STUDY OF SUPERCONDUCTING PROPERTIES OF YBCO NANOCOMPOSITES AND STEP EDGE JOSEPHSON JUNCTION BASED DEVICES

Rajni

(2020PHZ8785)

DEPARTMENT OF PHYSICS

INDIAN INSTITUTE OF TECHNOLOGY DELHI

JULY 2025

STUDY OF SUPERCONDUCTING PROPERTIES OF YBCO NANOCOMPOSITES AND STEP EDGE JOSEPHSON JUNCTION BASED DEVICES

by

RAJNI

Department of Physics

Submitted

in fulfilment of requirements of the degree of Doctor of Philosophy

to the

DEPARTMENT OF PHYSICS

INDIAN INSTITUTE OF TECHNOLOGY DELHI

JULY 2025

Dedicated

to

My Family

CERTIFICATE

This is to certify that the thesis entitled "**Study of Superconducting Properties of YBCO Nanocomposites and Step Edge Josephson Junction Based Devices**", being submitted by **Ms. Rajni** to the **Department of Physics, Indian Institute of Technology, Delhi,** is worthy of consideration for the award of the degree of **Doctor of Philosophy** and is a record of the original bonafide research work carried out by her under my guidance and supervision. She has fulfilled all the criteria for the submission of the thesis, which is in my opinion has reached the necessary standard.

The results contained in this thesis have not been submitted, in part or full, to any other university or institute for the award of any degree/diploma.

Prof. Neeraj Khare

Department of Physics

Indian Institute of Technology Delhi

Hauz Khas, New Delhi-110016,

India

ACKNOWLEDGEMENTS

First and foremost, I wish to express my profound gratitude to the Almighty God and The Pitra Dev, whose boundless grace and unwavering strength have been the guiding light throughout my journey. It is through His divine blessings that I have cultivated the patience, courage, and determination needed to overcome the many challenges encountered along the way.

I am profoundly grateful to my research supervisor, Prof. Neeraj Khare, for his invaluable guidance, expertise, and mentorship. His unwavering support has been the cornerstone of this thesis, shaping not only the trajectory of my work but also influencing my personal and professional growth. His insightful advice, constructive critiques, and constant encouragement have inspired me to persevere and strive for excellence. I am truly indebted to him for his generosity with time, his patience with my learning curve, and his dedication to fostering my academic development.

My heartfelt thanks also extend to the esteemed members of the student research committee, Prof. Pankaj Srivastava, Prof. Sujeet Chaudhary, and Prof. Samaresh Das, for their constructive feedback, thoughtful questions, and professional advice. Their critical evaluations and insightful suggestions challenged me to approach my research with greater clarity and rigor, and I deeply appreciate their time and expertise.

I also wish to acknowledge the Nanoscale Research Facility (NRF), Central Research Facility (CRF), Department of Physics, and all the technical staff at IIT Delhi for their invaluable assistance and provision of characterization facilities throughout my research. Their support has been vital to the successful execution of this work.

Additionally, I am sincerely grateful to the Council of Scientific and Industrial Research (CSIR), India, for the financial support provided through the Junior Research Fellowship (JRF) and Senior

Research Fellowship (SRF). Their contribution has been instrumental in enabling me to focus on my research endeavors.

I extend my sincerest gratitude to my colleagues at the Nano Functional Oxides and Superconductivity Laboratory (NFOSL), including Dr. Mohd. Faraz, Prof. Alok Kumar Jha, Dr. Deepanshu Sharma, Dr. Satyendra Prakash Pal, Dr. Rohit Kumar, Dr. Simrjit Singh, Dr. Sandeep Munjal, Dr. Kannan U. M, Dr. Huidrom Hemojit Singh, Dr. Nitish Yadav, Dr. Dheeraj Kumar, Dr, Mamta Dahiya, Dr. Amish Kumar Gautam, Dr. Mohit Khosya, Dr. Birendra Kumar, Dr. Gaurav Sharma, Mrs. Abhilasha Chouksey, Dr. Arun Mondal, Dr. Manoj Singh, Mr. Aman Sharma, Mr. Gaurav Kumar, Mr. Sandeep Kumar, Ms. Sarita Mittal. The support and contributions of the team have been instrumental in establishing an effective and supportive working environment within the laboratory. I am thankful to Mr. Amit Gupta and Mr. Arjun Singh as lab assistants.

I want to thank Dr. Mamta Dahiya, Dr. Mohd. Faraz and Mr. Sandeep Kumar, for generously sharing their experiences, knowledge, constant motivation, and all the discussions, which have been particularly beneficial to me.

I extend my profound love and gratitude to my family, whose unwavering support has been the foundation of every achievement I have attained. To my late grandparents, Mr. Dhoom Singh Kandari and Mrs. Ramdei Devi; my late father, Mr. Nagendra Singh Kandari, and my mother, Mrs. Rajeshwari Devi; my late uncle, Mr. Jagdish Singh, and my aunt, Mrs. Urmila Devi your blessings, prayers, and sacrifices have shaped my path, and this accomplishment is as much yours as it is mine. To my brothers, Mr. Rajesh Kandari, Mr. Sanwar Singh, and Mr. Harshvardhan Singh, my sister, Ms. Sangeeta, and my sister-in-law, Mrs. Shakuntala Kandari your unwavering faith in me and continued encouragement have been instrumental in my perseverance. A special

place in my heart is reserved for my beloved niece, Ms. Tripty, who fills our lives with joy and hope. I am also deeply grateful to my cousins and extended family for your unwavering support, reminding me of the true value of generosity and humanity.

Furthermore, I cherish my friends Sonika Singh, Naina Kushwaha, Simranjeet Kaur, Shivani Kumawat, Arun Mondal, Manoj Singh, Neelam, Ankita Rawat, Arunesh Singh, Prabal Dweep Khanikar, Gazal Gupta, Sakshi Garg, Monika Rana, Nisha Rawat, Kuldeep Kunwar, Pankaj Rawat, Ganesh Sati, Sahin Alam, Nakul Kumar, Lalit Pandey, Nanhe Kumar Gupta, Jay Krishna Anand, Shailendra Singh, Sonali Rai, Deepika Singh, Himasmita, Sarita Mittal, Sandeep Kumar, Neha Jain, Mohit Bhatt, Ekta Yadav, Anupriya Tiwari, Shreyashi Sinha, Subi Nath, Pratyusha Thakur, Puspita Chanda for their unwavering support through trials and triumphs. Your encouragement, understanding, and belief in my capabilities have been invaluable. Thank you for uplifting my spirits during challenging times and celebrating the milestones along this journey with me.

Last but not the least, I express my profound gratitude to all my teachers, from childhood to the present, who have guided me with wisdom and nurtured my curiosity. Their invaluable support has shaped my academic journey and personal growth.

Rajni

ABSTRACT

High-temperature superconductors (HTS) are a special class of materials that exhibit zero electrical resistance and perfect diamagnetism at relatively high temperatures, typically above the boiling point of liquid nitrogen (77 K). One of the most extensively researched HTS materials is $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ (YBCO), which is known for its remarkable superconducting properties. However, practical applications of YBCO have major challenges: (i) for bulk superconductors, the sharp decline in critical current density (J_c) in the presence of external magnetic fields, and (ii) for thin film devices such as Josephson junctions, the low values of characteristic voltage (which is the product of critical current I_c and normal state resistance R_n) also known as I_cR_n product. In order to address the first issue, artificial pinning centers are introduced in the YBCO matrix to improve flux pinning and slow down the reduction of J_c. For the second challenge, step edge Josephson junctions emerge as a preferred fabrication method due to their flexibility in junction positioning and relatively simple fabrication process. Through precise control of fabrication parameters, key device characteristics such as I_c, R_n, and I_cR_n product can be optimized. Additionally, implementing multiple junctions in an array configuration enhances the overall I_cR_n product, presenting a promising pathway for advancing superconducting device performance.

In order to investigate the effect of the magnetic nature of nano additive flux pinning, magnetic NiO nanoparticles are introduced as artificial pinning centers in the bulk YBCO matrix. YBCO and its nanocomposite samples (YBCO-NiO) are synthesized by adding magnetic NiO nanoparticles utilizing the solid state reaction method. X-ray diffraction of the nanocomposite samples confirmed that all retained the orthorhombic structure of YBCO. The NiO nanoparticles display ferromagnetic behavior with a saturation magnetization of approximately 0.85 emu/g, remanence around 0.057 emu/g, and a coercive field of about 89 Oe. The critical temperature (T_c)

is 91 K for pure YBCO, and its value changes to 90 K for the YBCO- 0.1 wt% NiO and 87 K for the YBCO- 0.2 wt% NiO nanocomposites. Magnetization vs. applied magnetic field loops at 20 K and 60 K show a larger hysteresis loop for the YBCO- 0.1 wt% NiO nanocomposite compared to pure YBCO, indicating stronger pinning. By using Bean's critical state model on the hysteresis data, critical current density (J_c) is determined. The improvement factor (f) in J_c, calculated for applied fields up to 5 T and all temperatures, is found to be greater than 1, confirming the enhancement in pinning for the YBCO- NiO nanocomposite sample. In the case of magnetic nano additives, two mechanisms improve the pinning: first, the incorporation of nanoparticles introduces structural defects in YBCO matrix, and second, additional pinning is achieved through magnetic interaction with vortices. At higher applied fields, however, the inter-vortex magnetic interactions weaken, and the enhanced pinning is predominantly due to structural defects introduced in YBCO due to the presence of NiO.

However, YBCO step edge Josephson junctions on $SrTiO_3$ (STO) substrates are fabricated and characterized for superconducting device applications, and the resistively shunted junction (RSJ) model fitting is done using PSCAN2 software. A well defined step with a height of 450 nm and a step angle of 18° created on the STO substrate using photolithography followed by ion beam etching. A microbridge of 100 μm length and 10 μm width is fabricated across the YBCO deposited step edge STO substrate and characterized by resistance vs. temperature and current vs. voltage measurements. Parameters such as critical temperature, T_c, critical currents, I_c, and normal state resistance (R_n) are measured at different temperatures. Resistively shunted junction (RSJ) model fitting using PSCAN2 reveals the overdamped behavior of the junction, which is attributed to the presence of normal conducting channels in the microbridge, leading to additional rounding in the experimental data.

A systematic investigation of the impact of YBCO film thickness (t) relative to the substrate step height (h) on the junction parameters as I_c, R_n, and I_cR_n product of the YBCO step edge Josephson junction is analyzed. A step edge on STO substrates is fabricated, such as the step height (h) is 450 nm. YBCO films, with thicknesses tuned via controlling the laser shots, are deposited on the step edged STO substrate. Atomic force microscopy confirmed t/h ratios of ~ 0.4, 0.7, and 1.2. YBCO microbridges ~ 100×10 μm² are fabricated across the step edge, and electrical measurements yielded critical temperatures of around 82, 85, and 88 K, respectively. The I_cR_n products, at 70 K, are 2.06, 2.76, and 0.43 mV for respective t/h ratios of 0.4, 0.7 and 1.2. Fitting the critical current I_c vs. reduced temperature ($1–T/T_c$) indicates that the junctions behave as a superconductor–normal metal–superconductor (SNS) type. These results highlight the critical influence of the t/h ratio on junction performance, offering a pathway to optimize the YBCO based Josephson junctions.

Achieving the higher value of characteristic voltage, I_cR_n, is possible by fabricating an array of junctions. An array of four junctions is designed using CleWin5 software and fabricated an array of four junctions on YBCO film deposited on a 5×5 mm^2 step edge etched STO substrate by second-level lithography and ion beam milling process. Electrical measurements of individual junctions, namely J1, J2, J3, and J4, show nearly identical values of critical currents I_c and normal state resistances R_n, confirming the quality and uniformity of the fabricated junctions. At 70 K, a single junction possessed an I_c of ~530 μA and R_n of 5 Ω, while arrays of two, three, and four junctions showed progressively increasing R_n values of 7, 9.7, and 12.5 Ω, with I_c values of ~510, 500, and 490 μA, respectively. Notably, the I_cR_n product for single and four junctions are ~ 2.7 and 6 mV increasing with the number of junctions, demonstrating the feasibility of this approach for enhancing device performance.

सार

उच्च तापमान अतिचालक (HTS), पदार्थों का एक विशेष वर्ग है जो अपेक्षाकृत उच्च तापमान पर, आमतौर पर तरल नाइट्रोजन के क्वथनांक (77 K) से ऊपर शून्य विद्युत प्रतिरोध और पूर्ण प्रतिचुंबकीयता प्रदर्शित करते हैं। इन HTS पदार्थों में $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ (YBCO) सबसे अधिक अध्ययन किया गया पदार्थ है, जो अपनी उत्कृष्ट अतिचालक विशेषताओं के लिए जाना जाता है। हालाँकि, YBCO के व्यावहारिक अनुप्रयोगों में कई प्रमुख चुनौतियाँ हैं: (i) समष्टि अतिचालक के लिए, बाहरी चुंबकीय क्षेत्रों की उपस्थिति में क्रांतिक धारा घनत्व (J_c) में तेज गिरावट, और (ii) जोसेफसन जंक्शनों में I_cR_n गुणनफल का निम्न मान। पहले मुद्दे को हल करने के लिए, YBCO मैट्रिक्स में कृत्रिम पिनिंग केंद्रों को जोड़ा जाता है ताकि फ्लक्स पिनिंग में सुधार किया जा सके और J_c की कमी को धीमा किया जा सके। दूसरे चुनौती के लिए, स्टेप एज जोसेफसन जंक्शन पसंदीदा निर्माण विधि के रूप में उभरते हैं, क्योंकि इनमें जंक्शन की स्थिति को लचीले ढंग से नियंत्रित करने और अपेक्षाकृत सरल निर्माण प्रक्रिया की सुविधा होती है। निर्माण परिमापों की सटीक नियंत्रण के माध्यम से, प्रमुख उपकरण विशेषताओं जैसे I_c, R_n, और I_cR_n गुणनफल को अनुकूलित किया जा सकता है। इसके अतिरिक्त, एक श्रृंखला विन्यास में बहु-जंक्शन को लागू करने से कुल I_cR_n गुणनफल को बढ़ाया जाता है, जो सुपरकंडक्टिंग उपकरणों के प्रदर्शन को आगे बढ़ाने के लिए एक आशाजनक मार्ग प्रस्तुत करता है।

नैनो संयोजित पदार्थ के चुंबकीय स्वभाव के फ्लक्स पिनिंग पर प्रभाव की जांच करने के लिए, समष्टि YBCO मैट्रिक्स में कृत्रिम पिनिंग केंद्रों के रूप में चुंबकीय NiO नैनोकणों को जोड़ा गया है। YBCO और इसके नैनोकंपोजिट नमूने (YBCO-NIO) को ठोस-अवस्था अभिक्रिया विधि से चुंबकीय NiO नैनोकणों को जोड़कर संश्लेषित किया गया। एक्स-रे विवर्तन ने पुष्टि की कि सभी नमूनों ने ऑर्थोरोम्बिक संरचना को बनाए रखा। NiO नैनोकणों ने लगभग 0.85 emu/g का संतृप्त चुम्बकत्व, लगभग 0.057 emu/g का अवशिष्ट चुंबकत्व और लगभग 89 Oe का प्रतिरोधी क्षेत्र दर्शाया, जो इनकी लौहचुंबकीय प्रकृति को दर्शाता है। YBCO, 91 K का क्रांतिक तापमान (T_c) दर्शाता है, जबकि 0.1 wt.% नैनोकॉम्पोजिट के लिए यह 90 K और 0.2 wt.% के लिए 87 K है। 0.2 wt. % नमूने में T_c में उल्लेखनीय गिरावट NiO नैनोकणों के एकत्रित होने को दर्शाती है। 20 K और 60 K पर चुंबकीय क्षेत्र के विरुद्ध चुम्बकत्व पाश दर्शाते हैं, कि YBCO-0.1 wt% NiO नैनोकॉम्पोजिट के लिए शैथिल्य पाश, शुद्ध YBCO की तुलना में ज्यादा है,

जो पिनिंग का संकेत देता है। 5 T तक के सभी तापमानों पर J_c में सुधार कारक (f) एक से अधिक पाया गया, जिससे YBCO नैनोकॉम्पोजिट में पिनिंग के सुधार की पुष्टि होती है। चुंबकीय नैनो योगज में, पिनिंग को बेहतर बनाने के दो प्रमुख क्रियाविधि कार्य करती हैं: पहली, नैनोकणों की उपस्थिति से संरचनात्मक दोष उत्पन्न होते हैं; और दूसरी, भँवर (vortices) के साथ चुंबकीय अंतःक्रिया के माध्यम से अतिरिक्त पिनिंग प्राप्त होती है। हालाँकि, उच्च चुंबकीय क्षेत्रों में भँवर-अंतःक्रिया कमजोर हो जाती हैं, जिससे पिनिंग मुख्यतः संरचनात्मक दोषों पर निर्भर हो जाती है।

YBCO स्टेप एज जोसेफसन जंक्शन्स को $SrTiO_3$ (STO) सब्सट्रेट्स पर तैयार किया गया है और अतिचालक उपकरण अनुप्रयोगों के लिए उनका परीक्षण किया गया है। STO सब्सट्रेट पर 450 नैनोमीटर की ऊँचाई और 18° के स्टेप कोण के साथ एक स्टेप तैयार किया गया, जिसका निर्माण फ़ोटोलिथोग्राफी और उसके बाद आयन बीम एचिंग द्वारा किया गया। YBCO निक्षिप्त स्टेप एज STO सब्सट्रेट पर 100 माइक्रोमीटर लंबा और 10 माइक्रोमीटर चौड़ा माइक्रोब्रिज़ तैयार किया गया और उसका परीक्षण प्रतिरोध बनाम तापमान और धारा बनाम विभव मापों के माध्यम से किया गया। विभिन्न तापमानों पर क्रांतिक तापमान (T_c) और क्रांतिक धारा (I_c) जैसे परिमाप मापे गए। PSCAN2 का उपयोग करते हुए प्रतिरोधक रूप से शंट किया जंक्शन (RSJ) मॉडल की फिटिंग से जंक्शन का अति-अवमंदित व्यवहार स्पष्ट हुआ, जो माइक्रोब्रिज में सामान्य चालक चैनलों की उपस्थिति के कारण था, जिसके कारण प्रयोगात्मक आंकड़ों में अतिरिक्त गोलाई आई।

YBCO फ़िल्म की मोटाई (t) और सब्सट्रेट स्टेप ऊँचाई (h) के बीच के संबंध का व्यवस्थित अध्ययन किया गया है, और YBCO स्टेप एज जोसेफसन जंक्शन के परिमाप जैसे I_c, R_n और I_cR_n गुणनफल पर इसके प्रभाव का विश्लेषण किया गया है। YBCO फ़िल्में, जिनकी मोटाई को लेजर शॉट के माध्यम से नियंत्रित किया गया। परमाणु बल सूक्ष्मदर्शी ने t/h अनुपातों की पुष्टि की, जो लगभग 0.4, 0.7 और 1.2, और क्रांतिक तापमान 82, 85, और 88 K हैं। 70 K पर, I_cR_n गुणनफल, क्रमशः t/h अनुपात 0.4, 0.7 और 1.2 के लिए 2.06, 2.76 और 0.43 mV हैं। I_c और तापमान ($1-T/T_c$) के बीच के संबंध को फिट करने से यह संकेत मिलता है कि जंक्शन्स एक अतिचालक–सामान्य धातु– अतिचालक (SNS) प्रकार के रूप में व्यवहार करते हैं। ये परिणाम t/h अनुपात के जंक्शन प्रदर्शन पर महत्वपूर्ण प्रभाव को उजागर करते हैं, जो YBCO आधारित जोसेफसन जंक्शन्स को अनुकूलित करने का एक मार्ग प्रदान करते हैं।

I_cR_n, का उच्च मान प्राप्त करना, जंक्शन की एक श्रृंखला बनाकर संभव है। चार जंक्शनों की एक श्रृंखला CleWin5 सॉफ़्टवेयर में डिज़ाइन की गई और YBCO निक्षिप्त स्टेप एज STO सब्सट्रेट पर द्वितीय-स्तरीय लिथोग्राफी और एचिंग प्रक्रिया के माध्यम से निर्मित किया गया। जंक्शनों J1, J2, J3 और J4 के विद्युत मापन से I_c और R_n के लगभग समान मान प्राप्त हुए, जो निर्मित जंक्शनों की गुणवत्ता और एकरूपता की पुष्टि करता है। विशेष रूप से, 70 K पर एक एकल जंक्शन में लगभग 530 μA का I_c और 5 Ω का R_n पाया गया, जबकि दो, तीन और चार जंक्शनों की श्रृंखला के R_n मान क्रमशः 7, 9.7 और 12.5 Ω और I_c मान क्रमशः लगभग 510, 500, और 490 μA थे। ध्यान देने योग्य बात यह है कि एकल और चार जंक्शनों के लिए I_cR_n गुणनफल क्रमशः लगभग 2.7 mV और 6 mV था, जो जंक्शनों की संख्या बढ़ने के साथ बढ़ता गया। यह दृष्टिकोण उपकरण के प्रदर्शन को बेहतर बनाने के लिए एक प्रभावी रणनीति साबित होती है।

TABLE OF CONTENTS

LIST OF FIGURES

LIST OF TABLES

NOMENCLATURE

List of Abbreviations

YBCO	Yttrium Barium Copper Oxide
STO	Strontium Titanate
NiO	Nickle Oxide
JJ	Josephson Junction
HTS	High Temperature Superconductor
LTS	Low Temperature Superconductor
SEJ	Step Edge Junction
RSJ	Resistively Shunted Junction
BCS	Bardeen-Cooper-Schrieffer
PSCAN	Portable Superconducting Circuit Analyzer
GB	Grain Boundary
SQUID	Superconducting Quantum Interference Device
SQIFs	Single Flux Quantum Interference Filters
XRD	X-Ray Diffraction
SEM	Scanning Electron Microscopy
TEM	Transmission Electron Microscopy
PPMS	Physical Properties Measurement System
AFM	Atomic Force Microscopy
IBE	Ion Beam Etching
PLD	Pulsed Laser Deposition

List of Symbols

R	Resistance
T	Temperature
I	Current
V	Voltage
T_c	Critical Temperature
I_c	Critical Current
J_c	Critical Current Density
B_a	External Applied Field
Φ_o	Flux Quantization
H_c	Critical Field
H_{c1}	Lower Critical Field
H_{c2}	Upper Critical Field
F_P	Pinning Force
F_L	Lorentz Force
ξ	Coherence Length
λ	Penetration Depth
R_n	Normal State Resistance
C	Capacitance
h	Plank's Constant
e	Electric Charge
ϕ	Phase Difference

ρ	Resistivity
M	Magnetization
α	Step Angle
t	Film Thickness
h	Step Height