



## MgO衬底上 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 台阶边沿型约瑟夫森结的制备及特性

王宏章 李宇龙 徐铁权 朱子青 马平 王越 甘子钊

Fabrication and characterization of  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  step-edge Josephson junctions on MgO substrate for high-temperature superconducting quantum interference devices

Wang Hong-Zhang Li Yu-Long Xu Tie-Quan Zhu Zi-Qing Ma Ping Wang Yue Gan Zi-Zhao

引用信息 Citation: [Acta Physica Sinica](#), 70, 037401 (2021) DOI: 10.7498/aps.70.20201291

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201291>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

---

### 您可能感兴趣的其他文章

#### Articles you may be interested in

快重离子辐照对薄膜微观结构及载流特性的影响

Effect of swift heavy ions irradiation on the microstructure and current-carrying capability in  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  high temperature superconductor films

物理学报. 2020, 69(7): 077401 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20191914>

低能离子对高温超导 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ -薄膜的表面改性和机理

Low-energy ion beam modified surface property and mechanism of high temperature superconductor  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ - thin film

物理学报. 2018, 67(3): 036103 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20170822>

低噪声超导量子干涉器件磁强计设计与制备

Design and fabrication of low-noise superconducting quantum interference device magnetometer

物理学报. 2019, 68(13): 138501 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190483>

# MgO 衬底上 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 台阶边沿型 约瑟夫森结的制备及特性\*

王宏章 李宇龙 徐铁权 朱子青 马平 王越<sup>†</sup> 甘子钊

(北京大学物理学院, 北京大学应用超导研究中心, 人工微结构和介观物理国家重点实验室, 北京 100871)

(2020 年 8 月 8 日收到; 2020 年 9 月 23 日收到修改稿)

MgO 衬底上的  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  (YBCO) 台阶边沿型约瑟夫森结(台阶结)在高灵敏度高温超导量子干涉器 (superconducting quantum interference device, SQUID) 等超导器件研制方面具有重要的应用价值和前景。本文对此类 YBCO 台阶结的制备和特性进行了研究。首先利用离子束刻蚀技术和两步刻蚀法在 MgO (100) 衬底上制备陡度合适、边沿整齐的台阶, 然后利用脉冲激光沉积法在衬底上生长 YBCO 超导薄膜, 进而利用紫外光刻制备出 YBCO 台阶结。在结样品的电阻-温度转变曲线中, 观测到低于超导转变温度时的电阻拖尾现象, 与约瑟夫森结的热激活相位滑移理论一致。伏安特性曲线测量表明结的行为符合电阻分路结模型, 在超导转变温度  $T_c$  附近结的约瑟夫森临界电流密度  $J_c$  随温度  $T$  呈现出  $(T_c - T)^2$  的变化规律, 77 K 时  $J_c$  值为  $1.4 \times 10^5 \text{ A/cm}^2$ 。利用制备的台阶结, 初步制备了 YBCO 射频高温超导 SQUID, 器件测试观察到良好的三角波电压调制曲线, 温度 77 K、频率 1 kHz 时的磁通噪声为  $250 \mu\Phi_0/\text{Hz}^{1/2}$ 。本文结果为进一步利用 MgO 衬底 YBCO 台阶结研制高性能的高温超导 SQUID 等超导器件奠定了基础。

**关键词:**  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ , 台阶结, 超导量子干涉器

**PACS:** 74.50.+r, 74.72.Gh, 74.78.-w, 85.25.Dq

**DOI:** 10.7498/aps.70.20201291

## 1 引言

约瑟夫森结在超导量子干涉器 (superconducting quantum interference device, SQUID)<sup>[1,2]</sup>、超导量子计算<sup>[3,4]</sup>、量子电压基准<sup>[5]</sup> 等方面都具有重要应用。基于铜氧化物高温超导材料的高温超导约瑟夫森结可工作于液氮温度 (77 K), 制冷要求较低, 为其在相关领域的应用带来了便利<sup>[1,6,7]</sup>。鉴于材料本身的特性, 高温超导约瑟夫森结的制备形式包括晶界结<sup>[1,8,9]</sup>、斜坡边缘结<sup>[1]</sup>、以及本征约瑟夫森结<sup>[10]</sup> 等不同类别。针对  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  (YBCO) 高温超导材料开发的台阶边沿型约瑟夫森结(台阶结)为晶界结的一种, 广泛应用于高温超导 SQUID

器件研制等领域<sup>[1,11,12]</sup>。它是指在单晶衬底上制备出台阶结构, 然后在上面生长高温超导薄膜, 进而由台阶边沿处薄膜的晶向差异而得到的一种晶界结, 具有制备成本较低、结的位置及相应的器件设计较为灵活自由等优点。制备 YBCO 台阶结常用的单晶衬底有  $\text{SrTiO}_3$  (STO),  $\text{LaAlO}_3$  (LAO) 以及 MgO 等。相对于 STO 和 LAO 衬底, MgO 衬底与 YBCO 的晶格失配度较大 (约 9%), 同时 MgO 衬底易被水潮解和被酸腐蚀<sup>[13]</sup>, 因此 MgO 衬底上 YBCO 台阶结的制备工艺和微观结构都与前两种衬底上不同<sup>[14,15]</sup>。

近期国际上的研究表明, MgO 衬底上的 YBCO 台阶结在 THz 探测器、特别是高灵敏度高温超导 SQUID 等器件研制方面具有重要的应用价值

\* 国家重点研发计划 (批准号: 2017YFC0601900) 和国家自然科学基金 (批准号: 61571019) 资助的课题。

† 通信作者。E-mail: [yue.wang@pku.edu.cn](mailto:yue.wang@pku.edu.cn)

和前景。澳大利亚 Mitchell 和 Foley<sup>[16]</sup> 报道 MgO 衬底上的 YBCO 台阶结可具有高的特征电压  $V_C = I_C R_n$ , 其中  $I_C$  为结的临界电流,  $R_n$  为结的正常态电阻。利用这一特性, 澳大利亚 Du 等<sup>[6,17]</sup> 研制了基于 MgO 衬底 YBCO 台阶结的 THz 探测器, 首次成功实现了液氮温度 77 K 下的高温超导 THz 成像。德国莱布尼茨研究所 Kaczmarek 等<sup>[18]</sup> 利用 MgO 衬底 YBCO 台阶结研制了用于地球物理研究的高温超导直流 (direct current, DC) SQUID 器件。他们采用生长 YBCO/STO/YBCO 三层薄膜的方式以提高 YBCO 薄膜和台阶结的性能, 制备出的 DC SQUID 的磁场灵敏度白噪声段可达  $20 \text{ fT/Hz}^{1/2}$ 。德国尤利希研究中心 Faley 等<sup>[19]</sup> 也利用 MgO 衬底 YBCO 台阶结对高温超导 DC SQUID 的制备进行了研究。通过对台阶刻蚀工艺的控制, 并使用同样在 MgO 衬底上制备的 YBCO 磁通变换器, 制备出了 77 K 时磁场灵敏度约为  $4 \text{ fT/Hz}^{1/2}$  的高温超导 DC SQUID, 与液氮温度 4.2 K 下工作的低温超导 DC SQUID 的磁场灵敏度处于同一量级水平。该小组进一步利用研制的 DC SQUID 进行了脑磁信号的测量, 获得了与使用低温超导 DC SQUID 相似的信噪比, 展现了器件在脑磁图等弱磁测量方面的应用潜力。

在上述背景下, 本文对 MgO 衬底上 YBCO 台阶结的制备进行了探索和研究。通过衬底刻蚀、薄膜生长等工艺制备了 MgO 衬底 YBCO 台阶结, 并对结的输运特性进行了测量。利用研制的台阶结, 初步制备了高温超导射频 (RF) SQUID, 并对器件的噪声性能进行了测试表征。

## 2 实验

本文 YBCO 台阶结的制备主要包括 MgO (100) 衬底上台阶的刻蚀、YBCO 薄膜的生长、以及结区图形的光刻等步骤流程。台阶的刻蚀以光刻胶为掩模、通过两步法 Ar 离子束刻蚀来实现, 在后文中将进一步描述。YBCO 薄膜的生长方法为脉冲激光沉积法 (pulsed laser deposition, PLD), 生长温度为 730 °C, O<sub>2</sub> 分压为 50 Pa。通过传统的紫外曝光和磷酸湿法刻蚀来定义结区图形, 从而最终实现 YBCO 台阶结的制备。

利用 FEI Nova NanoSEM 430 扫描电子显微镜 (scanning electron microscope, SEM) 对 YBCO

薄膜和 MgO 衬底台阶的形貌进行了考察, 利用 Alpha-Step D-600 探针轮廓仪对 YBCO 薄膜的厚度和 MgO 衬底台阶的高度等进行了测量。YBCO 薄膜和台阶结的输运特性测量在液氮低温恒温器中完成。利用 Keithley 6221 型电流源和 2182A 型纳伏表, 通过四引线法<sup>[20]</sup> 测量了 YBCO 薄膜和台阶结的电阻-温度 ( $R-T$ ) 转变曲线及伏安 ( $V-I$ ) 特性曲线。

采用与之前文献报道类似的图形结构<sup>[11]</sup>, 制备了包含 MgO 衬底 YBCO 台阶结的 RF SQUID 芯片, 并将其和超导谐振器<sup>[21]</sup> 组合, 制备了 YBCO RF SQUID 器件。结合读出电路, 采用磁通锁定环路 (flux-locked loop, FLL) 方式, 并利用 Tektronix MDO3052 示波器及 Agilent 35670A 动态信号分析仪等测试仪表, 对 RF SQUID 器件 77 K 时的工作特性进行了表征。表征时器件放置在液氮杜瓦内, 杜瓦置于五层坡莫合金磁屏蔽筒内。

## 3 实验结果与分析

### 3.1 YBCO 超导薄膜的表征

通过对 PLD 法薄膜生长参数的调节和优化, 在 MgO (100) 衬底上制备了表面形貌和超导特性良好的 YBCO 薄膜。[图 1\(a\)](#) 显示了薄膜的 SEM 图像, 可以看到除了一些离散的、浅灰色条状小晶粒外, 薄膜表面致密均匀, 呈现出 PLD 法  $c$  轴外延生长 YBCO 薄膜的典型形貌<sup>[22]</sup>。利用紫外曝光和湿法刻蚀, 在厚度为 180 nm 的 YBCO 薄膜上制备出宽度为 9 μm、长度为 200 μm 的线条, 采用四引线法测得其  $R-T$  曲线和 77 K 时的  $V-I$  特性曲线, 分别如[图 1\(b\)](#) 和[图 1\(c\)](#) 所示。从[图 1\(b\)](#) 可以看到, 在正常态薄膜的电阻率随温度线性变化, 在室温 295 K 时约为  $260 \mu\Omega\cdot\text{cm}$ , 与文献报道的 YBCO 单晶的结果接近<sup>[23]</sup>。取超导转变中点的温度为超导转变温度  $T_C$ , 超导转变 10%—90% 之间的间隔为超导转变宽度  $\Delta T_C$ , 则由[图 1\(b\)](#) 中的插图可知, 薄膜的  $T_C = 88.2 \text{ K}$ ,  $\Delta T_C = 0.8 \text{ K}$ 。 $T_C$  值高于德国莱布尼茨研究所 Kaczmarek 等<sup>[18]</sup> 在 MgO 衬底上生长的单层 YBCO 薄膜的值 (86 K), 与其生长的 YBCO/STO/YBCO 三层薄膜的值 (88—90 K) 相仿。由[图 1\(c\)](#), 取  $V-I$  曲线上电压从实验精度内的零值转变到 1 μV 时的电流为超导临界电流, 测得薄膜的超导临界电流密度  $J_C$  为

$1.9 \times 10^6 \text{ A/cm}^2$ , 达到文献报道的较好水平 [22]. 上述结果显示, MgO 衬底上生长的 YBCO 薄膜的超导特性与 STO 等衬底上生长的、用于约瑟夫森结或 SQUID 制备的 YBCO 薄膜的特性相似 [1], 适用于后续台阶结的制备.

### 3.2 MgO 衬底台阶的刻蚀

制备 MgO 衬底台阶的两步刻蚀法 [15,16,19,24] 如图 2(a) 和图 2(b) 所示. 在第一步刻蚀中, 首先利用光刻在衬底表面形成光刻胶图案, 如图 2(a) 所示, 然后以光刻胶为掩模, 利用 Ar 离子束对衬底进行刻蚀. 刻蚀时 Ar 离子束在衬底表面的入射角, 即  $\alpha$  离子束与衬底表面法线方向的夹角为  $\alpha$ . 文献结果表明 [14,15,18],  $\alpha$  的大小对 MgO 衬底的刻蚀速率、台阶的形貌等都有重要影响. 为进一步调节光刻胶和 MgO 衬底的相对刻蚀速率, 还需将衬底在载物台平面上 (即以衬底的法线为轴) 旋转  $\beta$  角度, 如图 2(a) 所标记. 改变  $\beta$  可改变入射离子束与 MgO 晶格点阵的角度关系, 从而影响衬底的刻蚀速率 [15], 文献中 [15,16,18] 一般取  $\beta = 10^\circ$ .

在第一步刻蚀中, 刻蚀溅射出来的 MgO 等物质在台阶上沿可能会再沉积, 累积之后在台阶上沿表面处形成凸起, 即形成“兔耳”(rabbit ear) 状的结构 [15,16,24]. 为核实这一情况, 在第一步刻蚀完成

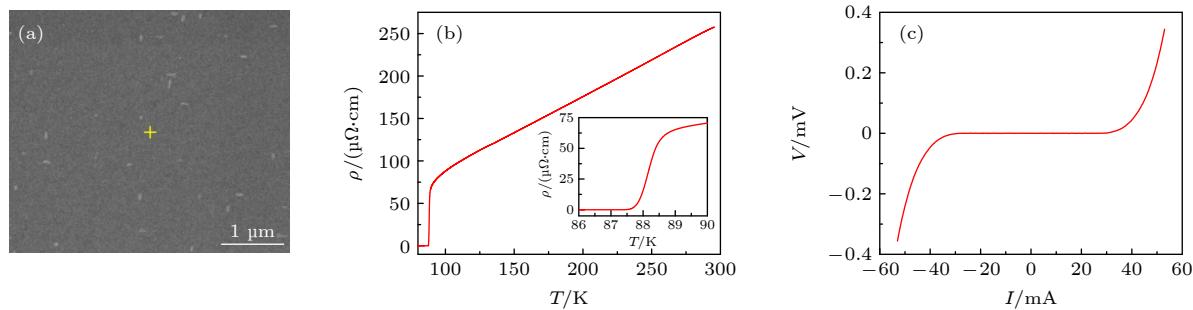


图 1 MgO (100) 衬底上 YBCO 薄膜的表征 (a) SEM 图; (b) 电阻-温度 ( $R$ - $T$ ) 曲线, 插图为超导转变区域的放大; (c) 77 K 时的伏安 ( $V$ - $I$ ) 特性曲线

Fig. 1. Characterization of YBCO film on MgO (100) substrate: (a) SEM image; (b)  $R$ - $T$  curve with the inset showing a magnified view of the superconducting transition; (c)  $V$ - $I$  curve at 77 K.

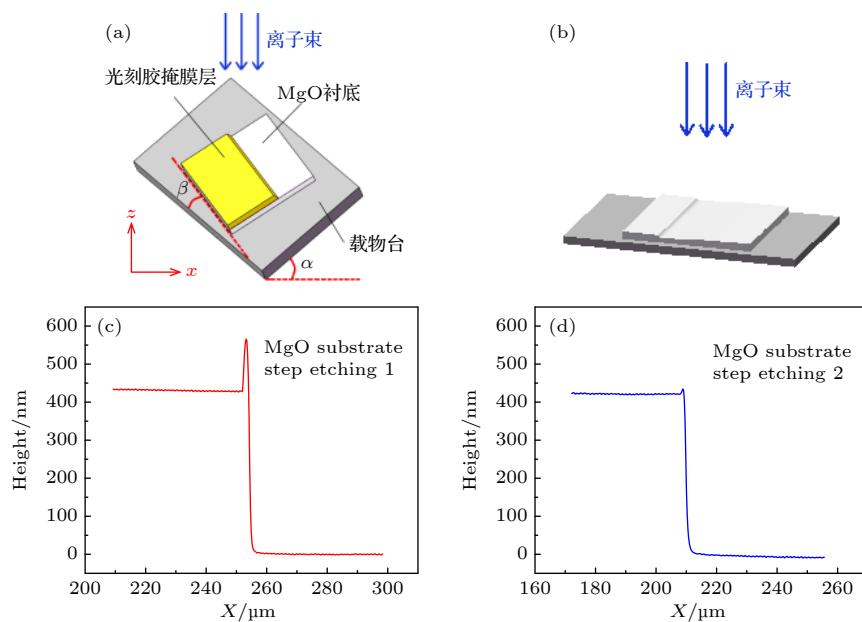


图 2 MgO 衬底上台阶的两步法离子束刻蚀制备 (a) 第一步刻蚀示意图; (b) 第二步刻蚀示意图; (c) 第一步刻蚀后测得的台阶轮廓图; (d) 第二步刻蚀后测得的台阶轮廓图

Fig. 2. Fabrication of step on MgO substrate by using two-stage ion beam etching: (a) Schematic of the first ion beam etching; (b) schematic of the second ion beam etching; (c) step profile after the first etching measured by a stylus profiler; (d) step profile after the second ion beam etching.

后,用丙酮将光刻胶去除,通过探针轮廓仪对台阶进行了测量,结果如图 2(c) 所示。可以看到,在台阶上沿处的确出现如兔耳状的凸起。这样的凸起对后续 YBCO 薄膜的生长和台阶结的制备会产生相当负面影响,需要将其去除,这也正是第二步刻蚀的一个主要目的。如图 2(b) 所示,在第二步刻蚀中,Ar 离子束沿着衬底表面法线方向垂直入射到衬底上,将兔耳状的凸起去除的同时,也具有清洁衬底的作用<sup>[15,16,24]</sup>。图 2(d) 显示了第二步刻蚀后探针轮廓仪对台阶的测量结果。可以看到,与图 2(c) 相比,台阶上沿处的兔耳状凸起已基本消失不见,证实了第二步刻蚀的作用。图 2(b) 中同时示意地画出了制备得到的 MgO 衬底台阶的形貌:在图 2(a) 中迎着入射离子束的光刻胶侧面处,衬底上形成比较陡峭的台阶,用于台阶结的制备;距离这一台阶稍远的刻蚀区域,由于相平行的光刻胶的侧面(图 2(a) 中未画出)背向入射离子束,衬底上仅出现比较平缓的斜坡。

在  $\beta = 10^\circ$  的条件下,利用 SEM 测量研究了  $\alpha$  在  $0^\circ$ — $70^\circ$  之间变化时对台阶的刻蚀及形貌的影响。总体上发现,随着  $\alpha$  的增大,刻蚀得到的台阶角度  $\theta$  (台阶表面与衬底平面之间的夹角) 也增大,在  $\alpha = 65^\circ$  时达到极值,然后又稍减小。同时,在  $\alpha = 45^\circ$  附近时,观察到台阶下沿底部出现沟槽状的过刻蚀现象。图 3 展示了  $\alpha = 65^\circ$  时制备的台阶的 SEM 形貌图。图 3(a) 为台阶的断面测量,可看到台阶上下边沿都比较锐利,台阶角度  $\theta = 34^\circ$ 。从图 3(b) 的台阶斜视图可进一步看出,顺着台阶表面,台阶边沿都比较整齐均匀。图 3(c) 和图 3(d) 分别为背向离子束入射区域衬底的断面和斜视图,可以看到,此刻蚀区域内衬底上仅出现很平缓的斜坡,与图 2(b) 中的示意一致。这将保证只在图 3(a) 和图 3(b) 中所示的衬底台阶处形成台阶结,有利于结的性能的调控及相关超导器件的研制。

根据以上结果,本文选定  $\alpha = 65^\circ$  来进行  $\theta = 34^\circ$  台阶的刻蚀及台阶结的制备。对 MgO 衬底,文献研究表明,  $\theta$  达到  $19^\circ$  时,台阶边沿处 YBCO 薄膜中即会形成晶界,得到台阶结<sup>[25,26]</sup>。这与 STO, LAO 衬底上需要  $\theta$  不低于  $45^\circ$  才能形成 YBCO 晶界<sup>[1]</sup> 的情形很不相同。进一步地, Foley 等<sup>[26]</sup> 和 Yamaguchi 等<sup>[27]</sup> 指出 MgO 衬底上  $\theta$  为  $36^\circ$  时,YBCO 薄膜中形成的晶界为 [101] 方向,且此时形成的晶界更加干净。本文的  $\theta = 34^\circ$  与这一推荐值

比较接近。另外,在德国尤利希研究中心 Faley 等<sup>[19]</sup> 的工作中,制备的 MgO 衬底台阶  $\theta = 38^\circ$ ,也与本文值接近。在与本文相似的  $\alpha$  和  $\beta$  刻蚀条件下,德国莱布尼茨研究所 Kaczmarek 等<sup>[18]</sup> 制备了  $\theta = 45^\circ$  的台阶,台阶角度高于本文的结果。这表明在衬底刻蚀时,其他刻蚀参数也会对台阶的角度和形貌产生一定的影响,值得进一步深入研究。

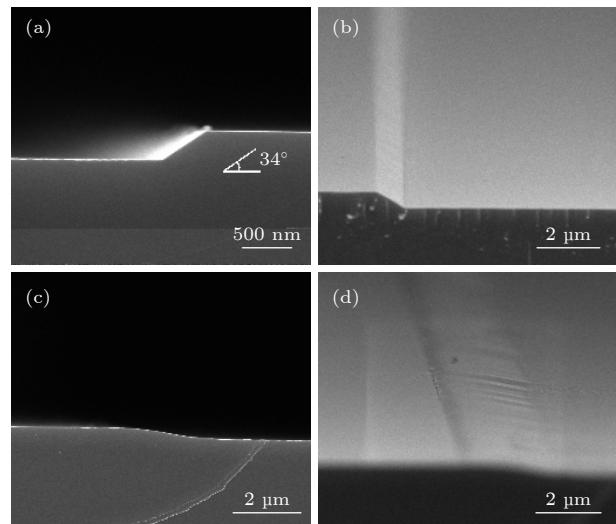


图 3 台阶的 SEM 形貌图 (a) 台阶断面图; (b) 台阶斜视图; (c) 刻蚀区域与台阶相对的另一边衬底的断面图; (d) 刻蚀区域与台阶相对的另一边衬底的斜视图

Fig. 3. SEM images of the step: (a) Cross section of the step; (b) oblique view of the step; (c) cross section of the substrate at the other side (opposite to the step) of the defined etching area; (d) oblique view of the substrate at the other side of the defined etching area.

### 3.3 YBCO 台阶结的输运测量

在衬底上通过上述工艺制备出台阶,然后利用 PLD 生长 YBCO 超导薄膜,进而通过紫外光刻确定结区图形,制备出 YBCO 台阶结。图 4 显示了一个结样品的  $R$ - $T$  曲线,结微桥线宽  $10 \mu\text{m}$ 、厚度  $110 \text{ nm}$ 、台阶高度  $210 \text{ nm}$ 。可以看到,随着温度降低,样品电阻出现陡降,这与图 1(b) 相似,体现出 YBCO 微桥的超导转变,转变中点温度  $T_C = 88.3 \text{ K}$ 。但与图 1(b) 不同的是,在超导转变接近完成时,结样品电阻下降出现一个明显的拖尾现象,如图 4 中的插图所示,电阻在一个相对较宽的温度区间内缓慢减小,至约  $85.5 \text{ K}$  时才变为零。这一差异,即出现的电阻拖尾现象,正是 YBCO 台阶结输运特性的体现<sup>[28,29]</sup>。

利用 Ambagaokar-Halperin (A-H) 理论<sup>[30]</sup> 可

对此电阻拖尾现象作进一步分析。按电阻电容分路结模型，在电流  $I$  作用下约瑟夫森结两端相位差  $\phi$  的变化可等效为质量  $M = [\hbar/(2e)]^2 C$  的粒子在倾斜的搓衣板势场  $U = -E_{J0} [\cos \phi + (I/I_C) \phi]$  中的运动，其中  $\hbar$  为约化普朗克常数， $e$  为电子电荷， $C$  为结电容， $E_{J0} = \hbar I_C / (2e)$  为约瑟夫森耦合能，势场的倾斜度由  $I/I_C$  的值决定。当热涨落效应比较显著时，较大的热噪声电流可在某些瞬间加剧势场的倾斜，使得粒子在势场  $U$  内滚动，即引起相位差  $\phi$  的滑移， $\langle d\phi/dt \rangle \neq 0$ ，从而使得结两端出现电压，此即热激发的相位滑移 (thermally activated phase slippage, TAPS)。对电容  $C$  比较小的过阻尼约瑟夫森结，A-H 理论指出<sup>[30]</sup>，由 TAPS 所引起的电阻  $R$  可表示为  $R/R_n = \{I_0(\gamma/2)\}^{-2}$ ，其中  $I_0(x)$  是虚宗量贝塞尔函数， $\gamma = \hbar I_C / (ek_B T)$  是热涨落参数。假定不存在热涨落时结的  $I_C \propto (1 - T/T_C)^n$ ，则有

$$\frac{R}{R_n} = \left\{ I_0 \left[ \frac{1}{2} p (1 - T/T_C)^n \right] \right\}^{-2}, \quad (1)$$

其中  $p$  为一常量，与结的临界电流值大小相关。

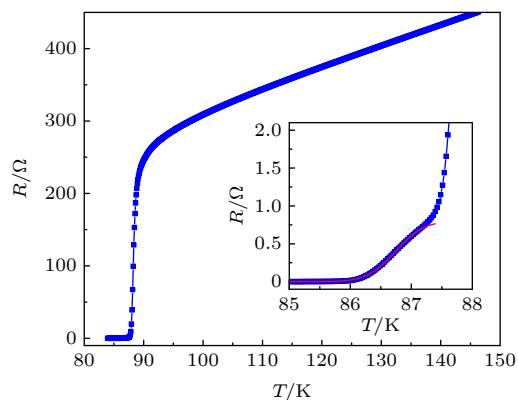


图 4 YBCO 台阶结的  $R$ - $T$  曲线 (插图为拖尾区的放大，其中红线代表 A-H 理论拟合)

Fig. 4.  $R$ - $T$  curve of the YBCO step-edge junction on MgO substrate. The inset shows a magnified view of the foot-structure region with the red line being a fit to the A-H theory.

由 (1) 式对拖尾区的电阻进行拟合，其中  $T_C = 88.3$  K，拟合曲线如图 4 插图中的红线所示，得到的拟合参数为  $R_n = 0.78 \Omega$ ,  $n = 1.92$ ,  $p = 1.1 \times 10^4$ 。可以看到，拟合曲线和实验数据符合得很好，同时，拟合得到的  $R_n$  与超导转变开始出现拖尾时的电阻值 (约  $0.8 \Omega$ ) 一致，表明观测到的电阻拖尾

现象可由考虑 TAPS 的 A-H 理论得到比较好地描述。进一步地，拟合给出的  $n = 1.92$  与理论上<sup>[31]</sup>超导体-正常金属-超导体 (S-N-S) 型约瑟夫森结的  $I_C$  随温度变化的幂指数  $n = 2$  很接近，表明制备的台阶结可能属于 S-N-S 型结。

为进一步表征结的特性，测量了  $T_C$  附近、温度低于  $85.5$  K 时结的  $V$ - $I$  曲线，如图 5(a) 所示。可以看出，与文献报道<sup>[15,25]</sup>类似，结的  $V$ - $I$  特性表现出电阻分路结 (resistively shunted junction, RSJ) 的行为<sup>[31]</sup>。在一些温度下，曲线在正负电流两极关于原点不完全对称。这一现象在 YBCO 晶界结的  $V$ - $I$  特性测量中时常被观察到，一般认为其可能与晶界附近由地磁场等所引起的磁通束缚有关<sup>[25,32]</sup>。另外可看到，在一些温度下  $V$ - $I$  曲线不是十分平滑，在小电压时出现拐点状的结构。类似的现象在 MgO 衬底<sup>[25]</sup>、STO 或 LAO 衬底<sup>[33,34]</sup> 上 YBCO 台阶结的  $V$ - $I$  曲线中都曾被观测到，被认为是由台阶上、下边沿处形成的相串联的两个晶界弱连接的不对称引起的，即两个晶界弱连接的约瑟夫森临界电流  $I_C$  不太一致，串联后这两个晶界弱连接依次进入电压态，从而使得  $V$ - $I$  曲线上出现拐点状的结构<sup>[33,34]</sup>。这表明，在如图 3(a) 所示的 MgO 衬底台阶的上、下边沿处形成的两个 YBCO 晶界的特性有些差异，还需要进一步优化制备参数以提高其一致性，从而使  $V$ - $I$  曲线更接近于单个约瑟夫森结的行为<sup>[18]</sup>。根据图 5(a) 中零电压的电流范围，确定出其中耦合相对稍小的晶界弱连接的  $I_C$  及相应的约瑟夫森临界电流密度  $J_C$ ，如图 5(b) 所示，其中红线表示由 S-N-S 型结在  $T_C$  附近的温度关系  $J_C = q(1 - T/T_C)^2$  对实验数据所作的拟合，拟合参数  $q = 9.3 \times 10^6 \text{ A/cm}^2$ 。可看到，实验数据和理论拟合曲线符合得比较好，与前述由 A-H 理论分析电阻拖尾现象时所得到的  $I_C$  随温度变化的规律一致。注意到 Foley 等<sup>[26]</sup>曾在  $\theta = 32^\circ$  的 MgO 衬底 YBCO 台阶结上观测到  $T_C$  附近  $J_C$  随温度线性变化，即  $J_C \propto (1 - T/T_C)$  的现象，认为与超导体-绝缘体-超导体 (S-I-S) 型约瑟夫森结的行为一致。这与本文的结果形成对照，表明可能由于结的其他制备参数的不同，本文中制备的台阶结其结区“势垒”的高度或厚度要小得多。在  $77$  K 时，图 5(b) 显示台阶结的  $J_C$  为  $1.4 \times 10^5 \text{ A/cm}^2$ ，与前述 YBCO 薄膜的临界电流密度值相比低约一个数量级。而对相似  $\theta$  ( $35^\circ$ — $45^\circ$ ) 的 MgO 衬底 YBCO 台阶结，

Foley 等报道  $J_C$  约在  $1 \times 10^3$ — $4 \times 10^4$  A/cm<sup>2</sup><sup>[15]</sup>, Kaczmarek 等报道  $J_C$  约为  $2 \times 10^4$  A/cm<sup>2</sup><sup>[18]</sup>, Faley 等报道  $J_C$  约为  $8 \times 10^3$  A/cm<sup>2</sup><sup>[24]</sup>, 均显著低于本文得到的结果. 这表明, 相对而言本文制备的台阶结其约瑟夫森耦合程度的确要强很多, 在后续的工作中需进一步改进制备工艺如适当增大  $\theta$  等来降低  $J_C$  和结的耦合程度.

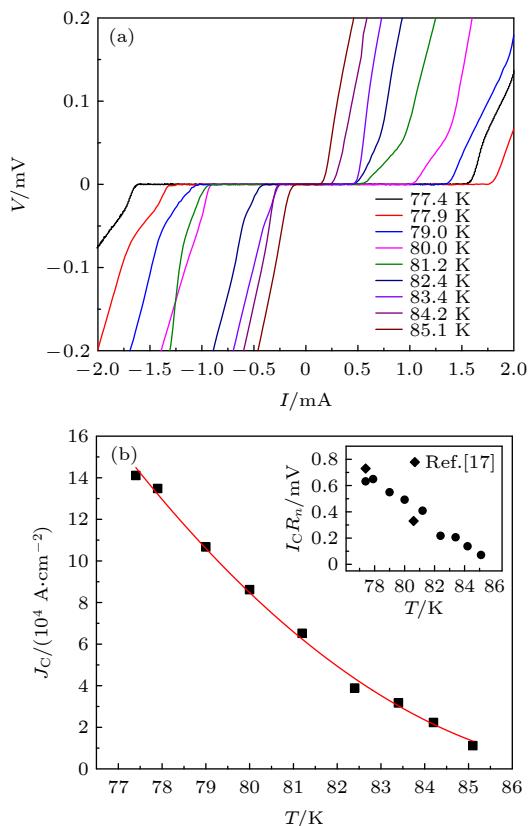


图 5 (a) YBCO 台阶结的  $V$ - $I$  特性曲线; (b) 台阶结的  $J_C$  随温度的变化, 红线代表 S-N-S 型约瑟夫森结的理论拟合, 内插图为  $I_C R_n$  随温度的变化, 其中菱形所代表的数据取自文献 [17]

Fig. 5. (a)  $V$ - $I$  curves of the YBCO step-edge junction on MgO substrate; (b) temperature dependence of  $J_C$ , with the red line being a fit to the  $(1 - T/T_C)^2$  dependence according to the theory of S-N-S Josephson junction. The inset shows  $I_C R_n$ , with data points in diamond taken from the Ref. [17].

注意到, 在  $\theta$  较小 ( $\theta = 19^\circ$ ) 的 MgO 衬底上, Mitsuzuka 等<sup>[25]</sup> 制备的 YBCO 台阶结在 69 K 时  $J_C$  为  $7 \times 10^5$  A/cm<sup>2</sup>, 与本文结果接近. 进一步地, 注意到对晶界角较低、约为  $8^\circ$ — $10^\circ$  的 STO 双晶衬底 YBCO 晶界结<sup>[8]</sup>, 文献报道的  $J_C$  也为类似水平, 如 Redwing 等<sup>[35]</sup> 在  $10^\circ$  晶界角 STO 双晶衬底上测量得到 77 K 时  $J_C$  约为  $4 \times 10^5$  A/cm<sup>2</sup>, 与本

文值相似. 这为理解本文制备的 YBCO 台阶结的特性提供了一定的线索. 对上述低晶界角双晶衬底 YBCO 晶界结, 基于微观结构考察和输运性质测量, 一般认为<sup>[8,35]</sup> 其晶界区由超导区域和非超导区域交替排列组成, 从模型上来说接近于一系列 S-s'-S 微桥的并联, 其中 s' 代表晶界附近的超导通道, 由于晶界处的无序或缺陷使得其具有较低的  $T_C$ , 这些 s' 超导通道由晶界上一系列的位错或强无序区域 (对应着非超导通道) 隔开. 随着晶界角的增大, 周期性的位错或强无序区域将会合并, 在晶界处形成畸变层, 从而使得结可能更接近于 S-N-S 或 S-I-S 型结的行为<sup>[8,36]</sup>. 因此, 虽然 STO 衬底上的 YBCO 双晶结和 MgO 衬底上的 YBCO 台阶结的晶界类型并不相同<sup>[8,14,15]</sup>, 从上述两者相似的  $J_C$  值出发, 并考虑到台阶结的结微桥宽度, 可推测本文制备的 MgO 衬底 YBCO 台阶结也有可能接近于上面 S-s'-S 模型所描述的情况. 不过另一方面, 在上述 S-s'-S 模型下,  $T_C$  附近  $J_C$  一般随温度线性变化<sup>[31,35]</sup>, 这与图 5(b) 所示的  $J_C$  符合 S-N-S 型结<sup>[31,36]</sup> 的  $(1 - T/T_C)^2$  的变化规律还不相同. 因此, 综合来看, 为区分上述不同的模型、鉴别本文制备的 YBCO 台阶结的属性, 还需要对结的微观结构进行考察及与进一步的输运测量进行对照和分析.

图 5(b) 的插图显示了  $T_C$  附近结的特性参量  $I_C R_n$ , 其中  $R_n$  取为图 5(a) 中电流远高于  $I_C$  时结的微分电阻. 同时给出的还有 Du 等<sup>[17]</sup> 在 MgO 衬底 YBCO 台阶结上测量的结果, 可看到,  $I_C R_n$  随温度升高近似线性减小, 与文献报道接近. 在 77 K,  $I_C R_n$  约为 0.6 mV, 与 Foley 等报道的 0.1—0.6 mV<sup>[15]</sup>, Mitchell 等报道的 0.1—0.4 mV<sup>[16]</sup>, Du 等报道的 0.7 mV<sup>[17]</sup>, Kaczmarek 等报道的 0.4—0.7 mV<sup>[18]</sup>, Faley 等报道的 0.3 mV<sup>[19]</sup> 等数值范围接近, 体现出 MgO 衬底 YBCO 台阶结可获得较高的  $I_C R_n$  的特点. 较高的  $I_C R_n$  对提高结的响应频率或响应速度、提高 DC SQUID 的电压调制幅度及磁场灵敏度等都将带来益处<sup>[6,17—19]</sup>. 另外需要指出的是, 上述提到的 S-s'-S 结或 S-N-S 结模型都可以给出  $T_C$  附近  $I_C R_n$  随温度线性变化的行为<sup>[35,37]</sup>. 因此, 目前尚不能基于图 5(b) 插图所示的  $I_C R_n$  的实验结果来对这两种模型加以区分. 如前所述, 还需要更深入的测量和分析来帮助进行判断.

### 3.4 YBCO RF SQUID 器件的表征

利用上述的台阶结制备技术, 我们初步制备了包含 MgO 衬底 YBCO 台阶结的高温超导 RF SQUID 器件。器件构型与之前文献报道的基于 LAO 衬底 YBCO 台阶结的 RF SQUID 器件构型相似<sup>[11]</sup>。SQUID 芯片所用的 MgO 衬底大小为  $5 \text{ mm} \times 5 \text{ mm}$ , 中心超导环孔尺寸为  $120 \mu\text{m} \times 120 \mu\text{m}$ , YBCO 台阶结的线宽为  $3 \mu\text{m}$ 。谐振器由  $10 \text{ mm} \times 10 \text{ mm}$  大小的 STO 衬底及其上生长的 YBCO 超导薄膜构成<sup>[21]</sup>。采用 FLL 方式对器件进行了测试。

图 6 显示了 77 K 时 RF SQUID 器件的测试结果。FLL 未闭合时测试结果如图 6(a) 所示, 其中黄线是磁场扫场信号 (纵向刻度为  $1.0 \text{ V}/\text{格}$ ), 蓝线为器件的电压-磁通曲线 (纵向刻度为  $0.2 \text{ V}/\text{格}$ ), 即通常所说的三角波图形。可以看到, 三角波的幅度 (电压峰峰值) 约为  $0.6 \text{ V}$ , 与 LAO 衬底上的器件 ( $0.9 \text{ V}$ ) 接近<sup>[11]</sup>, 磁通-电压转换系数为  $170 \text{ mV}/\Phi_0$ 。将 FLL 闭合, 即置于锁定状态, 测量器件的磁通噪声谱, 如图 6(b) 所示。在频率高于  $500 \text{ Hz}$  时, 谱线

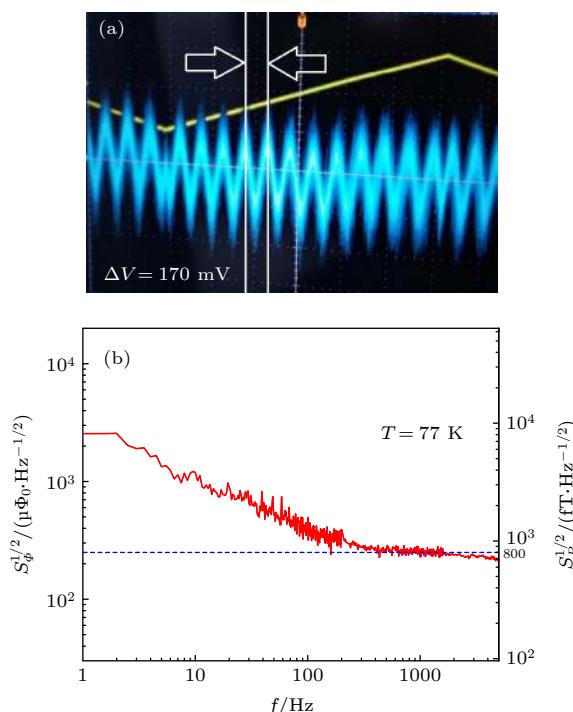


图 6 YBCO RF SQUID 器件的表征 (a) 电压-磁通曲线; (b) 噪声谱 (频率  $1 \text{ kHz}$  时磁通噪声  $250 \mu\Phi_0/\text{Hz}^{1/2}$ , 对应的磁场噪声  $800 \text{ fT}/\text{Hz}^{1/2}$ , 如蓝色虚线所示)

Fig. 6. Characterization of the YBCO RF SQUID: (a) Voltage-flux curve; (b) noise spectra, with blue dashed line denoting  $800 \text{ fT}/\text{Hz}^{1/2}$  at  $1 \text{ kHz}$ .

变化平缓, 显示磁通噪声为  $220\text{--}250 \mu\Phi_0/\text{Hz}^{1/2}$ , 结合器件的磁通-磁场转换系数, 得到此频率段对应的磁场噪声为  $700\text{--}800 \text{ fT}/\text{Hz}^{1/2}$ 。

文献中 Du<sup>[38]</sup> 也曾利用 MgO 衬底 YBCO 台阶结制备 RF SQUID 器件, 对不同器件测得白噪声段磁场噪声为  $300\text{--}1100 \text{ fT}/\text{Hz}^{1/2}$ 。本文上述磁场噪声数值处在此范围内。在 Du<sup>[38]</sup> 的工作中, 发现器件的性能与台阶结的  $I_C$  关系比较密切, 通过改变 YBCO 薄膜的厚度或对器件进行离子束轰击等后处理以调节或降低  $I_C$ , 可改善器件的性能, 得到磁场噪声在  $300\text{--}500 \text{ fT}/\text{Hz}^{1/2}$  性能相对较好的器件。这为后续进一步优化 MgO 衬底 YBCO 台阶结的制备工艺及参数选择, 以降低结的  $J_C$  或调节结的  $I_C$ , 从而进一步提高相应的 RF SQUID 器件的噪声性能提供了借鉴。

## 4 结 论

本文对 MgO 衬底 YBCO 台阶结的制备、输运特性、以及其在 RF SQUID 器件上的应用进行了研究。在 MgO(100) 衬底上, 利用 PLD 方法生长出超导性能良好的 YBCO 薄膜, 利用两步离子束刻蚀技术制备出台阶角度  $\theta = 34^\circ$  的台阶, 进而成功制备出 MgO 衬底 YBCO 台阶结。 $R$ - $T$  和  $V$ - $I$  特性曲线测试表明制备出的台阶结可能为 S-s'-S 或 S-N-S 型结,  $77 \text{ K}$  时结的  $J_C$  为  $1.4 \times 10^5 \text{ A}/\text{cm}^2$ 。利用 MgO 衬底 YBCO 台阶结制备了 RF SQUID 器件,  $77 \text{ K}$  时测得器件在频率  $1 \text{ kHz}$  处的磁通噪声为  $250 \mu\Phi_0/\text{Hz}^{1/2}$ , 与国际上同类器件文献报道水平接近。在后续的工作中, 计划通过调控台阶结的  $J_C$  和  $I_C$  等来优化台阶结制备的参数选择, 以进一步提高 RF SQUID 器件的性能。另一方面, 拟利用开发的台阶结制备技术开展 DC SQUID 器件的制备, 测试器件的性能, 以核实和展现 MgO 衬底 YBCO 台阶结在低噪声、高性能 DC SQUID 等超导器件上的应用潜力和价值。

## 参考文献

- [1] Clarke J, Braginski A I 2004 *The SQUID Handbook* (Vol. 1) (Weinheim: Wiley-VCH) pp1–395
- [2] Han H X, Zhang G F, Zhang X, Liang T T, Ying L L, Wang Y L, Peng W, Wang Z 2019 *Acta Phys. Sin.* **68** 138501 (in Chinese) [韩昊轩, 张国峰, 张雪, 梁恬恬, 应利良, 王永良, 彭炜, 王镇 2019 物理学报 **68** 138501]

- [3] Song C, Xu K, Li H K, Zhang Y R, Zhang X, Liu W X, Guo Q J, Wang Z, Ren W H, Hao J, Feng H, Fan H, Zheng D N, Wang D W, Wang H, Zhu S Y 2019 *Science* **365** 574
- [4] Xu K, Sun Z H, Liu W X, Zhang Y R, Li H K, Dong H, Ren W H, Zhang P F, Nori F, Zheng D N, Fan H, Wang H 2020 *Sci. Adv.* **6** eaba4935
- [5] Cao W H, Li J J, Zhong Q, Guo X W, He Q, Chi Z T 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 170304 (in Chinese) [曹文会, 李劲劲, 钟青, 郭小玮, 贺青, 迟宗涛 2012 物理学报 **61** 170304]
- [6] Du J, Smart K, Li L, Leslie K E, Hanham S M, Wang D H C, Foley C P, Ji F, Li X D, Zeng D Z 2015 *Supercond. Sci. Technol.* **28** 084001
- [7] Pfeiffer C, Ruffieux S, Jönsson L, Chuharkin M L, Kalabukhov A, Xie M S, Winkler D, Schneideman J F 2020 *IEEE Trans. Biomed. Eng.* **67** 1483
- [8] Hilgenkamp H, Mannhart J 2002 *Rev. Mod. Phys.* **74** 485
- [9] Hua T, Yu M, Geng H F, Xu W W, Lu Y P, Shi J X, Shen W K, Wu J B, Wang H B, Chen J, Wu P H 2018 *Supercond. Sci. Technol.* **31** 085009
- [10] Kleiner R, Wang H B 2019 *J. Appl. Phys.* **126** 171101
- [11] Liu Z H, Wei Y K, Wang D, Zhang C, Ma P, Wang Y 2014 *Chin. Phys. B* **23** 097401
- [12] Zheng P, Liu Z H, Wei Y K, Zhang C, Zhang Y, Wang Y, Ma P 2014 *Acta Phys. Sin.* **63** 198501 (in Chinese) [郑鹏, 刘政豪, 魏玉科, 张辰, 张炎, 王越, 马平 2014 物理学报 **63** 198501]
- [13] Chambers S A 2000 *Surf. Sci. Rep.* **39** 105
- [14] Tanaka S, Kado H, Matsuura T, Itozaki H 1993 *IEEE Trans. Appl. Supercond.* **3** 2365
- [15] Foley C P, Mitchell E E, Lam S K H, Sankrithyan B, Wilson Y M, Tilbrook D L, Morris S J 1999 *IEEE Trans. Appl. Supercond.* **9** 4281
- [16] Mitchell E E, Foley C P 2010 *Supercond. Sci. Technol.* **23** 065007
- [17] Du J, Hellicar A D, Li L, Hanham S M, Macfarlane J C, Leslie K E, Nikolic N, Foley C P, Greene K J 2009 *Supercond. Sci. Technol.* **22** 114001
- [18] Kaczmarek L L, Ijsselsteijn R, Zakosarenko V, Chwala A, Meyer H G, Meyer M, Stoltz R 2018 *IEEE Trans. Appl. Supercond.* **28** 1601805
- [19] Faley M I, Poppe U, Dunin-Borkowski R E, Schiek M, Boers F, Chocholacs H, Dammers J, Eich E, Shah N J, Ermakov A B, Slobodchikov V Y, Maslennikov Y V, Koshelets V P 2013 *IEEE Trans. Appl. Supercond.* **23** 1600705
- [20] Wang H Z, Li Y L, Wang Y, Gan Z Z 2020 *Physica C* **569** 1353587
- [21] Gao J, Yang T, Ma P, Dai Y D 2010 *Acta Phys. Sin.* **59** 5044 (in Chinese) [高吉, 杨涛, 马平, 戴远东 2010 物理学报 **59** 5044]
- [22] Proyer S, Stangl E, Borz M, Hellebrand B, Bäuerle D 1996 *Physica C* **257** 1
- [23] Ando Y, Segawa K 2002 *Phys. Rev. Lett.* **88** 167005
- [24] Faley M I, Slobodchikov V Y, Maslennikov Y V, Koshelets V P, Dunin-Borkowski R E 2016 *IEEE Trans. Appl. Supercond.* **26** 1600404
- [25] Mitsuzuka T, Yamaguchi K, Yoshikawa S, Hayashi K, Konishi M, Enomoto Y 1993 *Physica C* **218** 229
- [26] Foley C P, Lam S, Sankrithyan B, Wilson Y, Macfarlane J C, Hao L 1997 *IEEE Trans. Appl. Supercond.* **7** 3185
- [27] Yamaguchi K, Yoshikawa S, Takenaka T, Fujino S, Hayashi K, Mitsuzuka T, Suzuki K, Enomoto Y 1994 *IEICE Trans. Electron.* **E77-C** 1218
- [28] Gross R, Chaudhari P, Dimos D, Gupta A, Koren G 1990 *Phys. Rev. Lett.* **64** 228
- [29] Zhang J, Zhang C, Zhang Y, Ma P, Wang Y 2015 *Chin. J. Low Temp. Phys.* **37** 423 (in Chinese) [张骏, 张辰, 张焱, 马平, 王越 2015 低温物理学报 **37** 423]
- [30] Ambegaokar V, Halperin B I 1969 *Phys. Rev. Lett.* **22** 1364
- [31] Barone A, Paterno G 1982 *Physics and Applications of the Josephson Effect* (New York: Wiley) pp121–197
- [32] Dimos D, Chaudhari P, Mannhart J 1990 *Phys. Rev. B* **41** 4038
- [33] Siegel M, Herrmann K, Copetti C, Jia C L, Kabius B, Schubert J, Zander W, Braginski A I, Seidel P 1993 *IEEE Trans. Appl. Supercond.* **3** 2369
- [34] Herrmann K, Kunkel G, Siegel M, Schubert J, Zander W, Braginski A I, Jia C L, Kabius B, Urban K 1995 *J. Appl. Phys.* **78** 1131
- [35] Redwing R D, Hinaus B M, Rzchowski M S, Heinig N F, Davidson B A, Nordman J E 1999 *Appl. Phys. Lett.* **75** 3171
- [36] Steel D G, Hettinger J D, Yuan F, Miller D J, Gray K E, Kang J H, Talvacchio J 1996 *Appl. Phys. Lett.* **68** 120
- [37] Kupriyanov M Yu, Likharev K K 1991 *IEEE Trans. Magn.* **27** 2460
- [38] Du J 2003 *IEEE Trans. Appl. Supercond.* **13** 865

# Fabrication and characterization of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ step-edge Josephson junctions on $\text{MgO}$ substrate for high-temperature superconducting quantum interference devices\*

Wang Hong-Zhang    Li Yu-Long    Xu Tie-Quan    Zhu Zi-Qing  
 Ma Ping    Wang Yue<sup>†</sup>    Gan Zi-Zhao

(State Key Laboratory for Mesoscopic Physics, Applied Superconductivity Center,

School of Physics, Peking University, Beijing 100871, China)

(Received 8 August 2020; revised manuscript received 23 September 2020)

## Abstract

The  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  (YBCO) step-edge Josephson junction on  $\text{MgO}$  substrate has recently been shown to have important applications in making advanced high-transition temperature (high- $T_C$ ) superconducting devices such as high-sensitivity superconducting quantum interference device (SQUID), superconducting quantum interference filter, and THz detector. In this paper, we investigate the fabrication and transport properties of YBCO step-edge junction on  $\text{MgO}$  substrate. By optimizing the two-stage ion beam etching process, steps on  $\text{MgO}$  (100) substrates are prepared with an edge angle  $\theta$  of about  $34^\circ$ . The YBCO step-edge junctions are then fabricated by growing the YBCO thin films with a pulsed laser deposition technique and subsequent traditional photolithography. The resistive transition of the junction shows typical foot structure which is well described by the Ambegaokar-Halperin theory of thermally-activated phase slippage for overdamped Josephson junctions. The voltage-current curves with temperature dropping down to 77 K exhibit resistively shunted junction behavior, and the Josephson critical current density  $J_C$  is shown to follow the  $(T_C - T)^2$  dependence. At 77 K, the  $J_C$  of the junction reaches  $1.4 \times 10^5 \text{ A/cm}^2$ , significantly higher than the range of  $10^3\text{--}10^4 \text{ A/cm}^2$  as presented by other investigators for YBCO step-edge junctions on  $\text{MgO}$  substrate with comparable  $\theta$  of  $35^\circ\text{--}45^\circ$ . This indicates a rather strong Josephson coupling of the junction, and by invoking the results of YBCO bicrystal junctions showing similar values of  $J_C$ , it is tentatively proposed that the presently fabricated junction might be described as an S-s'-S junction with s' denoting the superconducting region of depressed  $T_C$  in the vicinity of the step edge or as an S-N-S junction with N denoting a very thin non-superconducting layer. By incorporating the  $\text{MgO}$ -based YBCO step-edge junction, high- $T_C$  radio frequency (RF) SQUID is made. The device shows decent voltage-flux curve and magnetic flux sensitivity of  $250 \mu\Phi_0/\text{Hz}^{1/2}$  at 1 kHz and 77 K, comparable to the values reported in the literature. To further improve the RF SQUID performance, efforts could be devoted to optimizing the junction parameters such as the junction  $J_C$ . By using the YBCO step-edge junction on  $\text{MgO}$  substrate, high- $T_C$  direct current SQUID could also be developed, as reported recently by other investigators, to demonstrate the potential of  $\text{MgO}$ -based step-edge junction in making such a kind of device with superior magnetic flux sensitivity.

**Keywords:**  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ , step-edge junction, superconducting quantum interference device

**PACS:** 74.50.+r, 74.72.Gh, 74.78.-w, 85.25.Dq

**DOI:** 10.7498/aps.70.20201291

\* Project supported by the National Key Research and Development Program of China (Grant No. 2017YFC0601900) and the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 61571019).

† Corresponding author. E-mail: [yue.wang@pku.edu.cn](mailto:yue.wang@pku.edu.cn)