кислорода для (001)CeO, 2 — ионы кислорода для (110)BZO).

Фотолитография и ионное травление (Ar, 500 V) использовались для удаления промежуточного BZO-слоя с поверхности одной из половин CeO/STO. Для удаления следов фоторезиста после ионного травления образцы подвергались очистке в кислородной плазме.

Контроль за структурой и фазовым составом сформированных биэпитаксиальных гетероструктур осуществлялся с использованием рентгеновских дифрактометров Philips PW 1710 ($\theta/2\theta$) и Siemens D 5000 (ϕ -скан).

Температура сверхпроводящего перехода T_c для YBCO-пленки определялась из температурной зависимости сопротивления $R(T)$ и эффективной магнитной восприимчивости $\chi(T)$ [11]. Измерение вольт-амперных характеристик (ВАХ) для биэпитаксиальных контактов и определение плотности критического тока J_c проводились на мостиках шириной $L = 4$ или $8 \mu\text{m}$ и длиной $l = 50 \mu\text{m}$. На одной подложке формировались 5 мостиков, три из которых пересекали биэпитаксиальную границу, а два других не пересекали и использовались для контроля J_c в YBCO/BZO/CeO и YBCO/CeO. Исследование ВАХ контактов проводилось в различных магнитных полях при подаче на контакт СВЧ-излучения ($f = 11 \text{ GHz}$) и без него. Вектор магнитной индукции \mathbf{B} был параллелен плоскости бикристаллической границы.

2. Экспериментальные результаты

Трехслойная пленочная система YBCO/BZO/CeO была выращена эпитаксиально на поверхности подложки (рис. 1, 2). Слои, составляющие биэпитаксиальную гетероструктуру, имели следующую ориентацию: (001)[010]YBCO // (110)[001]BZO // (001)[010]CeO и (001)[110]YBCO // (001)[010]CeO. Параметры кубиче-

ской элементарной ячейки для CeO (a_1) и BZO (a_2) существенно зависели от T_s в процессе формирования BZO-слоя (рис. 3, а). T_c для YBCO-пленок, выращенных

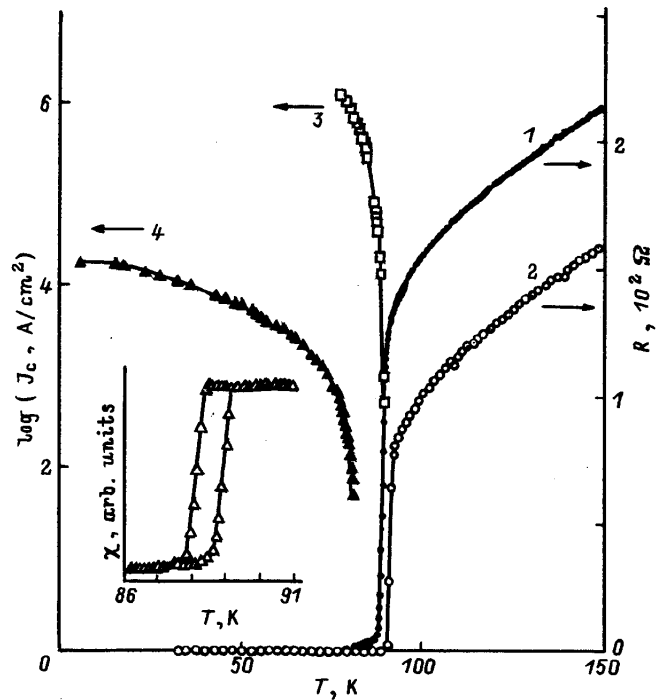


Рис. 4. Температурные зависимости сопротивления R (1, 2) и плотности критического тока J_c (3, 4) для YBCO-микромостиков ($L = 4 \mu\text{m}$). 1, 4 — микромостик пересекает биэпитаксиальную границу, 2, 3 — микромостик не пересекает границы и сформирован на поверхности BZO. На вставке — температурная зависимость χ для пленки YBCO, выращенной на BZO/CeO/STO.

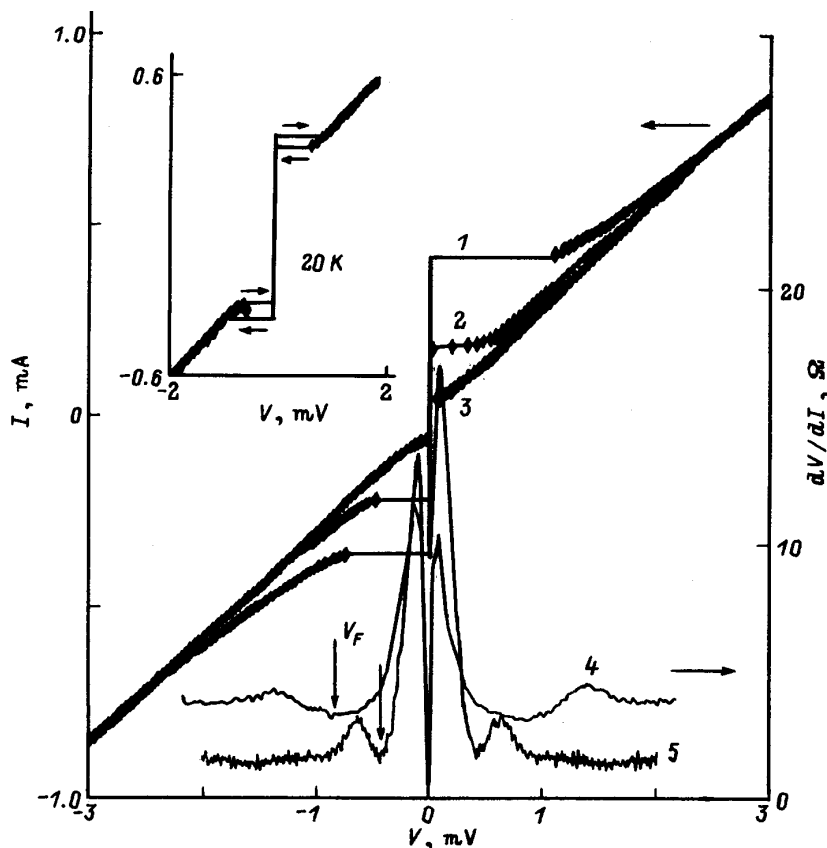


Рис. 5. ВАХ биэпитаксиального контакта ($L = 4 \mu\text{m}$) при 4.2 (1), 42 (2) и 67 К (3), dV/dI при 39 К для контакта с $L = 4 \mu\text{m}$ (4), dV/dI -2 при 29 К для контакта с $L = 8 \mu\text{m}$ (5). V_F для контактов, сформированных на мостиках различной ширины, показаны вертикальными стрелками. На вставке — гистерезис, наблюдавшийся при $T < 30$ К на ВАХ.

на $\text{BZO}/\text{CeO}/\text{STO}$ и CeO/STO , находилась в пределах 88–90 К, а J_c при 77 К превышала 10^6 A/cm^2 . $R(T)$ и $J_c(T)$ для биэпитаксиального контакта и YBCO -пленки, выращенной на $\text{BZO}/\text{CeO}/\text{STO}$, приведены на рис. 4; на вставке показана зависимость $\chi(T)$ при температурах, близких к T_c . Температурные зависимости R и J_c для YBCO -пленки, выращенной при указанных выше условиях на поверхности слоя CeO , были исследованы авторами в [5,12].

ВАХ биэпитаксиального джозефсоновского контакта при различных температурах приведены на рис. 5. Произведение $I_c R_n$ для сформированных контактов при 4.2 К находилось в пределах 1–1.5 мВ, а при $T = 77$ К — в пределах 30–60 μV .

При $T > 50$ К ВАХ хорошо описывались моделью, разработанной для резистивно шунтированного контакта, а при $T < 30$ К на I - V -зависимостях наблюдался гистерезис.

Наличие четко выраженного основного максимума и искаженных последующих было характерным для зависимости критического тока контакта от магнитного поля (рис. 6).

Взаимодействие генерируемого контактом переменного тока Джозефсона с наведенными или электромагнитными колебаниями в области биэпитаксиальной

кристаллографической границы приводило к появлению ступеней тока на ВАХ и соответствующих максимумов на зависимостях $dV/dI - V$ при V_F (рис. 5).

Ступени Шапиро наблюдались на ВАХ при облучении контактов СВЧ-излучением ($f = 11 \text{ GHz}$). Ступени тока при $V = nfh/2e$ прослеживались вплоть до напряжений, превышающих V_c .

3. Обсуждение экспериментальных результатов

Введение тонкого промежуточного слоя CeO между BZO и STO имеет принципиальное значение для получения эпитаксиальной пленки цирконата бария. Пленка BZO , сформированная непосредственно на поверхности STO , имела поликристаллическую структуру при наличии двух четко выраженных преимущественных ориентаций кристаллических зерен: (001) или (110) BZO параллельна (100) STO . Характер азимутальной ориентации пленки YBCO относительно выделенного направления в плоскости STO -подложки при введении буферного слоя CeO не изменяется.

Для (110) BZO и (001) CeO наилучшее сопряжение кислородных подрешеток в кубической перовскитопо-

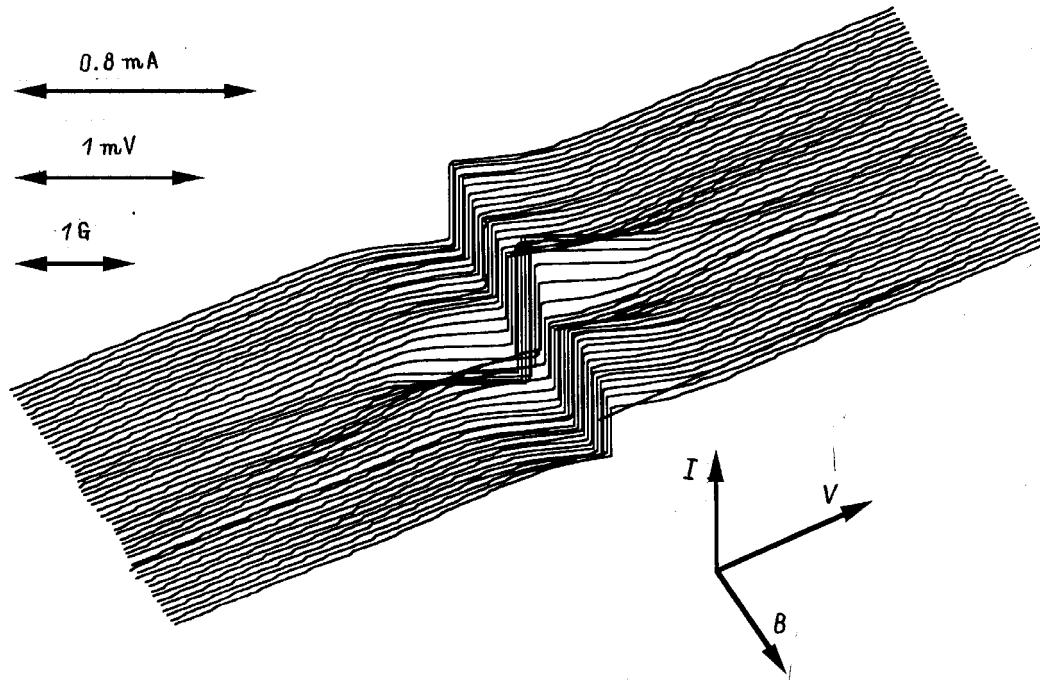


Рис. 6. Система VAX биэпитаксиального контакта ($L = 4 \mu\text{m}$, $T = 39 \text{ K}$), полученная при изменении B в магнитной катушке в интервале $-1.2 < B < 1.2 \text{ G}$.

добной ячейке цирконата бария и кубической флуоритной ячейке окиси церия обеспечивается в том случае, когда $[001]\text{BZO}/[010]\text{CeO}$ (рис. 3, *b*), при этом $(1.5a_1 - 2a_2)/2a_2 \approx 3\%$. При азимутальном развороте указанных подрешеток на 26 или на 45° возможно их сопряжение с большим рассогласованием.

Обнаруженное существенное изменение параметров элементарных ячеек в пленках BZO и CeO при T_s (BZO) выше 735°C (рис. 3, *a*) обусловлено диффузионным переносом ионов Zr и, по-видимому, Ba из BZO в CeO и встречным потоком ионов Ce. Диффузионное перемешивание ионов Ce и Zr в большей степени сказывается на эффективном параметре элементарной ячейки пленки BZO на начальной стадии ее формирования. Увеличение a_2 должно приводить к возрастанию энергии упругих напряжений, действующих в системе зародыш BZO-слой CeO при их эпитаксиальном сопряжении $(110)[001]\text{BZO}/(001)[010]\text{CeO}$, и как следствие к появлению в пленке цирконата бария зерен с различной азимутальной ориентацией. Вышеуказанное обстоятельство не позволило использовать T_s выше 735°C в процессе формирования пленки BZO.

Влияние структуры промежуточного CeO-слоя на параметры YBCO-пленки рассмотрено авторами в [13].

Четко c -ориентированная (ось c перпендикулярна плоскости подложки) пленка YBCO была выращена эпитаксиально как на поверхности $(110)\text{BZO}/(001)\text{CeO}/\text{STO}$, так как и на $(001)\text{CeO}/\text{STO}$ (рис. 1, 2). Параметр c для YBCO-пленки, выращенной на BZO/CeO/STO, равнялся 11.67 \AA . Полуширина $(005)\text{YBCO}$ -рентгеновского пика на половине ее

высоты равнялась 0.09° , CuK_α -дублет четко разрешался (вставка на рис. 1), что свидетельствует о высоком совершенстве структуры сформированных пленок сверхпроводника. Исследование поверхности YBCO-пленки с использованием микроскопа атомных сил не выявило присутствия a -ориентированных частиц (ось c параллельна плоскости подложки), что хорошо соответствует полученным рентгеновским данным (рис. 1).

Значения T_c для YBCO-пленок, определенные из температурных зависимостей сопротивления, хорошо коррелируют с соответствующими данными по $\chi(T)$. Резкое падение χ при температуре сверхпроводящего перехода позволяет говорить об отсутствии в сформированных YBCO-пленках макровключений сверхпроводящей фазы с пониженной T_c .

Значения T_c и J_c для пленки YBCO, выращенной на BZO/CeO/STO, находились на уровне соответствующих значений, полученных для эпитаксиальных пленок YBCO на STO и NGO.

На температурных зависимостях сопротивления для YBCO-микромостиков, пересекавших кристаллографическую границу, как правило, наблюдался низкотемпературный "хвост" 2–8 K (рис. 4). J_c (4.2 K) для биэпитаксиальных джозефсоновских контактов имела величину порядка $6 \cdot 10^4 \text{ A/cm}^2$.

R_n для сформированных контактов определялось по асимптоте на зависимости $dV/dI - V$ при V , соответствующих $5I_c$. Нормальное сопротивление биэпитаксиальных контактов практически не зависело от температуры и находилось в пределах 2–5 Ω (рис. 5).

На ВАХ контактов не наблюдалось избыточного тока. I_c линейно возрастал при понижении температуры вблизи T_c . Зависимость $I_c \approx (1 - T/T_c)$ характерна для SIS-джозефсоновского контакта (SIS — сверхпроводник/диэлектрик/сверхпроводник). Параметр $\beta_c = 2elcR_n^2C/h$, где C — емкость джозефсоновского контакта, был оценен из данных по гистерезису, наблюдавшемуся на ВАХ при $T < 30$ К (вставка на рис. 5). При $T = 20$ К $\beta_c \approx 2$. Высокие значения диэлектрической постоянной ϵ для эпитаксиального слоя STO из двухслойного буфера STO/YBCO могут обуславливать увеличение эффективной величины C по сравнению с соответствующими данными для контактов, выращенных на бикристаллах Y-ZrO₂ [14]. ϵ для тонких эпитаксиальных слоев STO, выращенных на YBCO, как правило, слабо зависит от температуры [15].

Ступени тока на ВАХ контактов при $V = V_F$ (рис. 5) обусловлены взаимодействием переменного тока Джозефсона с самонаведенными электромагнитными колебаниями в области биэпитаксиальной кристаллографической границы (резонанс Фиске [16]). При увеличении L с 4 до 8 μm V_F понижалось примерно вдвое. Электромагнитные волны соответствующей частоты возбуждаются в резонаторе, образованном двумя противостоящими друг другу в области границы YBCO-электродами и тонкой прослойкой между ними, где параметр порядка спаренных носителей заряда существенно подавлен. Амплитуда возбужденной электромагнитной волны зависит от I_c и добротности резонатора. Взаимодействие наведенных электромагнитных волн с переменным током Джозефсона в том случае, когда его частота $f_F = nv/2L$ (где v — фазовая скорость распространения электромагнитной волны в области кристаллографической границы, $n = 1, 2, \dots$), носит резонансный характер. Максимальная высота ступеней тока должна наблюдаться при равенстве фазовой скорости, ассоциируемой с распределением плотности тока через контакт, с фазовой скоростью наведенной электромагнитной волны. Указанное обстоятельство обуславливает резкую зависимость дополнительного, наведенного Фиске-резонансом, постоянного тока Джозефсона от магнитного поля [17]. При увеличении температуры наблюдалось понижение V_F , что, по-видимому, обусловлено увеличением лондоновской глубины проникновения магнитного поля в сверхпроводник [14]. Падение V_F при увеличении температуры указывает на незначительное влияние подложки на эффективную емкость сформированных контактов. ϵ для монокристаллов STO резко возрастает при понижении температуры ($T < 77$ К).

Система ВАХ, измеренных в магнитном поле различной напряженности, приведена на рис. 6. Искаженная франгоуферова картина с четко выраженным основным максимумом наблюдалась на зависимостях $I_c(B)$. Второй и третий побочные максимумы на кривых $I_c - B$ искажены, а в промежуточных минимумах критический ток не обращается в нуль. Приведенные данные указывают на неоднородное распределение плотности критического тока в плоскости джозефсоновского контакта. При

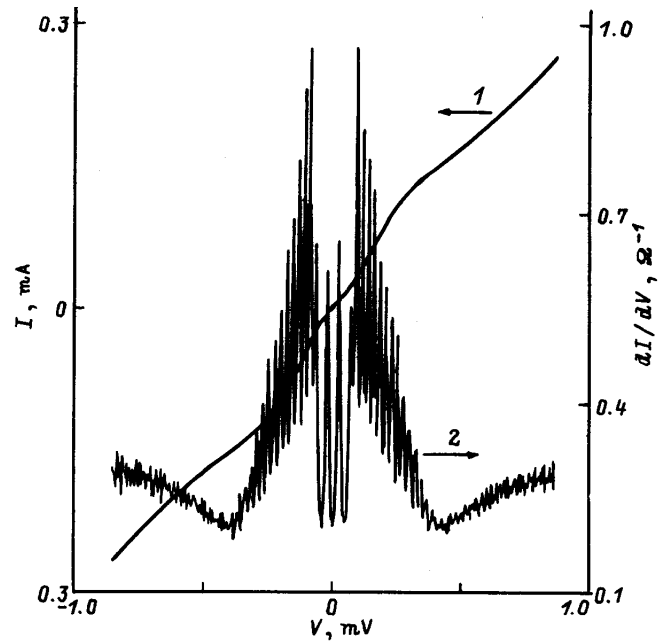


Рис. 7. ВАХ (1) и dI/dV (2) при подаче на биэпитаксиальный контакт ($L = 4 \mu\text{m}$) СВЧ-сигнала ($T = 63$ К, $f = 11$ GHz, ослабление в СВЧ-тракте +1.2 дБ).

использовании $T_s \leq 735^\circ\text{C}$ в процессе выращивания ВЗО-пленки характерных изломов, свидетельствующих о формировании нескольких последовательно соединенных джозефсоновских слабых связей в области биэпитаксиальной границы, на ВАХ, исследованных при различных значениях B , не наблюдалось вплоть до напряжений, соответствующих $5I_c$.

Ступени Шаapiro при $V = nfh/2e$ наблюдались на ВАХ вплоть до напряжений, превышающих I_cR_n , при облучении биэпитаксиальных контактов СВЧ-излучением ($f = 11$ GHz). Дополнительная система ступеней тока при $V = nfh/e$ наблюдалась на ВАХ для биэпитаксиальных контактов при высокой мощности СВЧ-излучения, когда критический ток был существенно подавлен (рис. 7). Особенности взаимодействия переменного тока Джозефсона, генерируемого 45° биэпитаксиальным контактом, с внешним СВЧ-излучением обсуждены авторами в [12].

Таким образом, в настоящей работе двухслойная эпитаксиальная система (110)BZO/(001)CeO использована для введения 45° кристаллографической границы в s -ориентированную YBCO-пленку. T_c для YBCO-микромостиков, пересекающих биэпитаксиальную границу, находилась в пределах 80–85 К, а J_c при 4.2 К была порядка $6 \cdot 10^4$ А/см². На ВАХ биэпитаксиальных контактов не было обнаружено избыточного тока, V_c находилось в пределах 30–60 μV при 77 К и 1–1.5 мВ при 4.2 К. Взаимодействие переменного тока Джозефсона с самонаведенными в области 45° кристаллографической границы электромагнитными волнами приводило к появлению ступеней тока на ВАХ.

Данная работа была выполнена в рамках научного сотрудничества между Академиями наук Швеции и России по изучению высокотемпературной сверхпроводимости.

Финансовая поддержка для выполнения исследований была получена в рамках проекта 95-02-04186-а Российского фонда фундаментальных исследований.

Список литературы

- [1] K. Char, M.S. Colclough, S.M. Garrison, N. Newman, G. Zaharchuk. *Appl. Phys. Lett.* **59**, 733 (1991).
- [2] Yu.A. Boikov, Z.G. Ivanov, G. Brorsson, T. Claeson. *Supercond. Sci. Technol.* **7**, 281 (1994).
- [3] S. Lee, D. Youm. *Physica C* **211**, 205 (1993).
- [4] K. Char, M.S. Colclough, L.P. Lee, G. Zaharchuc. *Appl. Phys. Lett.* **59**, 2177 (1991).
- [5] Yu.A. Boikov, Z.G. Ivanov, A.L. Vasiliev, T. Claeson. *J. Appl. Phys.* **77**, 1654 (1995).
- [6] Z.G. Ivanov, P.A. Nilsson, D. Winkler, J.A. Alarco, T. Claeson, E.A. Stepanov, A.Ya. Tzalenchuk. *Appl. Phys. Lett.* **59**, 3030 (1991).
- [7] K. Herrmann, Y. Zhang, H.-M. Muck, J. Schubert, W. Zander, A.I. Braginski. *Supercond. Sci. Technol.* **4**, 583 (1991).
- [8] A.I. Braginski. In: *The New Superconducting Electronics / Ed. H. Weinstock and R.W. Ralston. NATO ASI Series. Series E: Appl. Sci. Springer, N.Y. (1993). V. 251. P. 89.*
- [9] C.A. Copetti, F. Ruders, B. Oelze, Ch. Buchal, B. Kabius, J.W. Seo. *Physica C* **253**, 63 (1995).
- [10] D. Dimos, P. Chaudhari, J. Mannhart. *Phys. Rev.* **B41**, 4038 (1990).
- [11] A.T. Fiory, A.F. Hebard, P.M. Mankiewich, R.E. Howard. *Appl. Phys. Lett.* **52**, 2165 (1988).
- [12] Yu.A. Boikov, Z.G. Ivanov, T. Claeson. *J. Appl. Phys.* to be published.
- [13] Ю.А. Бойков, Т. Клаесон, Д. Эртс. *ФТТ*, в печати.
- [14] D. Winkler, Y.M. Zhang, P.A. Nilsson, E.A. Stepanov, T. Claeson. *Phys. Rev. Lett.* **72**, 1260 (1994).
- [15] Yu.A. Boikov, Z.G. Ivanov, A.N. Kiselev, E. Olsson, T. Claeson. *J. Appl. Phys.* **78**, 4591 (1995).
- [16] M.D. Fiske. *Rev. Mod. Phys.* **36**, 221 (1964).
- [17] R.E. Eck, D.J. Scalapino, B.N. Taylor. *Phys. Rev. Lett.* **13**, 15 (1964).