

05;06;09
 ©1995 г.

ВЛИЯНИЕ ПАРАМЕТРОВ УВСО ПЛЕНОК НА СВОЙСТВА ВТСП ПТ СКВИДОВ

*С.И.Красносвободцев, А.Г.Маресов, А.Н.Образцов,
 В.Г.Пирогов, О.В.Снигирев*

Московский государственный университет им. М.В.Ломоносова
 Научно-исследовательский институт ядерной физики,
 119899, Москва, Россия
 (Поступило в Редакцию 6 апреля 1993 г.
 В окончательной редакции 28 октября 1993 г.)

На основе экспериментальных исследований рассматривается возможность изготовления квантовых сверхпроводниковых магнитометров на основе эффекта Джозефсона (сквидов) с использованием высокотемпературных сверхпроводящих (ВТСП) пленок. Показано, что качество пленок является определяющим фактором для осуществления этой цели. Продемонстрированы возможности различных оптических методов контроля качества подложек и выращиваемых на них пленок. Описан метод изготовления джозефсоновских переходов с помощью "прямого лазерного рисования". Проведенные исследования показывают, что использование SrTiO_3 бикристаллических подложек в качестве основы для напыления иттриевой ВТСП керамики является эффективным методом получения "слабой связи" с наперед заданными параметрами, пригодной для формирования джозефсоновских переходов. Для повышения эффективности работы интерферометра необходимо существенное улучшение структуры ВТСП пленок с целью "доведения" ее до магнитонепрозрачного состояния, что позволит в случае успешного решения этой задачи на несколько порядков поднять чувствительность сквид-магнитометров азотного уровня охлаждения.

Введение

Среди различных нелинейных приборов, использующих эффект Джозефсона в высокотемпературных сверхпроводниках (ВТСП) наиболее перспективными, очевидно, являются квантовые интерферометры (сквиды) [1]. Необходимое при их изготовлении формирование локализованного участка со слабой сверхпроводимостью на ВТСП пленке предъявляет весьма высокие требования к технологии изготовления прибора на всех этапах. Существенные осложнения вносят противоречивые требования, предъявляемые в первую очередь к параметрам используемых ВТСП пленок.

Во-первых, для существования эффекта Джозефсона и возможности регистрации связанных с ним процессов плотность критического

тока j_c на участке слабой связи должна превышать так называемый "флуктуационный предел" j_f (при температуре кипения жидкого азота $T = 77.3 \text{ K}$ $j_f \sim 6.5 \text{ мА}$), а во-вторых, плотность критического тока j_c не должна быть чрезмерно велика, чтобы джозефсоновская глубина проникновения λ_J [2] оставалась заведомо больше поперечных размеров этого участка. В противном случае плотность тока по сечению области слабой связи распределяется неоднородно и динамика протекающих в нем процессов значительно усложняется. За пределами этого участка пленка должна демонстрировать полный эффект Мейснера, для чего необходимы как можно более высокая плотность критического тока и, следовательно, высокое структурное совершенство ВТСП материала. При этом небольшая величина длины когерентности ($\xi < 10 \text{ \AA}$), а значит такого же порядка максимальная длина слабой связи практически не позволяют применять для формирования джозефсоновских переходов методы стандартной фотолитографии.

Первыми приборами рассматриваемого типа были одноконтактные объемные интерферометры с джозефсоновскими переходами на межгранулярных связях, дающие отклик на магнитное поле при температуре кипения жидкого азота [3–6]. Слабая связь в устройствах такого типа возникает из-за того, что на поверхности сверхпроводящей гранулы в результате частичной потери кислорода образуется область с нормальным или полупроводниковым типом проводимости [7]. Возникающий при соприкосновении этого слоя с соседней гранулой потенциальный барьер и образует джозефсоновский "SNS-сэндвич".

В высокотемпературных сквидах постоянного тока (ВТСП ПТ сквидах), использующих двухконтактные пленочные интерферометры и имеющих по теоретическим оценкам [8,9] на два порядка лучшее энергетическое разрешение, возникает ряд проблем.

Действительно, при формировании мостиков дайемовского типа на однородных пленках с типичным средним размером сверхпроводящих гранул в несколько микрон в областях концентрации тока в непосредственной близости от них оказывается большое число несверхпроводящих межзеренных границ, "прозрачных" для магнитного поля. Это приводит к появлению множества контуров квантования и, как следствие, не позволяет реализовать сквид с высокой чувствительностью. В то же время формирование интерферометров на пленках высокого качества с малым числом межзеренных границ, как правило, приводит к отсутствию эффекта Джозефсона из-за чрезмерной плотности критического тока.

Для выхода из этой ситуации был предложен и реализован следующий путь: для напыления "хорошей" (с высокими критической температурой T_c и плотностью критического тока j_c) монокристаллической пленки использовались подложки, на которых заранее создавался участок с сильной поверхностной неоднородностью. И именно в этом месте впоследствии формировался джозефсоновский переход типа мостика Дайема. Одним из наиболее эффективных методов создания такой неоднородности на подложке является использование бикристаллической подложки, шов которой разделяет две монокристаллические области с различной ориентацией кристаллографических осей [10–12]. Этот метод продемонстрировал устойчивую повторяемость, вполне приемлемую технологичность и, главное, позволил задавать и варьировать параметры переходов в широких пределах.

Контроль качества подложек

Создание указанным способом "слабого места" в высокотемпературном сверхпроводнике требует весьма совершенных с кристаллографической точки зрения пленок. В противном случае проводимость в области барьера будет носить случайный характер. Качество пленок, в первую очередь эпитаксиальность их роста, в значительной степени определяется подложкой.

В наших экспериментах использовались сварные бикристаллические подложки из SrTiO_3 , кристаллографические оси [100] разных половины которых были развернуты вокруг оси [001], перпендикулярной к поверхности, на $35\text{--}40^\circ$ относительно друг друга. Сами оси [001] оставались при этом сонаправленными в пределах $0.5\text{--}1.5^\circ$. Контроль за расположением кристаллографических осей, а также за степенью совершенства используемых кристаллов SrTiO_3 проводился стандартными методами рентгеноструктурного анализа.

Дополнительная информация о свойствах подложек была получена при исследовании их оптических свойств. Оказалось, что используемые нами монокристаллы SrTiO_3 проявляют оптическую анизотропию. При наблюдении подложек в проходящем плоскополяризованном свете через анализатор, скрещенный с поляризатором, фиксировались светлые пятна в виде полос, расположенных под прямым углом друг к другу. Это свидетельствует о наличии в кристаллических подложках титаната стронция (относящегося к кубическим одноосным кристаллам [13]) областей, обладающих двулучепреломлением. Причиной их появления, видимо, являются механические напряжения, возникающие в процессе роста кристалла. Направление полос, очевидно, совпадает с кристаллографическими направлениями.

Напыление и контроль качества ВТСП пленок

YBCO пленки выращивались методом лазерного распыления сверхпроводящей мишени, подробно описанным ранее в работе [14]. Толщина пленок варьировалась от 250 нм до 1 мкм. Критическая температура T_c была в пределах 92–96 К (T_c в области шва бикристалла была меньше на 2–5 К). Плотность критического тока через шов составляла $j_c \approx 1\text{--}2 \cdot 10^6 \text{ A/cm}^2$ при 77 К. Ширина резистивного перехода не превышала 1 К. Полученные пленки имели зеркальную поверхность с визуально прослеживаемой линией спая между двумя частями подложки.

Анализ пленок на рентгеновском дифрактометре в геометрии Брэгга–Брентана и при скользящем падении пучка свидетельствовали об их хорошей *c*-ориентации и о незначительном количестве поликристаллической фазы.

Такой же вывод позволяют сделать исследования, рассматриваемых пленок методом комбинационного рассеяния света (КРС). Регистрация спектров КРС проводилась в геометрии обратного рассеяния с помощью двойного спектрометра при возбуждении на линиях 514.5 и 457.9 нм аргонового лазера. Типичные спектры КРС, полученные для одной из пленок, показаны на рис. 1.

Наличие в спектре полосы КРС около 500 cm^{-1} означает некоторое отклонение оси *c* в пленке от нормали к поверхности [15, 16]. Однако

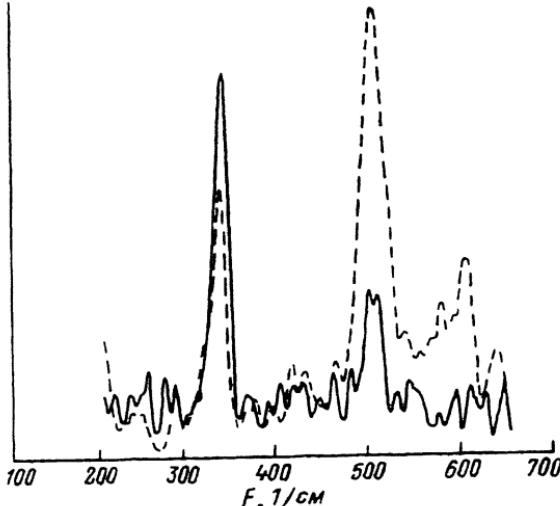


Рис. 1. Типичные спектры комбинационного рассеяния света ВТСП пленки, полученные при возбуждении на линии 514.5 (сплошная кривая) и 457.9 нм (пунктир).

небольшая по сравнению с полосой 335 см^{-1} ее интенсивность позволяет связать такое отклонение с наличием в пленке тонкого слоя со структурным разупорядочением. Об этом же свидетельствует относительный рост интенсивности линии 500 см^{-1} при увеличении толщины пленок или при использовании в качестве возбуждающей линии 457.9 нм аргонового лазера (при этом поглощение света происходит в более тонком приповерхностном слое пленки).

Кроме рассмотренных двух линий в спектре КРС присутствует полоса с частотой около 585 см^{-1} , наблюдавшаяся ранее в ряде работ [16, 17], что может свидетельствовать о наличии в пленке некоторого количества ромбической фазы YBCO (соединение $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$). В то же время частота полосы 500 см^{-1} , характеризующая стехиометрию по кислороду в соединениях этого типа, означает его довольно высокое содержание [16]. Эти данные могут означать, что в полученных нами ВТСП пленках наряду с относительно совершенными с кристаллографической точки зрения слоями присутствуют как слой, сильно обедненный кислородом (вероятно, он расположен на границе между подложкой и пленкой), так и поликристаллический слой, появляющийся на внешней поверхности относительно толстых (500 нм и более) пленок.

Для оценки степени структурного совершенства ВТСП пленок мы использовали также впервые предложенный нами в работе [18] метод, основанный на исследовании оптической анизотропии пленок в $a-b$ -плоскости. Как было показано в этой работе, монокристаллические с-ориентированные YBCO пленки в случае их высокого структурного совершенства могут проявлять анизотропию отражения, обусловленную анизотропией кристаллической решетки и отсутствием двойникования.

Эксперименты проводились с помощью микрофотометрической техники, позволяющей измерять коэффициенты отражения плоскополяризованного света при его нормальном падении на поверхность образца в диапазоне от 500 до 1000 нм. Размер зондирующего светового пятна при этом мог изменяться от 50 мкм до 1 мм.

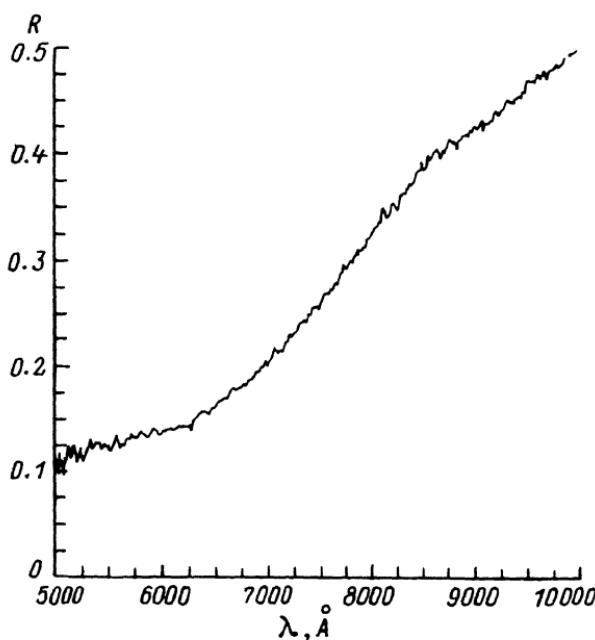


Рис. 2. Спектральная зависимость коэффициента отражения R плоскополяризованного света для ВТСП пленки.

Типичный вид спектральной зависимости коэффициента отражения $R(\lambda)$ показан на рис. 2. Рост $R(\lambda)$ с увеличением длины волны света соответствует пленке с кристаллографической осью [001], перпендикулярной поверхности образца [19]. Несколько меньшее по сравнению с монокристаллами значение коэффициента отражения в красной области спектра может быть обусловлено наличием на поверхности пленки поликристаллического слоя (см. выше). Использовавшиеся в данной работе пленки оказались изотропными по своим оптическим свойствам. Это, по нашему мнению, означает, что в них отсутствовали монокристаллические бездвойниковые области, превышающие минимальный размер зондирующего светового пятна — 50 мкм.

Изготовление джозефсоновских переходов и их свойства

Необходимо отметить, что иттриевая керамика весьма чувствительна к присутствию воды и водяных паров. Поэтому формирование на пленке геометрической структуры традиционными фотолитографическими методами может привести к ухудшению параметров ВТСП материала [20]. Более перспективными с этой точки зрения могут оказаться различные “сухие” методики, например ионное травление. В данной работе мы использовали метод так называемого прямого лазерного рисования [21], при котором рисунок наносится с помощью лазерного излучения, сфокусированного в пятно диаметром около 1 мкм.

Особый интерес вызывает физическая картина процессов, происходящих на шве бикристалла, т. е. непосредственно в джозефсоновском

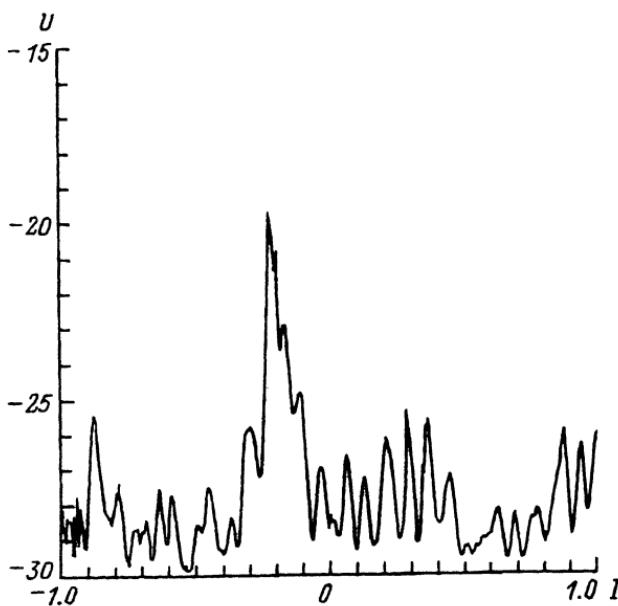


Рис. 3. Вольт-полевая (сигнальная) характеристика сквида.
I — ток в катушке (мА), U — напряжение (мкВ).

переходе. Для ответа на вопрос о пространственной однородности слабой связи была проведена серия экспериментов по измерению джозефсоновской глубины проникновения λ_J в относительно сильных для "слабой сверхпроводимости" магнитных полях (до 5 Гс). Типичная вольт-полевая характеристика сквида приведена на рис. 3. Видно, что она представляет собой наложение сквидовского отклика (малый период, соответствующий Φ_0 контура квантования $50 \times 50 \text{ мкм}^2$) и дифракционной картины фраунгоферовского типа.

Подобного вида сигнальные характеристики описаны в литературе (см., например, [22]) и соответствуют неоднородной инжекции тока в переход, при которой плотность критического тока на его краях существенно выше, чем в центре. Учитывая реальную геометрию объекта, такое объяснение можно считать вполне вероятным.

Величина джозефсоновской глубины проникновения λ_J , рассчитанная по результатам магнитных измерений, в наших экспериментах варьировалась от единиц до десятков микрон в зависимости от образца. Ширина мостиков менялась от 3 до 12 мкм.

Необходимо отметить, что во всех исследуемых образцах фактор концентрации магнитного потока в контур сквида за счет выталкивания его из объема близлежащей пленки (как это обычно имеет место в НСТП сквивах на металлических пленках) был незначителен (1.2–1.4). Это свидетельствует о неоднозначности сверхпроводящей области и, следовательно, существовании магнитопрозрачных каналов через всю толщину пленки. Их наличие определяется либо границами между кристаллитами, либо микровкраплениями несверхпроводящей фазы $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ и косвенным образом может характеризовать качество пленки. О том же свидетельствует низкая эффективность попыток повысить чувствительность сквида при помощи автотрансфор-

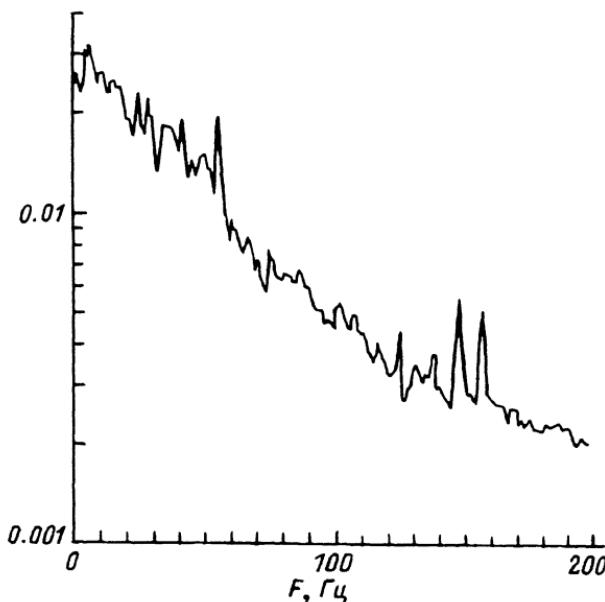


Рис. 4. Спектральная плотность шумов сквида ($T = 77.3$ К).

матора магнитного потока: коэффициент трансформации не превышал нескольких десятков процентов.

Как один из возможных путей обхода этого препятствия можно указать увеличение в разумных пределах толщины ВТСП пленки. Одновременно при этом будет увеличиваться λ_J [3], что позволит улучшить однородность протекания тока через слабую связь.

Для определения типа слабой связи проводилось детальное изучение вольт-амперных характеристик ряда образцов в диапазоне температур от 4.2 до 300 К. Сопоставление полученных результатов с теоретически рассчитанными зависимостями критического тока $I_c(T)$, избыточного тока $\Delta I(T)$ и "нормального" сопротивления $R_n(T)$ [12,23] приводит к выводу, что слабая связь по типу близка к SNS-мостику переменной толщины. Т.е. эта связь образуется на границе между гранулами сверхпроводящей фазы, поверхность которых вследствие естественной потери части атомов кислорода обладает нормальным (металлическим) типом проводимости.

Эти выводы полностью согласуются с данными анализа структурных свойств использованных пленок (см. выше), из которых также следует вывод о некоторой их разупорядоченности.

Проводилось также исследование шумовых характеристик интерферометра, которые снимались при включении его в стандартную схему с замкнутой обратной связью. Коэффициент преобразования выходного напряжения интегратора в поток, действующий на интерферометр, находился по обычному методу определения минимального скачка напряжения при перезахвате следящей схемы сквида.

Типичная спектральная плотность шума интерферометра при $T = 77.3$ К (рис. 4) имела величину порядка $5 \cdot 10^{-3} \Phi_0/\text{Гц}^{1/2}$ в полосе выше 100 Гц и с понижением частоты нарастала примерно как $1/F$. При приеме сигнала на контур интерферометра такой уровень шумов по потоку соответствует чувствительности порядка $10^{-9} \text{ Тл}/\text{Гц}^{1/2}$.

Заключение

Проведенные исследования показывают, что использование SrTiO₃ бикристаллических подложек в качестве основы для напыления иттриевой ВТСП керамики является эффективным методом получения "слабой связи" с наперед заданными параметрами и пригодной для формирования джозефсоновских переходов.

Для повышения эффективности работы интерферометра необходимо существенное улучшение структуры ВТСП пленок с целью "доведения" ее до магнитонепрозрачного состояния, что позволит в случае успешного решения этой задачи на несколько порядков поднять чувствительность сквид-магнитометров азотного уровня охлаждения.

Список литературы

- [1] Лигарев К.К., Семенов В.К., Зорин А.Б. // Сверхпроводимость. Т. 1. М., 1988.
- [2] Лигарев К.К. // Введение в динамику джозефсоновских переходов. Гл. 8. М.: Наука, 1985.
- [3] Zimmerman J.E., Beall J.A., Chomar M.W., Ono R.H. // Appl. Phys. Lett. 1987. Vol. 51. P. 617-618.
- [4] Веркин Б.И., Дмитриенко И.М., Дмитриев В.М. и др. // ФНТ. 1988. Т. 14. № 1. С. 34-38.
- [5] Bobrakov V.F., Polushkin V.N., Vasiliev B.V. // Mod. Phys. Lett. B. 1989. Vol. 3. N 5. P. 415-419.
- [6] Заварцкий В.Н., Заварцкий Н.В. // Письма в ЖТФ. 1988. Т. 14. Вып. 19. С. 1791-1793.
- [7] Куприянов М.Ю., Лигарев К.К. // УФН. Т. 160. № 5. С. 49-55.
- [8] Васильев Б.В., Лихачев А.Г., Полушкин В.Н., Учайкин С.В. // Препринт ОИЯИ. № Д13. 1989. С. 23-34.
- [9] Clarke J. // NATO ASI SERIES. V.F. 59. Superconducting Electronics / Ed. H. Weinstock, M. Nisenoff. Berlin; Heidelberg: Springer-Verlag. 1989. P. 87-148.
- [10] Chaudhari P., Maunhart J., Dimos D. // Phys. Prev. Lett. 1988. Vol. 60. N 16. P. 1653-1656.
- [11] Dimos D., Chaudhari P., Maunhart J., Le Goues F.K. // Phys. Rev. Lett. 1988. Vol. 61. N 2. P. 219-222.
- [12] Бенярус И.И., Красносвободцев С.И., Куприянов М.Ю. и др. // СФХТ. 1991. Т. 14. № 10. С. 1942-1949.
- [13] Landolt-Bornstein. Numerical Data and Functional Relationships in Science and Technology. Group III: Crystal and Solids. St. Phys. // Ed. K.-H. Helweg. Berlin: Springer-Verlag, 1969.
- [14] Golovashkin A.I., Gudkov A.L., Krasnosvobodtsev S.I. // IEEE Trans on Magn. 1989. Vol. 25. N 2. P. 943-945.
- [15] Thomsen C., Cardona M., Liu R. // J. of the Less-Common Metals. 1989. Vol. 150. P. 23-37.
- [16] Denisov V.N., Mavrin B.N., Podobedov V.B., Goncharov A.F. // Phys. Rep. 1990. Vol. 194. P. 397-405.
- [17] Burns G., Dacol F.H., Holtzberg F., Kalser D.L. // Sol. St. Com. 1988. Vol. 66. P. 217-221.
- [18] Kovalev A.S., Obraztsov A.N., Ohrimenko V.N., Pirogov V.G. // Physica C. 1991. Vol. 185-189. P. 1003-1004.
- [19] Petrov M.P., Grachev A.I., Krasin'kova M.V. et al. // Sol. St. Com. 1988. Vol. 67. P. 1197-1200.
- [20] Tonouchi M., Sakaguchi Y., Kobayashi T. // Jap. J. Appl. Phys. 1988. Vol. 27. P. L98-L102.
- [21] Blyabin A.A., Kovalev A.S., Korneev V.V. et al. // SPIE. 1992. Vol. 1723. P. 46-54.
- [22] Бароне А., Патерно Дж. Эффект Джозефсона: физика и применение. Гл. 4. М.: Мир, 1984.
- [23] Ferrari M.J. // Appl. Phys. Lett. 1988. Vol. 53. N 8. P. 695-703.