

02,13

О возможности изготовления мостиков YBCO с совершенной поверхностью, критической температурой более 88 К и плотностью критического тока до $5 \cdot 10^6$ А/см²

© Д.В. Мастеров, С.А. Павлов, А.Е. Парафин[†], Е.В. Скороходов

Институт физики микроструктур РАН, ФИЦ ИПФ РАН,
Нижний Новгород, Россия

[†] E-mail: parafin@ipmras.ru

Поступила в Редакцию 26 марта 2020 г.

В окончательной редакции 26 марта 2020 г.

Принята к публикации 2 апреля 2020 г.

При изготовлении структур YBCO традиционными методами, как правило, достигается некоторый компромисс, а именно, используются пленки с приемлемой морфологией, но с пониженными электрофизическими параметрами. В настоящей работе показано, что методом задающей маски могут быть получены мостики YBCO шириной до 4 мкм с совершенной морфологией поверхности, т. е. свободные от дефектов, с плотностью критического тока $J_c \geq 3 \cdot 10^6$ А/см² при температуре 77 К и критической температурой $T_c \geq 88$ К. Причем совершенная морфология поверхности мостиков, значения плотности критического тока и критической температуры сохраняются и после повторного (дополнительного) осаждения слоя YBCO на структуру с задающей маской. На основе результатов, полученных в серии из пятнадцати образцов, сделан вывод о том, что в отличие от электрофизических характеристик, для устойчивой реализации совершенной морфологии поверхности пленок YBCO недостаточно фиксации стандартных (основных) параметров ростового процесса.

Ключевые слова: нано- и микроструктуры, дефекты, рост в локальных областях, YBCO.

DOI: 10.21883/FTT.2020.09.49760.10H

1. Введение

Технология изготовления структур на основе пленок высокотемпературного сверхпроводника $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ (YBCO) к настоящему времени достигла высокого уровня. Однако задача получения пленок YBCO, либо отдельных элементов структуры, с большой плотностью критического тока и максимально совершенной микроструктурой и одновременно обладающих совершенной поверхностью до сих пор актуальна и не решена в полной мере [1–3]. Решение этой задачи особенно важно при создании структур микронного и субмикронного размеров.

Интерес к этой проблеме связан, во-первых, со стремлением добиться максимально высоких параметров устройств на основе пленок YBCO, таких как джозефсоновские контакты и приборы на их основе, к которым относятся СКВИДы, стандарты Вольта, генераторы гигагерцового диапазона; болометры; другие приборы, в которых характерная ширина линии рисунка сверхпроводящей схемы составляет единицы микрон или меньше; многослойные структуры. Во-вторых, существует потребность в модельных структурах для экспериментального изучения высокотемпературной сверхпроводимости, в частности, фундаментальных свойств материала YBCO.

Независимо от метода получения пленки YBCO с лучшими электрофизическими характеристиками получаются при отклонении в процессе роста интегрального

катионного состава от стехиометрии 1:2:3 в сторону его обогащения медью и иттрием. При этом пленки содержат большое количество случайно расположенных частиц вторичных фаз различного состава и размера [4]. В частности, „лишняя“, медь образует преципитаты CuO_x , которые могут достигать микронных размеров. Включения Y_2O_3 , связанные с избытком атомов иттрия, имеют нанометровые размеры и служат эффективными центрами пиннинга, т. е. повышают плотность критического тока. Очевидно, что крупные дефекты ограничивают возможности формирования структур с малыми (микронными и субмикронными) размерами.

В настоящее время со стороны ведущих научных групп проявляется большой интерес к получению пленок YBCO с большой плотностью критического тока и уменьшению зависимости критического тока от величины и направления внешнего магнитного поля. Научной задачей, важной с практической точки зрения, здесь является детальное исследование влияния на эти характеристики дефектов структуры (центров пиннинга), как естественных, образующихся в процессе роста пленки, так и искусственно вносимых дефектов различного состава и формы [5,6].

В процессе разработки метода задающей маски (ЗМ) мы обнаружили, что вблизи границы сверхпроводящей и изолирующей областей структуры может формироваться свободная от преципитатов область гладкой пленки YBCO (ОГП) [7]. Поэтому изготовление элементов планарных структур методом ЗМ может, например, поз-

волить селективно удалить из сверхпроводящего моста крупные преципитаты и поры, оставив мелкие дефекты, образующие центры пининга, и таким образом способствовать решению важного вопроса о влиянии дефектов различных типов на электрофизические параметры пленок YBCO.

2. Технология и эксперимент

В эксперименте использовались монокристаллические подложки фианита (001) с эпитаксиальным подслоем оксида церия (eCeO_2/YSZ). Выбор подложки определялся тем, что для изготовления джозефсоновских контактов используются бикристаллические подложки фианита с таким же подслоем eCeO_2 .

Слой eCeO_2 наносился на фианитовую подложку методом лазерного распыления керамической мишени CeO_2 при следующих условиях: использовался эксимерный лазер LPX-200 (смесь KrF, длина волны $\lambda = 248 \text{ nm}$); реактивный газ — кислород; температура подложки 950°C . По данным рентгендифракционных измерений (Bruker D8 Discover) характерная полуширина кривой качания полученного слоя eCeO_2 $\Delta\omega(002)$ составила $0.5\text{--}0.8^\circ$ при толщине около 50 nm . На рис. 1. приведено изображение поверхности слоя eCeO_2 на подложке из фианита, полученное методом электронной микроскопии. Видно, что слой представляет собой мозаичный кристалл с характерными размерами гранул $10 \times 40 \text{ nm}$.

Последовательность формирования структур методом ЗМ следующая [8,9]: на подложке формируется маска из фоторезиста, после чего при комнатной температуре на подложку осаждается слой аморфного оксида церия (coldCeO_2); затем фоторезист вместе с напыленной на него пленкой coldCeO_2 удаляется с подложки в ацетоне в ультразвуковой ванне. Таким образом, на подложке образуется ЗМ из аморфной пленки оксида церия, в которой вскрыты окна для последующего формирования в них сверхпроводящих элементов.

В завершение на подложку осаждается YBCO при температуре эпитаксиального роста. В результате в окнах маски на исходной поверхности подложки формируются сверхпроводящие элементы заданного рисунка, а между ними — разделительные изолирующие области.

Для создания ЗМ использовался coldCeO_2 , который осаждался методом лазерного распыления в той же установке и с той же мишени, что и eCeO_2 , но без нагрева подложки. Толщина ЗМ составляла $1.2 \mu\text{m}$. Все пленки YBCO были получены методом магнетронного распыления одной стехиометрической мишени состава 1:2:3. Перед каждым осаждением YBCO проводилось предварительное распыление мишени в течение 30 min . Характерные рентгеноструктурные параметры пленок YBCO, получаемых на подложках eCeO_2/YSZ , составляют: полуширина кривой качания $\Delta\omega(005) = 0.5\text{--}0.6^\circ$;

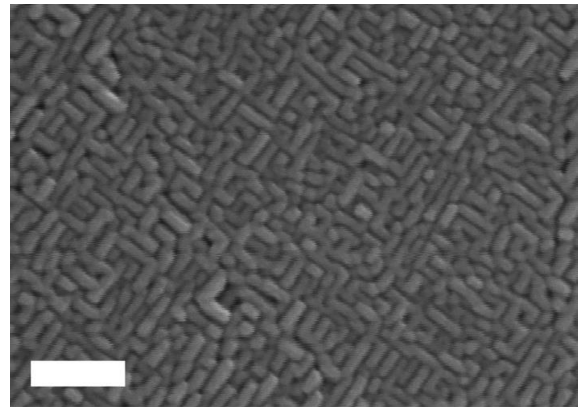


Рис. 1. Изображение поверхности эпитаксиального подслоя eCeO_2 на подложке из фианита. Увеличение — $600\,000\times$, метка — 100 nm .

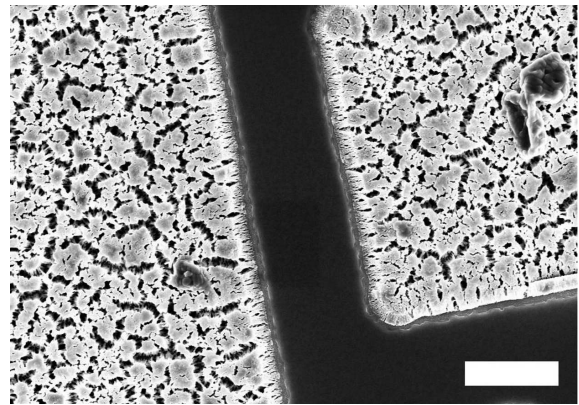


Рис. 2. Изображение сверхпроводящего YBCO мостика шириной $4 \mu\text{m}$, свободного от дефектов, на образце А. Увеличение — $15\,500\times$, метка — $4 \mu\text{m}$.

величина оси $c = 1.1667\text{--}1.1668 \text{ nm}$. Подробное исследование структуры и фазового состава пленок YBCO на подложках с подслоем eCeO_2 было проведено методом рентгеновской дифрактометрии в работе [8].

Электрофизические характеристики образцов были измерены четырехзондовым методом, для чего на них методом термического распыления через маску формировались серебряные контакты. Критическая температура T_c определялась по нулю сопротивления мостика, критический ток измерялся при температуре 77 K . Изображения поверхности структур были получены на электронном микроскопе SUPRA 50VP.

В настоящей работе были рассмотрены несколько типичных образцов, полученных в разных условиях роста. Образец А был получен следующим образом. На подложке eCeO_2/YSZ была сформирована ЗМ, после чего в течение 60 min при давлении 70 Pa смеси $\text{Ar}(50\%)/\text{O}_2$ и температуре подложки 840°C осаждалась пленка YBCO. Толщина пленки составила 110 nm , плотность критического тока $J_c = 4.0 \cdot 10^6 \text{ A/cm}^2$ при температуре 77 K , критическая температура $T_c = 88.5 \text{ K}$. На рис. 2.

показано изображение мостика шириной $4\ \mu\text{m}$ и длиной $15\ \mu\text{m}$ на образце *A*. Как видно из рисунка, мостик имеет гладкую морфологию поверхности и свободен от крупных преципитатов.

На образце *B* также была сформирована ЗМ, и затем в течение 60 min при давлении 70 Pa смеси $\text{Ar}(50\%)/\text{O}_2$ и температуре подложки 810°C , т.е. на 30°C ниже, чем в образце *A*, осаждалась пленка YBCO. Толщина пленки составила 100 nm, плотность критического тока при температуре 77 K $J_c = 5.0 \cdot 10^6\ \text{A}/\text{cm}^2$, критическая температура $T_c = 88.2\ \text{K}$. На рис. 3 показано изображение мостика (№ 3-2) шириной 4 и длиной $15\ \mu\text{m}$ на образце *B*, который, так же как и в случае образца *A*, полностью свободен от дефектов. Таким образом, в обоих случаях (*A* и *B*) мостики имеют совершенную морфологию поверхности, а также высокие значения плотности критического тока и критической температуры.

На рис. 4. приведено изображение мостика № 3-2 при увеличении 5 000, которое захватывает часть контактных площадок. На изображении отчетливо видно, что

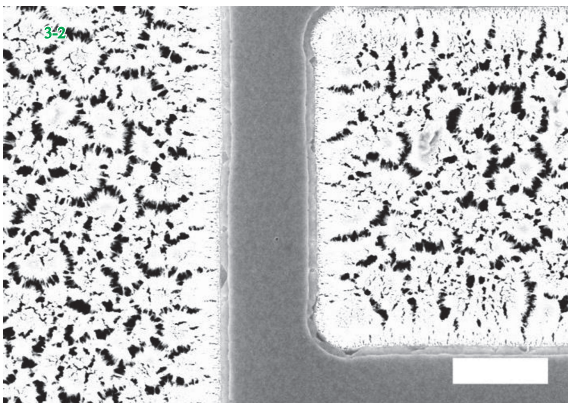


Рис. 3. Изображение сверхпроводящего YBCO мостика шириной $4\ \mu\text{m}$, свободного от дефектов, на образце *B*. Увеличение — 15 500, метка — $4\ \mu\text{m}$.

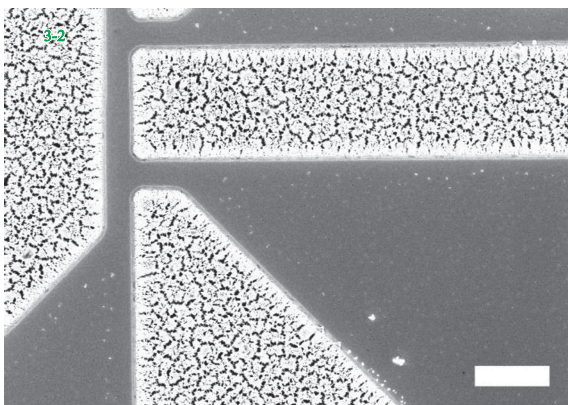


Рис. 4. Изображение сверхпроводящего YBCO мостика № 3-2 и контактных площадок при увеличении 5 000. Метка — $10\ \mu\text{m}$.

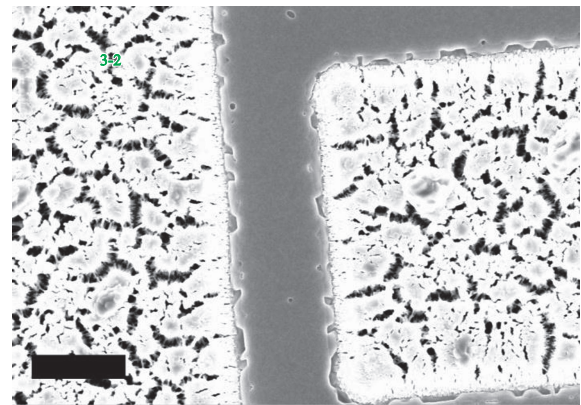


Рис. 5. Изображение сверхпроводящего YBCO мостика № 3-2 на образце *B* после допыления YBCO. Увеличение — 15 500, метка — $4\ \mu\text{m}$.

внутри больших площадок, покрытых пленкой YBCO, плотность дефектов высокая. Вдоль границ сверхпроводящей пленки YBCO и ЗМ возникает ОГП, переходящая в мостик шириной $4\ \mu\text{m}$, полностью свободный от дефектов.

Особенностью метода ЗМ является то, что он дает уникальную возможность последовательно увеличивать толщину сверхпроводящих элементов структуры, местоположение и топология которых фиксированы, проводя многократные циклы осаждения YBCO [10]. На каждом этапе можно измерять нужные характеристики структуры и получать, таким образом, их зависимости от толщины слоя YBCO.

Используя эту возможность, мы увеличили толщину слоя YBCO на образце *B*, где дополнительно был напылен второй слой YBCO в режиме роста, повторяющем режим роста пленки YBCO на подложке *A*, т.е. при температуре подложки на 30 градусов выше, чем при осаждении первого слоя на образце *B*. Итоговая толщина пленки YBCO на образце *B* после допыления составила 200 nm, плотность критического тока $J_c = 5.6 \cdot 10^6\ \text{A}/\text{cm}^2$, критическая температура $T_c = 88.7\ \text{K}$.

На рис. 5. показано изображение мостика № 3-2 (см. рис. 3.) на образце *B* после допыления. Морфология поверхности мостика после допыления практически не изменилась, но более резко проявились неоднородности по краю сверхпроводящего полоска.

На рис. 6. приведено изображение мостика № 3-2 при увеличении 5 000, которое захватывает часть контактных площадок, после допыления пленки YBCO. Можно видеть, что общее распределение дефектов на рис. 6. совпадает с распределением дефектов на рис. 4, т.е. до напыления второго слоя YBCO.

Всего в работе была рассмотрена серия из пятнадцати образцов, на девяти из которых наблюдавшаяся ширина ОГП была менее одного микрометра, а на мостах шириной $4\ \mu\text{m}$ плотность дефектов была вы-

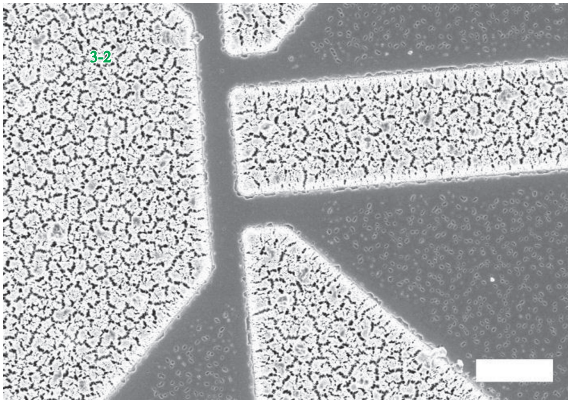


Рис. 6. Изображение сверхпроводящего мостика № 3-2 и контактных площадок после допыления YBCO при увеличении 5000. Метка — 10 μm .

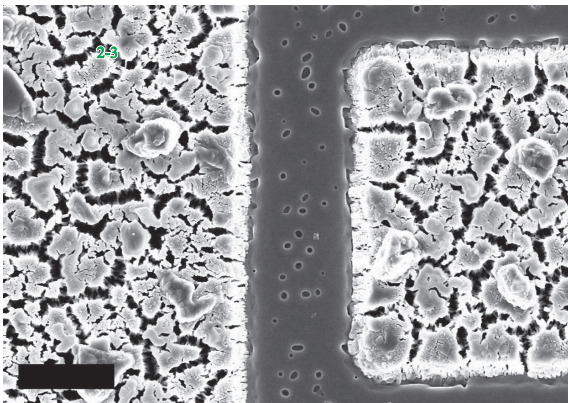


Рис. 7. Изображение сверхпроводящего YBCO мостика шириной 4 μm на образце С. Увеличение — 15 500, метка — 4 μm .

сокой. На рис. 7. показано изображение мостика на образце С. Время осаждения YBCO для этого образца составляло 150 min, остальные параметры режима роста совпадали с режимом осаждения на подложку А. Толщина пленки составила 250 nm, плотность критического тока $J_c = 5.1 \cdot 10^6 \text{ A/cm}^2$, критическая температура $T_c = 89.1 \text{ K}$. Здесь на мостике шириной 4 μm присутствует большое количество дефектов, ОГП составляет величину $< 1 \mu\text{m}$.

Изображения мостиков, приведенные на рис. 2–6, наглядно демонстрируют, что образование свободных от дефектов мостиков шириной 4 μm и ОГП на больших сверхпроводящих площадках определяется наличием границы между областью, покрытой пленкой YBCO и изолирующей областью, сформированной на поверхности ЗМ. На рис. 4 и 6 видно, как при сужении и переходе в мостик контактных площадок ОГП занимает всю ширину мостика. Таким образом, эффект образования ОГП реализуется при осаждении YBCO в локальные области. Изображения мостиков, приведенные на рис. 2–6, сви-

детельствуют о том, что область ЗМ служит геттером для дефектов.

Наличие образцов с ОГП шириной менее одного микрометра (рис. 7) свидетельствует о том, что фиксация стандартных (основных) параметров ростового процесса: температуры подложки, давления и состава газовой смеси Ag/O₂, а также скорости осаждения YBCO с высокой вероятностью определяет (фиксирует) величины плотности критического тока и критической температуры получаемых структур. Однако фиксации указанных ростовых параметров оказывается недостаточно для устойчивой реализации совершенной морфологии поверхности структур YBCO.

Сохранение совершенной морфологии поверхности и высоких электрофизических характеристик при осаждении на структуру второго слоя YBCO (рис. 3, 5) свидетельствует о том, что образование дефектов и формирование ОГП происходит на начальной стадии роста YBCO. Поэтому можно предполагать существенное влияние состояния поверхности подложки на морфологию сверхпроводящих элементов структуры.

На всех образцах наряду с мостиками шириной 4 μm были измерены мостики шириной 50 μm , на которых ОГП составляла величину 2–4 μm с каждой из сторон мостика, а основную часть сечения занимала область с высокой плотностью дефектов, как в широких областях на рис. 4 и 6. В пределах ошибки измерения значения J_c и T_c на мостиках шириной 50 и 4 μm на всех образцах совпадали.

3. Заключение

Таким образом, проведенные исследования позволяют сделать следующие выводы.

При осаждении YBCO в локальные области структуры может реализоваться эффект образования области гладкой пленки в условиях, обеспечивающих максимальные электрофизические характеристики сверхпроводника.

Эффект образования области гладкой пленки YBCO свидетельствует о том, что область ЗМ служит геттером для дефектов.

Фиксация основных параметров ростового процесса определяет электрофизические параметры получаемых структур. Однако фиксации только ростовых параметров недостаточно для устойчивой реализации совершенной морфологии поверхности структур YBCO. Мы предполагаем, что состояние поверхности подложки, характеризующее плотностью центров зародышеобразования частиц вторичных фаз, существенным образом влияет на процесс формирования области гладкой пленки.

Финансирование работы

Исследование выполнено при финансовой поддержке РФФИ в рамках научного проекта № 20-08-01006.

Рентгендифракционные измерения образцов выполнены в рамках госзадания Института физики микроструктур РАН ГЗ 0035-2019-0024-С-01. В работе использовано оборудование ЦКП „Физика и технология микро- и наноструктур“.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] <http://www.ceraco.de/hts-films>
- [2] R.I. Chakalova, T.J. Jackson, G. Passerieux, I.P. Jones, P. Mikheenko, C.M. Muirhead, C.N.W. Darlington. *Phys. Rev. B* **70**, 214504 (2004).
- [3] J.-C. Nie, M. Koyanagi, A. Shoji. *Appl. Surf. Sci.* **172**, 207 (2001).
- [4] A. Tsukamoto, E. Tsurukiri, Y. Soutome, K. Saitoh, I. Kurosawa, K. Takagi. *Physica C* **392**, 1245 (2003).
- [5] A.K. Jha, K. Matsumoto, T. Horide, S. Saini, P. Mele, A. Ichinose, Y. Yoshida, S. Awaji. *J. Appl. Phys.* **122**, 093905 (2017).
- [6] A. Xu, J. Jaroszynski, F. Kametani, D. LARBALÉSTIER. *Appl. Phys. Lett.* **106**, 052603 (2015).
- [7] L.S. Revin, A.L. Pankratov, D.V. Masterov, A.E. Parafin, S.A. Pavlov, A.V. Chiginev, E.V. Skorokhodov. *IEEE Trans. Appl. Supercond.* **28**, 1100505 (2018).
- [8] Д.В. Мастеров, С.А. Павлов, А.Е. Парафин, П.А. Юнин. *Письма в ЖТФ* **42**, 82 (2016).
- [9] Д.В. Мастеров, С.А. Павлов, А.Е. Парафин, Л.С. Ревин, А.Л. Панкратов. Патент РФ на полезную модель № 188983.
- [10] Д.В. Мастеров, С.А. Павлов, А.Е. Парафин, П.А. Юнин. Возможности метода задающей маски для исследования характеристик планарных ВТСП-структур в зависимости от толщины сверхпроводящей пленки. *ЖТФ*. В печати.

Редактор Е.Ю. Флегонтова