

## Эпитаксиальная комбинация $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}/\text{SrTiO}_3$ : особенности роста, структура и параметры

© Ю.А. Бойков, В.А. Данилов, Т. Клаесон\*, Д. Эртс\*\*

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

\* Чалмерский технический университет,  
S-41296 Гетеборг, Швеция

\*\* Институт химической физики, Университет Латвии,  
1586 Рига, Латвия

(Поступила в Редакцию 6 июля 1998 г.)

Исследованы особенности роста, структура и параметры эпитаксиальных гетероструктур  $(001)\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}/(100)\text{SrTiO}_3/(001)\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ , выращенных методом лазерного испарения на подложке  $(100)\text{LaAlO}_3$  с тонкой ( $\sim 2$  nm) прослойкой  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ . Использование прослойки  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  способствует послойному росту пленки  $(200$  nm) $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ , шероховатость свободной поверхности которой составляет 4–5 nm. Резкое падение сопротивления пленок  $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  начиналось при  $T = 92$  K, а при  $T \approx 87$  K оно обращалось в нуль. Плотность критического тока в пленках  $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  при  $T = 76$  K превышала  $10^6$  A/cm<sup>2</sup>. Диэлектрическая проницаемость слоя  $(400$  nm) $\text{SrTiO}_3$ , введенного между эпитаксиальными пленками  $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ , возрастала примерно в 3 раза при понижении температуры в интервале 300–4.2 K. При подаче на электроды  $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  напряжения смещения  $\pm 2.5$  V относительная диэлектрическая проницаемость промежуточного слоя  $(400$  nm) $\text{SrTiO}_3$  снижалась от 1150 до 400 ( $T = 32$  K,  $f = 100$  kHz). Проводимость промежуточного слоя  $\text{SrTiO}_3$  в направлении, перпендикулярном плоскости подложки, возрастала с температурой и напряженностью электрического поля.

Эпитаксиальные пленки  $\text{R}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  (R — редкоземельный элемент), выращенные на монокристаллических подложках из материалов с низкой диэлектрической проницаемостью  $\epsilon$  и низкими диэлектрическими потерями  $\text{tg } \delta$ , были успешно использованы при формировании пассивных элементов для диапазона СВЧ, в частности узкополосных фильтров с рабочей частотой в десятки GHz [1,2]. В настоящее время активно проводятся исследования и разработки с целью создания на основе эпитаксиальной комбинации сверхпроводник/сегнетоэлектрик перенастраиваемых элементов СВЧ-техники: фазовращателей, фильтров, варакторных структур и т.д. [3,4].

Варьирование параметров СВЧ-элемента, сформированного на основе гетероструктуры сверхпроводник/сегнетоэлектрик, обеспечивается за счет контролируемого изменения диэлектрической проницаемости слоя сегнетоэлектрика под действием электрического поля. Существенная зависимость  $\epsilon$  от напряженности электрического поля  $E$  для объемных монокристаллов сегнетоэлектрических материалов наблюдается, как правило, при температурах, близких к температуре фазового перехода [5]. Основными кандидатами среди сегнетоэлектриков для использования в эпитаксиальной комбинации с пленками  $\text{R}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  являются  $(\text{Ba},\text{Sr})\text{TiO}_3$  и  $\text{KTaO}_3$  [6,7].

Параметры тонкого сегнетоэлектрического слоя, введенного в многослойную эпитаксиальную гетероструктуру на основе пленок  $\text{R}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ , существенно отличаются от данных для соответствующих объемных образцов. Основными причинами деградации  $\epsilon$  и резкого

возрастания  $\text{tg } \delta$  в тонких слоях  $(\text{Ba},\text{Sr})\text{TiO}_3$  и  $\text{KTaO}_3$  по сравнению с соответствующими монокристаллами являются высокая плотность дефектов структуры в их объеме и нарушение стехиометрии в области межфазных границ.

Пленки  $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  (NBCO) привлекательны для использования в элементах СВЧ-техники и сверхпроводниковой микроэлектроники, поскольку 1) наивысшая температура сверхпроводящего перехода  $T_c \approx 97$  K в сверхпроводниках  $\text{R}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  достигается при  $\text{R} \equiv \text{Nd}$  [8]; 2) эпитаксиальные пленки NBCO имеют гладкую свободную поверхность [9]; 3) нейтрализация вакансий Ba в пленке NBCO ионами Nd должна приводить к подавлению диффузионных потоков между слоями, составляющими эпитаксиальную гетероструктуру сверхпроводник/сегнетоэлектрик, так как именно барий способен активно диффундировать из пленки сверхпроводника [10].

В литературе не было найдено данных по диэлектрическим свойствам тонких слоев  $(\text{Ba},\text{Sr})\text{TiO}_3$  в комбинации с электродами из NBCO. Согласно [9], для выращивания четко с-ориентированных пленок NBCO температуру подложки  $T_s$  при конденсации паровой фазы, образующейся в процессе лазерного испарения исходной шихты, необходимо повышать до 840°C.

В данной работе исследована возможность реализации послойного роста пленки  $(001)\text{NBCO}$  при  $T_s$  и давлении кислорода, используемых для выращивания эпитаксиальных пленок  $\text{SrTiO}_3$  (STO). Сформированы и исследованы трехслойные эпитаксиальные гетероструктуры  $(001)\text{NBCO}/(100)\text{STO}/(001)\text{NBCO}$ .

## 1. Эксперимент

Для выращивания пленок NBCO,  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  (YBCO) и STO был использован метод лазерного испарения (KrF,  $\lambda = 248 \text{ nm}$ ,  $\tau = 30 \text{ ns}$ ). Пленки NBCO и трехслойные гетероструктуры NBCO/STO/NBCO выращивались на подложках  $(100)\text{LaAlO}_3$  ( $5 \times 5 \times 0.5 \text{ mm}$ ). Промежуточный слой STO в гетероструктурах имел толщину  $d = 400 \text{ nm}$ , а толщина пленок сверхпроводника равнялась  $200 \text{ nm}$ . В качестве исходных мишеней использовались поликристаллические шайбы NBCO, YBCO и STO стехиометрического состава, приготовленные по стандартной керамической технологии. Испарение мишеней проводилось в атмосфере кислорода  $P_{\text{O}} = 0.3 \text{ mbar}$ .  $T_s$  в процессе выращивания пленок сверхпроводника и тонких слоев титаната стронция равнялась  $780^\circ\text{C}$ . Плотность лазерного излучения на поверхности мишени при выращивании пленок NBCO, YBCO и STO равнялась  $1.5 \text{ J/cm}^2$ .

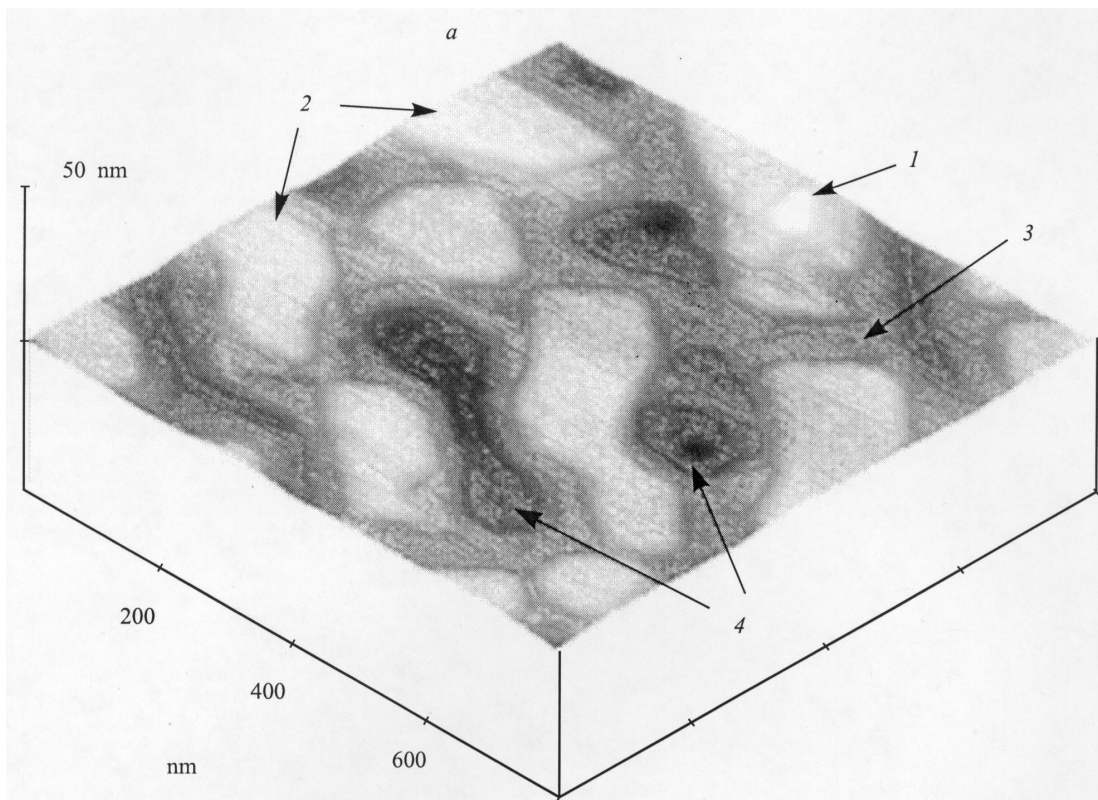
Чтобы сформировать на подложке ступени высотой  $\sim 1.2 \text{ nm}$ , на поверхности  $(100)\text{LaAlO}_3$  непосредственно перед началом формирования пленки NBCO выращивалась прослойка  $(001)\text{YBCO}$  толщиной  $2 \text{ nm}$ .

Контроль за структурой и составом сформированных пленок NBCO и гетероструктур NBCO/STO/NBCO осуществлялся с использованием рентгеновских дифрактометров Philips PW 1710 ( $\theta/2\theta$ -сканирование) и Siemens D 5000 ( $\phi$ -сканирование).

Морфология поверхности сформированных пленок NBCO толщиной  $2-200 \text{ nm}$ , слоя STO, выращенного на поверхности  $(200 \text{ nm})\text{NBCO}/(2 \text{ nm})\text{YBCO}/\text{LaAlO}_3$ , и верхней пленки NBCO в трехслойной гетероструктуре  $(200 \text{ nm})\text{NBCO}/(400 \text{ nm})\text{STO}/(200 \text{ nm})\text{NBCO}$  исследовалась с использованием микроскопа атомных сил NanoScope-IIIa.

$T_c$  для пленок NBCO определялась из температурных зависимостей сопротивления  $R$  и магнитной восприимчивости  $\chi$ . Плотность критического тока  $J_c$  измерялась на микромостиках шириной  $4 \mu\text{m}$  и длиной  $25 \mu\text{m}$ , сформированных в пленках NBCO с использованием фотолитографии и ионного травления (Ag,  $500 \text{ V}$ ,  $0.2 \text{ mA}$ ).

Для измерения  $\epsilon$ , проводимости  $G$  и  $\text{tg } \delta$  для слоя STO, введенного между двумя эпитаксиальными пленками NBCO, были сформированы плоскопараллельные конденсаторные структуры, в качестве общего электрода в которых использовалась нижняя пленка NBCO.



**Рис. 1.** *a)* Морфология поверхности пленки  $(001)\text{NBCO}$  толщиной  $200 \text{ nm}$ , выращенной на  $(2 \text{ nm})\text{YBCO}/(100)\text{LaAlO}_3$ . На изображении четко видны кристаллиты из четырех верхних слоев сверхпроводника толщиной  $\sim 1.2 \text{ nm}$ : *1* — сформировавшийся кристаллит из верхнего слоя сверхпроводника, *2* — изолированные кристаллиты из нижележащего слоя сверхпроводника, *3* — кристаллиты, образующие сплошную сетку в третьем слое сверхпроводника, *4* — изолированные незаросшие "окна" в четвертом слое сверхпроводника. *b)* Морфология поверхности слоя  $(100)\text{STO}$  толщиной  $400 \text{ nm}$ , выращенного на  $(200 \text{ nm})\text{NBCO}/(2 \text{ nm})\text{YBCO}/(100)\text{LaAlO}_3$ . *c)* Морфология поверхности пленки NBCO толщиной  $200 \text{ nm}$ , выращенной на  $(400 \text{ nm})\text{STO}/(200 \text{ nm})\text{NBCO}/(2 \text{ nm})\text{YBCO}/(100)\text{LaAlO}_3$ : *1* — микроотверстия в слое сверхпроводника, *2* — а-ориентированные частицы.

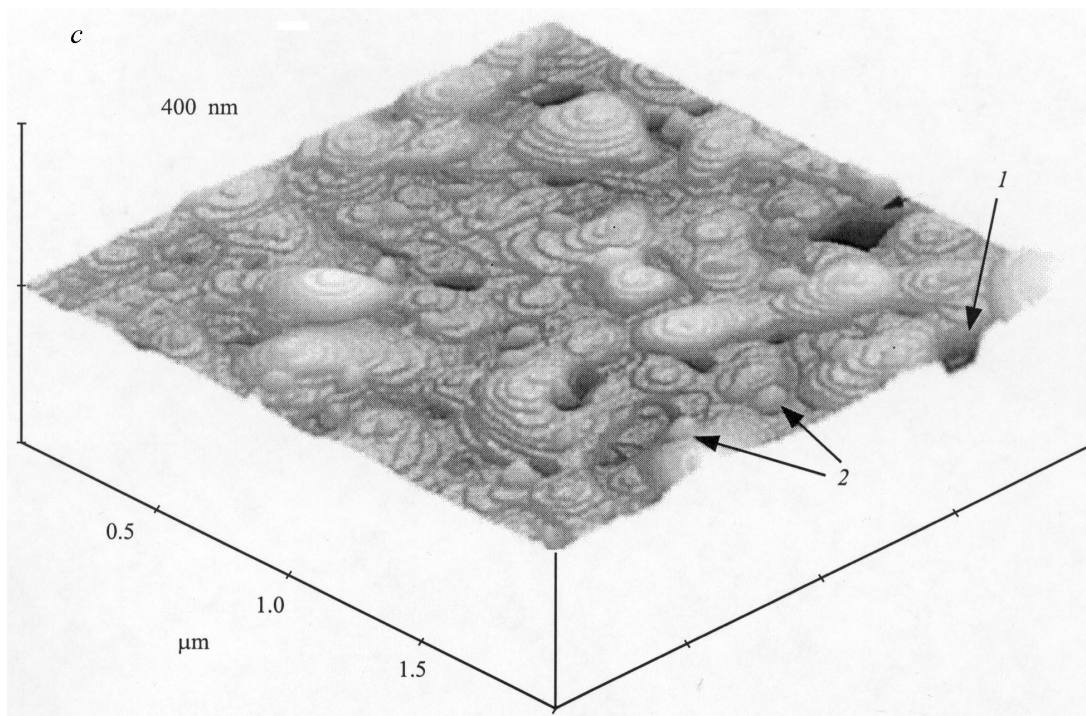
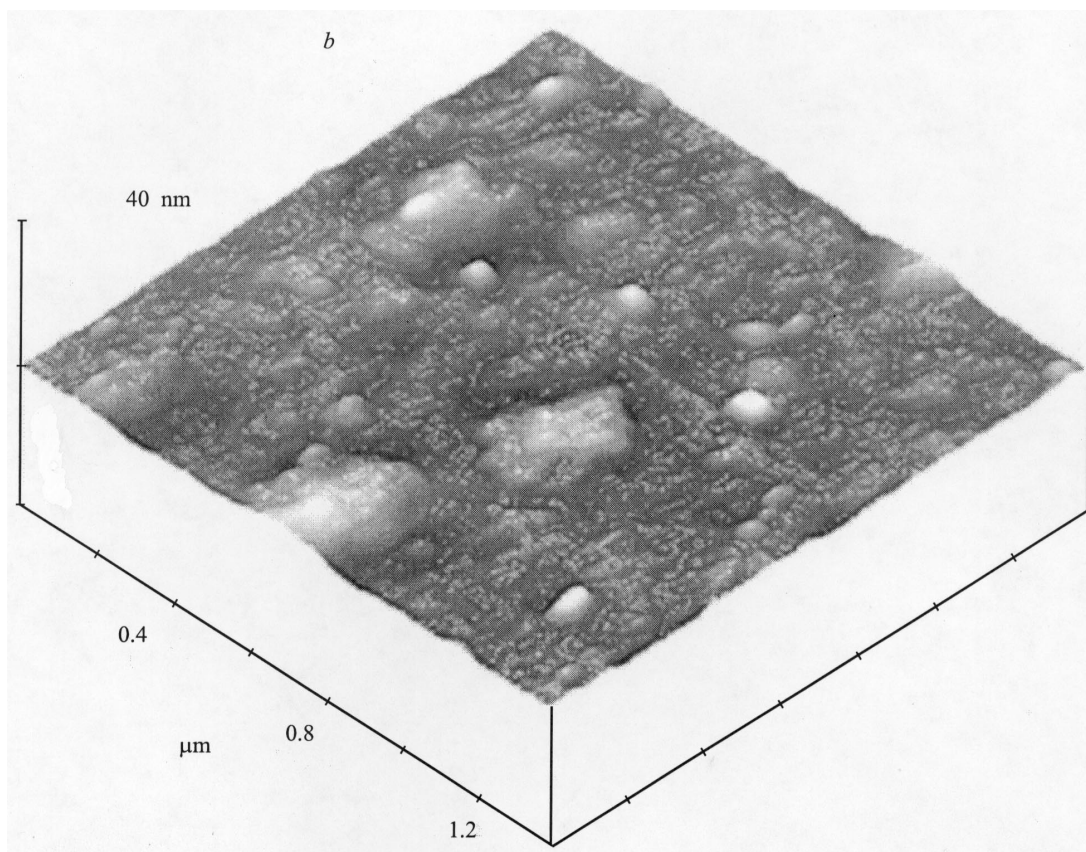
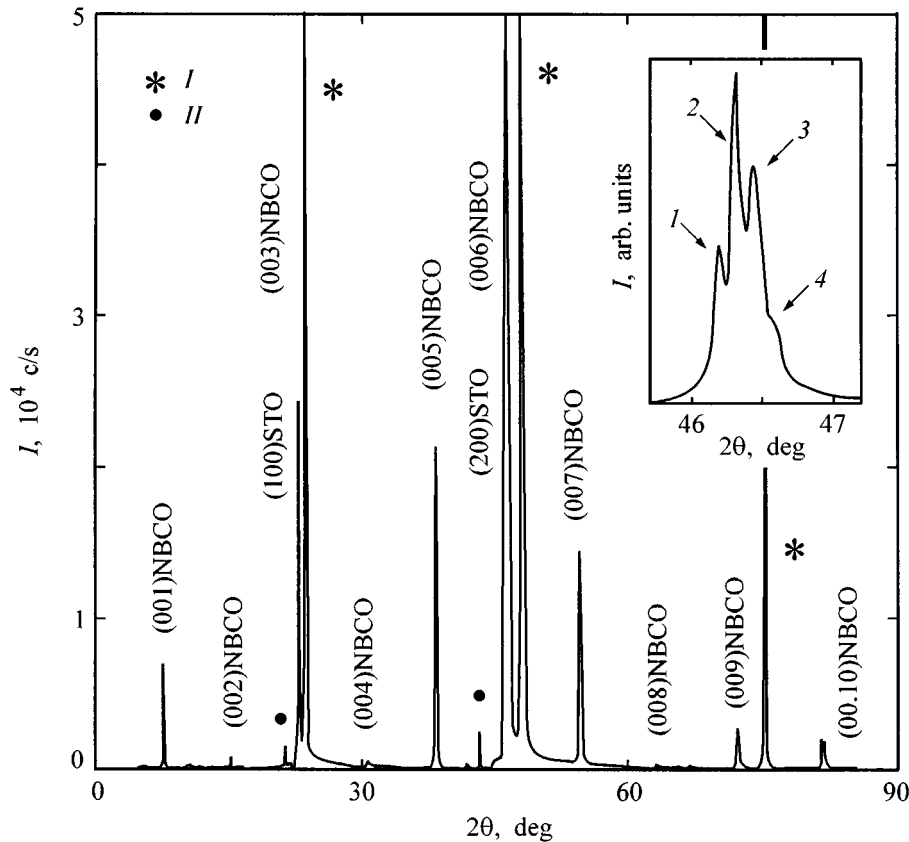


Рис. 1 (продолжение).



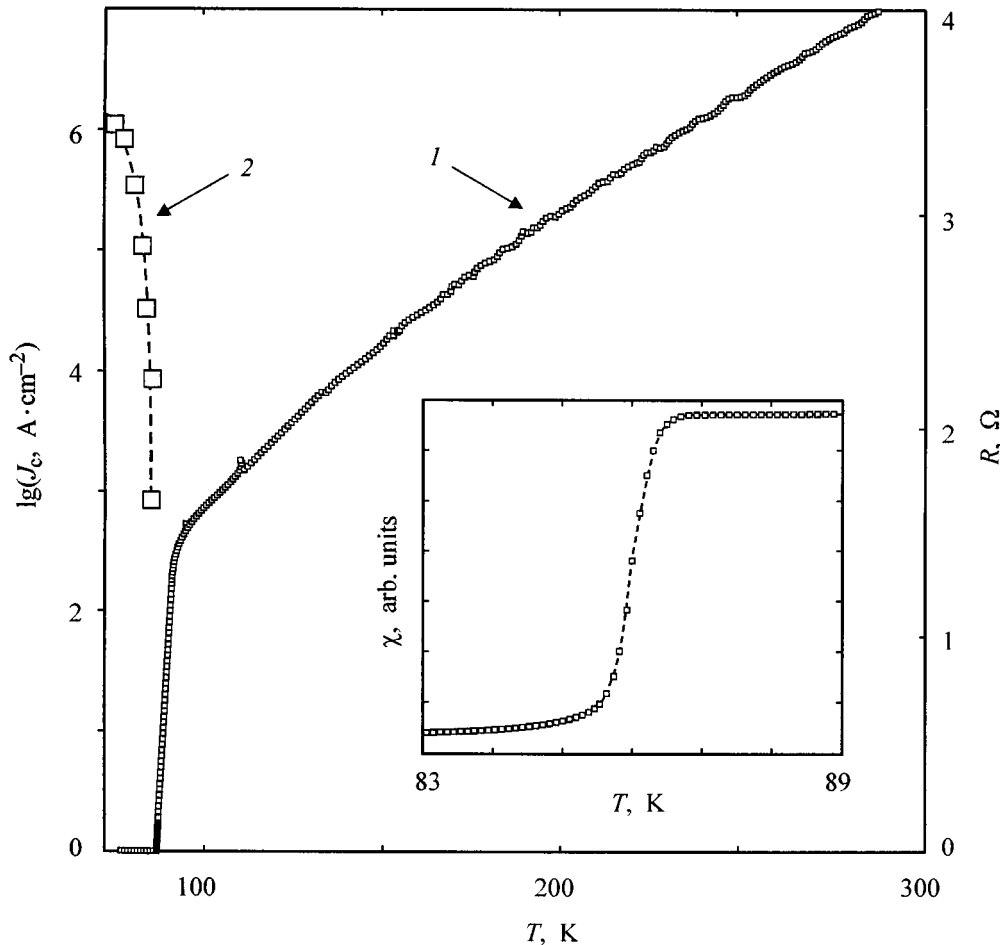
**Рис. 2.** Дифрактограмма ( $\theta/2\theta$ ,  $\text{Cu } K_\alpha$ ) для трехслойной гетероструктуры  $(200 \text{ nm})\text{NBCO}/(400 \text{ nm})\text{STO}/(200 \text{ nm})\text{NBCO}$ , выращенной на подложке  $(100)\text{LaAlO}_3$  с прослойкой  $(2 \text{ nm})\text{YBCO}$ . I — рефлексы  $\text{Cu } K_\alpha$  от подложки, II — рефлексы  $\text{Cu } K_\beta$  от подложки. На вставке — тонкая структура рентгеновского пика при  $2\theta \approx 46.5^\circ$ : I —  $(006)\text{NBCO}$ -рефлекс от нижней пленки сверхпроводника, 2 —  $(200)\text{STO}$ -рефлекс, 3 —  $(006)\text{NBCO}$ -рефлекс от верхней пленки сверхпроводника, 4 —  $(200)\text{NBCO}$ -рефлекс от *a*-ориентированных зерен в верхней пленке сверхпроводника.

Для формирования верхних электродов с площадью  $S = 35 \cdot 10^3 \mu\text{m}^2$  в пленке NBCO, выращенной на поверхности слоя STO, были использованы фотолитография и ионное травление. Измерение емкости  $C$ ,  $G$  и  $\text{tg } \delta$  проводилось для слоев STO в интервале температур 4.2–300 К с использованием HP 4263A LCR meter ( $f = 0.1\text{--}100 \text{ kHz}$ ). Диэлектрические параметры STO измерялись как при подаче на электроды NBCO напряжения смещения  $V_b = \pm 2.5 \text{ V}$ , так и без него. Положительным напряжением смещения считалось в том случае, когда на верхний электрод подавался +. Эффективная диэлектрическая проницаемость слоя сегнетоэлектрика рассчитывалась с использованием соотношения  $\epsilon = Cd/S$ .

## 2. Результаты

Несмотря на то что все купратные сверхпроводники группы  $\text{R}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  изоморфны по структуре, морфология поверхности пленок NBCO толщиной 2–10 нм существенно отличалась от морфологии поверхности тонких пленок YBCO. На поверхности пленок YBCO толщиной 2–10 нм, выращенных на  $(100)\text{LaAlO}_3$ , имелись

ступени высотой  $\sim 1.2 \text{ nm}$ , между которыми располагались плоские участки, присутствия *a*-ориентированных зерен (зерна, для которых ось *c* параллельна плоскости подложки) и микровключений вторичных фаз обнаружено не было. Вследствие присутствия *a*-ориентированных зерен, плотность которых достигала  $10^9 \text{ cm}^2$ , а высота — 5 нм, поверхность пленок NBCO толщиной  $d = 2\text{--}10 \text{ nm}$  была неровной. Исключить появление *a*-ориентированных зерен в пленке NBCO как на начальной стадии ее формирования, так и в процессе последующего роста ( $d \leq 200 \text{ nm}$ ) удалось при использовании в качестве подложки пластин  $(100)\text{LaAlO}_3$  с выращенным на их поверхности слоем YBCO толщиной 2 нм. На полученных изображениях поверхности пленок NBCO ( $d = 200 \text{ nm}$ ), выращенных на  $(2 \text{ nm})\text{YBCO}/\text{LaAlO}_3$ , видны кристаллиты лишь из 3–4 верхних слоев пленки, толщина которых равна параметру *c* в NBCO (рис. 1, *a*). Спирали роста и *a*-ориентированные зерна при исследовании поверхности пленок  $(200 \text{ nm})\text{NBCO}/(2 \text{ nm})\text{YBCO}/\text{LaAlO}_3$  обнаружены не были. Шероховатость свободной поверхности пленок  $(200 \text{ nm})\text{NBCO}$ , выращенных на  $(2 \text{ nm})\text{YBCO}/\text{LaAlO}_3$ , составляла 4–5 нм.



**Рис. 3.** Температурные зависимости сопротивления  $R(T)$  и плотности критического тока  $J_c$  (2) для пленки (200 nm)NBCO, выращенной на подложке (2 nm)YBCO/(100)LaAlO<sub>3</sub>. На вставке — изменение с температурой магнитной восприимчивости  $\chi$  для трехслойной гетероструктуры (200 nm)NBCO/(400 nm)STO/(200 nm)NBCO.

При исследовании поверхности пленок (400 nm)STO, выращенных на (200 nm)NBCO/(2 nm)YBCO/LaAlO<sub>3</sub>, не было обнаружено отверстий, пронизывающих насквозь слой сегнетоэлектрика (рис. 1, b).

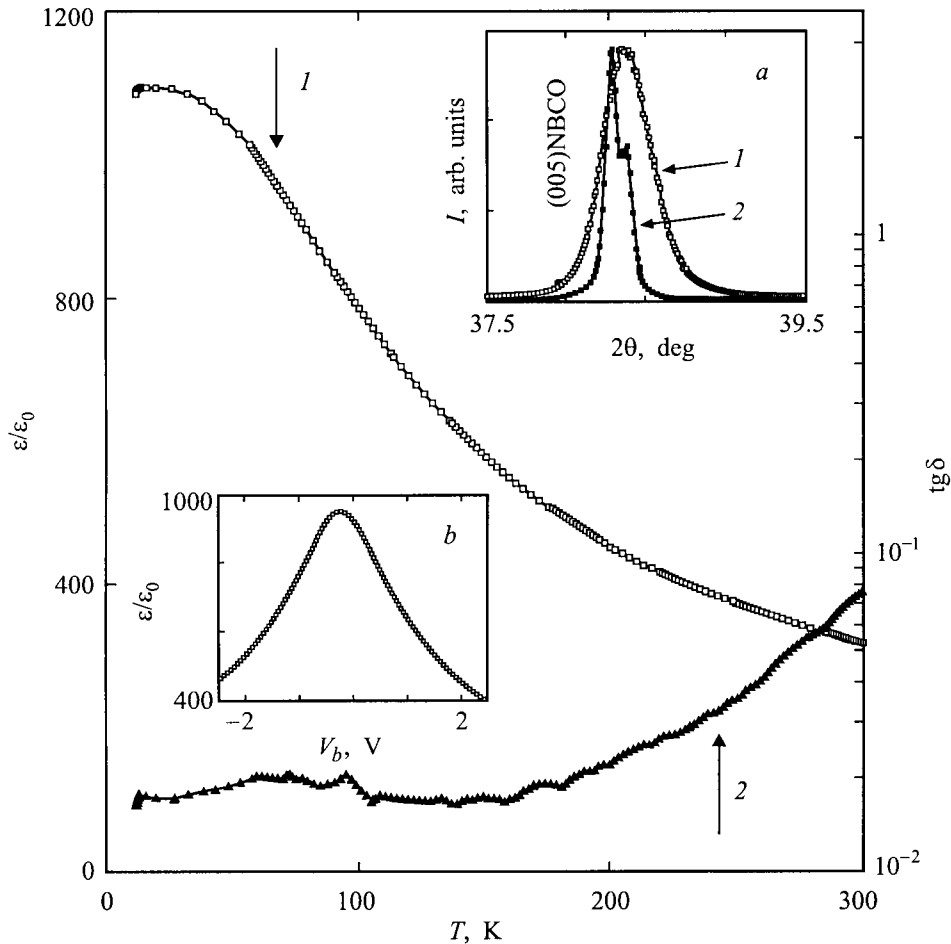
На поверхности верхней пленки NBCO в трехслойной системе NBCO/STO/NBCO имелись пирамидальные образования с характерными ступенями роста высотой 1.2 nm. На вершине указанных образований имелся плоский участок, что существенно отличало их от спиралей роста, в ядре которых располагается винтовая дислокация. С помощью микроскопа атомных сил на поверхности верхнего слоя NBCO были обнаружены отдельные слабо развитые а-ориентированные зерна (см. рис. 1, b и вставку к рис. 2). В пленке сверхпроводника имелись также отверстия, плотность которых достигала  $10^8 \text{ cm}^{-2}$  (рис. 1, c).

Рентгеновское исследование трехслойных гетероструктур NBCO/STO/NBCO, выращенных на (2 nm)YBCO/LaAlO<sub>3</sub>, показало, что пленки сверхпроводника и промежуточный слой сегнетоэлектрика были выращены эпитаксиально, причем

(001)[010]NBCO || (100)[010]STO (рис. 2). Введение между подложкой LaAlO<sub>3</sub> и пленкой NBCO тонкой прослойки (2 nm)YBCO приводило к резкому сужению рентгеновских пиков и увеличению параметра  $c$  (см. вставку  $a$  на рис. 4). Параметр  $c$  для нижней и верхней пленок NBCO в гетероструктуре NBCO/STO/NBCO имел значения 11.79 и 11.75 Å соответственно, а параметр  $a = 3.905 \text{ Å}$  кубической элементарной ячейки промежуточного слоя STO практически совпадал с данными для объемных монокристаллов титаната стронция при  $T = 300 \text{ K}$  [11]. Данные по азимутальной ориентации слоев в гетероструктуре на основе пленок NBCO и слоя (Ba,Sr)TiO<sub>3</sub> приведены в [12].

Температурные зависимости сопротивления  $R$  и плотности критического тока  $J_c$  для пленки (001)NBCO толщиной  $d = 200 \text{ nm}$  приведены на рис. 3. Изменение эффективной магнитной восприимчивости  $\chi$  с температурой для трехслойной гетероструктуры NBCO/STO/NBCO показано на вставке к рис. 3.

Отношение  $\varepsilon/\varepsilon_0$  ( $\varepsilon_0$  — диэлектрическая проницаемость вакуума) для слоя STO, помещенного между



**Рис. 4.** Температурные зависимости  $\epsilon/\epsilon_0$  (1) и  $\text{tg } \delta$  (2) для слоя STO толщиной 400 nm в трехслойной гетероструктуре (001)NBCO || (100)STO || (001)NBCO ( $f = 100$  kHz). На вставке *a* приведены рентгеновские пики (005) ( $\theta/2\theta$ ,  $\text{Cu } K_\alpha$ ) для пленок (200 nm)NBCO, выращенных на (100)LaAlO<sub>3</sub> (1) и на (2 nm)YBCO/(100)LaAlO<sub>3</sub> (2). На вставке *b* показан максимум на зависимости  $\epsilon/\epsilon_0(V_b)$  для пленки (400 nm)STO в гетероструктуре (001)NBCO || (100)STO || (001)NBCO, сдвинутый относительно точки  $V_b = 0$  в сторону отрицательных значений напряжения смещения.

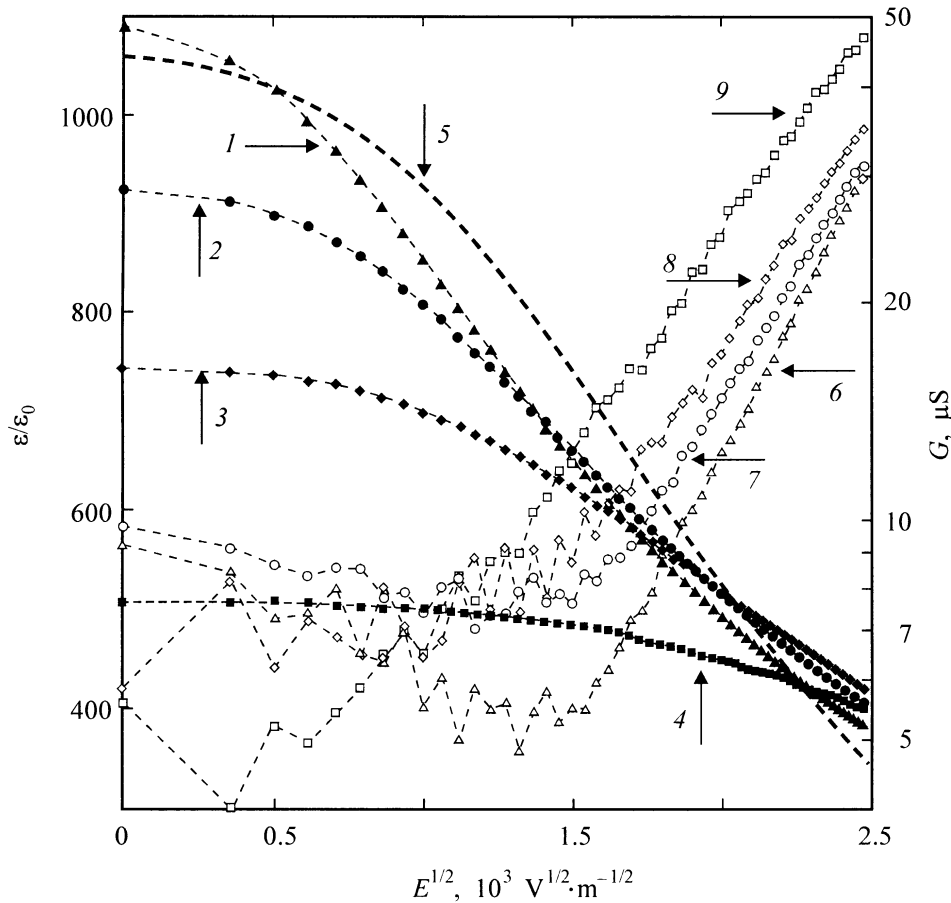
электродами из NBCO, возросло от 320 до 1150 при понижении температуры в интервале 300–4.2 K (рис. 4).  $\text{tg } \delta$  для слоя сегнетоэлектрика при  $4.2 < T < 150$  K слабо зависел от температуры и имел значения  $\sim 0.02$  ( $f = 100$  kHz), а при  $T > 200$  K резко возрастал с увеличением  $T$ . Значение  $\epsilon$  для слоя STO снижалось примерно втрое при подаче на сверхпроводниковые электроды напряжения смещения  $V_b = \pm 2.5$  V ( $T = 32$  K) (рис. 5). С увеличением напряженности внешнего электрического поля  $E$  проводимость слоя сегнетоэлектрика в направлении, перпендикулярном плоскости подложки, возрастала пропорционально  $E^{1/2}$ .

### 3. Обсуждение полученных результатов

Результаты исследования морфологии поверхности тонких пленок YBCO и NBCO и имеющиеся в литературе данные [13] по формированию кристаллической фазы

на начальной стадии роста пленок указанных материалов, полученные с использованием дифракции быстрых электронов, позволяют говорить о том, что замена в купратном сверхпроводнике  $\text{RBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  ионов  $\text{Y}^{+3}$  на ионы  $\text{Nd}^{+3}$ , имеющие примерно на 11% больший ионный радиус [14], существенным образом сказывается на процессе зародышеобразования.

Низкие значения свободной энергии поверхности для плоскостей (001) являются движущей силой формирования стабильных зародышей YBCO, преимущественно ориентированных осью  $c$  перпендикулярно плоскости подложки [15], даже при использовании в качестве подложки материалов с большой разницей в параметрах кристаллических решеток. Именно анизотропия в свободной энергии поверхности и в скорости роста позволяет реализовать послойный рост пленок YBCO на подложках с малой разницей в параметрах кристаллических решеток при условии высокой подвижности адсорбированных частиц. Изменение свободной энергии Гиббса  $G_N$  для



**Рис. 5.** Зависимости  $\varepsilon/\varepsilon_0$  (1–5) и  $G$  (6–9) от напряженности внешнего электрического поля для слоя STO толщиной 400 нм в трехслойной гетероструктуре (001)NBCO || (100)STO || (001)NBCO ( $f = 100$  kHz) при различных температурах.  $T$  (K): 1, 6 — 32, 2, 7 — 75, 3, 8 — 112, 4, 9 — 178; 5 — зависимость  $\varepsilon/\varepsilon_0$  от  $E$  при  $T = 32$  K, рассчитанная с использованием соотношения (2) для  $\xi = 1.2 \cdot 10^{10} \text{ F}^{-3} \cdot \text{m}^5 \cdot \text{V}^{-2}$ .

системы паровая фаза–подложка при формировании на поверхности подложки зародыша кристаллической фазы с объемом  $V$  и площадью свободной поверхности  $S_1$  может быть представлено в виде [15]

$$\Delta G_N = \Delta G_V V + \gamma_1 S_1 + (\gamma_3 - \gamma_2 + E_d) S_2, \quad (1)$$

где  $\Delta G_V = \Omega_i^{-1} [kT_s \ln(1 + \zeta) + \mu_i]$ ,  $\gamma_1$  — удельная свободная энергия свободной поверхности зародыша,  $\gamma_2$  и  $\gamma_3$  — удельные свободные энергии поверхности подложки и границы раздела подложка–зародыш соответственно,  $E_d$  — энергия упругой деформации в системе подложка–зародыш,  $S_2$  — площадь межфазной границы зародыш–подложка,  $\Omega_i$  — молекулярный объем материала формируемой пленки,  $\mu_i$  характеризует изменение внутренней энергии системы при формировании молекулы соединения из адсорбированных на поверхности подложки частиц,  $\zeta$  — эффективное пересыщение паровой фазы над поверхностью подложки.

Оснований предполагать наличие существенных различий в  $\zeta$  при выращивании пленок NBCO и YBCO нет, поскольку толщина пленок обоих указанных сверх-

проводников возрастала примерно на  $4 \text{ \AA}$  в результате воздействия десяти лазерных импульсов на соответствующие мишени, размер и форма факела, формировавшегося при испарении мишеней, практически совпадали. Появление значительного числа а-ориентированных частиц на начальной стадии роста пленки NBCO естественно связать с уменьшением разницы в удельной свободной энергии свободной поверхности для плоскостей (001) и (100)NBCO по сравнению с разницей в  $\gamma_1$  для (001) и (100)YBCO либо с изменением суммы  $\gamma_3 + E$  (см. (1)). Согласно [9], Nd может замещать Ba в элементарной ячейке NBCO, что сопровождается изменением концентрации кислорода в Cu–O-цепочках. Замещение иона  $\text{Ba}^{+2}$  ионом  $\text{Nd}^{+3}$  может приводить к изменению удельной свободной энергии поверхности для различных кристаллографических плоскостей, и в первую очередь (001)NBCO. Если рост пленки  $\text{RBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  начинается с плоскостей Ba–O [16], то замещение иттрия неодимом должно приводить к изменению как  $\gamma_3$ , так и  $E$ . Наблюдавшиеся отличия в морфологии поверхности тонких пленок NBCO и YBCO, по-видимому, обусловлены раз-

личиями в энергии активации формирования стабильных зародышей указанных материалов, для которых ось  $\epsilon$  перпендикулярна плоскости подложки.

При наличии на поверхности подложки ступеней высотой 1.2 нм стабильными в первую очередь становятся зародыши NBCO, для которых ось  $\epsilon$  перпендикулярна плоскости подложки. Отсутствие в объеме и в приповерхностном слое пленок NBCO, выращенных на (2 нм)YBCO/(100)LaAlO<sub>3</sub>,  $a$ -ориентированных зерен указывает на высокую подвижность адсорбированных частиц на поверхности растущей пленки и на низкую концентрацию микровключений вторичных фаз.

Начало падения сопротивления пленок NBCO наблюдалось при 92 К, при  $T = 87$  К сопротивление обращалось в нуль. Приведенные значения  $T_c$  хорошо соответствуют данным, имеющимся в литературе для пленок NBCO, выращенных с использованием стехиометрических исходных мишеней [17]. Для выращивания пленок NBCO с  $T_c$  до 94 К необходимо обогащать исходную мишень барием [9]. При  $T = 76$  К плотность критического тока для пленок NBCO превышала  $10^6$  А/см<sup>2</sup>. Данные по температурной зависимости магнитной восприимчивости, полученные для пленок NBCO, хорошо коррелируют со значениями  $T_c$ , определенными из кривых  $R(T)$ .

При  $T > 150$  К температурная зависимость  $\epsilon$  для слоя STO, помещенного между электродами NBCO, хорошо соответствовала данным, полученным для слоя титаната стронция, введенного между двумя эпитаксиальными пленками YBCO [18]. При  $T < 100$  К  $\epsilon$  для слоя STO в гетероструктуре NBCO/STO/NBCO возрастала резче, чем в случае гетероструктуры YBCO/STO/YBCO. При использовании электродов NBCO максимум на зависимости  $\epsilon(T)$  для слоя STO становился слабо выраженным и сдвигался на 20–30 К в сторону низких температур по сравнению с его положением на соответствующей кривой, полученной в случае плоскопараллельной емкостной структуры YBCO/STO/YBCO. При  $T = 20$  К абсолютные значения  $\epsilon$  для слоя STO, введенного между эпитаксиальными пленками NBCO, примерно на 15% превышали данные, полученные при использовании в качестве электродов пленок YBCO. Указанные отличия в температурных зависимостях  $\epsilon$  для слоя STO в гетероструктурах NBCO/STO/NBCO и YBCO/STO/YBCO отражают различия в характере межфазных границ NBCO/STO и YBCO/STO.

Диэлектрическая проницаемость слоя STO при подаче на электроды NBCO напряжения смещения  $V_b = \pm 2.5$  В понижалась примерно в 3 раза при  $T = 32$  К (рис. 5), что существенно больше, чем в случае электродов YBCO [18]. При повышении температуры зависимость  $\epsilon$  от внешнего электрического поля ослабевала. Максимум на зависимости  $\epsilon(V_b)$  был сдвинут в сторону отрицательных значений  $V_b$ , что обусловлено различиями в структуре и электрофизических свойствах межфазных границ NBCO/STO и STO/NBCO. Согласно полученным рентгеновским данным, параметр  $c$  для нижней пленки NBCO

в гетероструктуре NBCO/STO/NBCO равен 11.79 Å, а для верхней пленки — 11.75 Å. Поверхность нижней слоя NBCO, как следует из изображений, полученных с использованием микроскопа атомных сил (рис. 1, а), гладкая с характерными ступенями  $\sim 1.2$  нм. В верхней пленке сверхпроводника у межфазной границы NBCO/STO, по-видимому, имелись  $a$ -ориентированные частицы. На это указывают данные по исследованию морфологии поверхности тонких ( $d = 2–10$  нм) пленок NBCO, выращенных на диэлектрических подложках, и рентгеновские данные, приведенные на вставке к рис. 2.

Измеренные при различных температурах зависимости  $\epsilon(E)$  для слоя STO в гетероструктуре NBCO/STO/NBCO хорошо описывались соотношением, успешно применяемым при анализе полевой зависимости диэлектрической проницаемости объемных монокристаллов титаната стронция при малых  $E$  [19,20],

$$\epsilon^{-1} = \eta(T) [1 + \eta(T)^{-3} \xi E^2], \quad (2)$$

где  $\eta(T)$  — не зависящий от электрического поля параметр,  $\xi$  — не зависящая от электрического поля и температуры "константа ангармоничности". На рис. 5 показана рассчитанная с использованием соотношения (2) зависимость  $\epsilon(E)$  для слоя STO с использованием значения  $\xi = 1.2 \cdot 10^{10} \text{ F}^{-3} \cdot \text{m}^5 \cdot \text{V}^{-2}$ . Указанное значение  $\xi$  было определено из наклона зависимости  $\epsilon^{-2} d\epsilon/dE(E)$  при  $E \rightarrow 0$ . При  $E$ , близких к нулю,  $\epsilon^{-2} d\epsilon/dE$  понижалось линейно с увеличением напряженности электрического поля. В [19] из полевой зависимости частоты мягкой моды в монокристаллах STO для  $\xi$  было получено значение, близкое к  $1 \cdot 10^{10} \text{ F}^{-3} \cdot \text{m}^5 \cdot \text{V}^{-2}$ . В целом наблюдается хорошее совпадение экспериментально полученных и рассчитанных значений  $\epsilon$  для слоя STO в указанном интервале напряженности электрического поля.

Как следует из данных, представленных на рис. 4, при  $T > 200$  К наблюдалось резкое увеличение  $\text{tg } \delta$  с температурой для пленок STO. На рис. 5 показано изменение проводимости  $G = C\omega \text{tg } \delta$  с увеличением напряженности электрического поля для пленки STO в направлении, перпендикулярном плоскости подложки ( $\omega = 2\pi f$ ). Экспериментально полученные зависимости проводимости слоя STO от температуры и напряженности электрического поля могут быть объяснены в рамках эмиссии Пула–Френкеля [21]. Экспериментально наблюдавшаяся зависимость проводимости слоя STO от напряженности электрического поля (рис. 5) хорошо следует полученному для эмиссии Пула–Френкеля соотношению  $\ln G \sim E^{1/2}$ . Возрастание проводимости слоя сегнетоэлектрика с увеличением напряженности электрического поля обусловлено понижением в электрическом поле барьера для заброса носителей с примесных уровней в соответствующую зону. Детальный анализ температурных и полевых зависимостей проводимости пленок (Ba,Sr)TiO<sub>3</sub>, введенных в гетероструктуру сверхпроводник/сегнетоэлектрик, приведен в [22].



Таким образом, рентгеновские данные и проведенное исследование морфологии поверхности пленок NBCO, выращенных на  $(2\text{ nm})YBCO/(100)LaAlO_3$ , позволяют утверждать, что важной предпосылкой для послойного роста пленки сверхпроводника является наличие на поверхности подложки ступеней высотой  $\sim 1.2\text{ nm}$ . Свободный от микроотверстий слой  $(400\text{ nm})STO$  может быть выращен эпитаксиально на поверхности пленки  $(200\text{ nm})NBCO$ . Использование эпитаксиальных пленок NBCO вместо пленок YBCO в качестве электродов в плоскопараллельной конденсаторной структуре сверхпроводник/сегнетоэлектрик/сверхпроводник позволяет существенно усилить зависимость эффективной диэлектрической проницаемости слоя сегнетоэлектрика от напряженности внешнего электрического поля.

Финансовая поддержка для выполнения данной работы была получена из проекта 98041 "Комбинация", проводимого в рамках направления "Сверхпроводимость", проекта РФФИ № 98-02-18222 и проекта TFR N 240-97-382.

## Список литературы

- [1] I.S. Gergis, J.T. Cheung, T.H. Trinh, E.A. Sovero, P.H. Kobrin. *Appl. Phys. Lett.* **60**, 2026 (1992).
- [2] J.P. Hong, J.S. Lee. *Appl. Phys. Lett.* **68**, 3034 (1996).
- [3] F.W. Nan Keuls, R.R. Romanofsky, D.Y. Bohman, M.D. Winters, F.A. Miranda, C.H. Mueller, R.E. Treece, T.V. Rivkin, D. Galt. *Appl. Phys. Lett.* **71**, 3075 (1997).
- [4] C.M. Jackson, J.H. Kobayashi, A. Lee, C. Pettiette-Hall, J.F. Burch, R. Hu. *Microwave Opt. Technol. Lett.* **5**, 722 (1992).
- [5] O.G. Vendik, L.T. Ter-Martirosyan, A.I. Deduk, S.F. Karmenchenko, R.A. Chakalov. *Ferroelectrics* **144**, 33 (1993).
- [6] Yu.A. Boikov, Z.G. Ivanov, A.N. Kiselev, E. Olsson, T. Claeson. *J. Appl. Phys.* **78**, 4591 (1995).
- [7] Yu.A. Boikov, Z.G. Ivanov, A.L. Vasiliev, I. Pronin, E. Olsson, T. Claeson. *Appl. Phys. Lett.* **67**, 2708 (1995).
- [8] J.G. Lin, C.Y. Huang, Y.Y. Xue, C.W. Chu, X.W. Cao, J.C. Ho. *Phys. Rev.* **B51**, 12900 (1995).
- [9] M. Badaye, J.G. Wen, K. Fukushima, N. Koshizuka, T. Morishita, T. Nishimura, Y. Kido. *Supercond. Sci. Technol.* **10**, 825 (1997).
- [10] L.A. Tietz, C.B. Carter, D.K. Lathrop, S.E. Russek, R.A. Buhrman, J.R. Michael. *J. Mater. Res.* **4**, 1072 (1989).
- [11] F.W. Lytle. *J. Appl. Phys.* **35**, 2212 (1964).
- [12] Yu.A. Boikov, V.A. Danilov, E. Carlsson, D. Erts, T. Claeson. *Physica B*, in press.
- [13] T. Shimizu, H. Nonaka, K. Arai. *Appl. Phys. Lett.* **59**, 600 (1991).
- [14] *Handbook of Chemistry and Physics* / Ed. R.C. Weast. 59th edition. CRC Press Inc. (1978–1979). P. E-81. Florida (1979).
- [15] Ю.А. Бойков, З.Г. Иванов, Е. Олсон, В.А. Данилов, Т. Клаесон, М. Щеглов, Д. Эртс. *ФТТ* **37**, 3, 880 (1995).
- [16] A.L. Vasiliev, G. Van Tendeloo, A. Amelincks, Yu.A. Boikov, E. Olsson, Z. Ivanov. *Physica* **C244**, 373 (1991).
- [17] M. Badaye, F. Wang, Y. Kanke, K. Fukushima, T. Morishita. *Appl. Phys. Lett.* **66**, 2131 (1995).
- [18] Yu.A. Boikov, T. Claeson. *J. Appl. Phys.* **81**, 3232 (1997).
- [19] J.M. Worlock, P.A. Fleury. *Phys. Rev. Lett.* **19**, 1176 (1967).
- [20] G. Rupprecht, R.O. Bell, B.D. Silverman. *Phys. Rev.* **123**, 97 (1961).
- [21] J.R. Yeargan, H.L. Taylor. *J. Appl. Phys.* **39**, 5600 (1968).
- [22] Yu.A. Boikov, T. Claeson. *Supercond. Sci. Technol.*, in press.