

# СВЕРХПРОВОДЯЩИЕ СЛАБЫЕ СВЯЗИ НА ГРАНИЦАХ ЗЕРЕН ДИБОРИДА МАГНИЯ

*М. А. Тарасов<sup>a\*</sup>, Е. А. Степанцов<sup>b</sup>, М. Найто<sup>c\*\*</sup>, А. Цукада<sup>c\*\*</sup>,  
Д. Винклер<sup>d\*\*</sup>, А. С. Калабухов<sup>d,e</sup>, М. Ю. Курьянов<sup>e</sup>*

<sup>a</sup> *Институт радиотехники и электроники Российской академии наук  
125009, Москва, Россия*

<sup>b</sup> *Институт кристаллографии Российской академии наук  
119333, Москва, Россия*

<sup>c</sup> *Department of Applied Physics, Tokyo University of Agriculture and Technology, 2-24-16, Naka-cho, Koganei  
184-8588, Tokyo, Japan*

<sup>d</sup> *Department of Microtechnology and Nanoscience, Chalmers University of Technology  
41296, Göteborg, Sweden*

<sup>e</sup> *Научно-исследовательский институт ядерной физики  
при Московском государственном университете им. М. В. Ломоносова  
119992, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 5 января 2007 г.

С целью исследования возможности создания бикристаллических джозефсоновских переходов и болометров на основе сверхпроводящего  $\text{MgB}_2$  созданы бикристаллические подложки из  $\text{MgO}$ . На подложках выращены эпитаксиальные бикристаллические пленки  $\text{MgB}_2$ . В них изготовлены микромосты шириной 0.85–6 мкм, пересекающие бикристаллическую границу. Установлено, что отжиг бикристаллических образцов в кислороде приводит к систематическому снижению критического тока, увеличению температурной ширины области перехода, улучшению формы вольт-амперной характеристики (ВАХ), которая становится близкой к форме ВАХ джозефсоновского перехода. Измерен отклик такого перехода на излучение на частоте 110 ГГц с амплитудой, достигающей 0.5 мВ.

PACS: 74.45.+c, 74.50.+g

## 1. ВВЕДЕНИЕ

В дибориде магния температура сверхпроводящего перехода составляет 39 К, что является наибольшим значением для соединений, не содержащих слоев окиси меди. Он является классическим сверхпроводником, подчиняющимся теории Бардина–Купера–Шриффера (БКШ) с относительно большой длиной когерентности  $\xi_c(0) \approx 2.5$  нм в направлении оси  $c$  и  $\xi_{ab}(0) \approx 10$  нм в плоскости  $ab$ . В высокотемпературном сверхпроводнике  $\text{YBaCuO}$  эти значения почти на порядок меньше:

$\xi_c(0) \approx 0.2\text{--}0.5$  нм и  $\xi_{ab}(0) \approx 1.5\text{--}3$  нм. Это различие оказывается весьма важным для изготовления однородных и воспроизводимых джозефсоновских переходов.

Значительный интерес к проблеме изготовления джозефсоновских структур на основе  $\text{MgB}_2$  обусловлен потенциально высокими значениями их характерного напряжения. Величина энергетической щели составляет  $\Delta_\sigma(0) \approx 2.09kT_c = 7.09$  мВ в  $\sigma$ -зоне и  $\Delta_\pi(0) \approx 0.8kT_c = 2.7$  мВ в  $\pi$ -зоне [1]. Эти значения щели соответствуют характерным частотам 3.5 ТГц и 1.3 ТГц, что существенно больше частотного ограничения в 700 ГГц для ниобиевых переходов.

До настоящего времени джозефсоновские структуры на основе  $\text{MgB}_2$  изготавливались в основном спо-

\*E-mail: tarasov@hitech.cplire.ru

\*\*M. Naito, A. Tsukada, D. Winkler

собами, не позволяющими воспроизводимо контролировать не только параметры переходов, но и места локализации слабой связи. К таким структурам относятся точечные контакты, переходы на дефектах, возникающих под воздействием механических напряжений (назовем их механическими дефектами, break junctions), а также структуры типа мостика переменной толщины, в которых слабое место образовывалось либо посредством ионной имплантации, либо на случайных дефектах, образующихся в процессе утончения части исходной пленки [2–11].

В более контролируемых структурах один из электродов являлся, как правило, низкотемпературным сверхпроводником (Nb, Al, NbN) [12–16]. И лишь относительно недавно появились сообщения о свойствах туннельных переходов  $\text{MgB}_2/\text{I}/\text{MgB}_2$ , в которых в качестве диэлектрической прослойки I использовались  $\text{AlO}_x$  [17], AlN [18, 19], MgO [20, 21].

К сожалению, достигнутые в этих работах параметры джозефсоновских переходов были далеки от оптимальных. Это обстоятельство побудило нас искать иные пути решения проблемы изготовления джозефсоновских структур  $\text{MgB}_2$  для высокочастотных применений.

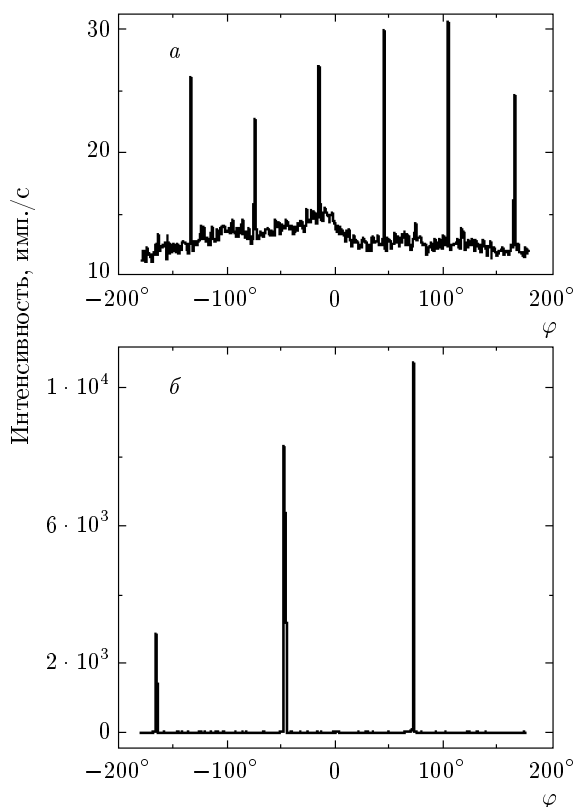
Для формирования слабой связи нами предложено выращивать пленку  $\text{MgB}_2$  на бикристаллической подложке из ориентированного в плоскости (111) оксида магния ( $\text{MgO}$  (111)). Расогласование постоянных решеток оксида магния в направлении  $\langle 110 \rangle$  ( $a = 0.298$  нм) и пленки  $\text{MgB}_2$  (001) в направлении  $\langle 110 \rangle$  ( $a = 0.308$  нм) составляет всего 3.4%. Поэтому при использовании такой бикристаллической подложки возможны рост высококачественных эпитаксиальных пленок диборида магния и, как следствие, возникновение в них искусственной межзеренной границы, пересекающей всю ширину пленки. Последующий отжиг такой структуры в кислороде должен сопровождаться его интенсивной диффузией вдоль искусственно созданной границы между пленками с образованием электроизолирующего слоя состава MgO или  $\text{V}_2\text{O}_5$ . Границы слоя  $\text{V}_2\text{O}_5$  толщиной 1–3 нм между зернами  $\text{MgB}_2$  наблюдались с помощью просвечивающего электронного микроскопа в работе [22]. Граница также может быть металлической состава  $\text{MgB}_2$  [23] или аморфной того же состава толщиной 5–20 нм, как это наблюдалось в работе [24]. Границы всех трех типов могут быть использованы для создания джозефсоновских переходов структуры сверхпроводник–изолятор–сверхпроводник (SIS) или сверхпроводник–нормальный металл–сверхпроводник (SNS).

## 2. МЕТОДИКА ИЗГОТОВЛЕНИЯ ОБРАЗЦОВ

Бикристаллические подложки MgO (111) изготавливали методом твердофазного сращивания [25]. Для этого два монокристалла MgO приводили в контакт по плоскостям  $[(110) - 13^\circ]$  и  $[(110) + 13^\circ]$  для одного типа бикристаллов и по плоскостям  $[(112) - 13^\circ]$  и  $[(112) + 13^\circ]$  для другого типа бикристаллов. В обеих конфигурациях плоскости (111) сращиваемых блоков были параллельны. В таком положении при сверхвысоком вакууме, нагреве и сжатии была проведена сварка. Бикристаллы разрезаны на подложки толщиной 0.5 мм параллельно плоскости (111) и отполированы. В результате были изготовлены бикристаллические подложки ориентации (111) с искусственной межзеренной границей, перпендикулярной поверхности, и с симметричным разворотом кристаллических решеток на  $13^\circ$  в противоположные стороны от нее. Граница составляла угол  $13^\circ$  с осями  $\langle 112 \rangle$  в первом типе подложек и с осями  $\langle 110 \rangle$  во втором типе. Для сравнения также были изготовлены монокристаллические подложки ориентации (111).

Пленки  $\text{MgB}_2$  выращивали методом термического испарения в сверхвысоковакуумной напылительной установке собственного изготовления (давление остаточных газов  $5 \cdot 10^{-10}$  Торр) из двух мишеней, из чистого магния и чистого бора, с использованием разных электронных пушек. Для контроля скорости испарения каждого элемента использована электронная эмиссионная спектрометрия (electron impact emission spectrometry, EIES). Температура подложки составляла  $280^\circ\text{C}$ , а скорость роста пленки — 0.38 нм/с. Для того чтобы компенсировать потери магния за счет перераспыления, скорость испарения магния по отношению к бору была в три раза выше, чем номинальная. Более подробно особенности выращивания пленок приведены в работе [26].

Гетероструктуры, состоящие из подложки MgO (111) и пленки  $\text{MgB}_2$  (001) были исследованы в четырехугольном рентгеновском дифрактометре X-Pert Philips. В качестве плоскости косого отражения рентгеновского излучения для подложки MgO (111) были выбраны плоскости типа (311). Для пленок использованы отражающие плоскости (112). Результаты измерений кривых рентгеновской дифракции при вращении образца вокруг нормали к поверхности ( $\varphi$ -scan) представлены на рис. 1. Как видно из рис. 1а, пики отражения от плоскостей (112) смещены на  $60^\circ$  по отношению к отражениям от плоскостей (311) подложки на рис. 1б. Это означает, что в пленках  $\text{MgB}_2$  (001) кристаллическая решетка эпитаксиально связана с решеткой подложки MgO



**Рис. 1.** Кривые рентгенодифрактометрического сканирования пленки  $MgB_2$  (001) и подложки из кристалла  $MgO$  (111), на которой она выращена, снятые при их вращении вокруг оси  $\langle 001 \rangle$  пленки и при установленном брэгговском положении системы источник–детектор: *a* — для плоскости пленки типа (112); *b* — для плоскости подложки типа (311)

(111). На межфазной плоскости направление  $\langle 110 \rangle$  в пленке параллельно направлению  $\langle 110 \rangle$  подложки.

Мостики длиной 6 мкм и шириной 6, 4, 1.5, 0.85 мкм, пересекающие искусственную межзеренную границу, были сформированы в пленке  $MgB_2$  методом сухого ионного травления. Каждый из мостиков был соединен с планарной антенной. На рис. 2 представлено оптическое изображение такой интегральной структуры с логопериодической антенной и бикристаллическим микромостиком в центре.

### 3. РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТОВ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Измеренные сразу после изготовления вольт-амперные характеристики (ВАХ) образцов имели критические токи от 1.5 до 10 мА и нормальное сопро-



**Рис. 2.** Оптическое изображение интегральной структуры, содержащей логопериодическую антенну и микромостик из  $MgB_2$ , пересекающий бикристаллическую границу в центре

тивление от 20 до 60 Ом. После этого было проведено несколько циклов отжига в атмосфере кислорода под давлением 800 мбар и при температуре 100, 200, 300, 450, 600 °С в течение 1 ч. Отжиг в кислороде пленок на бикристаллических подложках привел к систематическому снижению критического тока, расширению температурной области перехода, а также к трансформации формы ВАХ.

На рис. 3 представлены ВАХ структур, полученных в результате отжига при температуре 450 °С мостиков шириной 0.9 мкм, изготовленных на бикристаллической подложке ориентации  $\langle 110 \rangle$ , а также на монокристаллической подложке. Измерения проводились в интервале температур 4.2–30 К. На рис. 3*б* представлены ВАХ в зависимости от магнитного поля до 3.5 Тл при температуре 28 К. Видно, что в результате отжига кривые ВАХ приобрели форму, типичную для шунтированных джозефсоновских переходов. С понижением температуры на ВАХ возникает гистерезис. Для бикристаллического образца ориентации  $\langle 112 \rangle$  отжиг при температуре 600 °С привел к полному исчезновению критического тока, возрастанию сопротивления до 1 кОм для самого широкого (6 мкм) перехода и до бесконечности для остальных переходов.

Температурные зависимости критического тока для мостиков шириной 0.9 мкм на бикристаллической и монокристаллической подложках после отжига при температуре 600 °С в течение 1 ч приведены на рис. 4. Видно, что как абсолютные величины критических токов, так и их температурные зависимости существенно различаются. Это указывает на

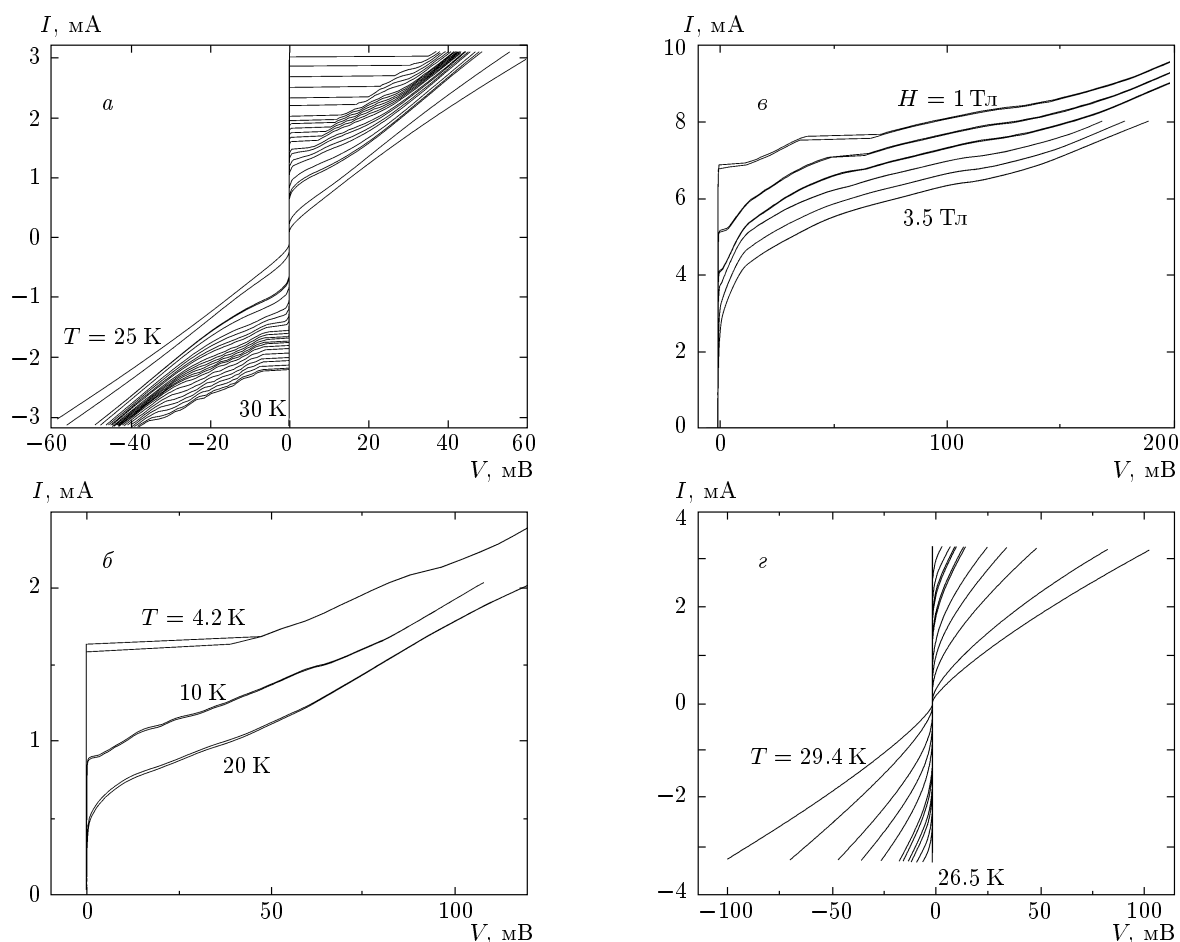


Рис. 3. ВАХ для бикристаллического мостика  $\text{MgB}_2$   $\langle 110 \rangle$  шириной 0.9 мкм, отожженного при  $450^\circ\text{C}$ , измеренные при температурах 25–30 К (а), 20, 10, 4.2 К (б), 28 К в магнитных полях 1, 1.5, 2, 2.5, 3, 3.5 Тл (в), а также ВАХ для отожженного монокристаллического мостика шириной 0.9 мкм при температурах 26.5–29.4 К (г)

то, что окисление искусственно созданной границы в  $\text{MgB}_2$  на бикристаллической подложке действительно протекает быстрее и приводит к возникновению в пленке слабого места, имеющего меньший критический ток, чем в остальных частях пленки.

На рис. 5 полученные нами температурные зависимости критического тока,  $I_c(T)$ , сравниваются с имеющимися теоретическими зависимостями, рассчитанными для туннельных SIS-структур [1] и двухбарьерных SINIS-структур [27] при туннелировании вдоль оси  $c$ . Здесь же представлены экспериментальные данные, полученные в структурах со слабой связью, на естественных границах в  $\text{MgB}_2$  [10] и механических дефектах [4, 5, 8], в структурах, образованных ионной имплантацией [3], травлением сфокусированным ионным пучком [2], а также в туннельных переходах  $\text{MgB}_2/\text{AlO}_x/\text{MgB}_2$  [17],  $\text{MgB}_2/\text{AlN}/\text{MgB}_2$  [18, 19].

Видно, что имеющиеся экспериментальные данные можно условно разбить на три группы. К первой из них принадлежат результаты работы [2]. Полученная в ней температурная зависимость имеет положительную кривизну, а наклон кривой в окрестности критической температуры заметно больше, чем для остальной совокупности данных. С нашей точки зрения, это обусловлено тем, что динамическое состояние в структурах, исследуемых в работе [2], образовывалось скорее из-за депиннинга абрикосовских вихрей, чем вследствие разрушения джозефсоновской связи.

Вторая группа результатов получена в переходах типа механических дефектов [4, 5, 8] и переходах  $\text{MgB}_2/\text{MgO}/\text{MgB}_2$  [20, 21]. Для этих данных характерна излишне большая (по сравнению с теоретическими кривыми) отрицательная кривизна зависимостей  $I_c(T)$ . Такое поведение кривых, по всей види-

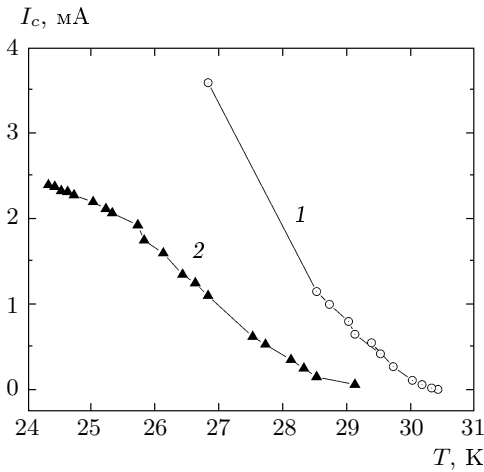


Рис. 4. Температурные зависимости критического тока мостиков шириной 0.9 мкм на монокристаллической (1) и бикристаллической (2) подложках после отжига

мости, связано с неоднородностью сверхпроводящих свойств по ширине перехода. В этом случае уменьшение температуры должно сопровождаться не только увеличением значений модуля параметра порядка электродов, но и подключением дополнительных каналов транспорта критического тока. Последнее обстоятельство и ответственно за более быстрый рост  $I_c$  с уменьшением температуры.

Для третьей группы данных, включающей результаты работ [3, 10, 18, 19], а также данного исследования, имеется удовлетворительное согласие экспериментальных зависимостей  $I_c(T)$  с формой кривой, рассчитанной для двухбарьерных SINIS-структур в пределе малых значений эффективного параметра подавления. Отрицательная кривизна данной кривой является следствием двухзонной природы соединения  $MgB_2$ . Она отсутствует как в аналогичных структурах с однозонными сверхпроводниками [28], так и в туннельных контактах  $MgB_2/I/MgB_2$  при туннелировании в плоскости  $ab$  [1]. Последнее обстоятельство не случайно. Еще в работе [1] было показано, что уже незначительная разориентация (более  $0.6^\circ$ ) кристаллографических направлений  $c$  контактирующих блоков  $MgB_2$  приводит к тому, что туннелирование в плоскости  $ab$  дает тот же результат, что и туннелирование вдоль направления  $c$ . Необходимо также отметить, что удовлетворительное согласие с формой кривой, рассчитанной для двухбарьерных SINIS-структур, не означает, что мы имеем дело именно с переходом, образованным нормальным металлом, заключенным между двухзонными

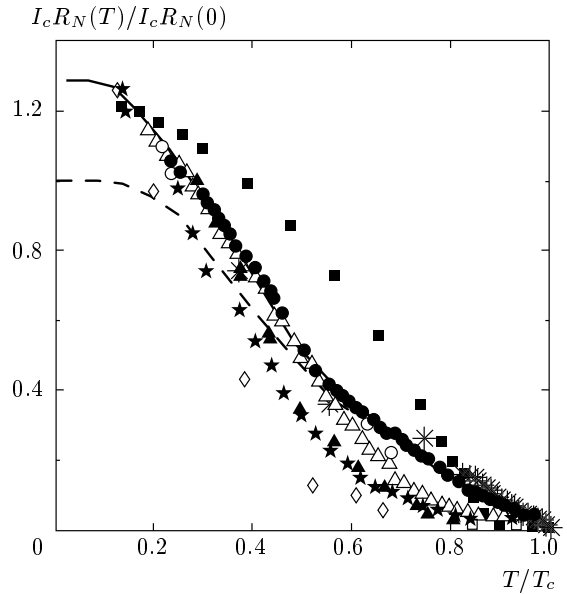


Рис. 5. Сравнение полученной нами температурной зависимости критического тока (крестики) с имеющимися теоретическими зависимостями, рассчитанными для туннельных SIS-структур [1] (штриховая кривая) и двухбарьерных SINIS-структур [27] (сплошная кривая) при туннелировании вдоль оси  $c$  и с данными, полученными другими авторами: ■ [2], △ [3], ▲ [5], ○ [10], ● [14, 18, 19], □ [8], ◇ [17], \* [4]

сверхпроводниками. К такому же результату можно прийти, имея туннельный переход с локализованными состояниями, расположенными в центре туннельного слоя с энергией, равномерно распределенной в окрестности энергии Ферми [28]. Проведенное сравнение именно с формой кривой  $I_c(T)$  является вынужденной мерой. В рассматриваемых структурах, как и в бикристаллических ВТСП-переходах, пространственные распределения сверхпроводящей и нормальной компонент тока, как правило, не совпадают. Это приводит к возникновению шунтирующего сопротивления и подавлению значений характерного напряжения [29], что затрудняет сравнение с теорией абсолютных экспериментальных значений  $I_c R_N$  ( $R_N$  — сопротивление нормального металла).

Таким образом, показано, что окисление вдоль бикристаллической границы позволяет создавать контролируемые слабые связи в  $MgB_2$  в плоскости  $ab$ . Нами был измерен также отклик по напряжению для таких переходов при облучении на частоте 110 ГГц. Излучение от лавино-пролетного диода (ЛПД) через скалярный рупор, аттенюаторы, оптическое окно с холодными фильтрами подавалось на холодную ступень криостата. Образцы помещали

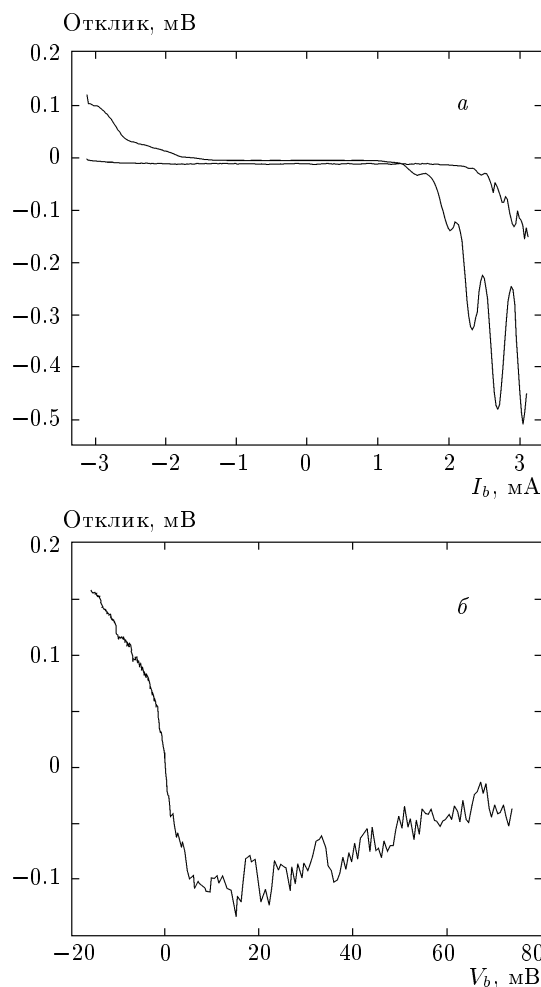


Рис. 6. Отклик по напряжению на излучение на частоте 110 ГГц в зависимости от тока смещения для двух разных уровней сигнала (*a*) и от напряжения смещения (*б*)

на плоскую поверхность удлиненной гиперполусферической сапфировой линзы. Полученные зависимости отклика приведены на рис. 6. Максимумы отклика соответствуют положению максимумов дифференциального сопротивления. Ступени Шапиро в явном виде не наблюдались, что может быть связано с неоднородностью распределения тока по ширине мостика. В более широком диапазоне смещений отклик постепенно убывает, что может быть связано с тепловым перегревом током смещения. Амплитуда отклика достигала 0.5 мВ, что позволяет говорить о возможности использования такого типа переходов в качестве болометрических приемников при температуре около 30 К.

#### 4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Изготовлены мостики  $\text{MgB}_2$  шириной 0.85–6 мкм на монокристаллических и бикристаллических подложках  $\text{MgO}$  (111) двух типов:  $13^\circ/13^\circ$  (110) и  $13^\circ/13^\circ$  (112). Пленки  $\text{MgB}_2$  толщиной 100 нм имели критическую температуру  $T_c = 34$  К. Критические токи образцов шириной 0.85 мкм сразу после изготовления составляли 1.5–10 мА при нормальных сопротивлениях 20–60 Ом. Проведен отжиг образцов в кислороде в течение часа при температурах 100, 200, 300, 450, 600 °С. Отжиг пленок на бикристаллических подложках привел к систематическому уменьшению критического тока, исчезновению гистерезиса, расширению температурной области перехода, улучшению формы ВАХ, которые стали напоминать ВАХ джозефсоновских переходов. Мостики на монокристаллической подложке не имели заметных изменений. Таким образом, показано, что окисление вдоль бикристаллической границы позволяет создавать контролируемые слабые связи в мостиках  $\text{MgB}_2$ . Отсутствие явных осцилляций в зависимости от магнитного поля и мощности СВЧ-излучения может быть связано с неоднородностью распределения тока вдоль границы мостика. Был измерен также отклик по напряжению таких переходов при облучении на частоте 110 ГГц с амплитудой до 0.5 мВ, что позволяет говорить о возможности использования такого типа переходов в качестве болометрических приемников при температуре около 30 К.

Работа выполнена при финансовой поддержке Шведских агентств VR, SI, а также РФФИ (грант № 05-02-19650) и Федерального агентства по науке и инновациям (грант № 02.513.11.3157).

#### ЛИТЕРАТУРА

1. A. Brinkman, A. A. Golubov, H. Rogalla et al., Phys. Rev. B **65**, 180517 (2002).
2. A. Brinkman, D. Veldhuis, D. Mijatovic et al., Appl. Phys. Lett. **79**, 2420 (2001).
3. G. Burnell, D. J. Kang, H. N. Lee et al., Appl. Phys. Lett. **79**, 3464 (2001).
4. Y. Zhang, D. Kinion, J. Chen et al., Appl. Phys. Lett. **79**, 3995 (2001).
5. R. S. Gonnelli, A. Calzolari, D. Daghero et al., Phys. Rev. Lett. **87**, 097001 (2001).

6. Z. Z. Li, Y. Xuan, H. J. Tao et al., *Physica C* **370**, 1 (2002).
7. H. Schmidt, J. F. Zasadzinski, K. E. Gray, and D. G. Hinks, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 127002 (2002).
8. H.-J. Tao, Z.-Z. Li, Y. Xuan et al., *Physica C* **386**, 569 (2003).
9. G. Burnell, D.-J. Kang, D. A. Ansell et al., *Supercond. Sci. Technol.* **16**, 254 (2003).
10. A. Malisa, M. Valkeapää, L. Johansson, and Z. Ivanov, *Supercond. Sci. Technol.* **17**, S345 (2004).
11. N. Khare, D. P. Singh, A. K. Gupta et al., *Supercond. Sci. Technol.* **17**, 1372 (2004).
12. G. Carapella, N. Martucciello, G. Costabile et al., *Appl. Phys. Lett.* **80**, 2949 (2002).
13. A. Saito, A. Kawakami, H. Shimakage et al., *J. Appl. Phys.* **92**, 7369 (2002).
14. H. Shimakage, K. Tsujimoto, Z. Wang, and M. Tonouchi, *Supercond. Sci. Technol.* **17**, 1376 (2004).
15. F. Giubileo, M. Aprili, F. Bobba et al., *Phys. Rev. B* **72**, 174518 (2005).
16. M. van Zalk, A. Brinkman, A. A. Golubov et al., *Supercond. Sci. Technol.* **19**, S226 (2006).
17. K. Ueda, S. Saito, K. Semba, and T. Makimoto, *Appl. Phys. Lett.* **86**, 172502 (2005).
18. H. Shimakage, K. Tsujimoto, Z. Wang, and M. Tonouchi, *Appl. Phys. Lett.* **86**, 072512 (2005).
19. H. Shimakage and Z. Wang, *Supercond. Sci. Technol.* **19**, S182 (2006).
20. D. Mijatovic, A. Brinkman, I. Oomen et al., *Appl. Phys. Lett.* **80**, 2141 (2002).
21. P. Orgiani, Y. Cui, A. V. Pogrebnyakov et al., *IEEE Trans. Appl. Supercond.* **15**, 228 (2005).
22. R. F. Klie, J. C. Idrobo, N. D. Browning et al., *Appl. Phys. Lett.* **79**, 1837 (2001).
23. J. Q. Li, L. Li, Y. Q. Zhou et al., *Chin. Phys. Lett.* **18**, 680 (2001).
24. H. Narayan, S. B. Samanta, A. Gupta et al., *Physica C* **377**, 1 (2002).
25. Е. А. Степанцов, *Бюлл. изобретений* **36**, 77 (1984).
26. K. Ueda and M. Naito, *J. Appl. Phys.* **93**, 2113 (2003).
27. A. Brinkman, A. A. Golubov, and M. Yu. Kupriyanov, *Phys. Rev. B* **69**, 214407 (2004).
28. A. A. Golubov, M. Yu. Kupriyanov, and E. Il'ichev, *Rev. Mod. Phys.* **77**, 411 (2004).
29. H. Hilgenkamp and J. Mannhart, *Rev. Mod. Phys.* **74**, 485 (2002).