

АНИЗОТРОПИЯ ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНОЙ СВЕРХПРОВОДИМОСТИ В ПЛОСКОСТИ (100) ПЛЕНКИ $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$

© 2022 г. Е. А. Степанцов^{1,*}¹ Институт кристаллографии им. А.В. Шубникова ФНИЦ “Кристаллография и фотоника” РАН, Москва, Россия*E-mail: stepantsov@crys.ras.ru

Поступила в редакцию 29.05.2021 г.

После доработки 16.08.2021 г.

Принята к публикации 23.08.2021 г.

На кристаллографической плоскости (100) кристалла SrLaGaO_4 методом лазерного импульсного осаждения выращена пленка высокотемпературного сверхпроводника $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$. В результате рентгенодифракционного исследования установлено, что данная пленка является монокристаллической, монокристаллической, монокристаллической и ориентированной по плоскости (100). При этом температура перехода в сверхпроводящее состояние достигала 88.8 К, а его ширина — 1.6 К. Измерение зависимости электрического сопротивления от температуры в данных пленках выявило заметную анизотропию сверхпроводимости в плоскости (100). Это проявилось в том, что критическая температура перехода в сверхпроводящее состояние при измерении температурной зависимости сопротивления в плоскости пленки в направлении, параллельном CuO -плоскостям, оказалась на 2 К выше, чем критическая температура при таком же измерении в направлении, перпендикулярном данным плоскостям. Кроме того, при проведении измерений выявлено, что в первом случае нормальное сопротивление примерно в 400 раз меньше, чем во втором.

DOI: 10.31857/S0023476122030213

ВВЕДЕНИЕ

Сверхпроводимость как явление вызывает повышенный интерес более ста лет. В 1986 г. открыта высокотемпературная сверхпроводимость в материалах на основе оксида меди [1]. В дальнейшем были синтезированы соединения с температурами перехода в сверхпроводящее состояние вплоть до 138 К [2]. Наибольшее практическое применение по ряду причин находит $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ (YBCO). В основном этот материал используется в виде тонких пленок для разработки приборов криогенной электроники [3]. Такие пленки ввиду относительной технологической простоты традиционно выращиваются c -ориентированными [4], т.е. параллельными кристаллографической плоскости (001), однако в последнее время появился значительный интерес к выращиванию пленок YBCO ориентации (100) [5–12]. Обусловлено это их более высокой перспективностью по сравнению с c -ориентированными пленками при создании ряда квантовых приборов, например, джозефсоновских переходов типа сэндвич, вследствие того, что длина когерентности в направлении, перпендикулярных оси c , значительно выше (~1.5–2.0 нм), чем вдоль нее (~0.2–0.3 нм) [13, 14]. Подробно исследовались в таких пленках уменьшение и исчезновение c -ориентированных доменов, например, в зависимости от условий их

получения [5, 14]. В [15] продемонстрировано выращивание пленок YBCO ориентации (100), было показано, что они не только монокристаллические, но и монокристаллические, поэтому не содержат сетки структурных двойников, как это имеет место в c -ориентированных пленках YBCO [4]. На пленках ориентации (100) измерены зависимости нормального сопротивления от температуры с регистрацией перехода в сверхпроводящее состояние [16]. Однако эти измерения выполнялись в произвольном направлении в плоскости пленки, т.е. анизотропия данной зависимости не изучалась. Попытка привязать зависимость нормального сопротивления от температуры к кристаллографическим осям на плоскости (100) пленки YBCO осуществлена в [17]. Было установлено, что нормальное сопротивление, измеренное в направлении, параллельном оси c , примерно в 100 раз больше, чем при измерении в направлении оси [010], вплоть до температуры перехода в сверхпроводящее состояние. Таким образом, в плоскости (100) пленки YBCO была выявлена резкая анизотропия нормального сопротивления — свойство, тесно связанное с высокотемпературной сверхпроводимостью, но не относящееся к ней непосредственно.

Попытки изучения анизотропии характеристик собственно высокотемпературной сверхпроводимости

мости предпринимались в [18, 19]. Оценивалась величина критического тока в сверхпроводящих микромостиках, пересекающих бикристаллическую границу в пленках YBCO, выращенных на бикристаллических подложках. При этом данные границы в пленках и подложках последовательно разворачивались от образца к образцу на различные углы с шагом в 5° в диапазоне от 0° до 90° относительно кристаллографических направлений в пленках. Было обнаружено, что в зависимости от кристаллографической ориентации бикристаллических границ величина критического тока менялась в 4 раза, т.е. была выявлена довольно сильная анизотропия одной из основных характеристик сверхпроводимости. Однако такие исследования проводились только в *c*-ориентированных пленках YBCO, т.е. анизотропия сверхпроводимости изучалась только в плоскости, параллельной CuO-плоскостям.

В [20] проведено сопоставление характеристик высокотемпературной сверхпроводимости, измеренных в направлениях, параллельном и перпендикулярном CuO-плоскостям. При исследовании объемных монокристаллов YBCO обнаружено смещение сверхпроводящего перехода в область низких температур в случае, когда ток протекал перпендикулярно CuO-плоскостям. Привязка данных характеристик к кристаллографическим направлениям в самих CuO-плоскостях не проводилась. Кроме того, исследования в [20] проводились на материале со значительным дефицитом по кислороду.

В настоящей работе предпринята попытка выявить анизотропию сверхпроводимости при сопоставлении критических температур, соответствующих кристаллографическим направлениям [010] и [001], в пленках YBCO ориентации (100). Материал выбирался оптимально насыщенным кислородом – до такой степени, при которой величины температур достигают наибольших значений, что соответствует требованиям использования таких пленок в области криогенной электроники.

ПРИГОТОВЛЕНИЕ ОБРАЗЦОВ И ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ МЕТОДИКИ

Из кристаллов SrLaGaO₄ (SLGO), полученных в заводских условиях по методу Чохральского, изготовлены подложки кристаллографической ориентации (100) и размером $0.5 \times 5 \times 5$ мм³. При этом одна из боковых граней ориентирована параллельно кристаллографической плоскости (001), а другая – параллельно (010).

Выращивание пленок на подложках проводилось в два этапа. Сначала на поверхность подложки наносился тонкий, ~60 нм, буферный слой PrBa₂Cu₃O₇ (PBCO), далее поверх него осуществ-

лялся рост основной пленки YBCO. Буферный слой выращивался методом высокочастотного магнетронного распыления. Для этого использовалась мишень стехиометрического состава PBCO в виде диска диаметром 65 мм и толщиной 4 мм. В камеру установки напускалась газовая смесь из кислорода и аргона в соотношении 1 : 4 до давления 0.1 мбар. Расстояние между подложкой и мишенью устанавливалось в 30 мм. Подложка нагревалась до температуры ~660°C. Между мишенью и подложкой с помощью магнетрона зажигался и поддерживался высокочастотный разряд мощностью 50 Вт. Процесс осаждения пленки проводился при непрерывном повышении температуры подложки до 830°C в течение 40 мин и далее еще 15 мин изотермически при этой температуре. По окончании разряда камера заполнялась чистым кислородом до давления 600 мбар, в котором подложка с пленкой PBCO отжигалась в течение одного часа при 550°C и далее охлаждалась до комнатной температуры. После этого камера высокочастотного распыления откачивалась до давления ~10⁻⁸ мбар. При таком остаточном давлении подложка с буферной пленкой перемещалась через вакуумный транспортный коридор в камеру лазерного импульсного осаждения, где на ней выращивалась основная пленка YBCO. Для этого использовалось УФ-излучение KrF эксимерного лазера частотой 10 Гц с длиной волны 248 нм. Облучению лазерными импульсами подвергалась керамическая мишень в виде таблетки диаметром 65 и толщиной 4 мм состава YBCO. В результате облучения в окрестности поверхности мишени образовывался плазменный факел. У его вершины заблаговременно размещалась подложка с буферной пленкой из PBCO. Ее температура поддерживалась на уровне 810°C. Процесс проводился в атмосфере кислорода при давлении 0.4 мбар. По окончании осаждения камера заполнялась чистым кислородом до давления 600 мбар, в котором подложка с пленкой отжигалась в течение одного часа при 550°C и далее охлаждалась до комнатной температуры.

Структура выращенных пленок изучалась на четырехкружном рентгеновском дифрактометре (Philips X'Pert). Использовалось рентгеновское излучение от трубки с медным анодом ($\lambda = 0.154$ нм), отфильтрованное в монохроматоре $4 \times \text{Ge}(220)$, выполненном по схеме Бартельса. Применялись две методики рентгенодифракционного исследования. Первая представляла собой θ – 2θ -сканирование в положении, при котором плоскость падения и отражения рентгеновских лучей перпендикулярна поверхности пленки. Согласно второй методике, представлявшей собой φ -сканирование, рентгеновская трубка и детектор выставлялись поочередно в брэгговское положение по отношению к кристаллографической грани (206) пленки и (101) подложки. Плоскости падения и

отражения рентгеновского луча придавали наклон по отношению к поверхности образца на углы, при которых эти грани оказывались перпендикулярными данной плоскости. При этом подложка поворачивалась вокруг нормали к ней на угол φ , изменявшийся от 0° до 360° с шагом 0.5° .

В обеих методиках для повышения эффективности выявления в выращиваемых пленках доменов посторонних ориентаций распыляемого материала или включений иных фаз рентгеновский пучок покрывал как минимум 50% поверхности исследуемых образцов. С той же целью длительность экспозиции на каждом шаге сканирования выбиралась максимально возможной и составляла 100 с. На всех графиках данные по интенсивности рентгеновских отражений представлялись в логарифмических координатах с тем, чтобы сделать более выразительными слабые пики.

Исследование зависимостей сопротивления пленки YBCO от температуры проводилось по четырехточечной методике для того, чтобы избежать влияния контактного сопротивления на результаты измерения. Для этого через металлическую маску на пленку высокотемпературного сверхпроводника по углам образца напылялись медные контактные площадки в виде кружочков диаметром 0.5 мм. К ним припаивались тонкие медные проволоки, соединявшие эти площадки с измерительным стендом. Охлаждение образцов осуществлялось погружением их в жидкий азот с предварительным размещением в вакуумированной стальной капсуле, снабженной внутренним нагревателем. Ток, величина которого во всех измерениях поддерживалась на постоянном уровне, пропускаться через контактные площадки, прилегающие к одной боковой грани образца, а величина напряжения измерялась на оставшихся двух контактных площадках, расположенных у его противоположной стороны. Делением величины напряжения на величину тока получалось значение сопротивления, соответствующее температуре и кристаллографическому направлению в пленке, параллельному боковой грани образца, вдоль которой пропускаться ток.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

На рис. 1 представлен график рентгеновского θ - 2θ -сканирования, снятого от пленки YBCO, выращенной на подложке SLGO ориентации (100) лазерным импульсным осаждением с буферным слоем PBCO, предварительно осажденным методом высокочастотного магнетронного распыления. Видно, что при $2\theta = 22.69^\circ$ и 22.81° наблюдаются два рентгеновских пика, соответствующие отражениям (100) PBCO буферного слоя и (100) YBCO основной пленки высокотемпературного сверхпроводника. В области больших значений углов 2θ присутствуют пики (200)

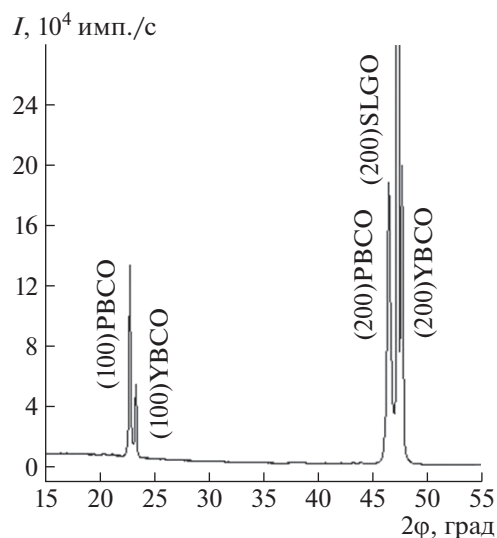


Рис. 1. График θ - 2θ -сканирования пленки высокотемпературного сверхпроводника YBCO ориентации (100), выращенной на подложке SLGO той же ориентации.

PBCO при 46.34° и (200) YBCO при 47.56° , а также между ними – подложечный пик (200) SLGO при 47.28° .

Других пиков на рентгеновской кривой не наблюдается, в том числе при $2\theta = 38.4^\circ$, которое должно соответствовать отражению пятого порядка от плоскости c , (005), обоих слоев пленки. Это свидетельствует о том, что в выращенных пленках отсутствуют включения посторонних фаз и кристаллографических ориентаций, даже соответствующих базисной плоскости, которая по параметрам кристаллической решетки наиболее близка для роста на данных подложках. Основной вывод состоит в том, что кристаллографические оси [100] подложки и обоих слоев пленки строго параллельны друг другу.

Результаты рентгеновского φ -сканирования образца с пленкой (100) YBCO представлены на рис. 2. Установлено, что кривая 1, соответствующая пленке, и кривая 2, относящаяся к подложке, содержат по два пика, отстоящие друг от друга на 180° . При этом пики пленки никак не смещены относительно пиков подложки, а расположены строго над ними. Для получения кривой, соответствующей подложке SLGO, использовалось отражение от плоскостей {101}, наклоненных к поверхности образца на 16.9° (в кристаллической решетке две такие плоскости). Для пленки YBCO с этой целью использовались плоскости {206}, наклоненные к поверхности на 68.1° , которых тоже две. Тот факт, что от пленки YBCO получается не более двух пиков, свидетельствует о том, что она не содержит нескольких частей, развернутых относительно нормали к поверхности, т.е. является

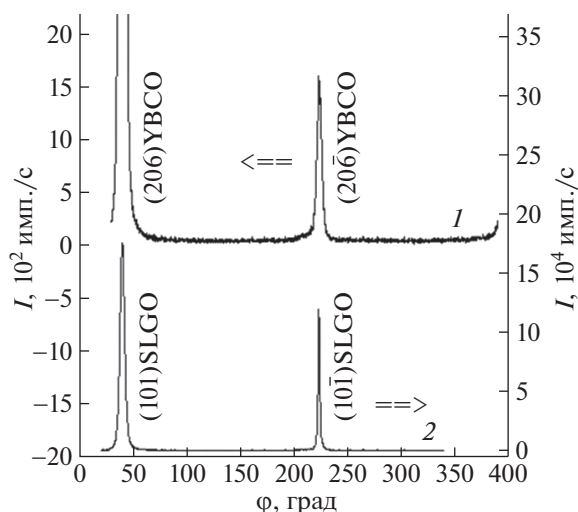


Рис. 2. График ϕ -сканирования пленки высокотемпературного сверхпроводника YBCO ориентации (100), выращенной на подложке SLGO той же ориентации. Рентгеновская трубка и детектор выставлены в брэгговское положение по отношению к плоскости (206) пленки (1) и (101) подложки (2).

монокристаллической и монокристаллической. Совпадение по положению пиков пленки и подложки, также как и основной вывод по результатам $\theta-2\theta$ -сканирования, отражает то, что кристаллические решетки пленки и подложки параллельны друг другу.

Зависимость сопротивления пленки (100) YBCO от температуры в области перехода в сверхпроводящее состояние, снятая при произвольном положении контактных площадок на поверхности пленки, приведена на рис. 3 (кривая 1). На том же

графике приведена гауссова по форме кривая 2, представляющая собой производную по температуре от кривой 1. Положение максимума пика этой производной соответствует критической температуре высокотемпературной сверхпроводимости данной пленки.

Если контактные площадки размещены строго по углам образца, то, прикладывая напряжение и измеряя ток попеременно вдоль его боковых граней, т.е. кристаллографических направлений [010] (b -ось) и [001] (c -ось), можно получить две зависимости сопротивления от температуры, соответствующие этим направлениям (рис. 4а). Из рисунка видно, что в диапазоне от комнатной температуры до перехода в сверхпроводящее состояние сопротивление, измеренное вдоль оси [010] (кривая 1), примерно в 400 раз больше, чем сопротивление, соответствующее оси [001] (кривая 2). Следовательно, электроны, пересекающие CuO -плоскости, испытывают существенно большее препятствие, чем носители заряда, перемещающиеся параллельно этим плоскостям. Поскольку различие в величинах сопротивлений очень велико, то для удобства их сопоставления обе зависимости представлены в логарифмических координатах. Для более детального представления переходов в сверхпроводящее состояние данные зависимости представлены на рис. 4б в пределах окрестностей критических температур. Из этих картин видно, насколько велика анизотропия сопротивления пленки (100) YBCO. На рис. 5 представлены производные по температуре таких зависимостей. Видно, что максимумы кривых, соответствующие критическим температурам перехода, не совпадают друг с другом. Отметим, что при протекании тока параллельно оси b ,

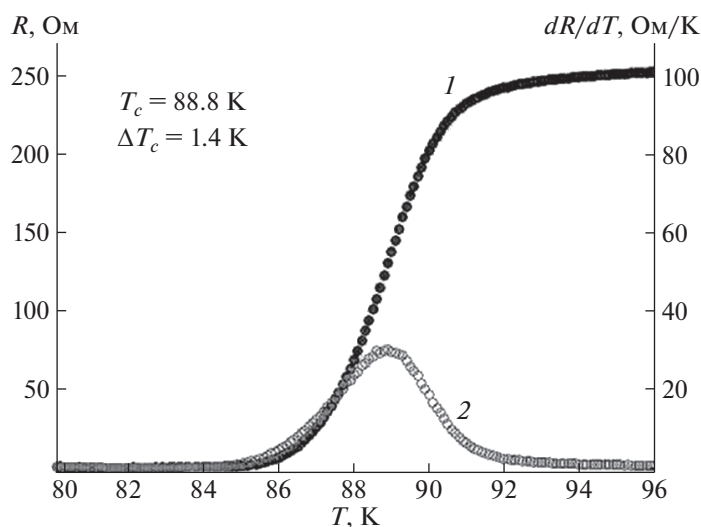


Рис. 3. Температурная зависимость нормального сопротивления в произвольном направлении пленки YBCO ориентации (100) (1) и ее производная по температуре (2).

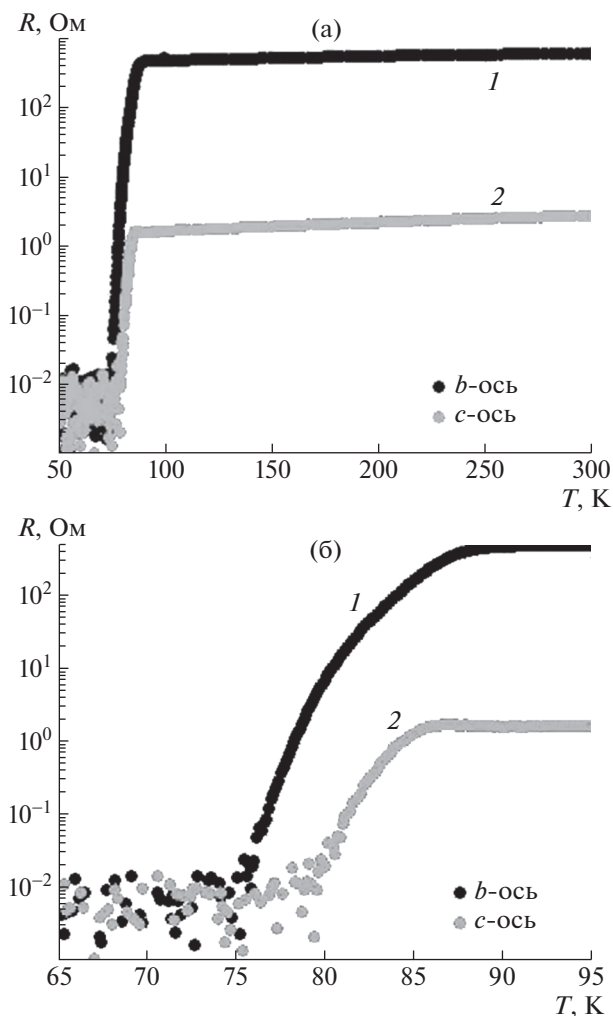


Рис. 4. Зависимость нормального сопротивления от температуры вдоль оси b (1) и в направлении, совпадающем с осью c и перпендикулярном CuO -плоскостям (2): а – в диапазоне температур 50–300 К, б – в окрестности температур переходов в сверхпроводящее состояние.

т.е. вдоль CuO -плоскостей (кривая 1), величина критической температуры на 2 К выше, чем при направлении тока, перпендикулярном CuO -плоскостям (кривая 2). Следовательно, одна из основных характеристик сверхпроводимости, а именно критическая температура, в случае a -ориентированной пленки высокотемпературного сверхпроводника (100) YBCO зависит от кристаллографического направления, т.е. является анизотропной. Иными словами, при пересечении носителями заряда CuO -плоскостей не только возрастает сопротивление по сравнению с другими направлениями в пленке, но даже переход в сверхпроводящее состояние понижается по температуре.

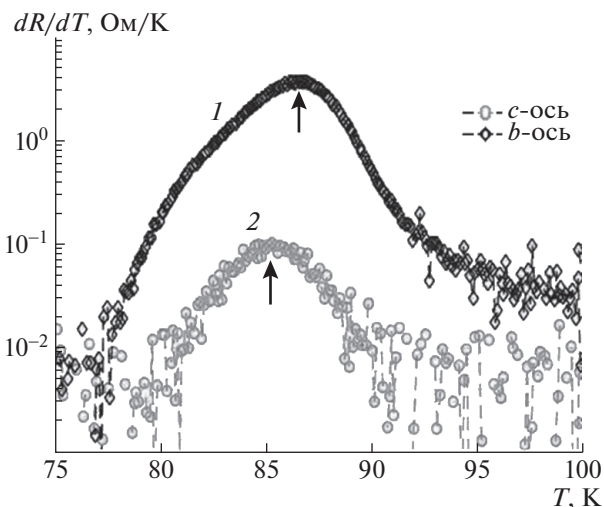


Рис. 5. Производные по температуре зависимостей нормального сопротивления от температуры вдоль оси b (1) и в направлении, перпендикулярном CuO -плоскостям (2), в окрестности переходов в сверхпроводящее состояние.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

На a -ориентированной монокристаллической и монокристаллической пленке высокотемпературного сверхпроводника (100) YBCO выявлена зависимость величины критической температуры перехода в сверхпроводящее состояние от кристаллографического направления в плоскости пленки, т.е. анизотропия сверхпроводимости. Продemonстрировано, что при протекании тока параллельно CuO -плоскостям величина критической температуры на 2 К выше, чем при его протекании в перпендикулярном направлении. Таким образом, при пересечении носителями заряда CuO -плоскостей переход в сверхпроводящее состояние понижается по температуре. В области температур, превышающих критическую, обнаружено, что нормальное сопротивление в направлении, перпендикулярном CuO -плоскостям, примерно в 400 раз больше, чем в направлении вдоль них, т.е. проявляется резкая анизотропия этого свойства.

Автор выражает благодарность главному научному сотруднику Физико-технологического института РАН А. Ломову за предоставление возможности проводить эксперименты на его оборудовании по осаждению тонких пленок и их литографической обработке, а также доктору физ.-мат. наук Р. Арпая за помощь в проведении электрофизических измерений.

Работа выполнена при поддержке Министерства науки и высшего образования Российской Федерации в рамках выполнения работ по Государственному заданию ФНИЦ “Кристаллография и фотоника” РАН.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Bednorz J.G., Muller K.A.* // *Z. Phys. B.* 1986. В. 64. С. 189.
<https://doi.org/10.1007/BF01303701>
2. *Bednorz J.G., Alex K.* // *Rev. Modern Phys.* 1988. V. 60. № 3. P. 585.
<https://doi.org/10.1103/RevModPhys.60.585>
3. *Dimos D., Chaudhari P., Mannhart J.* // *Phys. Rev. B.* 1990. V. 41. P. 4038.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.41.4038>
4. *Brorsson G., Olsson E., Ivanov Z.G. et al.* // *J. Appl. Phys.* 1994. V. 75. № 12. P. 7958.
<https://doi.org/10.1063/1.356557>
5. *Shingai Y., Mukaida M., Ichinose A. et al.* // *IEEE Trans. Appl. Supercond.* 2005. V. 15. № 2. P. 2935.
6. *Hontu S., Mukai N., Ishii J. et al.* // *Appl. Phys. Lett.* 1992. V. 61. № 9. P. 1134.
7. *Mukaida M., Miyazawa S.* // *Appl. Phys. Lett.* 1993. V. 63. № 7. P. 999.
<https://doi.org/10.1063/1.109819>
8. *Suzuki Y., Lew D., Marshall A.F. et al.* // *Phys. Rev. B.* 1997. V. 48. № 14. P. 10642.
9. *Mukaida M.* // *Jpn. J. Appl. Phys. B.* 1997. V. 36. № 6. P. L767.
10. *Ha D.H., Park Y.K., Park J.C.* // *Jpn. J. Appl. Phys. B.* 1994. V. 33. № 11. P. L1588.
11. *Sung G.Y., Suh J.D.* // *Appl. Phys. Lett.* 1995. V. 67. № 8. P. 1145.
12. *Saini S., Takamura M., Mukaida M. et al.* // *IEEE Trans. Appl. Supercond.* 2011. V. 21. № 3. P. 602.
13. *Worthington T.K., Gallagher W.J., Dinger T.R.* // *Phys. Rev. Lett.* 1987. V. 59. P. 1160.
14. *Wu P.J., Zheng D.N., Chen L. et al.* // *Supercond. Sci. Technol.* 2001. V. 14. P. 229.
15. *Степанцов Е.А., Арнайя Р., Ломбарди Ф.* // *Кристаллография.* 2015. Т. 60. № 3. С. 440.
<https://doi.org/10.7868/S0023476115030212>
16. *Степанцов Е.А., Арнайя Р., Ломбарди Ф.* // *Кристаллография.* 2017. Т. 62. № 1. С. 120.
<https://doi.org/10.7868/S0023476117010258>
17. *Baghdadi R., Arpaia R., Stepantsov E.A. et al.* // *Phys. Rev. B.* 2017. V. 95. P. 184505.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.95.184505>
18. *Ivanov Z.G., Stepantsov E.A., Wenger F. et al.* // *Czech. J. Phys.* 1996. V. 46. Part S3. P. 1311.
19. *Ivanov Z.G., Stepantsov E.A., Claeson T. et al.* // *Phys. Rev. B.* 1998. V. 57. № 1. P. 602.
20. *Зверев В.Н., Шовкун Д.В., Науменко И.Г.* // *Письма в ЖЭТФ.* 1998. Т. 68. № 4. С. 309.
<https://doi.org/10.1134/1.567869>