

СТРУКТУРА И ТРАНСПОРТНЫЕ СВОЙСТВА СВЕРХТОНКИХ ПЛЕНОК $YBa_2Cu_3O_{7-x}$

А.В.Варганов, Е.А.Вопилкин, П.П.Вышеславцев, Ю.Н.Дроздов, Ю.Н.Ноздрин, С.А.Павлов, А.Е.Парафин, В.В.Таланов¹⁾

*Институт физики микроструктур РАН
603600 Нижний Новгород, Россия*

Поступила в редакцию 22 января 1996 г.

После переработки 13 марта 1996 г.

Исследованы кристаллическая структура и транспортные свойства эпитаксиальных *c*-ориентированных пленок $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ при изменении толщины ВТСП слоя от 5 до 300 нм. Пленки получены методом лазерного напыления. При толщинах менее 30 нм пленки становятся преимущественно монокристаллическими в направлении оси *c*. Также при уменьшении толщины происходит уменьшение параметра орторомбичности решетки $YBaCuO$, что коррелирует с деградацией критической температуры, наблюдающейся для пленок тоньше 9 нм. Полученная зависимость эффективного поверхностного СВЧ сопротивления $YBaCuO$ пленки от ее толщины хорошо согласуется с результатом расчета в рамках локальной электродинамики при постоянной удельной СВЧ проводимости образцов.

PACS: 74.76.Bz

1. В последнее время сверхтонкие (толщиной менее 10 нм) эпитаксиальные пленки ВТСП привлекают повышенное внимание исследователей [1–7]. Такие пленки представляют интерес как с фундаментальной точки зрения, так и для различных СВЧ и микроэлектронных приложений. Особенностью пленок состава $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ (YBCO) является деградация их сверхпроводящих свойств при уменьшении толщины слоя ВТСП менее 10 нм [1, 4, 6], в отличие от пленок $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$, сохраняющих критическую температуру T_c массивного образца до толщин в одну постоянную решетки [7]. Известно, что физические свойства эпитаксиальных пленок ВТСП в сильной степени определяются их реальной микроструктурой (см., например, [6]). В связи с этим комплексное изучение транспортных свойств и структуры тонких и сверхтонких пленок ВТСП в зависимости от их толщины представляет собой весьма актуальную задачу.

В настоящей работе исследованы параметры кристаллического совершенства, критическая температура, плотность критического тока и эффективное поверхностное СВЧ сопротивление эпитаксиальных пленок YBCO при изменении их толщины от 5 до 300 нм.

2. Пленки YBCO были получены методом лазерного напыления [8] на монокристаллические подложки $LaAlO_3$. Скорость роста составляла около 0.06 нм/импульс. Оптимизация процесса напыления проводилась по величине поверхностного СВЧ сопротивления (77 К, 10 ГГц) образцов толщиной 150–250 нм. Подложки имели следующие характеристики: $a = 0.382$ нм, срез (100) в индексах псевдокубической перовскитоподобной ячейки; разориентация блоков в пределах 0.2° ; размер подложек 12.5×12.5 мм.

¹⁾e-mail: talanov@ipm.sci-nnov.ru

Анализ структуры и измерение толщины слоев YBCO проводили методами рентгеновской дифрактометрии (ДРОН-4). По данным $\theta/2\theta$, ω и φ -сканирования пленки YBCO – эпитаксиальные, c -ориентированные, (001)[100]YBCO || (001)[100]LaAlO₃ с микродвойникованием относительно плоскостей типа (110). Разориентация оси c в блоках мозаики оценена из ширины кривых качания и не превышала 1°. Разориентация осей a и b в плоскости слоя для доменов одного типа составляла менее 1°. Исследование поверхностной морфологии образцов методами оптической и электронной микроскопии (с рентгенофлуоресцентной приставкой) показало наличие на поверхности пленок Cu-обогащенных частиц с размерами до 0.2–0.3 мкм и поверхностной плотностью около 10^7 см^{-2} , что является характерным для большинства тонких пленок YBCO, получаемых на различных подложках, включая LaAlO₃, методами лазерного напыления [9].

Критическая температура T_c измерялась стандартным четырехзондовым методом. Плотность критического тока j_c измерялась бесконтактным способом лазерно-магнитной томографии [10]. Измеренные при 77 К значения j_c превышали 3 МА/см^2 для образцов толщиной более 9 нм. Эффективное поверхностное СВЧ сопротивление образцов R_{eff} измерялось на частоте 10 ГГц при 77 К методом модифицированного резонатора с параллельными пластинами (РПП) [11,12]. При измерениях пленок тоньше 80 нм, аналогично [8], использовался резонатор, одной из пластин которого служила исследуемая пленка, а другой – эталонная пленка YBCO/LaAlO₃ толщиной 200 нм с величиной R_{eff} (77 К, 10 ГГц) менее 0.6 мОм. В качестве диэлектрического заполнения резонатора использовался тефлон толщиной 10 и 110 мкм при измерениях пленок с величинами $R_{eff} < 15 \text{ мОм}$ и $R_{eff} > 200 \text{ мОм}$, соответственно.

Важной особенностью сверхтонких слоев YBCO оказалась их устойчивость к многократному термоциклированию в процессе экспериментов.

3. Наиболее надежно толщина слоев YBCO определялась в нашей работе по наличию толщинного интерференционного контраста вокруг рентгенодифракционных пиков, который удавалось наблюдать для слоев с толщиной $d < 30 \text{ нм}$. Толщина при этом оценена как размер области когерентного рассеяния (ОКР) [13]: $d = \lambda_X / (\Delta(2\theta) \cos \theta)$, где λ_X – длина волны излучения, $\Delta(2\theta)$ – период осцилляций толщинного контраста либо примерно равная ему ширина центрального пика на половине высоты (FWHM), θ – угол брэгговского отражения (005)YBCO. Наличие толщинного контраста служит более строгим критерием применимости данного подхода по сравнению с критерием [13], поскольку свидетельствует о том, что в слое действительно имеется преимущественная толщина ОКР, которую естественно связать с ограничением ОКР толщиной всего слоя d . На рис.1 приведен спектр образца "13 нм" при $\theta/2\theta$ -сканировании в окрестности пика (005)YBCO и теоретически рассчитанный спектр для слоя толщиной 13.1 нм (10.33 периода вдоль оси c). Расчет проведен прямым суммированием:

$$I(2\theta) \propto \left| \sum_{j=1}^N f_j \exp(2\pi i z_j l) \right|^2,$$

где N – число атомов в $10 + 1/3$ ячейках YBCO, z_j – координата j -го атома, f_j – рассеивающая способность j -го атома, l – непрерывно изменяется: $l = 2 \sin \theta / \lambda_X$. Координаты атомов внутри одной ячейки YBCO взяты из

[14]. Прямое суммирование позволяет моделировать $I(2\theta)$, наращивая толщину послойно, а не ячейками по 1.17 нм. Видно, что положение побочных максимумов согласуется с теоретическим. Это говорит о том, что кристаллическая фаза YBCO преимущественно монодоменна по толщине.

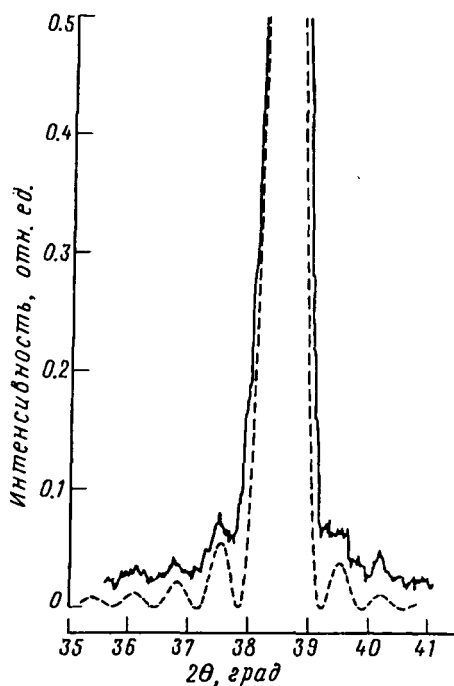


Рис.1

Рис.1. Рентгенодифракционные спектры $\theta/2\theta$ -сканирования в окрестности пика (005)YBCO. Центральные пики срезаны на уровне 0.5 от максимума. Сплошная линия – эксперимент для образца "13 нм", штриховая – расчет для слоя толщиной 13.1 нм. Масштаб по оси интенсивности выбран так, чтобы высота центрального максимума совпадала с экспериментальной

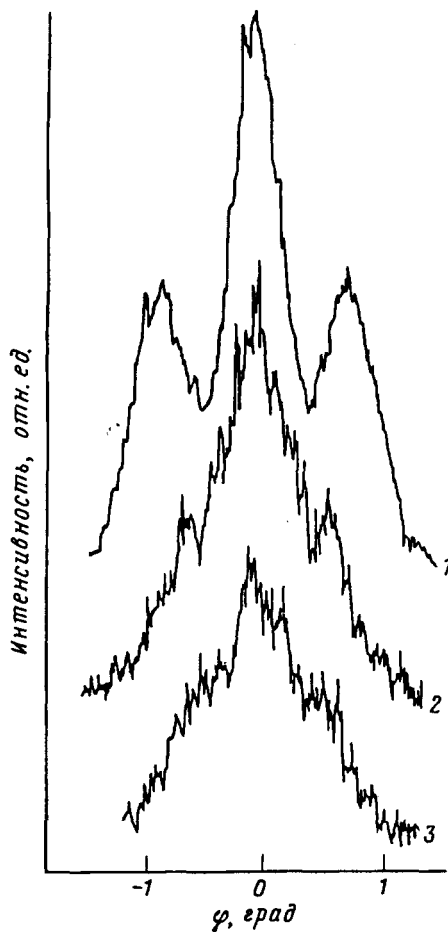


Рис.2

Рис.2. Экспериментальные кривые качания отражения (225)YBCO вокруг оси [001] для трех образцов толщиной: 1 – 200 нм, 2 – 22 нм, 3 – 13 нм

Для измерения толщины пленок более 20 нм использовалась интегральная интенсивность отражения (005)YBCO. Постоянный калибровочный коэффициент обеспечивал согласование этих данных с данными оптической интерференции на ступеньке для толстых ($d > 200$ нм) пленок и с размерами областей когерентного рассеяния для тонких пленок с $d \approx 30$ нм.

Анализ микродвойникования в слоях YBCO проводился по расщеплению триплетов отражений (225) при φ -сканировании на постоянном 2θ . Расщепле-

ние компонент триплета (225) связано с орторомбическим искажением ячейки YBCO: $\Delta\varphi \approx (b-a)/b$ [15] и для YBCO с осями $a = 0.382$ нм, $b = 0.388$ нм, $(b-a)/b = 0.0155$, $\Delta\varphi = 0.89^\circ$. На рис.2 приведены экспериментальные кривые триплета (225)YBCO, полученные для трех толщин слоев: 200 нм, 22 нм и 13 нм. Хорошо разрешенный триплет для слоя толщиной 200 нм с равными по интенсивности боковыми максимумами и удвоенной интенсивностью среднего однозначно свидетельствует о 4-доменном двойниковании в слое при равном количестве всех 4-х компонент [15]. Расщепление в пределах погрешности совпадает с рассчитанным 0.89° по φ . Ширина отдельного максимума (0.6°) близка к ширине кривой качания (005)YBCO, то есть разориентации блоков мозаики одинаковы в плоскости слоя и по нормали к нему, если иметь в виду один набор доменов. В случае слоя 22 нм характер расщепления сохраняется, но орторомбическое искажение уменьшается до $(b-a)/b = 0.012$. Спектр слоя 13 нм имеет более слабое разрешение, но качественный вид сохраняется и 4-доменное двойникование имеет место, однако параметр орторомбичности здесь, по-видимому, меньше, чем в случае слоя толщиной 22 нм. Таким образом, влияние подложки проявляется в выравнивании периодов a и b элементарной ячейки YBCO и уменьшении углов разворота доменов. Наблюдаемая тенденция уменьшения орторомбичности с уменьшением толщины пленки согласуется с данными [16], где слой YBCO толщиной 10 нм на SrTiO_3 выглядел как тетрагональный.

На основании данных рентгенодифракционного анализа можно сделать вывод о том, что при уменьшении толщины пленки YBCO существуют два процесса в изменении ее микроструктуры. Во-первых, в пленке увеличивается относительное количество монодоменных в направлении оси c областей. Во-вторых, с уменьшением толщины пленки усиливается искажение элементарной ячейки YBCO вследствие влияния подложки. Возможно, что тенденция уменьшения орторомбичности может явиться одной из причин деградации сверхпроводимости пленок YBCO при толщинах менее 10 нм. Так, упоминавшийся выше тетрагональный слой в [16] имел $T_c^0 \approx 75$ К (T_c^0 – температура обращения в нуль сопротивления по постоянному току) и ширину перехода 8.7 К.

В настоящей работе пленки толщиной 9.3 нм и более имели критическую температуру $T_c^0 = 89 \pm 0.5$ К. При толщинах менее 8 нм наблюдалось резкое уменьшение T_c^0 (для пленки толщиной 7.2 нм $T_c^0 = 84$ К, для 5.3 нм – $T_c^0 = 79$ К) и уширение резистивного перехода, что хорошо согласуется с данными других публикаций [1, 4, 6].

Эффективный (непосредственно измеряемый) поверхностный СВЧ импеданс $Z_{eff} = R_{eff} + iX_{eff}$ сверхпроводящей пленки толщиной менее или порядка лондоновской глубины проникновения связан с волновым СВЧ импедансом $Z_s = R_s + iX_s$ среды, имеющей ту же комплексную проводимость, что и тонкая пленка, следующим образом [17]:

$$R_{eff} = R_s \left[\coth(d/\lambda) + \frac{d/\lambda}{\sinh^2(d/\lambda)} \right] + R_{trans} , \quad (1)$$

$$R_{trans} = \epsilon_r^{1/2} \frac{(\mu_0 \omega \lambda)^2}{Z_0} \frac{1}{\sinh^2(d/\lambda)} , \quad (2)$$

$$X_{eff} = X_s \coth(d/\lambda) . \quad (3)$$

Здесь d – толщина сверхпроводящей пленки, λ – лондоновская глубина проникновения, $\mu_0 = 1.256 \times 10^{-6}$ Вс/Ам, ω – круговая частота, $X_s = \mu_0 \omega \lambda$ в лондоновском приближении, ϵ_r – диэлектрическая проницаемость подложки, $Z_0 = 120\pi$ Ом. R_{trans} описывает потери мощности на прохождение сквозь пленку. Условиями применимости (1)–(3) являются $R_s \ll X_s$ и $d \gg \lambda \epsilon_r X_s / Z_0$.

Прежде чем перейти к обсуждению экспериментальной зависимости R_{eff} от d , сделаем одно существенное замечание об измерении R_{eff} тонких пленок ВТСП методом РПП. Известно, что при достаточно малой толщине диэлектрического зазора собственная добротность РПП определяется, в основном, омическими потерями в сверхпроводящих пластинах [11,12]. В случае пластин конечной толщины (тонких пленок) выражение для омической добротности имеет вид

$$Q_{\Omega} = Q_{\Omega}^{id} + Q_{\Omega}^{kin} = \frac{\mu_0 \omega s}{2R_{eff}} + \frac{\mu_0 \omega \lambda_{eff}}{R_{eff}}, \quad (4)$$

где ω – круговая резонансная частота, s – толщина диэлектрического зазора резонатора, R_{eff} и X_{eff} – эффективные поверхностные СВЧ сопротивление (1) и реактанс (3) пластин резонатора, $\lambda_{eff} = \lambda \coth(d/\lambda)$ – эффективная глубина проникновения. Первое слагаемое в правой части (4) получается при расчете, если исходить из полей в резонаторе с идеально-проводящими пластинами [11,12]. Второе слагаемое есть поправка, учитывающая влияние кинетической индуктивности сверхпроводящих пластин на электромагнитную энергию, запасенную в резонаторе [18]. Обычно при измерениях РПП используют диэлектрик толщиной $s \sim 10$ мкм. Для пленок толщиной $d \geq \lambda$ поправка на кинетическую индуктивность пренебрежимо мала. Однако при $d \ll \lambda$ кинетическая индуктивность сильно влияет на Q_{Ω} . Глубина проникновения в YBCO $\lambda_{ab} \sim 200$ нм и для $d \sim 10$ нм получаем $s \sim 2\lambda_{eff}$, то есть увеличение омической добротности за счет кинетической энергии сверхпроводящих носителей составляет около 100%. Таким образом, при измерении методом РПП R_{eff} пленок ВТСП толщиной менее 100 нм необходимо учитывать влияние кинетической индуктивности на добротность резонатора, что и было сделано нами при обработке результатов эксперимента.

Зависимость R_{eff} от толщины YBCO пленки представлена на рис.3. Сплошная линия на графике – теоретическая кривая, рассчитанная на основе (1). Наилучшее согласие теории и эксперимента достигается при не зависящих от толщины пленки $R_s = 0.25$ мОм и $\lambda_{ab} = 250$ нм (метод наименьших квадратов осуществлялся по данным для образцов с постоянной T_c , то есть с $d \geq 9$ нм). Полученные значения R_s и λ_{ab} хорошо согласуются с известными результатами для высококачественных тонких пленок YBCO [11, 12, 17, 19] и с теоретическим пределом 0.3 мОм, даваемым теорией БКШ для R_s YBCO при 77 К, 10 ГГц [20]. Для построения теоретической кривой при $d < 8$ нм были использованы экспериментальные значения T_{c0} для учета влияния изменения приведенной температуры T/T_c на R_s и λ в приближении двухжидкостной модели [21]. Видно, что резкое увеличение R_{eff} для пленок тоньше 8 нм может быть объяснено деградацией T_c .

Следует отметить, что происходящие с уменьшением толщины пленки до 9 нм изменения кристаллической структуры YBCO – усиление монодоменности в направлении оси c и уменьшение параметра орторомбичности более чем на 20% – не оказывают заметного влияния на транспортные характеристики образцов: критическую температуру, плотность критического тока,

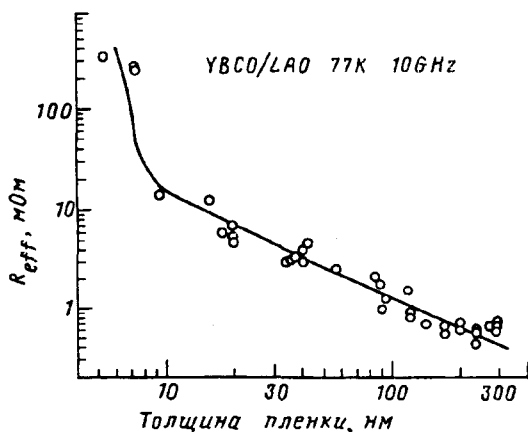


Рис.3. Зависимость эффективного поверхностного СВЧ сопротивления (77К, 10ГГц) R_{eff} от толщины пленки. Сплошная линия – расчет на основании формулы (1) при $R_s = 0.25$ мОм и $\lambda = 250$ нм с учетом зависимости R_s и λ от T_c .

удельную СВЧ проводимость. В дальнейшем авторы предполагают провести более детальные исследования отмеченной выше корреляции между изменением параметра орторомбичности решетки YBCO и деградацией сверхпроводимости пленок толщиной менее 10 нм.

Авторы признательны А.А.Андронову и А.С.Мельникову за ряд плодотворных дискуссий, а также Р.К.Белову за поддержку при проведении СВЧ экспериментов. Работа выполнена при частичной поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант 9302-3362), проекта "Интеграл" 95043 секции "Сверхпроводимость" госпрограммы "Актуальные направления в физике конденсированных сред" и гранта INTAS 943912.

1. T.Terashima, K.Shimura, Y.Bando et al., Phys. Rev. Lett. **67**, 1201 (1991).
2. C.Kwon, Li Qi, X.X.Xi et al., Appl. Phys. Lett. **57**, 1289 (1993).
3. H.Kohlstedt, J.Schubert, K.Herrmann et al., Supercond. Sci. Technol. **6**, 246 (1993).
4. M.Z.Cieplak, S.Guha, S.Vadlamannati et al., Phys. Rev. B **50**, 12876 (1994).
5. M.Suzuki, N.Kawahara, H.Hoshizaki, and T.Imura, Jpn. J. Appl. Phys. **33**, 578 (1994).
6. И.С.Байков, А.И.Головашкин, Прикладная физика **1**, 22 (1995).
7. I.Bozovic, J.N.Eckstein, and G.F.Virshup, Physica C **235-240**, 178 (1994).
8. Р.К.Белов, А.В.Вагранов, Б.А.Володин и др., Письма в ЖТФ **20**, 1 (1994).
9. A.Kuhle, J.L.Skov, S.Hjorth et al., Appl. Phys. Lett. **64**, 3178 (1994). S.D.Harkness and R.K.Singh, J. Appl. Phys. **75** (1994).
10. Yu.N.Nozdryn, P.P.Visheslavtzev, I.D.Tokman, and I.M.Gordion, IEEE Trans. on Appl. Supercond. **5**, 1424 (1995).
11. R.C.Taber, Rev. Sci. Instrum. **61**, 2200 (1991).
12. А.Я.Басович, Р.К.Белов, В.А.Маркелов et al., J. Supercond. **5**, 1614 (1992).
13. Г.Ф.Кузнецов, Кристаллография **40**, 936 (1995).
14. K.Yvon and M.Francois, Z.Phys. B **76**, 414 (1989).
15. Ю.А.Осипьян, Н.С.Афоникова, Г.А.Емельченко и др., Письма в ЖЭТФ **46**, 189 (1987).
16. K.Kamigaki, H.Terauchi, T.Kerashima et al., Physica C **159**, 505 (1989).
17. N.Klein, H.Chaloupka, G.Muller et al., J. Appl. Phys. **67**, 6940 (1990).
18. В.В.Таланов (неопубликовано).
19. N.Newman and W.G.Lyons, J. Supercond. **6**, 119 (1993).
20. J.P.Turneaure, J.Halbritter, and H.A.Schwettman, J. Supercond. **4**, 341 (1991).
21. В.В.Шмидт, Введение в физику сверхпроводников, М.: Наука, 1982.