

# Диэлектрическая проницаемость эпитаксиальных пленок $\text{BaTiO}_3$ , выращенных на $(001) \text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$

© Ю.А. Бойков, Т. Клаесон\*

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

\*Чалмерский технический университет,  
S-41296 Göteborg, Sweden

E-mail: Yu.Boikov@shuvpop.ioffe.rssi.ru

(Поступила в Редакцию 26 июня 2000 г.)

Эпитаксиальные гетероструктуры  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}/\text{BaTiO}_3/\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  и  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}/(5 \text{ nm})\text{SrTiO}_3/\text{BaTiO}_3/(5 \text{ nm})\text{SrTiO}_3/\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  были выращены методом лазерного испарения на  $(100) \text{LaAlO}_3$ . Диэлектрическая проницаемость слоя  $\text{BaTiO}_3$  увеличивалась примерно вдвое ( $T = 300 \text{ K}$ ), когда между слоем сегнетоэлектрика и электродами из купратного сверхпроводника вводилась тонкая прослойка  $\text{SrTiO}_3$ . Максимум на температурной зависимости диэлектрической проницаемости для слоя титаната бария в гетероструктуре  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}/(5 \text{ nm})\text{SrTiO}_3/\text{BaTiO}_3/(5 \text{ nm})\text{SrTiO}_3/\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  был сдвинут на  $70\text{--}80 \text{ K}$  в сторону низких температур относительно его положения на соответствующей зависимости для объемного монокристалла  $\text{BaTiO}_3$ . На зависимости диэлектрической проницаемости от напряжения смещения для выращенных слоев  $\text{BaTiO}_3$  имелся четко выраженный гистерезис ( $T = 300 \text{ K}$ ). Температура сверхпроводящего перехода для нижнего  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  электрода в гетероструктуре сверхпроводник/сегнетоэлектрик/сверхпроводник существенно зависела от скорости ее охлаждения после завершения процесса формирования.

Исследование было проведено в рамках научного сотрудничества между Российской и Шведской Королевской академиями наук. Финансовая поддержка для выполнения данной работы была получена из проекта TFR N 240-97-382, проекта № 98-02-18222 Российского фонда фундаментальных исследований и проекта № 98041 "Комбинация", выполняемого в рамках направления "Сверхпроводимость".

$\text{BaTiO}_3$  (ВТО) является одним из наиболее известных представителей обширной группы перовскито-подобных сегнетоэлектриков. Полученные за последние 50 лет данные по диэлектрическим свойствам монокристаллов и объемных керамических образцов ВТО и твердых растворов  $(\text{Ba}, \text{Sr})\text{TiO}_3$  (BSTO) со стороны титаната бария позволили сделать вывод о перспективности использования указанных сегнетоэлектрических материалов в ячейках памяти [1], электрооптических системах [2] и детекторах ИК излучения [3]. Для различных применений в микроэлектронике и СВЧ технике ВТО должен быть приготовлен в виде пленки, на свободной поверхности которой (или на обеих поверхностях) сформированы электроды из проводящего материала. Имеющиеся в литературе данные [4,5] указывают на то, что абсолютные значения диэлектрической проницаемости  $\epsilon$  для поликристаллических пленок ВТО, ее температурная зависимость и реакция на внешнее электрическое поле существенно отличаются от соответствующих данных для объемных монокристаллов [6]. Систематического исследования зависимости диэлектрических параметров эпитаксиальных пленок ВТО от структуры до сих пор не проведено.

Глубокие аналогии в кристаллической структуре купратных сверхпроводников и перовскито-подобных сегнетоэлектриков создают возможность формирования эпитаксиальных гетероструктур сверхпроводник/сегнетоэлектрик/сверхпроводник.

Цель данной работы — исследование структуры и параметров эпитаксиальных пленок ВТО, выращенных на поверхности  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  (YBCO). Чтобы выявить зависимость диэлектрической проницаемости слоя титаната бария, помещенного между тонкопленочными электродами из купратного сверхпроводника, от микроструктуры межфазных границ ВТО/YBCO наряду с трехслойными системами YBCO/ВТО/YBCO были выращены гетероструктуры, в которых между слоем сегнетоэлектрика и пленками сверхпроводника были введены тонкие (5 nm) прослойки из титаната стронция. Механизмы, способствующие совершенствованию микроструктуры межфазной границы YBCO/BSTO при введении эпитаксиальной буферной прослойки  $\text{SrTiO}_3$  (STO), были рассмотрены в [7,8].

## 1. Эксперимент

Гетероструктуры YBCO/ВТО/YBCO и YBCO/(5 nm)STO/ВТО/(5 nm)STO/YBCO были выращены методом лазерного испарения ( $\text{KrF}$ ,  $\lambda = 248 \text{ nm}$ ,  $\tau = 30 \text{ ns}$ ) на подложке  $(100) \text{LaAlO}_3$  (LAO). В качестве мишеней использовались поликристаллические шайбы YBCO, ВТО и STO, приготовленные по стандартной керамической технологии. Плотность лазерного излучения на поверхности мишеней равнялась  $1.5 \text{ J/cm}^2$ . Давление кислорода  $P_{\text{O}}$  и температура подложки  $T_{\text{S}}$  в процессе роста гетероструктур YBCO/ВТО/YBCO и YBCO/(5 nm)STO/ВТО/(5 nm)STO/YBCO равнялись

0.5 mbar и 750°C соответственно. После завершения процесса конденсации гетероструктуры охлаждались до комнатной температуры в атмосфере кислорода ( $P_O = 1 \text{ atm.}$ ) со скоростью  $v_T = 5\text{--}25^\circ\text{C/min}$ .

Фазовый состав и структура выращенных гетероструктур исследовались с использованием рентгеновской дифракции (Philips X'pert MRD,  $\omega/2\theta$ - и  $\phi$ -сканы, кривые качания). С целью определения параметров элементарной ячейки для слоя сегнетоэлектрика и пленок сверхпроводника, составляющих гетероструктуру сверхпроводник/сегнетоэлектрик/сверхпроводник, рентгеновские дифрактограммы были сняты в условиях, когда падающий и отраженный рентгеновские пучки были перпендикулярны либо (100), либо (101) LAO. При расчете параметра элементарной ячейки для слоя сегнетоэлектрика в направлении, перпендикулярном плоскости подложки  $a_{\perp}$ , использовалось значение  $2\theta$  для рентгеновского рефлекса (400)BTO. Параметр элементарной ячейки в плоскости подложки ( $a_{\parallel}$ ) определялся из соотношения  $1/d_{(303)} = [(3/a_{\perp})^2 + (3/a_{\parallel})^2]^{1/2}$ , где  $d_{(303)}$  — межплоскостное расстояние, рассчитанное с использованием значения  $2\theta$  для рентгеновского рефлекса (303)BTO.

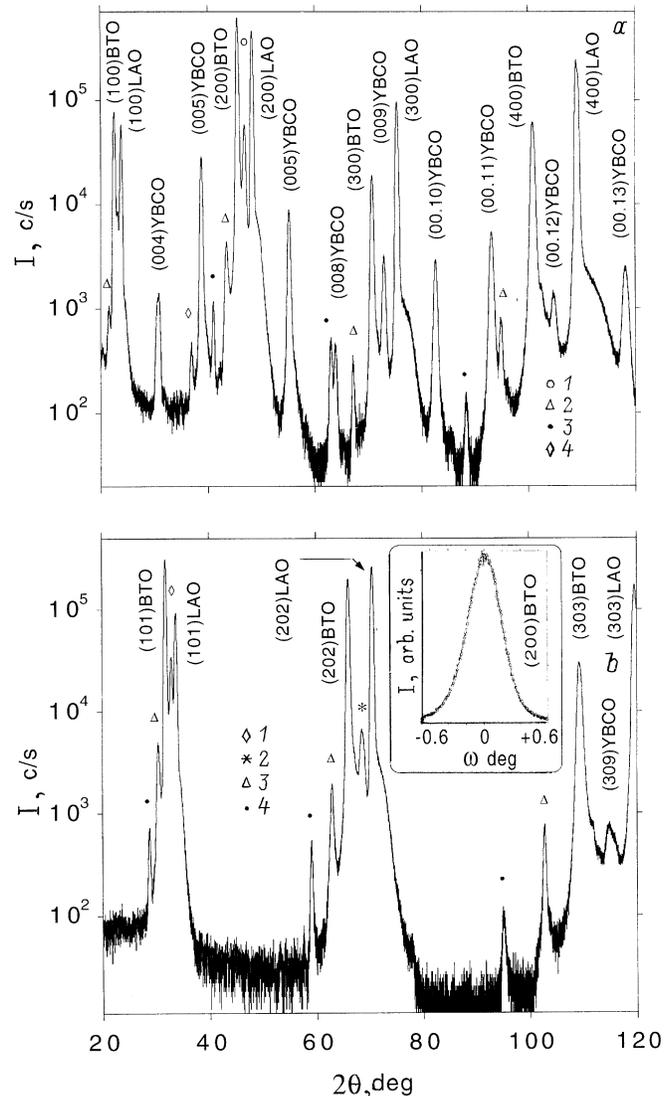
Данные по морфологии поверхности выращенных пленок BTO и YBCO были получены с использованием микроскопа атомных сил (NanoScope-IIIa).

Электроды ( $S = 0.2 \times 0.2 \text{ mm}^2$ ) в верхней пленке сверхпроводника и отверстия в слое сегнетоэлектрика (для формирования контакта к нижнему общему электроду YBCO) были сформированы с использованием фотолитографии и ионного травления (Ar, 0.2 mA, 500 V).

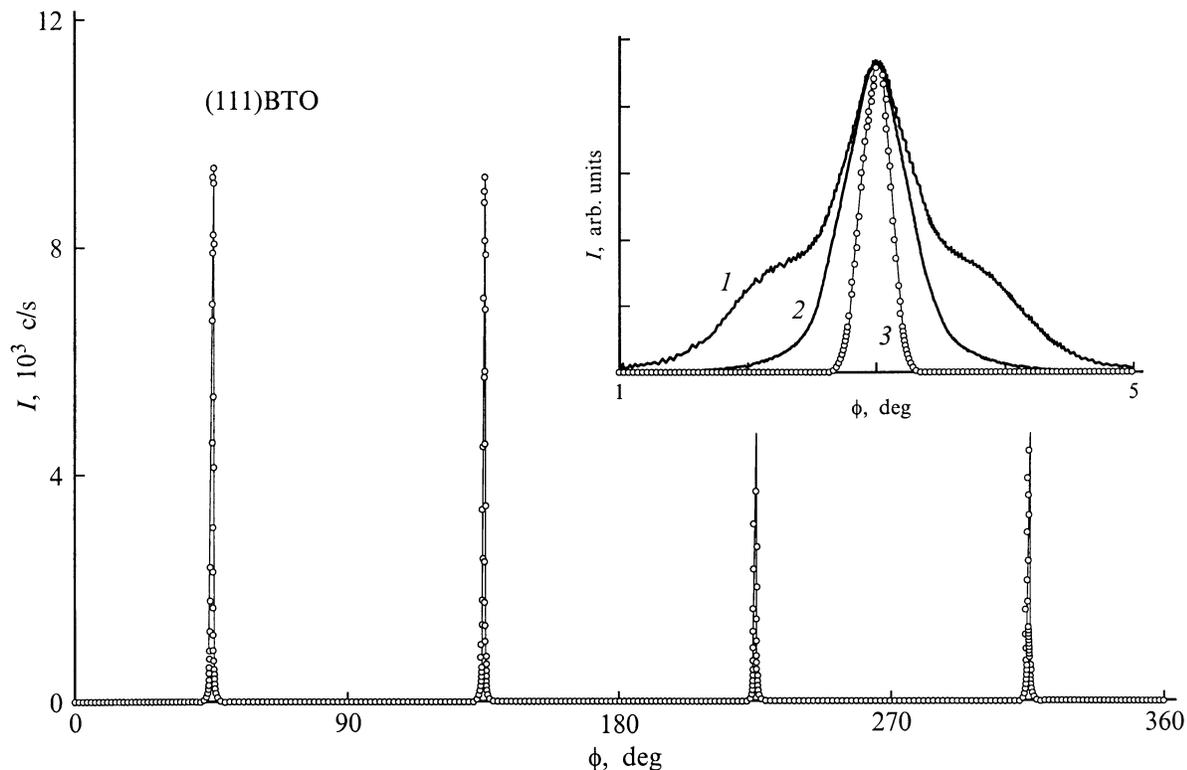
Емкость  $C$  и тангенс угла потерь  $\text{tg } \delta$  для сформированных конденсаторных структур YBCO/BTO/YBCO и YBCO/(5 nm)STO/BTO/(5 nm)STO/YBCO измерялись с помощью hp 4263A LCR-meter ( $f = 100 \text{ kHz}$ ) при подаче на сверхпроводящие электроды напряжения смещения  $V_b = \pm 2.5 \text{ V}$  и без него. Напряжение смещения считалось положительным, когда "+" прикладывался к верхнему электроду. Диэлектрическая проницаемость определялась из соотношения  $C = \epsilon S/d$ , где  $d = 700 \text{ nm}$  — толщина слоя сегнетоэлектрика. Сопротивление  $R$  пленок YBCO, выращенных на поверхности (100)LAO и BTO/YBCO/(100)LAO, измерялось четырехзондовым методом по методике Van der Pauw с помощью LCR-meter ( $f = 100 \text{ Hz}$ ). Удельное сопротивление  $\rho$  пленок сверхпроводника рассчитывалось с использованием соотношения  $\rho = (\pi d_1 / \ln 2) R$  [9], где  $d_1 = 200 \text{ nm}$  — толщина пленки сверхпроводника. Температура сверхпроводящего перехода  $T_C$  для пленок YBCO определялась из температурных зависимостей сопротивления и магнитной восприимчивости  $\chi$ . Плотность критического тока  $j_C$  определялась из вольтамперных характеристик, измеренных на мостиках (длиной 50 и шириной 8  $\mu\text{m}$ ), сформированных в пленках YBCO с использованием фотолитографии и ионного травления.

## 2. Результаты и их обсуждение

Проведенное с использованием рентгеновских методов и микроскопа атомных сил исследование слоев BTO, выращенных на поверхности YBCO/LAO и (5 nm)STO/YBCO/LAO, не выявило систематической разницы в их структуре и морфологии поверхности.



**Рис. 1.** *a* — рентгеновская дифрактограмма ( $\text{CuK}\alpha$ ,  $\omega/2\theta$ ) для гетероструктуры (200 nm)YBCO/(700 nm)BTO/(200 nm)YBCO, выращенной на (100)LAO. Падающий и отраженный рентгеновские пучки при записи дифрактограммы были в плоскости, перпендикулярной (100)LAO.  $v_T = 5^\circ\text{C/min}$ . 1 — (006)YBCO-пик, 2 —  $\text{CuK}\beta$ -пики от LAO, 3 —  $\text{CuK}\beta$ -пики от BTO, 4 —  $\text{CuK}\beta$ -пик от YBCO. *b* — рентгеновская дифрактограмма ( $\text{CuK}\alpha$ ,  $\omega/2\theta$ ) для той же гетероструктуры, записанная в условиях, когда падающий и отраженный рентгеновские пучки были в плоскости, перпендикулярной (101)LAO. 1 — (103)YBCO-пик, 2 — (206)YBCO-пик, 3 —  $\text{CuK}\beta$ -пики от LAO, 4 —  $\text{CuK}\beta$ -пики от BTO. На вставке приведена кривая качания ( $\text{CuK}\alpha$ ,  $\omega - 2\theta$ ), измеренная для рентгеновского пика (200)BTO от той же гетероструктуры.



**Рис. 2.** Рентгеновский ( $\text{CuK}\alpha$ )  $\phi$ -скан для рефлекса (111)BTO от гетероструктуры YBCO/BTO/YBCO/LAO, выращенной на (100)LAO при  $v_T = 5^\circ\text{C}/\text{min}$ . На вставке в увеличенном масштабе показаны пики на  $\phi$ -сканах для рефлексов (113)YBCO (1), (111)BTO (2) и (111)LAO (3) от той же гетероструктуры.

Измеренная диэлектрическая проницаемость  $\epsilon$  сегнетоэлектрического слоя в гетероструктуре YBCO/BTO/YBCO была, однако, существенно меньше  $\epsilon$  для слоя BTO в YBCO/(5 nm)STO/BTO/(5 nm)STO/YBCO. Сначала мы проанализируем данные по структуре выращенных слоев, а затем обсудим особенности температурных и полевых зависимостей диэлектрических параметров слоя BTO и причины деградации сверхпроводящих параметров пленок YBCO в многослойных эпитаксиальных гетероструктурах.

2.1. Структура и морфология поверхности слоев, составляющих гетероструктуру сверхпроводник/сегнетоэлектрик/сверхпроводник. Из полученных рентгеновских данных следует, что выращенные гетероструктуры были свободны от включений побочных фаз (рис. 1, *a, b*). Малая разница в параметрах кристаллических решеток при сопряжении (100)LAO, (001)YBCO, (100)BTO и (100)STO способствует эпитаксиальному росту гетероструктур YBCO/BTO/YBCO и YBCO/(5 nm)STO/BTO/(5 nm)STO/YBCO на поверхности алюмината лантана. Пленки сверхпроводника и промежуточный слой титаната бария были четко ориентированы как азимутально, так и относительно нормали к плоскости подложки (рис. 1, *a, b* и рис. 2). На дифрактограммах для гетероструктур YBCO/BTO/YBCO

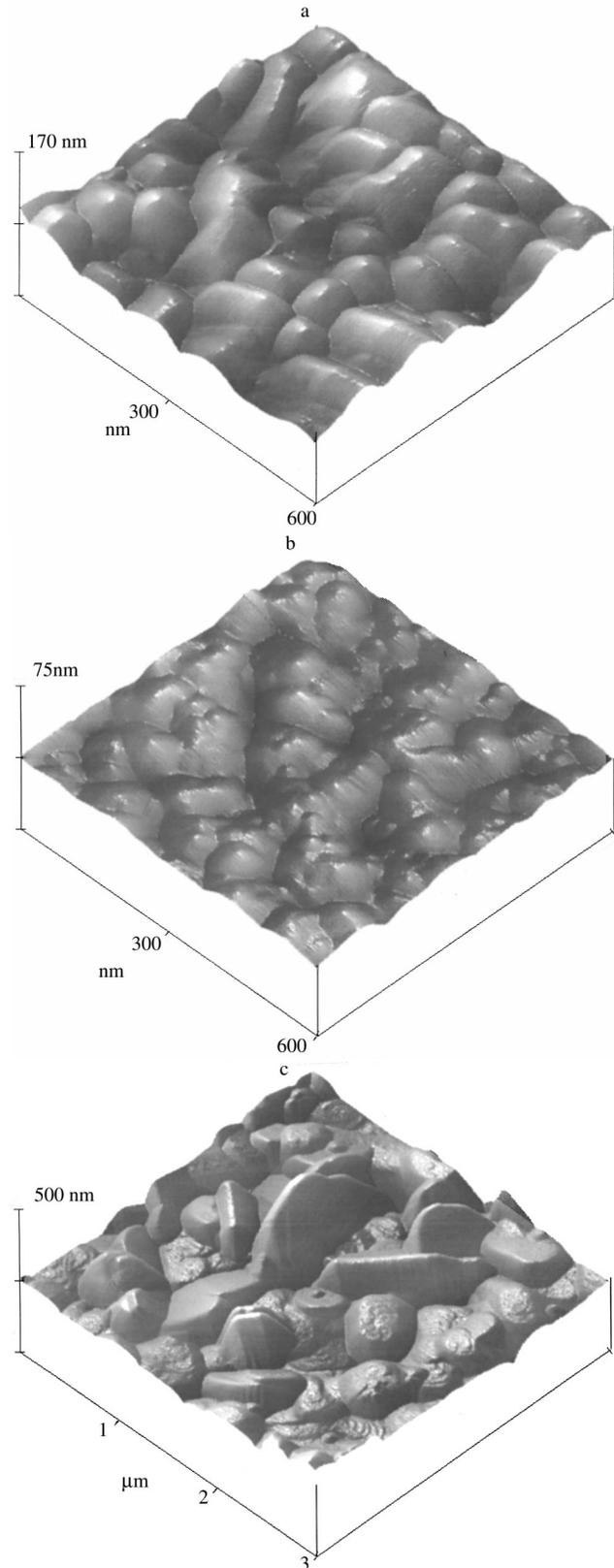
и YBCO/(5 nm)STO/BTO/(5 nm)STO/YBCO, полученных в условиях, когда падающий и отраженный рентгеновские пучки находились в плоскости, перпендикулярной (100)LAO, присутствовали только (001)YBCO, ( $n00$ )BTO и ( $n00$ )LAO рентгеновские пики (рис. 1, *a*). Рентгеновские дифрактограммы, полученные в условиях, когда падающий и отраженный рентгеновские пучки находились в плоскости, перпендикулярной (101)LAO, включали в себя помимо ( $n0n$ ) пиков от подложки и слоя сегнетоэлектрика также (103), (206) и (309) пики от пленок сверхпроводника (рис. 1, *b*). На рентгеновских  $\phi$ -сканах для (111)BTO- и (113)YBCO-рефлексов, измеренных для гетероструктур YBCO/BTO/YBCO/LAO и YBCO/(5 nm)STO/BTO/(5 nm)STO/YBCO/LAO, имелось по четыре эквидистантно расположенных пика (рис. 2). Ширина пика на  $\phi$ -скане для рефлексов (113)YBCO, (111)BTO и (111)LAO от гетероструктуры YBCO/BTO/YBCO/LAO, измеренная на половине высоты (FWHM), равнялась  $1.06$ ,  $0.73$  и  $0.26^\circ$  соответственно (вставка на рис. 2). Ширина пика на  $\phi$ -скане для рефлекса (113)YBCO от пленки сверхпроводника, выращенной на (100)LAO, равнялась  $0.45^\circ$ . На основе полученных рентгеновских данных были определены следующие ориентационные соотношения для пленок, составляющих гетероструктуру сверхпроводник/сегне-

тоэлектрик/сверхпроводник — (001)[010]YBCO//  
(100)[010]BTO//(001)[010]YBCO//(100)[010]LAO.

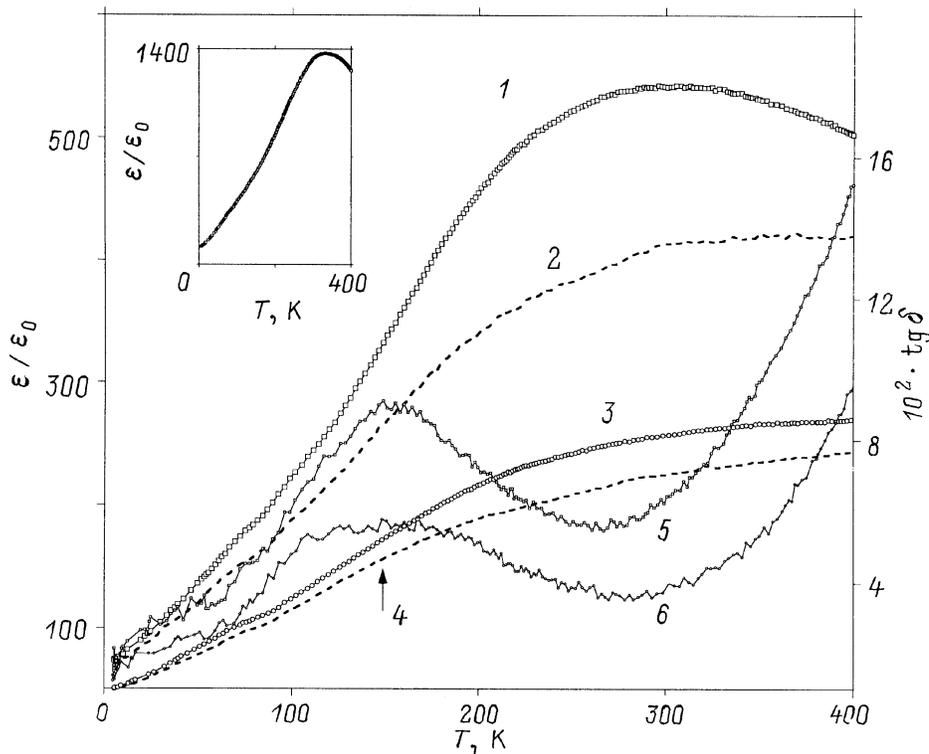
Параметр элементарной ячейки в направлении, перпендикулярном плоскости подложки  $a_{\perp} = 3.997 \pm 0.001 \text{ \AA}$ , определенный из рентгеновских данных для слоя BTO ( $T = 300 \text{ K}$ ), был меньше соответствующего параметра в плоскости подложки  $a_{\parallel} = 4.020 \pm 0.001 \text{ \AA}$ . Данный факт позволяет сделать вывод о том, что ось  $c$  в слое BTO, выращенном на поверхности (001)YBCO//(100)LAO, ориентирована преимущественно параллельно плоскости подложки. На ориентацию полярной оси в эпитаксиальных пленках BTO существенное влияние оказывают механические напряжения, возникающие в результате разницы в коэффициентах термического расширения  $\beta$  сегнетоэлектрического материала и подложки [10]. В интервале температур  $100\text{--}800^{\circ}\text{C}$  коэффициент термического расширения для титаната бария ( $\beta = 14.2 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$  [11]) существенно больше соответствующего параметра для алюмината лантана ( $\beta = 9.2 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$  [12]), что является причиной возникновения растягивающих в плоскости подложки механических напряжений в слое BTO, выращенном на (001)YBCO//(100)LAO. Механические напряжения, возникающие в пленке BTO, вследствие разницы в параметрах кристаллических решеток для (100)BTO, (001)YBCO и (100)LAO, частично релаксируют при температурах, близких к  $T_S$ , в процессе формирования дислокаций несоответствия.

FWHM кривой качания для рентгеновского рефлекса (200)BTO от гетероструктур YBCO/BTO/YBCO и YBCO/(5 nm)STO/BTO/(5 nm)STO/YBCO находилась в пределах  $0.4\text{--}0.5^{\circ}$  (вставка на рис. 1, *a*). FWHM кривой качания для рефлекса (200) от подложки равнялась  $0.22^{\circ}$ . Причиной значительной ширины кривых качания для эпитаксиальных пленок BTO в гетероструктурах YBCO/BTO/YBCO и YBCO/(5 nm)STO/BTO/(5 nm)STO/YBCO является высокая плотность дефектов структуры (границы зерен, вакансии кислорода, дислокации несоответствия в области межфазных границ и т.д.). Деградация структуры пленок обусловлена низкой подвижностью адсорбированных частиц на поверхности растущей пленки BTO.

Пики от нижней и верхней пленок YBCO на рентгеновском  $\omega/2\theta$ -скане для гетероструктур YBCO/BTO/YBCO/LAO и YBCO/(5 nm)STO/BTO/(5 nm)STO/YBCO/LAO ( $v_T = 5^{\circ}\text{C}/\text{min}$ ) не разрешались даже при  $2\theta > 100^{\circ}$  (рис. 1, *a, b*). Параметры элементарной ячейки ( $c = 11.682 \pm 0.001$  и  $a = 3.862 \pm 0.001 \text{ \AA}$ ) для пленок YBCO в гетероструктурах YBCO/BTO/YBCO и YBCO/(5 nm)STO/BTO/(5 nm)STO/YBCO, определенные с использованием полученных рентгеновских дифрактограмм, соответствуют имеющимся в литературе данным для пленок и объемных образцов YBCO с малым отступлением от стехиометрии по кислороду [13].



**Рис. 3.** Морфология свободной поверхности слоя (700 nm)BTO, выращенного на (001)YBCO/(100)LAO (*a*), пленки (200 nm)YBCO на (100)LAO (*b*) и пленки (200 nm)YBCO на (100)BTO/(001)YBCO/(100)LAO (*c*). Изображения получены с использованием микроскопа атомных сил.



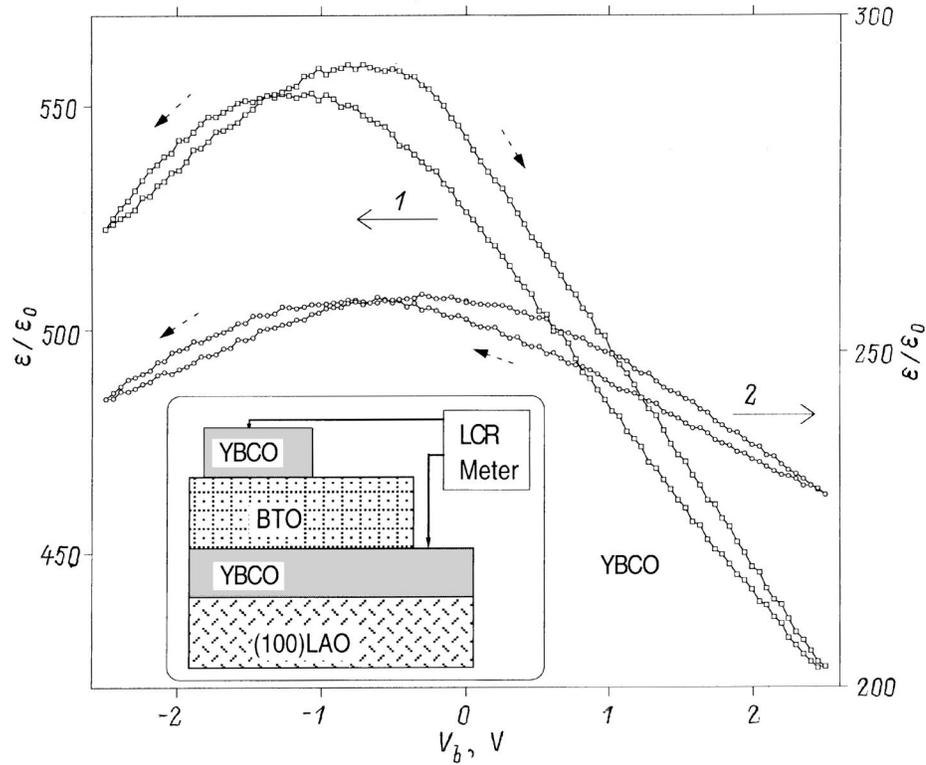
**Рис. 4.** Температурные зависимости  $\epsilon/\epsilon_0$  (1–4) и  $\text{tg } \delta$  (5, 6) для слоя (700 nm)BTO в гетероструктурах  $\text{YBCO}/(5 \text{ nm})\text{STO}/\text{BTO}/(5 \text{ nm})\text{STO}/\text{YBCO}$  (1, 2, 5) и  $\text{YBCO}/\text{BTO}/\text{YBCO}$  (3, 4, 6).  $v_T = 5^\circ\text{C}/\text{min}$ . 2, 4 — измерены при напряжении смещения  $V_b = +2.5 \text{ V}$ , поданном на сверхпроводящие электроды. На вставке показана кривая  $\epsilon/\epsilon_0(T)$ , полученная для слоя (700 nm)BTO, помещенного между двух эпитаксиальных электродов (100)SrRuO<sub>3</sub> [14].  $\epsilon_0$  — диэлектрическая проницаемость вакуума,  $f = 100 \text{ kHz}$ .

Из данных, представленных на рис. 3, а, следует, что слой BTO, выращенный на поверхности пленки сверхпроводника, имел гранулированную структуру. Кристаллиты в слое сегнетоэлектрика имели размеры 100–150 nm (рис. 3, а). Как следует из ширины пиков на рентгеновских  $\phi$ -сканах для рефлекса (111)BTO, азимутальная разориентация кристаллитов в слое сегнетоэлектрика, составляла в среднем  $0.7^\circ$ . Основной причиной азимутальной разориентации кристаллитов в слое BTO является разница в параметрах кристаллических решеток ( $\Delta a \sim 4\%$ ) при сопряжении (100)BTO и (001)YBCO. Размеры кристаллитов в пленке YBCO, выращенной на поверхности (100)LAO, были в 2–3 раза меньше, чем в слое BTO, выращенном на (001)YBCO/(100)LAO (рис. 3, б). Поверхность пленки YBCO, выращенной на (100)BTO/(001)YBCO/(100)LAO, была неровной из-за крупных кристаллитов, выступающих на 50–120 nm над остальной частью пленки сверхпроводника (рис. 3, в).

2.2. Диэлектрические параметры слоя BTO. Измеренные значения  $\epsilon$  для слоя (100)BTO в плоскопараллельных конденсаторных структурах  $\text{YBCO}/\text{BTO}/\text{YBCO}$  и  $\text{YBCO}/(5 \text{ nm})\text{STO}/\text{BTO}/(5 \text{ nm})\text{STO}/\text{YBCO}$  были существенно меньше диэлектрической проницаемости монокристаллов BTO ( $T = 4.2\text{--}400 \text{ K}$ ), измеренной вдоль оси  $a$  [6]. Причиной низких

измеренных значений  $\epsilon$  для слоя титаната бария, введенного между двух электродов из купратного сверхпроводника, является нарушение стехиометрии в приграничных областях слоя BTO и пленки YBCO, что приводит к формированию у межфазной границы прослойки материала с низкой диэлектрической проницаемостью. При  $T = 300 \text{ K}$  диэлектрическая проницаемость слоя BTO в многослойной гетероструктуре  $\text{YBCO}/(5 \text{ nm})\text{STO}/\text{BTO}/(5 \text{ nm})\text{STO}/\text{YBCO}$  примерно вдвое превышала соответствующие данные для слоя сегнетоэлектрика в  $\text{YBCO}/\text{BTO}/\text{YBCO}$  (рис. 4). Увеличение  $\epsilon$  для слоя BTO при введении в гетероструктуру буферных прослоек (5 nm)STO обусловлено совершенствованием микроструктуры межфазных границ сегнетоэлектрик/сверхпроводник [7]. При замене электродов из купратного сверхпроводника в конденсаторной структуре  $\text{YBCO}/\text{BTO}/\text{YBCO}$  на электроды из SrRuO<sub>3</sub>, который при  $T < 800^\circ\text{C}$  химически инертен по отношению к титанату бария и обеспечивает меньшую, чем YBCO, разницу в параметрах кристаллических решеток,  $\epsilon$  для слоя сегнетоэлектрика возрастала в 3–6 раз [14] (вставка на рис. 4).

Максимум на зависимости  $\epsilon(T)$  для слоя BTO в конденсаторной структуре  $\text{YBCO}/(5 \text{ nm})\text{STO}/\text{BTO}/$



**Рис. 5.** Зависимость диэлектрической проницаемости от напряжения смещения для слоя (700 нм)ВТО в гетероструктурах YBCO/(5 нм)STO/BTO/(5 нм)STO/YBCO (1) и YBCO/BTO/YBCO (2) при  $T = 300$  К. Гистерезис наблюдался на кривых  $\varepsilon/\varepsilon_0(V_b)$ , полученных для обеих гетероструктур. Эскиз плоскопараллельной конденсаторной структуры показан на вставке.  $f = 100$  kHz.  $v_T = 5^\circ\text{C}/\text{min}$ .

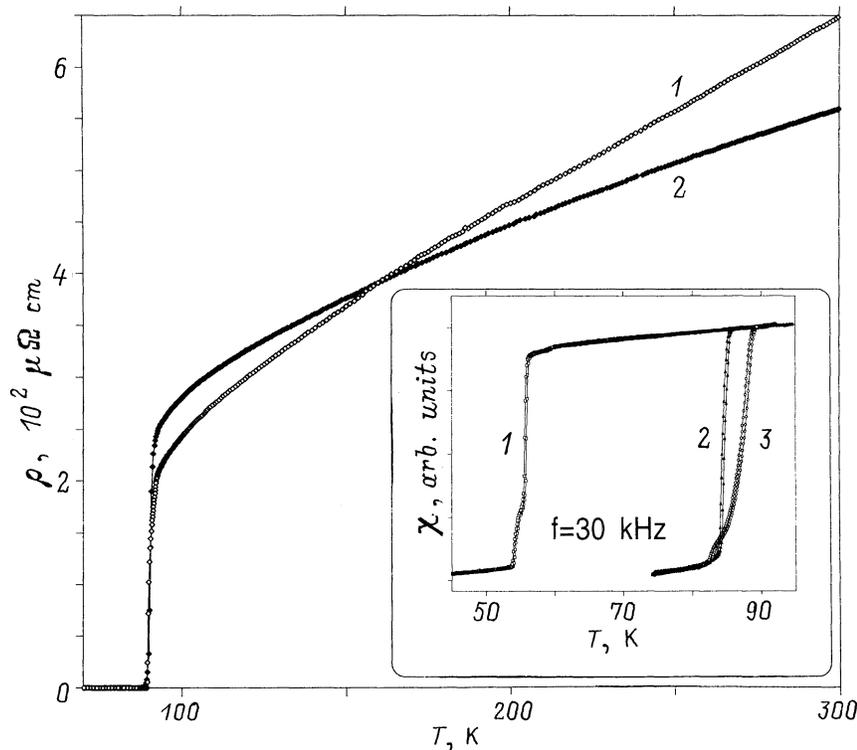
(5 нм)STO/YBCO был сдвинут на 70–80 К в сторону низких температур относительно его положения на температурной зависимости диэлектрической проницаемости для монокристаллов ВТО [6]. Стабилизация кубической фазы при температурах ниже 390 К наблюдалась в керамических пленках ВТО с размером кристаллитов порядка 20 нм [1]. Существенный сдвиг максимума на зависимости  $\varepsilon(T)$  в сторону низких температур наблюдался для эпитаксиальных пленок ВТО [14] при уменьшении размеров кристаллических блоков от 200 до 50 нм.

При подаче на сверхпроводящие электроды напряжения смещения  $\pm 2.5$  В максимум на зависимости  $\varepsilon(T)$  для слоя ВТО в конденсаторных структурах YBCO/BTO/YBCO и YBCO/(5 нм)STO/BTO/(5 нм)STO/YBCO сдвигался в сторону высоких температур (рис. 4). Увеличение температуры Кюри  $T_{\text{Curie}}$  для монокристаллов ВТО в электрическом поле было наглядно продемонстрировано в [15].

Четко выраженный гистерезис наблюдался на измеренных при  $T = 300$  К зависимостях диэлектрической проницаемости слоя ВТО от напряжения смещения, приложенного к электродам YBCO (рис. 5). Полученные зависимости  $\varepsilon(V_b)$  указывают на то, что при  $T = 300$  К слой ВТО в выращенных гетероструктурах находился в сегнетоэлектрической фазе. При

изменении  $V_b$  от  $-2.5$  до  $+2.5$  В на кривых  $\varepsilon(V_b)$  для слоя ВТО в гетероструктурах YBCO/BTO/YBCO и YBCO/(5 нм)STO/BTO/(5 нм)STO/YBCO имелся четко выраженный максимум, который был сдвинут в сторону отрицательных значений  $V_b$  относительно точки  $V_b = 0$ . Этот сдвиг максимума на кривых  $\varepsilon(V_b)$  для слоя ВТО частично обусловлен различиями в электронных параметрах верхней и нижней межфазных границ сегнетоэлектрик/сверхпроводник. Эскиз плоскопараллельной конденсаторной структуры YBCO/BTO/YBCO показан на вставке на рис. 5.

Появление при  $T \approx 160$  К максимума на кривых  $\text{tg } \delta(T)$  для слоя ВТО в гетероструктурах YBCO/BTO/YBCO и YBCO/(5 нм)STO/BTO/(5 нм)STO/YBCO обусловлено взаимодействием электромагнитного излучения с сегнетоэлектрическими доменными стенками. При подаче на сверхпроводящие электроды напряжения смещения  $\pm 2.5$  В  $\text{tg } \delta$  для слоя ВТО уменьшался ( $T < 200$  К), что обусловлено увеличением средних размеров доменов во внешнем электрическом поле. Резкое увеличение  $\text{tg } \delta$  с температурой при  $T > 300$  К (рис. 4) связано с ростом проводимости сегнетоэлектрического слоя вследствие ионизации донорных центров (вакансии кислорода [8]). В интервале температур 300–400 К  $\text{tg } \delta$  для слоя ВТО в гетероструктурах YBCO/BTO/YBCO и



**Рис. 6.** Зависимость от температуры  $\rho$  для пленки  $(200 \text{ nm})\text{YBCO}$ , выращенной на  $(100)\text{LAO}$  (1), и  $\rho/2.5$  для пленки сверхпроводника такой же толщины, выращенной на  $(700 \text{ nm})\text{BTO}/(200 \text{ nm})\text{YBCO}/(100)\text{LAO}$  (2).  $v_T = 5^\circ\text{C}/\text{min}$ . Температурные зависимости магнитной восприимчивости для гетероструктур  $(700 \text{ nm})\text{BTO}/(200 \text{ nm})\text{YBCO}/(100)\text{LAO}$  (1, 2) и  $(200 \text{ nm})\text{YBCO}/(700 \text{ nm})\text{BTO}/(200 \text{ nm})\text{YBCO}/(100)\text{LAO}$  (3), сформированных при различных  $v_T$ , показаны на вставке.  $v_T$ ,  $^\circ\text{C}/\text{min}$ : 1 — 25, 2, 3 — 5.

$\text{YBCO}/(5 \text{ nm})\text{STO}/\text{BTO}/(5 \text{ nm})\text{STO}/\text{YBCO}$  увеличивался, если измерение проводилось во внешнем электрическом поле.

2.3. Параметры пленок  $\text{YBCO}$  в гетероструктуре  $\text{YBCO}/\text{BTO}/\text{YBCO}$ . Значения  $T_C$  и  $J_C$  для пленок  $\text{YBCO}$ , выращенных на поверхности  $(100)\text{LAO}$ , находились в пределах 88–91 К и  $(1-3) \cdot 10^6 \text{ A}/\text{cm}^2$  соответственно.  $T_C$  для пленки  $\text{YBCO}$  в гетероструктуре  $(700 \text{ nm})\text{BTO}/(200 \text{ nm})\text{YBCO}/(100)\text{LAO}$  существенно зависела от скорости охлаждения образца после завершения процесса конденсации. При  $v_T = 25^\circ\text{C}/\text{min}$   $T_C$ , определенная из температурной зависимости  $\chi$  для пленки  $\text{YBCO}$ , покрытой слоем  $\text{BTO}$  толщиной 700 нм, равнялась 50–55 К (вставка на рис. 6), а параметр  $c$  для элементарной ячейки сверхпроводника находился в пределах 11.71–11.70 Å. При уменьшении  $v_T$  до  $5^\circ\text{C}/\text{min}$   $T_C$  для слоя  $\text{YBCO}$  в гетероструктуре  $(700 \text{ nm})\text{BTO}/(200 \text{ nm})\text{YBCO}/(100)\text{LAO}$  возрастала до 85 К (вставка на рис. 6), а параметр  $c$  элементарной ячейки уменьшался примерно на 0.02 Å. Слой  $(700 \text{ nm})\text{BTO}$ , выращенный на поверхности пленки  $\text{YBCO}$ , является антидиффузионным буфером, который существенно снижает интенсивность насыщения последней кислородом. Емкость  $C$  конденсаторной

структуры  $\text{YBCO}/\text{BTO}/\text{YBCO}$ , охлаждение которой проводилось со скоростью  $v_T = 25^\circ\text{C}/\text{min}$ , была на 50–80% меньше, чем  $C$  для структуры, которая охлаждалась со скоростью  $v_T = 5^\circ\text{C}/\text{min}$ . При использовании высоких  $v_T$  происходит увеличение толщины прослойки с нарушенной стехиометрией, которая имеет низкую  $\epsilon$  и расположена на межфазной границе  $\text{YBCO}/\text{BTO}$ . Расширение прослойки с низкой  $\epsilon$  происходит как за счет слоя сегнетоэлектрика, так и пленки сверхпроводника. Согласно [16], для обедненных кислородом керамических образцов  $\text{YBCO}$  характерны не только высокие значения  $\rho$ , но и низкие значения диэлектрической проницаемости  $\epsilon/\epsilon_0 < 10$ .

Как следует из данных, представленных на рис. 2, азимутальная разориентация кристаллитов в верхней и нижней пленках  $\text{YBCO}$  в гетероструктуре  $\text{YBCO}/\text{BTO}/\text{YBCO}$  различается в 2–4 раза. С увеличением разориентации кристаллических зерен в пленке  $\text{YBCO}$  усиливается нарушение стехиометрии в области межкристаллитных границ. Именно большая азимутальная разориентация кристаллитов является одной из причин возрастания  $\rho$  и падения  $j_C$  для пленки  $\text{YBCO}$ , сформированной на  $(700 \text{ nm})\text{BTO}/(200 \text{ nm})\text{YBCO}/\text{LAO}$ , по сравнению с пленкой сверхпроводника, выращенной на  $(100)\text{LAO}$ .

Таким образом, фундаментальные аналогии в структуре перовскито-подобных сегнетоэлектриков и купратных сверхпроводников способствуют росту ориентированных слоев ВТО на поверхности эпитаксиальных пленок YBCO. Слой (700 nm)ВТО, выращенный на поверхности (001)YBCO, состоит из кристаллических зерен, разделенных малоугловыми границами. Нарушение стехиометрии в области межфазных границ YBCO/ВТО способствует формированию прослойки с низкой  $\varepsilon$ . При  $T = 300$  К величина  $\varepsilon$  для слоя ВТО, рассчитанная из емкости конденсаторных структур YBCO/(700 nm)ВТО/YBCO и YBCO/(5 nm)STO/(700 nm)ВТО/(5 nm)STO/YBCO, существенно меньше диэлектрической проницаемости монокристаллов титаната бария. Рост  $\text{tg } \delta$  с температурой при  $T > 300$  К обусловлен возрастанием проводимости слоя сегнетоэлектрика. Слой (700 nm)ВТО, выращенный на поверхности пленки YBCO, является антидиффузионным барьером, который резко снижает интенсивность насыщения сверхпроводника кислородом. Азимутальная разориентация кристаллических зерен в пленке (001)YBCO, выращенной на (100)ВТО/(001)YBCO/(100)LAO, так же как дефекты в объеме кристаллитов, возникающие в результате шероховатости свободной поверхности слоя сегнетоэлектрика, ответственны за деградацию сверхпроводящих параметров верхнего слоя YBCO в гетероструктуре YBCO/ВТО/YBCO.

## Список литературы

- [1] M.H. Frey, D.A. Payne. Appl. Phys. Lett. **63**, 2753 (1993).
- [2] D.M. Gill, B.A. Block, C.W. Conrad, B.W. Wessels, S.T. Ho. Appl. Phys. Lett. **69**, 2968 (1996).
- [3] J.-G. Cheng, X.-J. Meng, J. Tang, S.-L. Guo, J.-H. Chu. Appl. Phys. Lett. **75**, 3402 (1999).
- [4] H.B. Sharma, H.N.K. Sarma, A. Mansingh. J. Appl. Phys. **85**, 341 (1999).
- [5] I. Lubomirsky, D.T. Chang, O.M. Stafsudd. J. Appl. Phys. **85**, 6690 (1999).
- [6] W.J. Merz. Phys. Rev. **76**, 1221 (1949).
- [7] Yu.A. Boikov, Z.G. Ivanov, A.N. Kiselev, E. Olson, T. Claeson. J. Appl. Phys. **78**, 4591 (1995).
- [8] Yu.A. Boikov, T. Claeson. Supercond. Sci. Technol. **12**, 654 (1999).
- [9] T.I. Kamins. J. Appl. Phys. **42**, 4357 (1971).
- [10] V. Srikant, E.J. Tarsa, D.R. Clarke, J.S. Speck. J. Appl. Phys. **77**, 1517 (1995).
- [11] R.W.G. Wyckoff. Crystal Structures. Vol. 2. Interscience publishers, John Wiley & Sons, N.Y. (1964). P. 391.
- [12] C. Zuccaro, M. Winter, N. Klein, K. Urban. J. Appl. Phys. **82**, 5695 (1997).
- [13] C.B. Eom, J.Z. Sun, K. Yamamoto, A.F. Marshall, K.E. Luther, T.H. Geballe, S.S. Laderman. Appl. Phys. Lett. **55**, 595 (1989).
- [14] Yu.A. Boikov, T. Claeson. J. Appl. Phys. (2001), in press.
- [15] W.J. Merz. Phys. Rev. **91**, 513 (1953).
- [16] D. Winkler, Y.M. Zhang, P.A. Nilsson, T. Claeson. Phys. Rev. Lett. **72**, 1260 (1994).