

Elektrotechnický ústav Slovenskej akadémie vied

Mgr. Zsolt Ószi

autoreferát dizertačnej práce

**Slaboviazané supravodivé spoje na báze tenkých
supravodivých vrstiev $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$**

Na získanie vedecko-akademickej hodnosti philosophiae doctor
v odbore 11-22-9 Fyzika kondenzovaných látok a akustika

Bratislava

Jún 2005

Dizertačná práca bola vypracovaná v rámci dennej formy doktorandského štúdia na Elektrotechnickom ústave SAV Bratislava

Predkladateľ: Mgr. Zsolt Ószi
Elektrotechnický ústav SAV
Dúbravská cesta 9
841 04 Bratislava

Školiteľ: RNDr. Štefan Beňačka, CSc.

Oponenti: Prof. Ing. Rudolf Durný, DrSc.
FEI STU, Bratislava

RNDr. Jan Koláček, CSc.
FzÚ AV ČR, Praha 6

Prof. RNDr. Peter Kúš, DrSc.
FMFI UK, Bratislava

Autoreferát bol rozoslaný dňa:

Obhajoba dizertačnej práce sa koná dňa:..... ohod.
pred komisiou pre obhajobu dizertačnej práce v odbore
doktorandského štúdia, vymenovanou predsedom spoločnej odbornej komisie
dňa

11-22-9 Fyzika kondenzovaných látok a akustika špecializácia: na
Elektrotechnickom ústave SAV, Dúbravská cesta 9, Bratislava

Predseda spoločnej odbornej komisie:
prof. RNDr. Viktor Bezák, DrSc.
Fakulta matematiky, fyziky a informatiky
Univerzita Komenského
Mlynská dolina F2
841 04 Bratislava

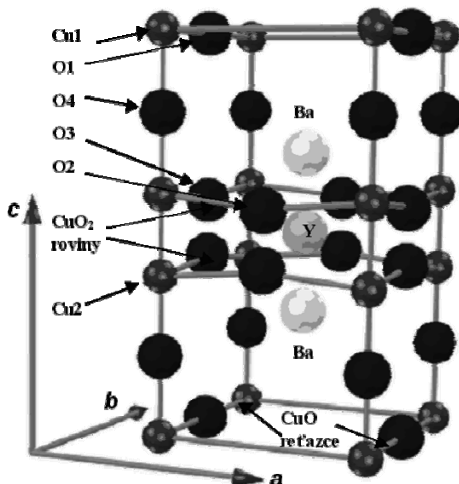
1. Úvod

Objavom vysokoteplotných supravodičov (VTS), s kritickou teplotou T_c vyššou ako bod varu kvapalného dusíka (77 K), sa naskytla možnosť nielen novej fyzikálnej interpretácie supravodivosti, (oproti BCS teórie, podľa ktorej maximálna $T_c \approx 30$ K) ale aj ich značne širšieho praktického využitia v oblasti slaboprúdovej (kryoelektronika), či silnoprúdovej (elektrotechnika) supravodivosti. Vysokoteplotné supravodivé materiály boli spočiatku pripravované vo forme polykryštalických objemových tabletiiek s náhodne orientovanými kryštálmi. Medzikryštalické hranice majú charakter slabých spojov a v dôsledku toho majú celkovo nízku hodnotu kritickej prúdovej hustoty ($J_c \approx 10^2 - 10^3$ A/cm² pri pracovnej teplote $T = 77$ K). Tento nedostatok možno odstrániť prípravou epitaxných tenkých vrstiev ($J_c \approx 10^7$ A/cm² pri $T = 77$ K), v ktorých, pri použití vhodnej monokryštalickej podložky (LaAlO₃, SrTiO₃) môžeme vylúčiť náhodné slabé spoje a realizovať ich lokalizovanie vhodnou formou technologického postupu na požadovanom mieste substrátu. Slabé spoje s Josephsonovskými efektmi sú veľmi vhodné pre fyzikálnu interpretáciu transportu Cooperových párov vo VTS, a možno ich využiť na prípravu kryoelektronických obvodov pre rôzne aplikácie. V prípade klasických supravodičov boli dobre zvládnuté mikroobvodové technológie prípravy planárnych štruktúr supravodič/izolátor/supravodič (SIS) na báze supravodivých tenkých vrstiev Nb. Pri týchto typoch štruktúr bola dosiahnutá veľmi dobrá reprodukovateľnosť a dlhodobá stálosť ich vlastností.

Cieľom tejto dizertácie bolo hľadanie vhodného postupu prípravy slaboviazaného supravodivého spoja (SVSS) na báze tenkých vrstiev vysokoteplotného supravodiča YBa₂Cu₃O_x (YBCO) a charakterizovanie vlastností pripravených SVSS s perspektívou ich využitia vo vhodných aplikáciách (SQUIDy, detektory, prijímače žiarenia a pod).

2. Súčasný stav

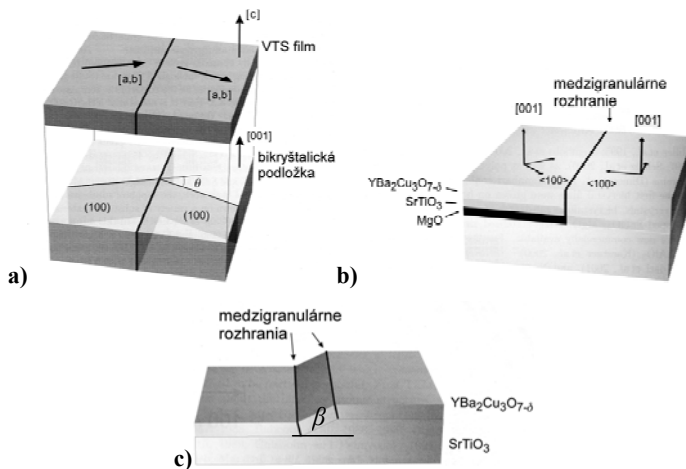
Špecifické vlastnosti VTS neumožňujú použiť na prípravu josephsonovských štruktúr technologické postupy zvládnuté pre klasické supravodiče. Hlavnou príčinou je, že sú to multikomponentné oxidy, a ich malá koherenčná dĺžka, 2D supravodivosť v CuO_2 rovinách (Obr. 1), anizotropia energetickej medzery, a pod. vyžadujú nové prístupy prípravy SVSS.



Obr. 1 Elementárna bunka ortorombickej (supravodivej) štruktúry $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$. Transport Cooperových párov v SVSS je výhodný v smere a (resp. b)

Na vytvorenie napr. planárneho tunelového josephsonovského spoja je potrebné pripraviť kvalitnú epitaxnú (t.j. pri relatívne vysokej teplote ~ 800 °C) tunelovú bariéru s hrúbkou 1 – 2 nm, čo je dosiaľ nevyriešený technologický problém. SVSS na tenkých vrstvách VTS sa preto dosiaľ pripravujú hlavne na báze poznatku, že kryštalografické rozorientovanie vrstvy (bikryštál) silne potláča kritickú prúdovú hustotu J_c (exponenciálne s uhlom rozorientácie θ)

okolo osi c) a tým umožňuje lokálne vytvoriť slabú supravodivú väzbu s josephsonovskými efektmi. Takto sú dnes pripravované slaboviazané spoje na bikryštalických (Obr. 2a) ($\theta \approx 24^\circ, 36^\circ$), biepitaxných podložkách (Obr. 2b) ($\theta \approx 45^\circ$), stupienkoch (Obr. 2c) (step edge junctions $\beta > 45^\circ$) a pod.



Obr. 1 Realizácia SVSS na medzigranulárnych rozhraniach a) na bikryštalickej podložke b) na biepitaxnej podložke c) na stupienku v podložke

V súčasnosti sa tiež veľmi aktívne riešia problémy prípravy SVSS hľadaním vhodného technologického postupu prípravy tunelovej bariéry s tunelovaním v smere väčšej koherenčnej dĺžky, teda v smere osi a (resp. b), čo v prípade c -orientovaných vrstiev znamená realizáciu SVSS na šikmej ploche (ramp-type junction). Malá koherenčná dĺžka $\xi(0) \approx 1 - 2$ nm, vyžaduje extrémne ostré rozhranie medzi supravodičom a tunelovou bariérou (SIS), resp. nesupravodivou medzivrstvou (SNS). Tu sú kladené najväčšie požiadavky na epitaxiu tenkých vrstiev, vrátane bariéry. SVSS na šikmej ploche s YBCO elektródami a nesupravodivou PrBa₂Cu₃O_y (PBCO) bariérou boli prvý krát publikované Gaom et al.[1]. Neskoršie miesto PBCO boli použité aj iné

epitaxné oxidové bariéry. Moeckly a Char pri príprave SVSS namiesto depozície zvolili novú metódu na vytváranie bariérovej vrstvy [2]. Základom myšlienky bolo vyrobiť tenkú vysoko homogénnu bariéru s úpravou vlastností povrchu šikmej plochy spodnej supravodivej elektródy dopadajúcimi iónmi. Keďže tento postup sa zdá byť vhodný aj pre zložitejšie štruktúry, rozhodli sme sa ísť týmto smerom.

3. Ciele dizertačnej práce

Na základe štúdia dostupnej literatúry, technologických a experimentálnych možností na EIÚ SAV sme ciele dizertačnej práce stanovili nasledovne:

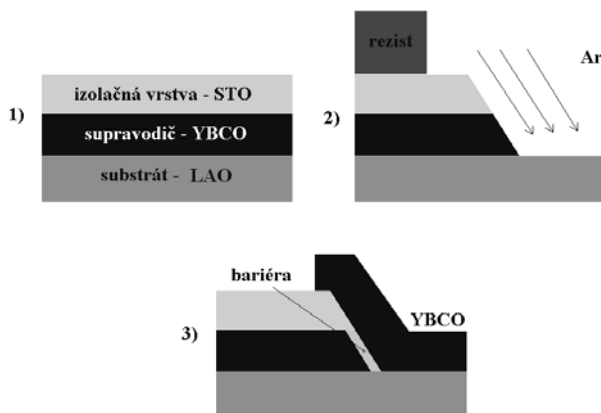
1. Návrh a príprava slaboviazaných supravodivých spojov na báze *c*-orientovaných tenkých vrstiev YBCO pripravovaných DC magnetronovým naprašovaním. Tvarovanie mikroštruktúr a vytvorenie bariéry urýchlenými Ar iónmi (modifikácia vlastností interfejsu).
2. Prešetrenie vplyvu interakcie iónov so šikmo vytvarovaným povrchom tenkej vrstvy VTS s cieľom modifikovať vlastnosti povrchu supravodivej vrstvy (v literatúre nazvané interface engineering) pre získanie slaboviazanej supravodivej štruktúry. Po nanesení hornej supravodivej vrstvy charakterizovať transportné vlastnosti získanej slaboviazanej štruktúry supravodič/bariéra/supravodič.
3. Preštudovanie a interpretácia elektrických a magnetických vlastností slaboviazaných supravodivých spojov:
 - Meraniami volt-ampérových charakteristík,
 - Meraniami pripravených spojov v magnetickom a mikrovlnnom poli,
 - Meraniami kritického prúdu v závislosti od teploty a magnetického poľa.

4. Zvolené metódy spracovania

Na Obr. 3 sú znázornené tri hlavné kroky prípravy tunelového spoja na šikmej ploche [a6,a7]:

V prvom kroku 1) bola nanosená *c*-orientovaná 200 nm hrubá YBCO spodná elektróda SVSS na podložku LaAlO₃ (LAO) a následne, v tom istom vákuovom cykle, bola pokrytá 200nm hrubou SrTiO₃ (STO) izolačnou vrstvou k zabráneniu tečenia prúdu v kolmom smere medzi dolnou a hornou elektródou.

V druhom kroku 2) bola v leptacom zariadení vytvarovaná šikmá plocha urýchlenými Ar iónmi. Na vymedzovanie častí na odleptanie sa používa optická fotolitografia. Bariéra je vytvorená amorfizáciou tenkého povrchu (1 – 2 nm) spodnej elektródy energiou iónov Ar [a8].



Obr. 3 Postup prípravy SVSS na šikmej ploche. Uhol šikmej plochy $\leq 20^\circ$, aby sa zabezpečil epitaxný, *c*-orientovaný rast hornej elektródy (YBCO)

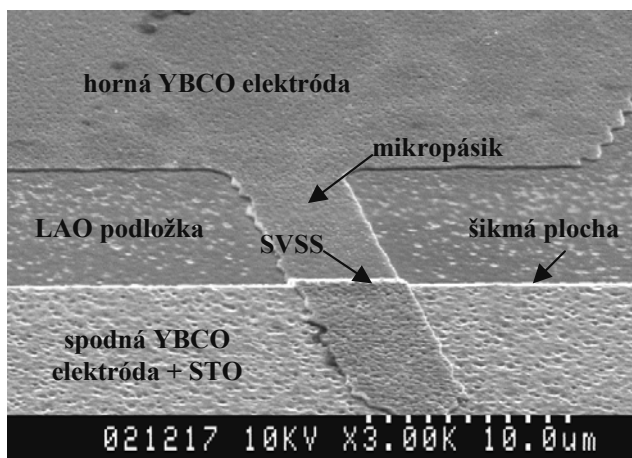
V následnom kroku bola nanosená horná epitaxná YBCO elektróda 200 nm hrubá, ktorá bola následne vytvarovaná 3) do podoby pásky šírky $4 < W < 20 \mu\text{m}$ (šírka pásky a hrúbka vrstvy definujú plochu tunelového spoja). Uhol šikmej plochy je $< 20^\circ$, a smer pásky je orientovaný v smere kryštalografických osí YBCO (a resp. b).

YBCO vrstvy boli nanášané jednosmerným magnetronovým naprašovaním a izolačná STO vrstva medzi spodnou a hornou elektródou bola nanosená striedavým magnetronovým naprašovaním na LAO monokryštalickú vyleštenú podložku. Na určenie vyleptaného tvaru bol použitý fotorezist Shipley SH1813 podľa odladených fotolitografických postupov.

Pri analýze elektrických vlastností SVSS boli sledované nasledovné vlastnosti pripravených štruktúr: teplotná závislosť odporu $R(T)$, volt-ampérové charakteristiky (VACH) pri teplotách nižších ako kritická teplota T_{c0} spoja, interakcia josephsonovského žiarenia s externým mikrovlnným poľom, teplotná závislosť kritického prúdu $I_c(T)$ a závislosť kritického prúdu od vonkajšieho magnetického poľa $I_c(B)$ [a9, a10, a11]. Všetky merania boli realizované jednosmerne v transportnej deware (bez magnetického tienenia) pre kvapalné hélium, v teplotnom intervale od 300 K po teplotu kvapalného hélia 4.2 K. Spoje boli kontaktované na štvorbodové meranie hliníkovým drôtom o priemere 25 μm na medený plošný spoj pomocou ultrazvukového kontaktovacieho zariadenia.

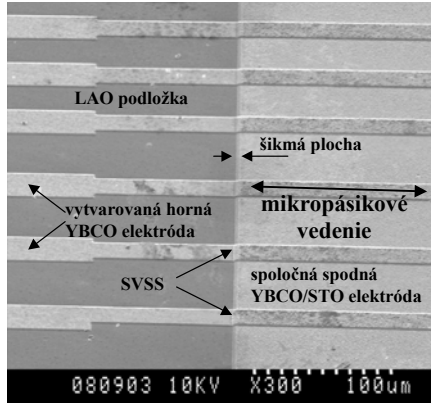
5. Hlavné výsledky dizertačnej práce

- Pre úspešnú prípravu SVSS bolo veľmi dôležité zvládnuť prípravu šikmej plochy do dvojvrstvy YBCO/STO. Šikmá plocha musí byť rovinná bez porúch so sklonom menším ako $\leq 20^\circ$, aby rast hornej elektródy bol tiež *c*-orientovaný. Pre tento účel sme navrhli a vyrobili špeciálny držiak vzorky do leptacieho zariadenia chladeného Peltierovými článkami a vodou.

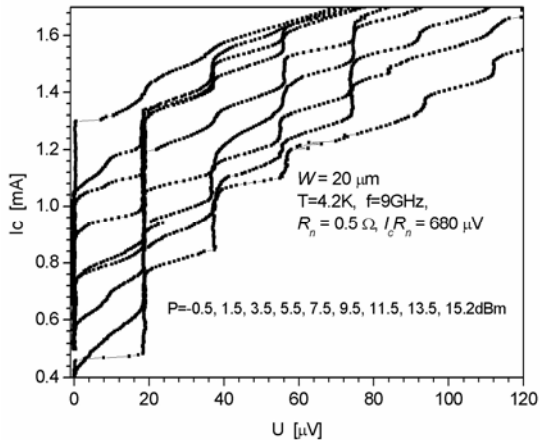


Obr. 4 Realizované SVSS na šikmej ploche, šírka spoja $W = 4 \mu\text{m}$

- Naše experimenty ukázali, že spôsob prípravy SVSS na šikmej ploche možno aplikovať okrem YBCO aj na iné supravodiče ako napr. MgB_2 na prípravu $\text{MgB}_2/\text{AlO}_x/\text{Nb}$ josephsonovských spojov [a7][a10].
- Pripravené SVSS boli spojené mikropásikovým vedením ktoré, umožnilo pripojenie vonkajšieho vlnovodu a privedenie vonkajšieho mikrovlnného žiarenia do miesta spoja. Z hľadiska aplikačného využitia SVSS v zložitejších obvodoch, mikropásikové vedenie spojené s josephsonovským spojom má veľký význam, ktorý umožní generované žiarenie priviesť do ďalších častí obvodu napr. do zmiešavača

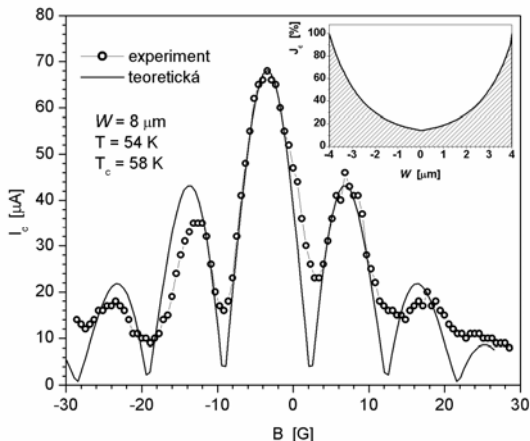


Obr. 5 Séria SVSS a mikropásikové vedenie (YBCO/STO/YBCO) medzi spodnou a hornou elektródou



Obr. 6 Shapirové prúdové stupienky v dôsledku interakcie josephsonovského žiarenia generovaného s vonkajším mikrovlnným žiarením. Amplitúda prúdových stupienkov osciluje ako funkcia úrovne mikrovlnného žiarenia P

- Ostré Shapirové prúdové stupienky vo VACH a závislosť kritickej prúdovej hustoty od vonkajšieho magnetického poľa $I_c(B)$ dokazujú josepsonovský charakter pripravených SVSS vhodných pre aplikačné využitie.



Obr. 7 Typická závislosť kritickeho prúdu SVSS od vonkajšieho magnetického poľa. Vložený obrázok predstavuje rozloženie prúdovej hustoty pre SVSS

- Pomer medzi josepsonovským a celkovým transportným prúdom I_{cJ}/I_c má blízko pod kritickou teplotou hodnotu $I_{cJ}/I_c \approx 0.8$, a s klesajúcou teplotou poklesne na hodnotu $I_{cJ}/I_c \approx 0.3$ pri teplote $T \approx 4.2$ K.
- Podľa veľkosti kritickej prúdovej hustoty SVSS môžeme deliť na spoje s vysokým kritickej prúdom $J_c > 80 \text{ kA/cm}^2$ a spoje s menším kritickej prúdom $J_c \leq 40 \text{ kA/cm}^2$ pri teplote $T = 4.2$ K. Spoje s vyšším J_c majú kritickej teplotu $T_c \approx 80$ K a môžu pracovať v kvapalnom dusíku kde ich charakterizujeme ako SNS spoje [3].
- Dosiahnuté výsledky ukázali možnosť prípravy SVSS popísaným postupom. Pripravené štruktúry majú základné vlastnosti josepsonovských javov.

6. Závery pre prax a ďalší rozvoj vednej disciplíny

Príprava a štúdium elektrických vlastností SVSS na báze VTS má prínos pre aplikačné využitie v magnetometroch (SQUID-och), v zmiešavačoch v napäťových normáloch, atď. pracujúcich pri teplote kvapalného dusíka ale tak isto môže prispieť do základného výskumu pri objasnení fyzikálnych vlastností VTS materiálov ako napríklad *d*-vlnová symetria v týchto supravodičoch.

Kľúčovým technologickým krokom prípravy týchto SVSS je vytvarovanie rovinatej šikmej plochy bez porúch s urýchlenými Ar iónmi a následne príprava bariérovej vrstvy, ktoré sme úspešne zvládli v priebehu riešenia úloh dizertačnej práci. V práci odladený technologický postup prípravy SVSS na šikmej ploche vytvarovanej do tenkej vrstvy YBCO je možné aplikovať aj na iné supravodiče s anizotropiou, napr. MgB₂. Tento typ spoja umožňuje napr. kombinovať nízkoteplotný supravodič a VTS na štúdium *d*-vlnovej symetrie vo VTS [4].

Boli pripravené SVSS ktoré boli spojené s mikropásikovým vedením vytvarovaným medzi spodnou a hornou YBCO elektródou, súčasne pri príprave spoja. Také vysokofrekvenčné vedenie má veľký význam pri aplikačnom využití SVSS.

Pri zdokonaľovaní technológií prípravy SVSS boli pripravené spoje, ktoré pracovali v kvapalnom dusíku, čo je tiež veľmi významné z hľadiska aplikačného využitia týchto spojov.

7. Literatúra

- [1] J. Gao, W. A. M. Aarnik, G. J. Gerritsma, H. Rogalla, *Physica C* **171** (1990) 126
- [2] B. H. Moeckly and K. Char, *Appl. Phys. Lett.* **71** (1997) 2526
- [3] K. A. Delin and A. W. Kleinsasser, *IEEE Trans. Appl. Supercond.* **5** (1995) 2976
- [4] H. J. H. Smilde, Ariando, D. H. A. Blank, G. J. Gerritsma, H. Hilgenkamp, and H. Rogalla, *Phys. Rev. Lett.* **88** (2002) 057004

8. Zoznam prác dizertanta k skúmanej problematike

- [a1] Š. Beňačka, V. Štrbík., Zs. Ószi, I. Kostič, M. Darula, K. Karlovský: Resistance peak near the onset critical temperature in high- T_c superconductor-normal metal proximity contacts, 2nd COST P-5 Workshop on Mesoscopic Electronics, Papiernička, 28-30 Sept. 2000, Book of extended abstracts, p. 13
- [a2] Š. Beňačka, V. Štrbík., Zs. Ószi, M. Darula, I. Kostič, K. Karlovský: Resistance anomaly near superconducting-normal metal interface, *Acta Physica Slovaca* **50** (2000) 397
- [a3] Ószi Zs., V. Štrbík., Š. Beňačka, P. Kleja, Š. Chromik, K. Karlovský: Vplyv iónov na fyzikálne vlastnosti mikropásikov tenkých vrstiev vysokoteplotných supravodičov, Smolenice, 3-5 Sept. 2001, Zborník príspevkov 12. Konf. Slovenských Fyzikov, str. 113
- [a4] Zs. Ószi, Š. Beňačka, V. Štrbík, Š. Chromik, M. Španková, I. Kostič, P. Kleja: Properties of $YBa_2Cu_3O_x$ and $Bi_2Sr_2CaCu_2O_x$ thin film microstrips patterned by argon ion beam, *Thin Solid Films* **433** (2003) 359

- [a5] Š. Chromik, Š. Beňačka, Š. Gaži, V. Štrbík, Zs. Ószi, I. Kostič: Superconducting properties of MgB₂ thin films prepared by sequential deposition of boron and magnesium, *Vacuum* **69** (2001) 351
- [a6] Zs. Ószi, Š. Beňačka, M. Španková, Š. Chromik, I. Kostič: Preparation and properties of high-T_c superconducting thin film ramp-type junctions, EUCAS'03, Sorrento, Italy 14-18 Sept., 2003, Proc. of the 6th European Conference on Applied Superconductivity, p. 3093
- [a7] Š. Beňačka, Zs. Ószi, Š. Chromik, Š. Gaži, Štrbík V, I. Kostič: Ramp-type Josephson junctions prepared on superconducting MgB₂ thin films, EUCAS'03, Sorrento, Italy 14-18 Sept., 2003, Proc. of the 6th European Conference on Applied Superconductivity, p. 1362
- [a8] Zs. Ószi, Š. Beňačka, M. Španková, Š. Chromik: Tunelové spoje na šikmej hrane tenkých vrstiev vysokoteplotných supravodičov, Smolenice, .25-28. aug. 2003, Zborník príspevkov 13. Konf. Slovenských Fyzikov, str. 153
- [a9] Zs. Ószi, Š. Beňačka, M. Španková: High temperature superconducting thin film Josephson junctions, *Czech. J. Phys.* **54** (2004) D457
- [a10] Š. Beňačka, Zs. Ószi, Š. Chromik, Š. Gaži, V. Štrbík: MgB₂ ramp-type superconducting thin film Josephson junctions, *Czech. J. Phys.* **54** (2004) D485
- [a11] Zs. Ószi, Š. Beňačka, M. Španková: Magnetic field dependence of ramp-type Josephson junctions, *Measurement* 2005, Smolenice, May 15–19 2005

Summary

The aim of this work was to prepare and analyse the electrical properties of ramp-type Josephson junctions based on *c*-axis oriented YBa₂Cu₃O_x (YBCO) thin films. The 200 nm thick YBCO base electrode has been deposited by dc magnetron sputtering on a LaAl₂O₃ substrate and was covered by in-situ deposited 200 nm thick SrTiO₃ (STO) insulation layer. The STO layer has been deposited by rf magnetron sputtering. After the ramp patterning by accelerated Ar ion beam, using a photoresist mask, the top YBCO electrode was deposited at the same conditions as the first superconducting electrode.

The presence of the Josephson current in the transport current through the prepared junctions was confirmed by Shapiro current steps in the current-voltage characteristics when a microwave field was introduced into the junction. The microwave signal was introduced through a microwave line connected with the junction and formed from the bottom and top YBCO electrodes during the junction preparation. This microwave microstrip line is very important from the application point of view of these junctions.

The amount of the Josephson current, of the total transport current through the junction, can be estimated from the magnetic field dependence of the critical current $I_c(B)$ as the difference between the maximum and minimal $I_c(B)$ value. This value is increasing with decreasing temperature from 80% to 30% at the temperature 4.2 K. The shape of the external magnetic field dependence of junction critical current is periodic but different from the Fraunhofer like shape as a consequence of the nonuniform current density distribution along the junction barrier.

Majority of our Josephson junctions have critical temperatures above the temperature of liquid nitrogen. Consequently these junctions can be applied in superconducting circuits cooled with liquid nitrogen or with a cryocooler.