

ESTRUCTURA DE PELÍCULAS DELGADAS SUPERCONDUCTORAS DE YBaCuO PREPARADAS POR PLD (DEPOSICIÓN POR LÁSER PULSADO)

M. Villafuerte¹, S. Duhalde², A. Schwartzman², G. Paissan², A. Lamagna³ y L. Correra⁴

¹ Instituto de Tecnología, Univ. Nac. de San Martín, Av. de Constituyentes y Av. Gral. Paz, San Martín, Pcia. de Bs. As. y Lab. de Física del Sólido, Univ. Nac. de Tucumán, Av. Independencia 1800.

² Depto. de Física, Facultad de Ingeniería, Universidad de Buenos Aires, Paseo Colon 850 (1063) Buenos Aires.

³ Depto. de Física, Centro Atómico Constituyentes, CNEA, Av. Libertador 8250, 1429 Buenos Aires.

⁴ Instituto Lamel-CNR, Via Gobetti 101, Bolonia, Italia.

Se depositaron películas delgadas superconductoras de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ (YBCO), utilizando la técnica de deposición por láser pulsado (PLD: Pulsed Laser Deposition), sobre sustratos monocristalinos de SrTiO_3 , MgO y Si con orientación (100). La utilización de estas películas en dispositivos electrónicos requiere de un buen control del crecimiento epitaxial y de la calidad de la microestructura. En este trabajo se estudió la influencia de la presión de oxígeno durante el crecimiento, sobre la topografía de la superficie, el grado de orientación y la microestructura de las películas en relación con las propiedades de transporte de las mismas. Se utilizó un láser excímero (XeCl -308 nm) pulsado con una frecuencia de 4 Hz. Para el análisis de la microestructura de las películas se utilizaron las técnicas de Difracción de Rayos X (DRX), Microscopía Electrónica de Barrido (MEB) y Microscopía de Fuerza Atómica (MFA). Los resultados muestran una correlación entre la microestructura y las propiedades superconductoras, encontrándose un valor óptimo de presión de oxígeno en la cámara durante el crecimiento.

YBCO superconducting films were deposited by (XeCl -308 nm) pulsed laser deposition on (100)-oriented SrTiO_3 , MgO and Si single crystal substrates. Control of the YBCO thin film epitaxial growth and microstructure quality are important factors for superconducting electronic device applications. In this aim, we studied the influence of the oxygen pressure during the growth, the distance between target-substrate and substrate structure on the degree of structural orientation and surface quality of the films. XRD, SEM and AFM techniques were used to make comparative studies of microstructure with transport properties of the films.

I. Introducción

La técnica PLD es una de las más apropiadas para la fabricación de películas de superconductores de alta temperatura crítica. Las aplicaciones de estos materiales requieren películas de alta calidad con alta temperatura de transición, ancho de transición angosto, altas corrientes críticas y baja resistencia superficial a las microondas. La estructura morfológica de tales películas necesita de una baja densidad de partículas sobre su superficie, una muy baja rugosidad y espesor homogéneo a lo largo de la misma.

Las propiedades de transporte de las películas de cerámicos superconductores dependen en gran medida de los parámetros de deposición (temperatura del sustrato, densidad de energía del láser, presión del gas en la cámara de deposición, etc.) y del dispositivo experimental utilizado. Se hizo mucho esfuerzo para entender la influencia de cada uno de los múltiples parámetros de la deposición para optimizar la calidad de las

películas y superar los problemas intrínsecos de la técnica^(1,2,3).

Se sabe que la presión de oxígeno juega el rol principal en las propiedades de estas películas, no sólo la influencia en la estequiometría de oxígeno, sino también en el proceso de expansión del plasma, el número de partículas sobre la superficie, la tasa de deposición, la energía cinética de las especies que se depositan, etc.⁽⁴⁾.

Con este objetivo describimos, en base a nuestro dispositivo experimental, la relación entre microestructura y propiedades de transporte y presión de oxígeno durante la deposición.

II. Detalles experimentales

El equipo para la fabricación de las películas consiste en: una cámara de deposición (ver fig. 1); un láser de excímero XeCl ($\lambda = 308$ nm, $\tau = 30$ ns), cuyo haz se enfoca sobre la superficie del blanco con una fluencia de 1.7 J/cm^2 en un área de 5.45 mm^2 (en nuestro caso); un sistema óptico para focalizar y dirigir el haz del láser y un sistema de vacío (dos bombas mecánicas y difusora).

Para asegurar una tasa de ablación uniforme el blanco se monta sobre un eje rotante. El espejo se hace oscilar (indicado por la doble flecha en la figura 1), de modo que el haz barra una cierta área del blanco con el mismo objetivo y además conseguir que la pluma de ablación barra una mayor área del sustrato para lograr mejor homogeneidad en el espesor de la película.

Se usó como blanco una pastilla de YBCO estequiométrica, preparada usando el proceso de sinterizado convencional, cuya densidad es de 5.39 g/cm^3 (85 % del valor teórico). La superficie del blanco es lijada antes de cada irradiación. Las películas de YBCO se depositaron sobre diferentes sustratos monocristalinos: (100) MgO, (100) SrTiO₃ y (100) Si. Los experimentos fueron realizados con la temperatura del sustrato fija en 750 °C en todos los casos, y se varió la presión de la atmósfera de O₂ desde 35 Pa a 110 Pa y la distancia entre blanco y sustrato (d_{B-S}) entre 3,5 cm y 6 cm. La frecuencia de pulsos del láser se fijó en 4 Hz.

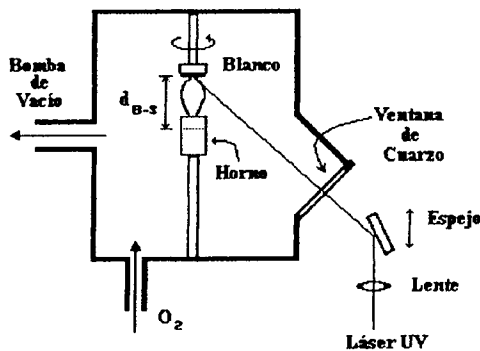


Figura 1: Esquema del equipo para deposición de películas

El espesor de las películas se midió con un perfilómetro. La microestructura de las películas fue estudiada usando DRX en la geometría de Bragg-Brentano (barrido $\theta-2\theta$) y con barridos $\theta-\omega$ (fijando θ para el pico (005)). Las superficies de las películas fueron estudiadas usando MEB y MFA. Las mediciones de resistencia se llevaron a cabo usando el método convencional de cuatro contactos sobre puentes de $25\mu\text{m} \times 290\mu\text{m}$, fabricados por fotolitografía, más un ataque químico con ácido. Un puente tipo Harsthorn se usó para medir la susceptibilidad AC de las películas.

III. Resultados y discusión

Las micrografías MEB de las películas delgadas de YBCO sobre Si (100), depositadas a una presión de oxígeno de 70 Pa y a diferentes distancias entre

blanco y sustrato ($d_{B-S} = 3,7; 4,0; 4,5$ y $5,2 \text{ cm}$) muestran la presencia de típicas partículas submicrométricas, algunos agujeritos (quizás provocados al desprenderse dichas partículas) y crecimientos tipo aguja. No se encontraron diferencias significativas en las morfologías de las películas, por lo tanto, se fijó la distancia en $d_{B-S} = 4,5 \text{ cm}$ para el resto de las películas. Se determinó una tasa de deposición de 1 \AA/pulso para una distancia blanco sustrato de $4,5 \text{ cm}$ a $1,7 \text{ J/cm}^2$.

Los difractogramas de rayos X (barrido 0-20) para las películas sobre MgO (100) y sobre SrTiO₃ (100) bajo una atmósfera de oxígeno puro (35-110 Pa), muestran que principalmente están presentes los picos de la serie (00l). Esto indica que las películas tienen una única fase y un crecimiento epitaxial. Se muestra un espectro típico en la fig. 2.

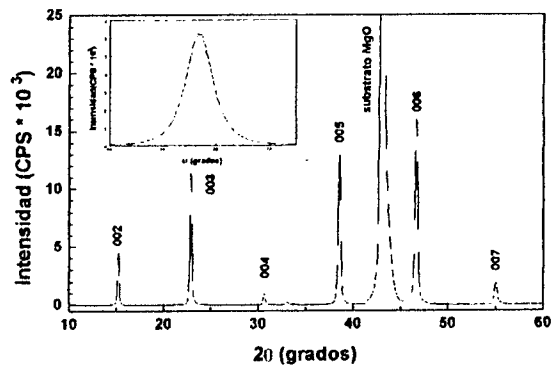


Figura 2: Espectro de difracción de rayos X de una película tomada en la configuración de Bragg-Brentano. Inserto: gráfica del barrido $\theta-\omega$ para el pico (005).

En el inserto se gráfica un barrido $\theta-\omega$, para θ correspondiente al pico (005) que muestra la dispersión de orientaciones del eje c. Los anchos totales a altura mitad ($ATAM_{\theta-\omega}$) obtenidos varían entre 1° y $0,3^\circ$ para la mejor película.

Los parámetros reticulares se determinaron a partir de los espectros de rayos X y se grafican en la fig. 3. Se encuentra que el parámetro de red c es sensible a la presión de oxígeno, usada durante la deposición, como muestra la fig. 3 y está relacionado con la temperatura crítica (T_c), determinada a partir de las curvas de susceptibilidad AC. Una reducción en las T_c es acompañada por una ligera degradación de la estructura cristalina. El mismo comportamiento tiene la longitud del eje c, los $ATAM_{\theta-\omega}$ y las T_c . Estas magnitudes relacionan la perfección de los planos de CuO₂ con una propiedad de transporte bidimensional, como la susceptibilidad AC. Un incremento en la presión de oxígeno hasta 110 Pa resulta en películas con pobres propiedades de transporte y esto puede deberse a los defectos

reticulares inducidos por el plasma de oxígeno, o a una baja movilidad de los adátomos sobre el sustrato.

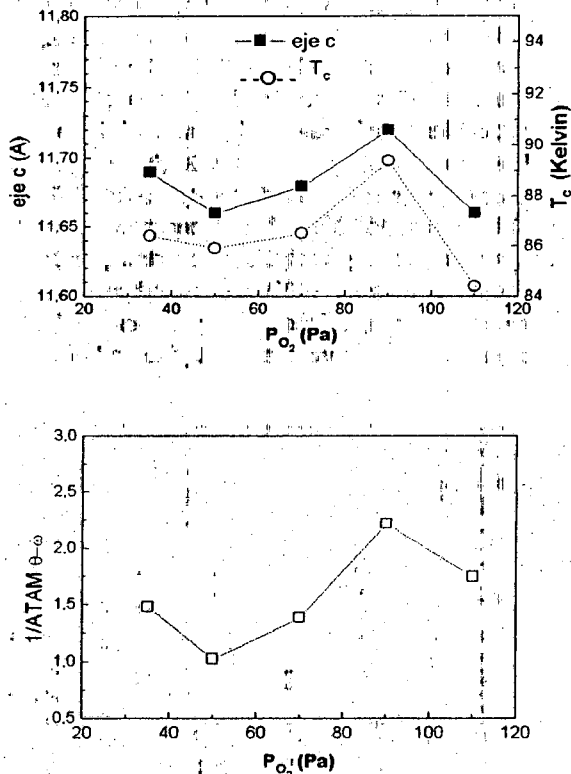


Figura 3: Arriba: correlación entre la longitud del eje c y T_c (obtenida por susceptibilidad magnética) vs. la presión de oxígeno usada durante la deposición. Abajo: inverso del ancho total a altura mitad de barridos θ-ω (ATAM_{θ-ω}) vs. la presión de oxígeno.

Kim et al.⁽⁵⁾ reportaron valores de T_c como función de la presión de oxígeno para distintas d_{B-S}. Encontraron un valor óptimo de d_{B-S} para cada presión de oxígeno, usada durante la deposición, para obtener películas superconductoras de alta calidad. Con nuestras condiciones experimentales también obtenemos un máximo para el valor de T_c pero a presiones más altas, esto es probablemente debido a la diferencia en fluencia y longitud de onda usadas. Un comportamiento similar se encontró en películas crecidas en SrTiO₃ pero la tendencia no es tan marcada debido a un mejor ajuste entre las estructuras de película y sustrato. Más aún, las propiedades de transporte de estas películas son mejores que las crecidas sobre MgO, bajo las mismas condiciones.

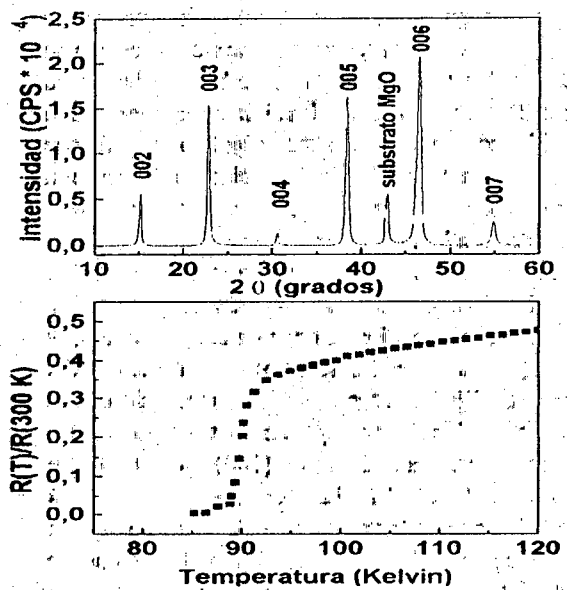


Figura 4 a): Arriba, espectro de rayos X y abajo, resistencia vs. temp. para una película depositada a 35 Pa.

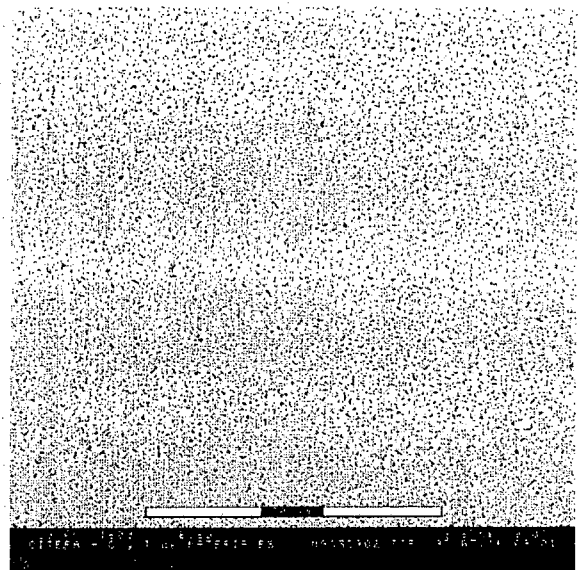


Figura 4 b): Micrografía obtenida por MEB de una película depositada a 35 Pa.

Las mediciones de resistencia vs. temperatura muestran T_c que varían entre 88.7 y 91.3 K y anchos de transición desde 1.5 a 5 K. En las figuras 4 y 5 se grafican los espectros de rayos X, la resistencia vs. temperatura y una micrografía de MEB para películas depositadas a 35 Pa y 110 Pa, respectivamente. Se observa un incremento en la densidad de agujeritos en la figura 5 b). Este incremento se observa solamente a presiones por arriba de 100 Pa.

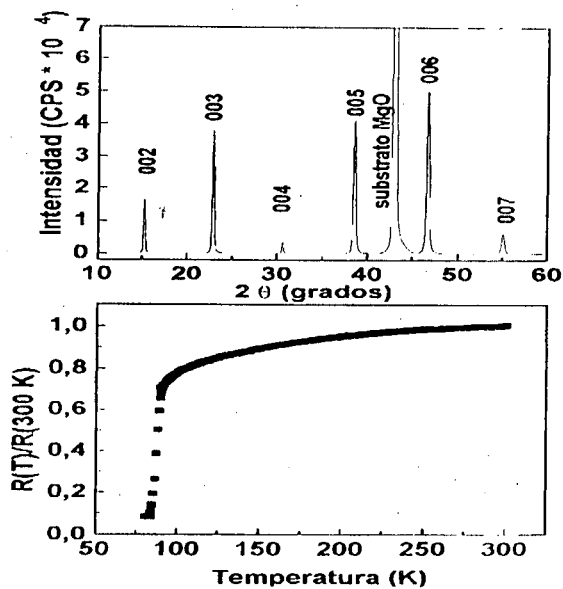


Figura 5 a): Arriba, espectro de rayos X y abajo, resistencia vs. temperatura para una película depositada a 110 Pa.

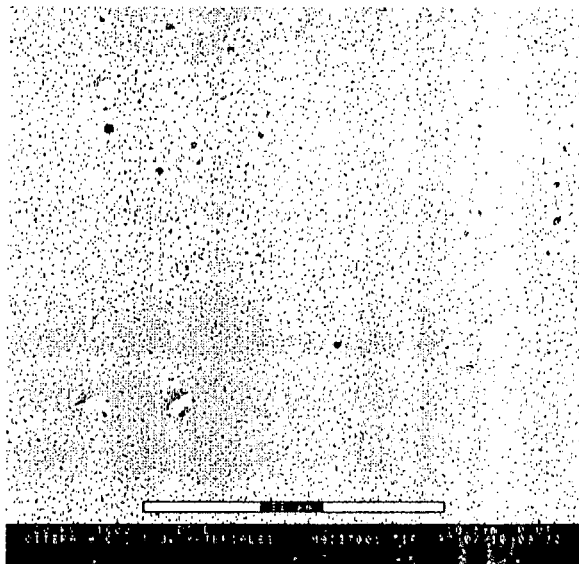


Figura 5 b): Micrografía obtenida por MEB de una película depositada a 110 Pa.

Referencias

- 1 - J. Horwitz and J. Sprague, en "Pulsed Laser Deposition of Thin Films", Eds. D.B. Chrisey y G. K. Hubler, p. 229 (Wiley, New York, 1994).
- 2 - Norton M. G. and Carter C. B., en Physica C 172, 47, 1992.
- 3 - Chang C. C., Wu X. D., Ramesh R., Xi X., Ravi T., Venkatesan T., Hwang D., Meunchausen F., Foltyn S., Nogar N., en Appl. Phys. Lett. 57, 1814 (1990).
- 4 - Bianconi, M., Corraera, L., Nicoletti, S., Nipoti, R., Servidori, M., Lamagna, A., Balmaceda, M., Mat.Sci.Engineer., B. 14 No 4, 1992.
- 5 - H. S. Kim and H. S. Kwok, Appl. Phys. Lett. 61 (18), 2234 (1992).

CEILAP
CITEFA - CONICET
ZUFRIATEGUI Y VARELA
1603 - VILLA MARTELLI
REPUBLICA ARGENTINA