

***Raport stiintific***

*privind implementarea proiectului in perioada decembrie 2014-decembrie 2015*

**Etapa Unica 2015**

CONTRACTOR	UNITATEA CONTRACTANTA
<b>Institutul National de Cercetare-Dezvoltare pentru Microtehnologie IMT-Bucuresti</b>	<b>Unitatea Executiva pentru Finantarea Invatamantului Superior, a Cercetarii, Dezvoltarii si Inovarii UEFISCDI</b>

*Cod proiect: PN-II-ID-PCE-2011-3-1065*

Contract de finantare nr. 179/07.10.2011

Titlul proiectului: *Studii experimentale prin intermediul SQUID-urilor asupra simetriei parametrului de ordine a compusilor supraconductori  $Sr_{1-x}La_xCuO_2$  sub forma de filme subtiri.*

Director proiect

03.12.2015

Dr. Victor Leca

Bucuresti

**Obiectivul fazei finale 2015:** Studii asupra simetriei parametrului de ordine.

**Activitati:** Masuratori electrice si magnetice a SQUID-urilor pe baza de bicristale pentru determinarea simetriei parametrului de ordine.

## 1. Introducere

In aceasta etapa au fost realizate urmatoarele studii: 1. fabricarea de filme subtiri pe baza de  $\text{Sr}_{0.85}\text{La}_{0.15}\text{CuO}_2$  (SLCO) pe substraturi de  $\text{SrTiO}_3$  tip bicristal (simetric,  $24^\circ$  si  $30^\circ$ , orientare 001); 2. caracterizarea filmelor din punct de vedere structural si al proprietatilor electrice; 3. fabricarea de jonctiuni tip bicristal, studii structurale si al proprietatilor electrice; 4. fabricare senzori supraconductori tip SQUID (Superconducting QUantum Interference Device) pe baza de jonctiuni tip bicristal si caracterizare din punct de vedere electric si magnetic a acestora. Rezultatele obtinute in cadrul acestui proiect au fost prezentate la doua conferinte internationale (un invited talk si un poster), si anume: TO-BE COST meeting (30.03-02.04), Universitatea din Aveiro, Portugalia si 28<sup>th</sup> International Conference on Defects in Semiconductors (27 – 31.07), Universitatea din Aalto, Finlanda.

## 2. Rezultate experimentale

### 2.1. Filme subtiri de $\text{Sr}_{0.85}\text{La}_{0.15}\text{CuO}_2$ crescute pe substraturi de $\text{SrTiO}_3$ tip bicristal: fabricare si caracterizare

Pentru realizarea jonctiunilor tip bicristal, componenta de baza a SQUID-urilor, filme de SLCO au fost crescute prin ablatie laser (PLD; laser cu excimeri pe baza de KrF -  $\lambda=248$  nm,  $\tau=10$  ns, frecventa a laserului de 2 Hz) pe bicristale simetrice de  $\text{SrTiO}_3$  (001), de  $24^\circ$  si  $30^\circ$ , pornind de la o tinta stoichiometrica. Parametrii de depunere folositi: temperatura de  $550\text{-}600^\circ\text{C}$ , la o presiune de lucru de  $30\text{-}40$  Pa  $\text{O}_2$ ; tinta a fost pozitionata la o distanta tinta-substrat  $d_{ts}=60$  mm, iar densitatea de energie a laserului pe tinta a fost  $f = 1.8\text{-}2 \text{ J/cm}^2$ . Cresterea filmelor a fost monitorizata in-situ si in timp real prin intermediul difractiei prin reflexie de electroni (RHEED), de presiune mare. Dupa crestere, in scopul reducerii/eliminarii excesului de oxigen, filmele au fost supuse unui tratament termic in vid la temperatura de crestere, o presiune de  $\sim 5\times 10^{-7}$  mbar, timp de 40-90 minute, tratament termic esential pentru obtinerea caracteristicilor supraconductoare. De asemenea, pentru a compensa diferența dintre parametrii de retea ai substratului ( $a=3.905 \text{ \AA}$ ) si ai filmului ( $a=3.965 \text{ \AA}$ ) a fost necesara utilizarea unui strat tampon de  $\text{BaTiO}_3$ . Acesta a fost crescut inainte de depunerea SLCO, in urmatoarele conditii:  $800\text{-}850^\circ\text{C}$ ,  $10 \text{ Pa O}_2$ , tratament termic post depozitie la  $900\text{-}1000^\circ\text{C}$ , in  $\text{O}_2$  si in vid, cate 30 minute pentru fiecare tratament termic. Tratamentul termic la temperatura mare este necesar pentru relaxarea stratului tampon si pentru imbunatatirea morfologiei acestuia. Filmul SLCO este depus pe  $\text{BaTiO}_3$  fara expunerea la conditii ex-situ. Datele de difractie de raze X (DRX) au indicat obtinerea unor filme monocristaline, crescute epitaxial (cu axa c perpendiculara pe suprafata substratului) atat pentru  $\text{BaTiO}_3$ , cat si pentru SLCO. Masuratorile electrice, realizate in He lichid in domeniul  $4.2\text{-}300 \text{ K}$  au indicat obtinerea de filme supraconductoare (pentru parametrii de depunere optimizati) de pana la  $18 \text{ K}$  (cu mult sub temperatura critica a probelor tip bulk, de aproximativ  $42 \text{ K}$ ). Inomogeneitati in reteaua de oxigen, cat si reducerea incompleta datorita

stresului epitaxial sunt considerate principalele motive pentru valorile reduse ale temperaturii critice pentru filmele de SLCO crescute pe bicristale de  $\text{SrTiO}_3$ .

## 2.2. Jonctiuni tip bicristal pe baza de SLCO: fabricare si caracterizare microstructurala si electrica

Jonctiunile Josephson tip bicristal sunt constituite din cei doi electrozi supraconductori, separati de o bariera nesupraconductoare, reprezentata de zona de separatie (lipitura) dintre cele monocristale (Fig 1), componente ale bicristalului (lipite la un anumit unghi intre planele cristaline (001), in cazul acestui raport la  $24^\circ$  si  $30^\circ$ , respectiv). Similar jonctiunilor tip rampa, transportul curentului electric intre electrozi se face prin tunelare, in planul *ab*, prin bariera, filmele fiind crescute epitaxial.

Procesul de fabricare al jonctiuni cuprinde in etapa urmatoare structurarea filmelor prin litografie optica si prin corodare fizica cu ioni de Ar. Pentru realizarea jonctiunilor s-au folosit puncti cu dimensiuni de la 10 microni la 750 microni, distribuite de-a lungul lipiturii (grain-boundary) dintre cele doua monocristale.

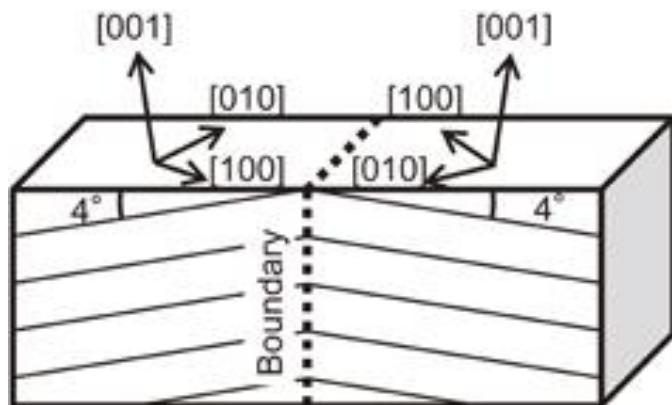


Fig 1. Reprezentare schematica a unui bicristal.

Ulterior, dupa structurare, se pot depune contactele de Au; totusi, este de preferat ca filmul de Au sa se depuna imediat dupa cresterea filmului de SLCO, pentru realizarea interfetelor oxid-metal in-situ si, in consecinta, obtinerea unor valori mici pentru rezistentele de contact, care pot afecta negativ masuratorile electrice de tunelare. Fiecare jonctiune a fost apoi analizata din punct de electric; cateva dintre jonctiuni au fost selectate pentru studii de microstructura si a proprietatilor interfetelor prin microscopie electronica prin transmisie de electroni (HRTEM, cu un microscop Titan, la Institutul de Tehnologie din Karlsruhe, Germania), pentru determinarea corelatiei dintre structura si proprietatile electrice a jonctiunilor. Masuratorile electrice au fost realizate prin metoda in 4-puncte intr-un criostat cu He lichid, in domeniul de temperaturi  $4.2\text{-}300\text{ K}$ , in conditii de ecranare electrica si magnetica (pentru jonctiuni), in cadrul Universitatii din Tübingen, Institutul de Fizica, Departamentul de Fizica Experimentalala II, Tübingen (Germania).

In Fig. 2 este prezentata o imagine optica a unei serii de jonctiuni Josephson tip bicristal, fabricate conform metodei descrise mai sus. Jonctiunile sunt constituite din electrozi de SLCO cu grosimea de 30 nm fiecare si un strat de Au (pentru contacte) de  $\sim 25\text{ nm}$ . Dimensiunea laterala a jonctiunilor, in acest caz, variaza intre 10 si 50 microni.

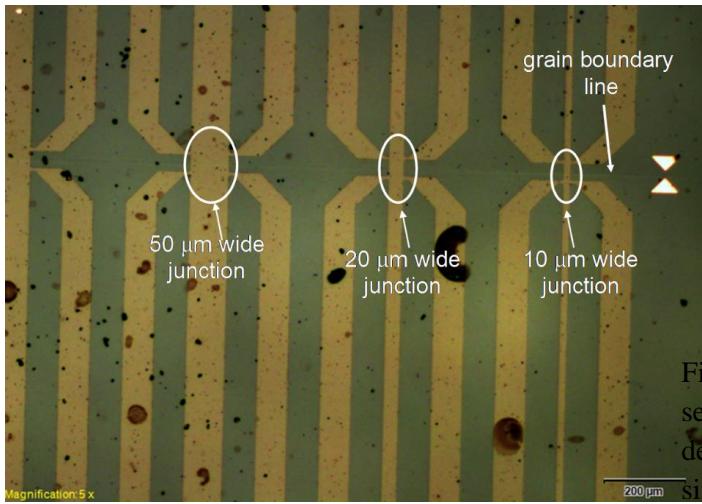


Fig 2. Imagine de la microscopul optic a unei serii de jonctiuni Josephson tip bicristal pe baza de  $\text{Sr}_{0.85}\text{La}_{0.15}\text{CuO}_2$ , fabricate pe bicristal simetric ( $24^\circ$ ) de  $\text{SrTiO}_3$ .

In Fig. 3 este prezentata o imagine HRTEM (cross-section) obtinuta de-a lungul barierelor dintre cei doi electrozi ai jonctiunii, in care se observa lipsa defectelor structurale in stratul de SLCO, precum si o interfata transparenta (de calitate superioara) intre cei doi electrozi de SLCO; imaginea HRTEM confirma, de asemenea, caracterul monocristalin si epitaxia filmelor. Datele DRX si HRTEM explica valorile superioare obtinute pentru caracteristicilor IV ale jonctiunilor (Fig 4), care, de asemenea, indica obtinerea fenomenului de tunelare a perechilor Cooper si a quasiparticulelor, in planul ab, intre electrozii supraconductori.

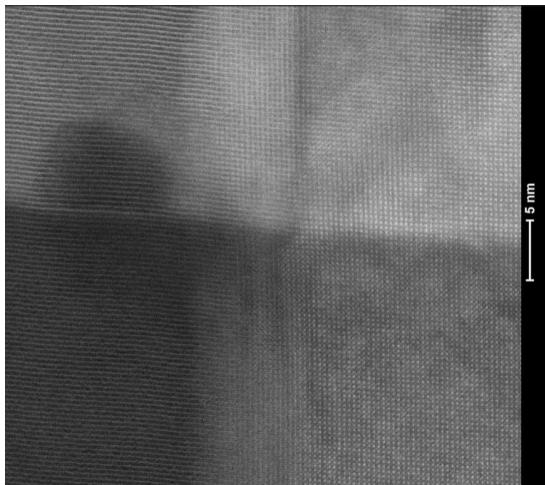


Fig 3. Imagine HRTEM (cross-section) a unei jonctiuni Josephson tip bicristal ( $\text{SrTiO}_3$ ,  $24^\circ$ ), in zona barierei.

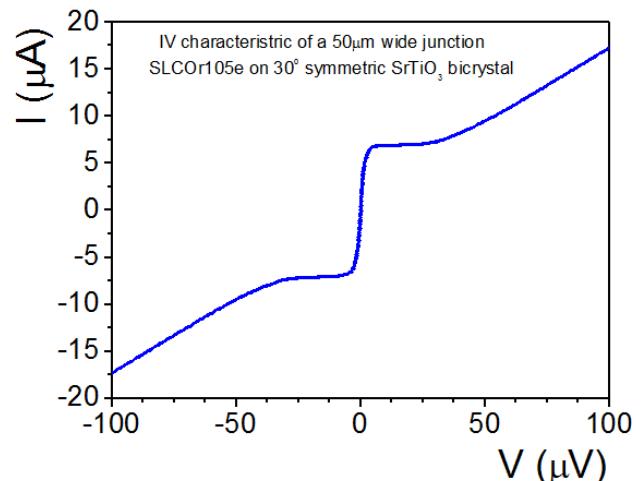


Fig 4. Caracteristica I-V pentru o jonctiune Josephson tip bicristal cu dimensiunea de  $50 \mu\text{m}$ , fabricata pe un bicristal simetric de  $30^\circ$ .

In concluzie, procesul de fabricare a jonctiunilor Josephson tip bicristal a permis obtinerea de jonctiuni cu caracteristici IV superioare, fiind singurele date obtinute pana acum pe acest material, date care au fost publicate in revista Physical Review B.

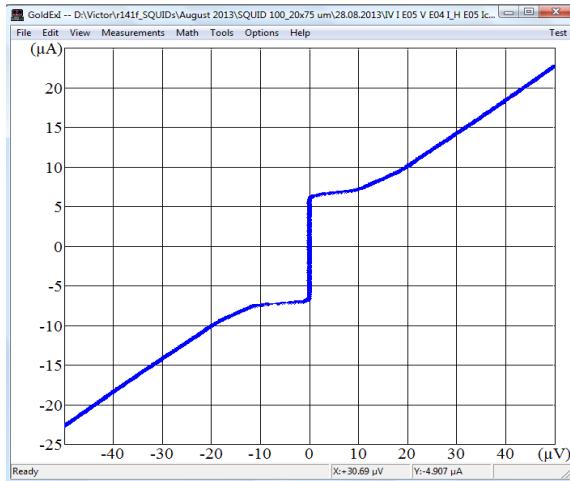


Fig 5a. Caracteristica IV masurata la 4.8 K pentru un current aplicat bobinei  $I_{coil} = 24,5 \mu\text{A}$  si  $I_c = 7 \mu\text{A}$ , pentru un SQUID pe baza de jonctiuni tip bicristale de SLCO cu latimea de  $100 \mu\text{m}$ .

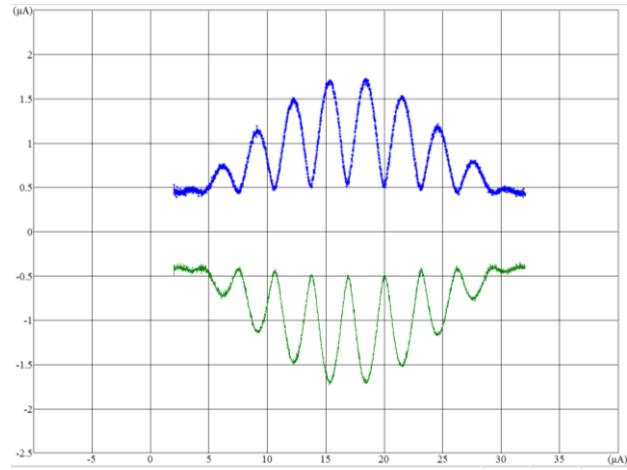


Fig 5b. Caracteristica IB masurata la  $4.85 \text{ K}$  si  $V_c = 1 \mu\text{V}$  pentru un dc-SQUID format din jonctiuni cu latimea de  $50 \mu\text{m}$  (bicristal simetric de  $\text{SrTiO}_3$ ,  $24^\circ$ ).

### 2.3. dc-SQUID-uri SLCO pe baza de jonctiuni tip bicristal: fabricare si caracterizare

dc-SQUID-uri pe baza de jonctiuni Josephson tip bicristal din SLCO au fost fabricate folosind litografie optica si corodare fizica cu ioni de Ar, prin structurarea cipurilor continand jonctiunile. In Figurile 5a si 5b sunt prezentate masuratori electrice (caracteristica IV) si in camp magnetic (caracteristica IB) realizate pe un dc-SQUID constituit din doua junctiuni Josephson simetrice (bicristal simetric  $\text{SrTiO}_3$ ,  $30^\circ$ ), avand fiecare latimea de  $100 \mu\text{m}$ , separate de un spatiu cu dimensiunea de  $20 \times 75 \mu\text{m}^2$ . Pentru SQUID-ul prezentat in Fig 5a caracteristica curent-tensiune (I-V) indica un curent critic de  $I_c = 7 \mu\text{A}$ . Caracteristica curent-camp magnetic aplicat (I-B) este prezentata in Fig 5b, unde se observa un minim al  $I_c$  pentru  $B$  minim. Caracteristica IB a SQUIDI-ului, cu un minim al  $I_c$  pentru  $B$  minim (offsetul se datoreaza fenomenului de flux trap) indica un parametru de ordine predominant tip d-wave (simetrie  $d_{x^2-y^2}$ ) pentru materialele din clasa  $\text{Sr}_{1-x}\text{La}_x\text{CuO}_2$ , cel putin pentru  $x=0.15$ .

### 3. Concluzii

In aceasta etapa au fost fabricate filme subtiri supraconductoare pe baza de  $\text{Sr}_{0.85}\text{La}_{0.15}\text{CuO}_2$  pe bicristale de  $\text{SrTiO}_3$ , jonctiuni Josephson tip bicristal si, ulterior, prin structurarea acestora, dc-SQUID. Datele experimentale (XRD, SEM, TEM, masuratori electrice) obtinute pe jonctiuni si pe SQUID-uri au confirmat obtinerea unor filme monocristaline, epitaxiale, supraconductoare ( $T_{c,\text{max}}$  de  $18 \text{ K}$ ); masuratorile electrice efectuate pe jonctiunile tip bicristal indica tunelarea perechilor Cooper si a quasiparticulelor, cu valori mari pentru caracteristicile IV; masuratorile electrice si magnetice realizate pe dc-SQUID-uri confirmă existența unui parametru de ordine de tip d in aceste materiale supraconductoare tip n, similar cu supraconductorii oxidici de tip p.

Director proiect,

Victor Leca