

СВЕРХПРОВОДЯЩИЕ ТОНКИЕ ПЛЕНКИ ИТТРИЙ-БАРИЕВОВОГО КУПРАТА, ВЫРАЩЕННЫЕ НА НАПРЯЖЕННЫХ ПОДЛОЖКАХ

Статья посвящена проблеме формирования на монокристаллической подложке сверхпроводящей тонкой пленки, имеющей области с различными значениями плотности критического тока, требуемыми для изготовления сверхпроводниковых приборов. Метод основан на создании в кристалле подложки полей упругих механических напряжений при облучении кристалла сфокусированным импульсным лазерным излучением наносекундной длительности. На облученной подложке выращивают сверхпроводящую тонкую пленку, в которой формируются дополнительные упругие напряжения только в области, расположенной над облученным участком подложки. При этом плотность критического тока пленки подавляется до требуемых значений, необходимых для изготовления джозефсоновских переходов. Длительные наблюдения показывают, что сверхпроводящие транспортные свойства пленок не подвергаются существенному изменению в процессе хранения.

Ключевые слова: сверхпроводящая тонкая пленка, механические напряжения, импульсное лазерное излучение, джозефсоновский переход, монокристаллическая подложка.

Необходимость создания в тонких сверхпроводящих пленках $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ (YBCO) областей с заданной плотностью критического тока обусловлена возможностью изготовления из этих пленок микромостиков, обладающих джозефсоновскими свойствами и используемых при изготовлении пленочных сквидов. В настоящее время существуют различные способы структурирования сверхпроводящих тонких и сверхтонких пленок, которые используются для изготовления тонкопленочных сквидов и совмещенных с ними на одной подложке сверхпроводящих трансформаторов потока и сверхпроводящих планарных градиометров первого и второго порядка [1–3].

Создание стабильно работающего высокочувствительного сквида сопряжено с рядом трудностей, главная из которых – это необходимость получения сверхпроводящих пленок с низкими значениями критического тока. Эпитаксиальные монокристаллические пленки YBCO обладают слишком высокими значениями плотности критического тока (более 10^6 А/см²), что не позволяет изготавливать на их основе качественные сквиды. Критический ток джозефсоновского перехода шириной 3 мкм и толщиной 100 нм достигает значения ~ 1 мА. Даже для крити-

чески низкого значения индуктивности контура квантования $L_S \sim 10^{-11}$ Гн, когда еще возможна индуктивная связь сквида с внешним миром, параметр модуляции $\beta = 2I_c L / \Phi_0$, где I_c и L – критический ток и полная индуктивность сквида соответственно, принимает значения много больше единицы. На практике понижение β до значений порядка единицы становится возможным только путем понижения критического тока перехода [4].

Наряду с традиционными способами подавления критического тока сквида, например путем использования бикристаллических подложек или формирования на монокристаллической подложке ступенчато-торцевых переходов, существуют различные способы подавления критического тока сквида путем структурирования материала сверхпроводящей пленки. Основываясь на сильной зависимости критического тока сверхпроводящей пленки от совершенства структуры, учитывая сложную иерархию дефектов [5; 6], возможно выращивать тонкие сверхпроводящие пленки с заданными значениями плотности критического тока, контролируя процесс образования дефектов. Например, используя метод структурирования сверхпроводящих пленок,

названный авторами «контролируемой закалкой», связанный с замораживанием механических напряжений в монокристаллической пленке при быстром охлаждении в постростовом режиме отжига, удалось создать высокочувствительные сквиды постоянного тока [7–9].

Механические напряжения возникают в YBCO пленке в процессе роста из-за рассогласования параметров кристаллических решеток материалов подложки и пленки. При постростовом отжиге в случае больших скоростей остывания происходит накопление дополнительных механических напряжений в материале пленки из-за различия коэффициентов температурного расширения материалов подложки и пленки. Исследование структуры напряженных пленок на сканирующем туннельном микроскопе показало, что пленка фрагментируется на блоки и с ростом степени напряженности средний размер блока уменьшается [8]. С ростом степени напряженности пленки уменьшается плотность ее критического тока. Кроме того, вследствие быстрого прохождения температурного интервала $T_{\text{фп}} = 550\text{--}680\text{ }^\circ\text{C}$, в котором происходит фазовый переход тетра-орто для YBCO материала, возникает недостаток кислорода в кристаллической решетке. При данном фазовом переходе в решетку сверхпроводящей пленки должны успеть встроиться дополнительные атомы кислорода для образования сверхпроводящей пленки состава $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$. Очевидно, что из-за достаточно быстрого остывания не весь объем пленки претерпевает фазовый переход тетра-орто. Вследствие этого возникают механические напряжения между тетрагональными и орторомбическими фазами. Чем выше скорость закалки, тем больше дефицит кислорода и тем большие механические напряжения замораживаются в пленке.

Исследования релаксации критического тока напряженных пленок, получаемых методом «контролируемой закалки», показали, что при хранении в обычных условиях критический ток может вырасти на один-два порядка в течение нескольких дней. Пленка неустойчива к релаксациям упругих напряжений, следовательно, делается нестабильным и критический ток джозефсоновских переходов сквида, изготовленных из напряженных пленок. Увеличение значений

критического тока перехода до высоких значений приводит к резкому понижению чувствительности сквида. Релаксацию напряжений можно связать с относительно высокой подвижностью кислорода в решетке [10]. В результате внутрирешеточной миграции кислорода из орторомбических фаз в тетрагональные, недостающий в тетрафазе апический (мостиковый) кислород встраивается в решетку и происходит разрастание ортофазы за счет уменьшения тетрафазы.

На рис. 1 представлены характерные кривые релаксации критического тока при хранении пленок в нормальных условиях. Исследования показывают, что эффективность релаксации критического тока тем выше, чем меньше начальное значение плотности критического тока J_{c0} пленки. Хранение пленок в условиях вакуума (~ 1 Па) также не приводит к стабилизации критического тока. Чтобы добиться максимально возможной стабильности критических параметров напряженных пленок, их приходится постоянно хранить в жидком азоте. Это свидетельствует о том, что поступление недостающего кислорода в межблочные границы происходит не из окружающей атмосферы, а за счет внутренней диффузии (при комнатной температуре потенциальный барьер проникновению атмосферного кислорода в YBCO материал достигается при 1,6–1,8 эВ [10]).

Один из способов подавления критического тока сквида основан на сильной зависимости плотности критического тока сверхпроводящей пленки от ее толщины [11]. Здесь авторы использовали пленки толщиной $20\div 30$ нм, что давало значение плотности критического тока порядка 10^3 А/см². Собственно, и в этом случае подавление критического тока пленок связано с сильными механическими напряжениями структуры из-за того, что толщина пленки не преодолела своего критического значения для эффективного сброса накопившихся механических напряжений. Следует отметить, что в указанных выше способах не только подавляется критический ток микромостиков сквида, но и вся сверхпроводящая пленка обладает низкими значениями плотности критического тока, что затрудняет изготовление совмещенных на одной подложке со сквидом таких элементов сверхпроводниковой электроники, как сверхпроводящий трансформатор потока и петли планарного градиометра.

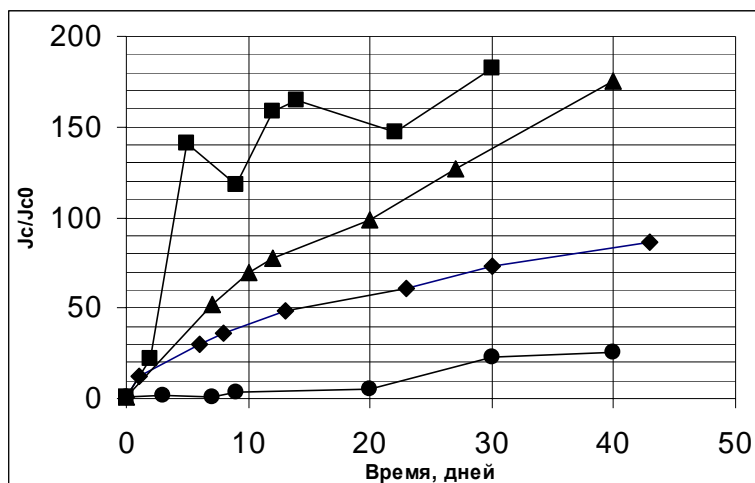


Рис. 1. Зависимость плотности критического тока пленок, получаемых методом «контролируемой закалки», от времени хранения при обычных условиях:

◆ — $J_{c0} = 1,1 \cdot 10^3$ A/cm²; ■ — $J_{c0} = 1,7 \cdot 10^2$ A/cm²;
 ▲ — $J_{c0} = 2,0 \cdot 10^3$ A/cm²; ● — $J_{c0} = 9,2 \cdot 10^4$ A/cm²

В данной статье рассматривается новый метод структурирования сверхпроводящих пленок, позволяющий получать стабильные по критическому току джозефсоновские переходы и решать проблему совмещения со скивдом на одной подложке различных элементов сверхпроводниковой электроники. Метод основан на формировании локальных областей механических напряжений в монокристаллической подложке путем облучения сфокусированным импульсным лазерным излучением наносекундной длительности. Впоследствии на облученной подложке выращивают сверхпроводящую тонкую пленку, в которой дополнительные упругие напряжения формируются только в областях, расположенных над ранее облученными участками подложки. В этих областях плотность критического тока пленки подавляется до заданных значений (10^3 – 10^4 A/cm²). Напыление и постростовый отжиг пленки проводится при технологических параметрах, которые позволяют выращивать высококачественные монокристаллические тонкие сверхпроводящие пленки [6]. Исходя из требуемых геометрических размеров элементов сверхпроводниковой микроэлектроники метод позволяет обеспечить области облучения размером около 0,1–1 мм в диаметре. Остальные области сверхпроводящей пленки остаются с высокими значениями плотности критического тока, что позволяет изготавливать из этих участков элементы криоэлек-

троники, планарно совмещенные со скивдом на одной подложке.

В настоящее время опубликовано большое количество работ по исследованию воздействия лазерного излучения на монокристаллические прозрачные диэлектрики. Эксперименты свидетельствуют о возникновении структурных изменений в диэлектриках под воздействием лазерных импульсов [12–14]. Выделяют два механизма взаимодействия лазерного излучения с веществом: тепловое и нетермическое [13]. Детальные расчеты тепловых режимов можно найти, например, в работе [15]. Однако при малых длительностях импульсов доминирует нетепловой механизм взаимодействия излучения с подсистемами – электронами проводимости, фононами. При локальном пространственном воздействии возникающие градиенты температуры приводят к деформациям, механическим напряжениям, движению дефектов, возникновению акустических и ударных волн [13; 15; 16].

Так как сверхпроводящие пленки выращиваются преимущественно на подложках LaAlO₃ и SrTiO₃, являющихся «прозрачными» диэлектриками, то можно применить теорию нетеплового механизма оптического разрушения прозрачных диэлектриков наносекундным лазерным излучением. В работе [12] механизм разрушения сводится к следующему: в фокальной области интенсивное лазерное излучение вызывает иони-

зацию вещества, в результате чего возникает пространственно неоднородное облако горячих неравновесных электронов. Облако «раздувает» кристалл, приводя к образованию в нем сильных полей напряжения. Возникновение напряжения и разрушение кристалла связано также с потоками импульса и энергии, переносимыми электронами из центральных областей фокального пятна к периферии. Рассеиваясь на примесях или дислокациях, такие потоки создают объемную плотность сил, деформирующих кристаллическую решетку. Если значения напряжения превысят предельно допустимые для данного материала, то образец разрушится. В. Н. Стрекалов [12] рассматривает однородную упругую среду в сферической системе координат, где вводятся относительные смещения точек среды $u = u(r)$, тензоры деформаций $u_{rr} = u_{rr}(r)$, $u_{\theta\theta} = u_{\theta\theta}(r)$ и $u_{\varphi\varphi} = u_{\varphi\varphi}(r)$, а также тензоры механических напряжений $\sigma_{rr} = \sigma_{rr}(r)$, $\sigma_{\theta\theta} = \sigma_{\theta\theta}(r)$ и $\sigma_{\varphi\varphi} = \sigma_{\varphi\varphi}(r)$. Если на среду действуют силы, обладающие сферической симметрией и имеющие объемную плотность $F(r)$, то функция $u = u(r)$ должна подчиняться уравнению

$$\frac{d}{dr} \left(\frac{1}{r^2} \frac{d}{dr} (r^2 u(r^2)) \right) = -AF(r),$$

где введенный постоянный множитель $A = \frac{(1+\mu)(1-2\mu)}{E(1-\mu)}$ является функцией модуля Юнга E и коэффициента Пуассона μ .

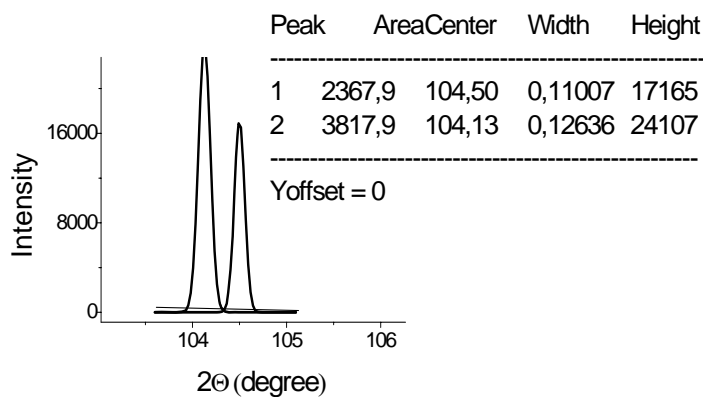
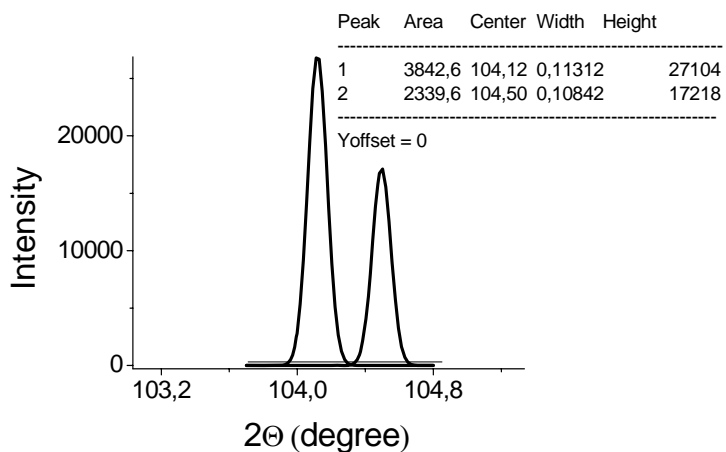
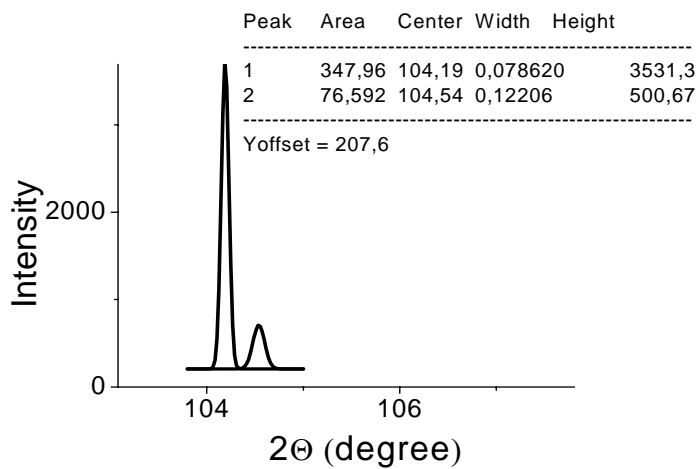
В работе [14] с учетом граничных условий получена плотность объемных сил, создаваемых неравновесными электронами, в виде $F(r) = \sigma_i n_i n_e(r) T_e(r)$, где σ_i – сечение рассеяния электрона на одном дефекте решетки; n_i – концентрация центров рассеяния; $n_e(r)$ – распределение концентрации горячих электронов; $T_e(r)$ – распределение температуры электронов.

Облучение диэлектрических подложек производится твердотельным импульсным лазером Nd: YAG с длиной волны излучения 1,06 мкм, длительностью импульса 16 нс, частотой повторения импульсов 10 Гц. Плотность энергии излучения в импульсе на поверхности подложки составляла

0,6÷0,7 Дж/см². Исследования облучаемой поверхности подложек LaAlO₃ и SrTiO₃ на высокоразрешающем атомно-силовом микроскопе показали, что значение плотности энергии 0,72 Дж/см² является граничным, выше которого происходит поверхностное разрушение структуры подложки (расплавление). Конструкция держателя облучаемой подложки позволяет перемещать регулируемыми винтами подложку относительно лазерного луча, в результате чего облучению подвергается заранее выбранный участок поверхности подложки. Облученная подложка переносится в установку для напыления сверхпроводящей пленки методом лазерной абляции [17].

Кристаллическая структура двух типов облученных подложек LaAlO₃ и SrTiO₃ исследовалась на дифрактометре ДРОН-3М. Исследования механических напряжений, возникающих в подложках под действием лазерного излучения, проводились в зависимости от полной энергии облучения, величина которой варьировалась от 100 до 1 500 Дж. Дифрактограмма необлученной подложки SrTiO₃ приведена на рис. 2, а дифрактограммы облученных подложек SrTiO₃ для энергии облучения 96 и 1 440 Дж приведены на рис. 3 и 4 соответственно. Все подложки выбирались из одной серии и предварительно исследовались на дифрактометре. Из рисунков видно, что центры тяжести пиков дифрактограмм облученных подложек все больше смещаются вправо по сравнению с пиком необлученной подложки в зависимости от энергии облучения, что свидетельствует об увеличении межплоскостного расстояния в структуре облученных подложек. На рис. 5 представлена зависимость абсолютной деформации структуры подложки от энергии облучения.

Исследования транспортных свойств тонких сверхпроводящих пленок YBCO, выращенных на облученных LaAlO₃ подложках, показывают, что с увеличением энергии лазерного облучения подложки происходит монотонное уменьшение плотности критического тока пленки (рис. 6). При энергии облучения более 500 Дж наблюдается интенсивное падение плотности критического тока пленки, что позволяет в диапазоне энергий облучения 500÷1000 Дж получать сверхпроводящие тонкие пленки с требуемыми значениями плотности критического тока.

Рис. 2. Дифрактограмма необлученной подложки SrTiO₃Рис. 3. Дифрактограмма подложки SrTiO₃, облученной энергией 96 ДжРис. 4. Дифрактограмма подложки SrTiO₃, облученной энергией 1440 Дж

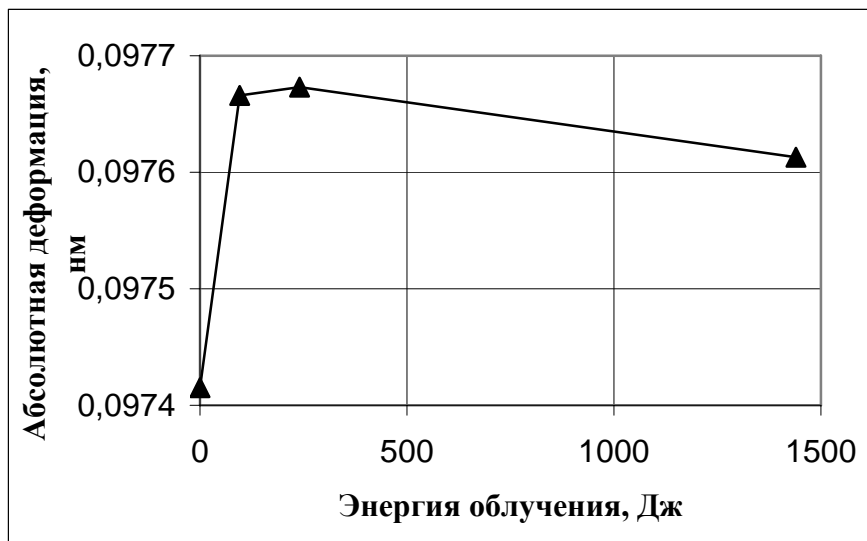


Рис. 5. Зависимость деформации структуры подложки от энергии облучения

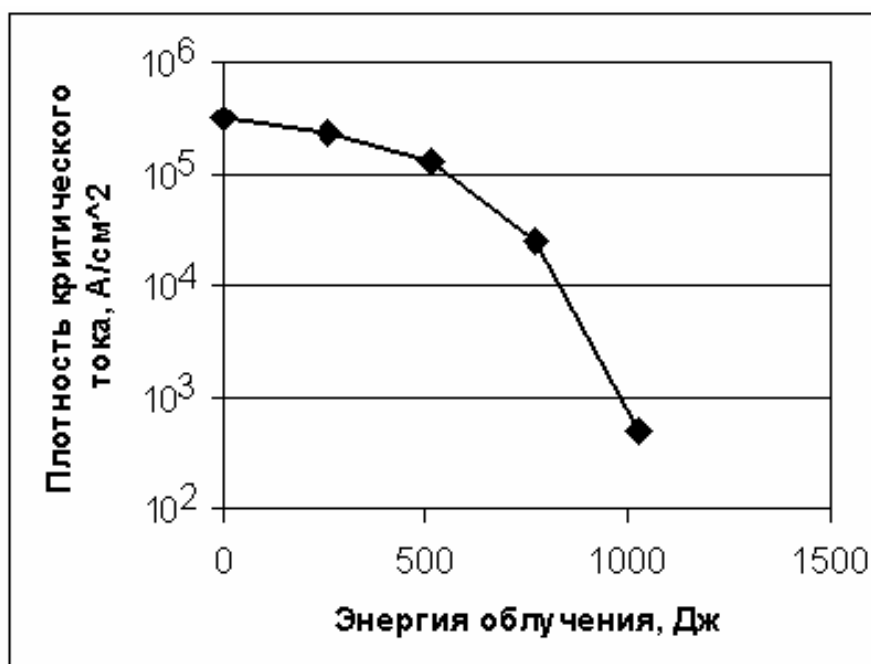


Рис. 6. Зависимость плотности критического тока сверхпроводящей пленки от энергии облучения подложки LaAlO_3

Исследования структуры облученных подложек на предмет устойчивости сформированных в них механических напряжений к релаксационным процессам показывают, что за длительные периоды хранения параметры деформации меняются незначительно. Так, например, облучение SrTiO_3 подложки, энергией 96 Дж привело к абсолютной деформации кристаллической решетки, равной $d = 0,09761$ нм, а через 45

дней после облучения абсолютная деформация составила 0,09760 нм.

На рис. 7 представлены исследования релаксации плотности критического тока сверхпроводящей пленки, выращенной на напряженной подложке LaAlO_3 . Видно, что плотность критического тока пленки с течением времени меняется незначительно при хранении в обычных условиях.

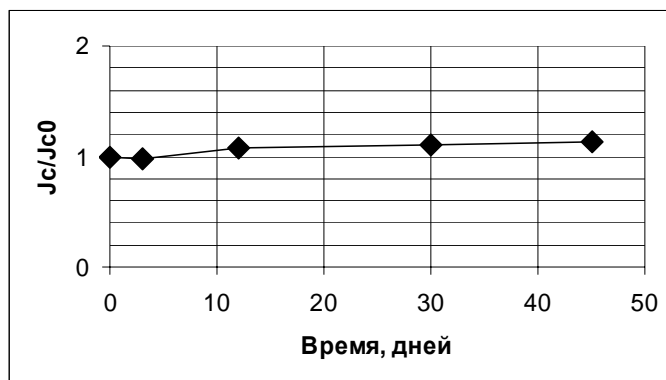


Рис. 7. Зависимость плотности критического тока пленки, выращенной на облученной подложке LaAlO_3 , от времени хранения ($J_{c0} = 8 \cdot 10^4 \text{ А/см}^2$)

Некоторые образцы хранились более года, и их критический ток изменился не более чем на 20 %. Высокая устойчивость к релаксации позволяет заранее подготавливать облученные подложки и многократно их использовать.

Список литературы

1. Koelle D., Kleiner R., Ludwig F. et al. High-transition-temperature superconducting quantum interference devices // *Rev. Mod. Phys.* 1999. Vol. 71. P. 631–686.
2. Pizzella V., Della Penna S., Del Gratta C. et al. SQUID systems for biomagnetic imaging // *Supercond. Sci. Technol.* 2001. Vol. 14. P. 79–114.
3. Yugay K. N., Muravjev A. B., Yugay K. K. et al. SQUIDS on the Base of Strained YBCO Films // *Journal of Superconductivity*. 2004. Vol. 17. P. 755–760.
4. Лежнин И. В., Муравьев А. Б., Скутин А. А. и др. Высокотемпературный сверхпроводящий YBCO пленочный dc-сквид // *Вестн. Омск. гос. ун-та.* 1997. Вып. 1. С. 41–43.
5. Мейлихов Е. З. Структурные особенности ВТСП-керамик и их критический ток и вольтамперная характеристика // *УФН.* 1993. Т. 163, вып. 3. С. 27–54.
6. Югай К. Н., Муравьев А. Б., Серопян Г. М. и др. Макроструктура ВТСП YBCO пленок, выращенных методом лазерной абляции // *ЖТФ.* 1998. Т. 68, вып. 2. С. 48–51.
7. Югай К. Н., Серопян Г. М., Муравьев А. Б. и др. Тонкие ВТСП пленки YBCO с замороженными напряжениями // *ФНТ.* 2006. Т. 32, вып. 1. С. 75–82.
8. Коноваленко К. Б., Муравьев А. Б., Серопян Г. М. и др. Напряженные состояния сверхпроводящих пленок иттрий-бариевого купрата: исследование на сканирующем туннельном микроскопе // *Вестн. Новосиб. гос. ун-та. Серия: Физика.* 2007. Т. 2, вып. 2. С. 61–64.
9. Югай К. Н., Коноваленко К. Б., Муравьев А. Б. и др. Исследование напряженных состояний пленок YBCO методом туннельной спектроскопии // *Вестн. Омск. гос. ун-та.* 2002. Вып. 3. С. 21–23.
10. Байков Ю. М., Шалкова Е. К., Ушакова Т. А. Подвижность кислорода в купрате бария-иттрия // *СФХТ.* 1993. Т. 6, вып. 3. С. 449–482.
11. Лежнин И. В., Муравьев А. Б., Скутин А. А. и др. Высокотемпературный сверхпроводящий YBaCuO пленочный dc-сквид // *Вестн. Омск. гос. ун-та.* 1997. Вып. 1. С. 41–43.
12. Стрекалов В. Н. Механическое разрушение прозрачных диэлектриков сфокусированным лазерным излучением // *Письма в ЖТФ.* 2000. Т. 26, вып. 24. С. 19–23.
13. Мирзоев Ф. Х., Панченко В. Я., Шелепин Л. А. Лазерное управление процессами в твердом теле // *УФН.* 1996. Т. 166, вып. 1. С. 3–32.
14. Стрекалов В. Н. Нетепловые механические напряжения и оптическое разрушение, вызванные в прозрачном диэлектрике лазерным излучением // *ЖТФ.* 2002. Т. 72, вып. 9. С. 75–79.
15. Рыкалин Н. Н., Углов А. А., Зуев И. В. и др. Лазерная и электронно-лучевая обработка материалов. М.: Машиностроение, 1985.
16. Двуреченский А. В., Качурин Г. А., Нидаев Н. Н. и др. Импульсный отжиг по-

лупроводниковых материалов. М.: Наука, 1982.

17. Югай К. Н., Скутин А. А., Тихомиров В. В. и др. Взаимодействие импульсного лазерного излучения с поверхностью мише-

ни YBaCuO: время запаздывания // СФХТ. 1994. Т. 7, вып. 6. С. 1026–1032.

Материал поступил в редколлегию 04.08.2008

A. V. Zakharov, A. B. Muravjev, I. S. Pozygun, G. M. Seropyan, S. A. Sychev, E. A. Yashkevich

Superconducting Yttrium Barium Copper Oxide Thin Films Growing on the Strained Substrates

The article is devoted to formation of superconducting thin films on the single-crystal substrate where areas with different values of the critical current density are, that is needed for fabrication of superconducting devices. The method is based on an establishment of elastic mechanical stresses on the substrate crystal under the nanosecond focused pulsed laser irradiation. On the irradiated substrate the superconducting thin film having auxiliary elastic stresses not till the area is over the irradiated section of the substrate is grown. At the same time the critical film current density is suppressed for required values are used to fabricate Josephson junctions. Observations for a long time demonstrate superconducting transport film properties are not varied significantly during the maintenance.

Keywords: superconducting thin film, mechanical stresses, pulsed laser irradiation, Josephson junction, single-crystal substrate.