

02,08

Влияние малых доз ионного облучения на сверхпроводящие свойства тонких пленок NbN

© Г.Ю. Голубев¹, К.Е. Приходько^{1,2}, Б.А. Гурович¹, Д.А. Комаров¹, Е.М. Малиева¹,
Б.В. Гончаров¹, Д.А. Гончарова¹, В.Л. Столяров¹

¹ Национальный исследовательский центр „Курчатовский Институт“, Москва, Россия

² Национальный исследовательский ядерный университет МИФИ, Москва, Россия

E-mail: geolubev@gmail.com

Поступила в Редакцию 18 апреля 2024 г.

В окончательной редакции 18 апреля 2024 г.

Принята к публикации 8 мая 2024 г.

Впервые выполнены эксперименты по влиянию малых флюенсов ($\sim 2.7 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2}$) смешанного ионного облучения на сверхпроводящие характеристики пленки NbN. Были измерены критические токи перехода (полученные из статических вольт-амперных характеристик) и зависимости $R(T)$ для исходной пленки и после облучения малым флюенсом. Было установлено, что при таком флюенсе наблюдается увеличение критического тока перехода NbN из сверхпроводящего состояния в нормальное. При этом было установлено отсутствие влияния такого малого флюенса на критическую температуру перехода.

Ключевые слова: тонкие сверхпроводящие пленки NbN, смешанное ионное облучение, критические токи сверхпроводящих пленок, влияние облучения на сверхпроводящие свойства пленок NbN.

DOI: 10.61011/FTT.2024.06.58237.23NH

1. Введение

Несмотря на технологическую развитость полупроводниковой электроники, для устройств на основе транзисторов характерен ряд ограничений по тактовой частоте и энергопотреблению. С целью преодоления данных ограничений разрабатываются альтернативные вычислительные технологии. В качестве таковых, например, могут выступать сверхпроводниковые вычислительные устройства, имеющие классическую „неймановскую“ логическую архитектуру.

В НИЦ „Курчатовский Институт“ разрабатывается элементная база логических устройств на основе переключения участков сверхпроводника (нанопроводов) между нормальным и сверхпроводящим состояниями. Для переключения используется другой нанопровод с сопротивлением, интегрированным в него с помощью смешанного ионного облучения [1]. В качестве сверхпроводящего материала выбран нитрид ниобия NbN, благодаря своим высоким критическим свойствам и технологическим преимуществам.

Ранее нами было изучено поведение NbN под смешанным ионным облучением, необходимым для изготовления элементов сверхпроводниковой электроники. Так, при облучении смешанным протонно-кислородным пучком пленки NbN толщиной 5 nm в диапазоне доз, соответствующим флюенсам $20\text{--}100 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$, наблюдается изменение характера проводимости со сверхпроводящего на металлический. При дозах $100\text{--}145 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ пленка становится диэлектрической при температуре

4.2 K. При этом, изменение характера проводимости обусловлено изменением химического состава пленки [2].

Позже нами были проведены исследования влияния смешанного ионного облучения с энергией 1 keV и стабилизирующего отжига на сверхпроводимость пленок NbN толщиной 5.5 nm при флюенсах облучения до $10 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$. В работе [3] показано уменьшение критических свойств пленки с ростом флюенса облучения. При этом, стабилизирующий отжиг в режиме 200°C , 1 h после облучения флюенсом более $40 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ увеличивает критический ток пленки. Однако при флюенсе менее $40 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ отжиг также может уменьшать критический ток в NbN [3].

Как предполагается в работе [3], данное уменьшение критического тока после отжига связано с уменьшением количества дефектов, которые являются центрами пиннинга. При этом наблюдался сильный разброс значений критических токов по причине отличающихся между собой толщин исходной пленки NbN для разных образцов.

Исследование возможности влияния ионного облучения на критический ток прямого перехода сверхпроводящего тонкопленочного NbN в нормальное состояние за счет создания дефектов при малых флюенсах явилось целью предлагаемой работы.

2. Эксперимент

Объектом исследования является пленка NbN толщиной 5 nm, напыленная на сапфировую подложку при

температуре 100°С. Облучению подвергалась квадратная область $20 \times 20 \mu\text{m}^2$. С противоположных сторон квадрата напылены контакты для измерений. Материал контактов — платина с подслоем никеля.

Для устранения влияния разброса исходных токов на результат эксперимента была применена следующая схема эксперимента. Образец тонкой пленки NbN помещен в криостат замкнутого цикла CFSG-101 производства Cryo Trade Engineering. После охлаждения проведено снятие вольт-амперной характеристики (ВАХ) в диапазоне температур 4–7 К с шагом 0.2 К и 7.1–9.5 К с шагом 0.1 К.

Использование криостата замкнутого цикла позволяет проводить измерения электрических характеристик без загрязнения поверхности образца. Это делает возможным облучение образцов после измерений и проведение последующих измерений в процессе накопления дозы.

После измерений ВАХ в исходном состоянии образцы подвержены смешанному ионному облучению на установке Sorpa Cube производства CCR Technology. Облучение проводилось пучком, состоящим из 99% протонов и 1% кислорода. Энергия пучка составила 0.6 keV, плотность ионного тока $j = 0.849 \text{ A/m}^2$. Скорость набора флюенса составила $5.3 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2}$, максимальный флюенс облучения составил $13.25 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2}$.

3. Результаты

ВАХ снимались в режиме стабилизации тока путем его повышения через образец до перехода в нормальное состояние („прямой“ переход), а затем — снижения тока до „обратного“ перехода в сверхпроводящее состояние. При этом критический ток прямого и обратного перехода отличаются друг от друга. Данное различие вызвано тем, что в нормальном состоянии при протекании тока через сверхпроводник происходит выделение тепла по закону Джоуля–Ленца. Данное тепловыделение приводит к локальному разогреву сверхпроводящей фазы до температуры выше критической при данном значении протекающего тока. По мере снижения тока через сверхпроводник снижается тепловыделение, а также повышается критическая температура, соответствующая протекающему току. Пример ВАХ исходного и облученного образца при температуре 4.2 К представлены на рис. 1.

Необходимо отметить, что кривые, представленные на рис. 1, построенные для образца в виде микромоста шириной $20 \mu\text{m}$ характеризуются резким переходом из сверхпроводящего состояния с низким сопротивлением в нормальное состояние с высоким сопротивлением. Это обусловлено большой шириной микромоста, при которой обе границы образца, на которых обычно зарождаются вихри на различных неоднородностях, находятся далеко от основного объема сверхпроводящей пленки. Если из такой пленки NbN изготовить нанопровод, уменьшив сечение для протекания сверхпроводящего

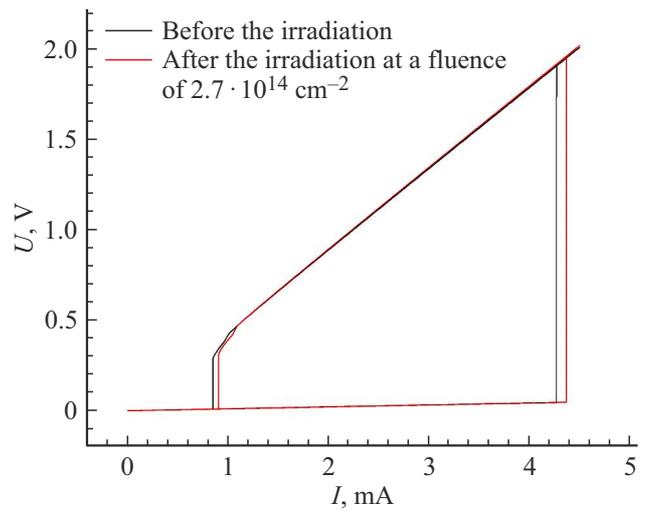


Рис. 1. ВАХ исходного и облученного образца при температуре 4.2 К. Ширина образца $20 \mu\text{m}$.

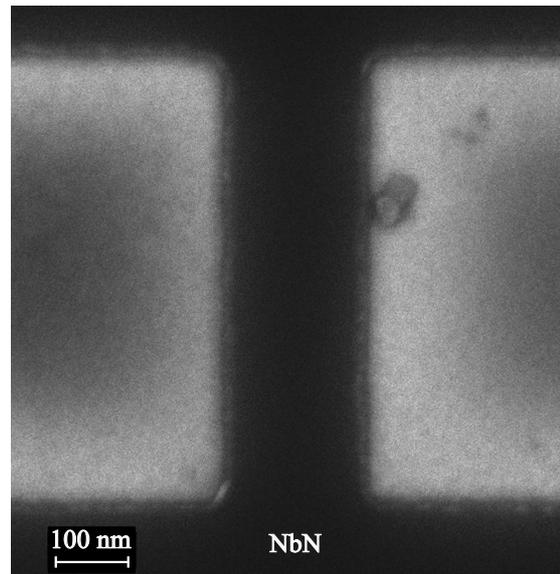


Рис. 2. РЭМ-изображение нанопровода из NbN (темная область) толщиной 5 нм, шириной 200 нм и длиной 600 нм на подложке из монокристаллического сапфира.

тока, то начинают проявляться особенности, характерные для данного типа сверхпроводников II рода. На рис. 2 показано РЭМ изображение нанопровода шириной 200 нм и длиной 600 нм. На рис. 3 показана его ВАХ (*a* — в общем масштабе, *b* — с увеличением в области малых напряжений).

На рис. 3, *a* видно, что при малых значениях тока (от 0 до $\sim 8 \mu\text{A}$) нанопровод находится в сверхпроводящем состоянии (S), а при токе $\sim 12 \mu\text{A}$ он переходит в нормальное состояние (N). Однако, при промежуточных значениях тока до резкого перехода в нормальное состояние от 8 до $12 \mu\text{A}$ наблюдается плавное увеличе-

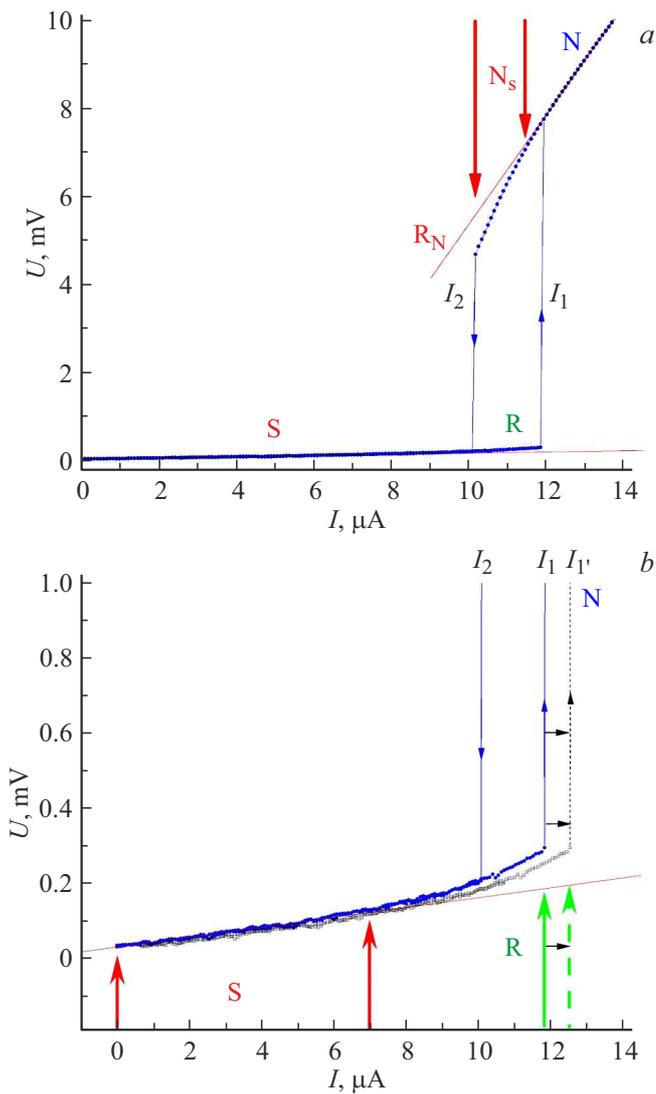


Рис. 3. ВАХ ($200 \times 600 \text{ nm}^2$) при температуре 4.2 К (а) и увеличенная область ВАХ при малых значениях напряжений (б).

ние напряжения (рис. 3, б). Увеличение напряжения до перехода в нормальное состояние объясняется образованием и перемещением в пленке вихрей Абрикосова в этом диапазоне токов. Данное состояние называется резистивным (R). В резистивном состоянии материал нанопровода находится в сверхпроводящем состоянии, а перемещение вихрей (центральная область которых содержит нормальную фазу) требует совершения работы, что и обуславливает возникновение некоторого (небольшого) напряжения на концах нанопровода. В работе [4] процесс генерации единичных вихрей в резистивном состоянии был инициирован за счет создания литографическими методами острого концентратора в узкой части нанопровода.

На рис. 3, б показано, что в резистивной области (R), непосредственно предшествующей переходу нанопровода в нормальное состояние при увеличении тока,

возможно повлиять на величину тока прямого перехода в нормальное состояние. Например, если в нанопровode создать дополнительные точки закрепления вихрей Абрикосова (в том числе за счет внесения дефектов), то это затруднит движение вихрей и резистивная область может расширяться в область больших токов. Такой модельный случай представлен на рис. 3, б пунктиром. Из-за дополнительных дефектов резистивная область увеличилась, и величина критического тока I_1 возросла до значения I_1' .

Что касается обратного тока I_2 , то переход нанопровода из нормального состояния в сверхпроводящее сопровождается протеканием следующих процессов [5]. При уменьшении тока через нанопровод, который находится в нормальном состоянии, пока ток больше (или немного меньше) тока прямого перехода I_1 , напряжение линейно зависит от тока (см. кривую R_N на рис. 3, а). В этом диапазоне токов энерговыделение в нормальном материале нанопровода превышает способность охлаждающей системы по его отводу из системы. Нормальный нанопровод поддерживает свою температуру выше T_c за счет выделяемого в нем джоулева тепла. Однако по мере уменьшения тока выделяемая в нормальной области тепловая мощность падает, что приводит к уменьшению длины теплового домена (сжатию теплового домена). Это проявляется в отклонении напряжения от линейной зависимости в сторону меньших напряжений (область N_s на рис. 3, а). Когда достигается значение тока I_2 , тепловая мощность, выделяемая в нормальном домене, уже не может конкурировать с существующим теплоотводом для поддержания его температуры выше критической. Происходит обратный переход теплового домена в сверхпроводящее состояние. Следовательно, ток обратного перехода определяется минимальной тепловой мощностью, способной конкурировать с существующим теплоотводом для поддержания температуры домена выше критической температуры перехода [5]. Известно, что при создании специальных условий по минимизации теплосъема, например, при формировании „взвешенных“ нанопроводов без контакта с подложкой в сухом криостате, величина тока обратного перехода может быть реализована на уровне десяти процентов от величины тока прямого перехода. Нормальное состояние нанопровода стабилизируется за счет резистивного разогрева вплоть до минимальных значений тока [6].

На основе снятых ВАХ построены диаграммы изменения критических токов в зависимости от флюенса облучения (рис. 4) при различных температурах.

На рис. 4, а видно, что после первого облучения флюенсом $2.65 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ наблюдается повышение прямого критического тока в диапазоне температур 4–7 К. В диапазоне температур 7–9 К прямой критический ток существенно не изменяется. Максимальное повышение прямого критического тока зафиксировано при температуре 6.2 К и составило 9%. При последующих облучениях прямой критический ток постепенно снижается относительно уровня первого облучения.

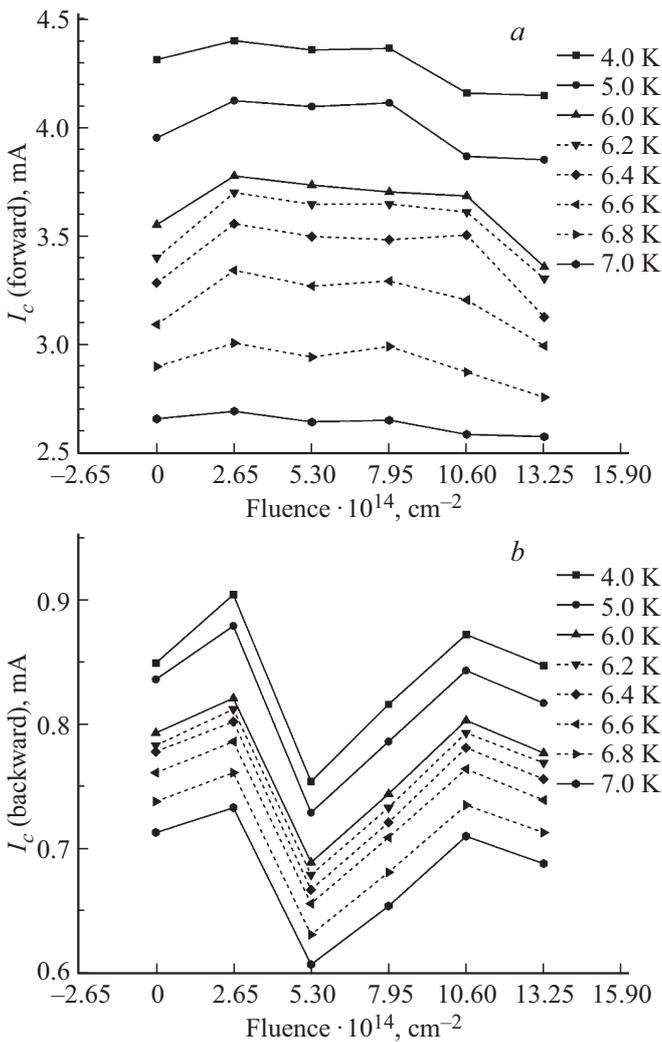


Рис. 4. Изменение критических токов в зависимости от флюенса облучения для прямого (а) и обратного (б) переходов.

На рис. 4, б видно, что после первого облучения также наблюдается увеличение тока обратного перехода из нормального состояния в сверхпроводящее. Поскольку обратный переход, как сказано выше, связан с тепловым равновесием минимального теплового домена, рассмотрим факторы, влияющие на генерацию тепла и теплоотвод в этом состоянии. Общепринятый подход к рассмотрению уравнения теплового баланса включает учет процессов генерации тепла за счет протекания тока через нормальный домен, а также теплоотвод в подложку и теплоотвод вдоль нанопровода [7]:

$$J^2 \rho + \kappa \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} - \frac{\alpha}{d} (T - T_{sub}) = \frac{\partial c T}{\partial t}, \quad (1)$$

где J — плотность тока через нанопровод, ρ — электрическое сопротивление нормального участка нанопровода, κ — теплопроводность NbN, термическая проводимость границы раздела пленки с подложкой, d — толщина пленки, T_{sub} — температура подложки, c —

удельная теплоемкость пленки. В процессе медленной съемки ВАХ в режиме стабилизации тока реализуется стационарные условия, поэтому уравнение (1) можно приравнять к нулю. Кроме того, опираясь на данные работы [6], можно считать, что наиболее значимым каналом отвода тепла от резистивной области является теплосъем через подложку из монокристаллического сапфира, в связи с чем обратим внимание только на первый член, ответственный за генерацию теплоты и на третий член, ответственный за теплосъем в подложку.

Рассмотрим, какие из этих двух параметров уравнения (1) могут меняться под действием облучения малым флюенсом, когда образуются лишь точечные дефекты и еще нет значимого изменения атомного состава за счет замены атомов азота на атомы кислорода, характерного для больших флюенсов.

Как видно на рис. 1, облучение малым флюенсом увеличивает сопротивление в нормальном состоянии на несколько процентов. Небольшое увеличение сопротивления нормальной фазы обусловлено образованием дефектов в NbN. Если бы увеличение сопротивления в нормальном состоянии (ρ) было бы единственным следствием воздействия малого флюенса облучения, это должно было бы привести к уменьшению величины тока перехода в сверхпроводящее состояние I_2 . Это связано с тем, что значение минимальной мощности, генерируемой нормальным доменом, достигается при меньшем токе с учетом увеличения сопротивления в нормальном состоянии. Так и происходит при больших флюенсах облучения, когда сопротивление в нормальном состоянии начинает увеличиваться за счет радиационно-индуцированного изменения атомного состава пленки и наблюдается существенное уменьшение величины тока обратного перехода [3].

Поскольку пленка NbN имеет толщину 5.5 nm, а энергия смешанного ионного пучка составляет 0.6 keV, зона генерации дефектов, как следует из результатов моделирования, распространяется вглубь мишени, захватывая как подложку, так и границу раздела между пленкой NbN и монокристаллом сапфира. По нашему предположению, радиационно-индуцированные процессы на границе раздела пленки с подложкой, например, ионное перемешивание интерфейса, увеличивает тепловую проводимость α . Это улучшает теплоотвод в подложку, в связи с чем значение минимальной мощности, генерируемой нормальным доменом при его переходе в сверхпроводящее состояние, достигается при большем токе I_2 . Ясно, что такой механизм может быть реализован лишь в ограниченном интервале флюенсов, поскольку последующий сильный рост сопротивления в нормальном состоянии вызывает неизбежное падение тока обратного перехода [3].

Наиболее важным для нас является продемонстрированное увеличение критического тока перехода из сверхпроводящего состояния в нормальное в диапазоне минимальных доступных для измерения температур от 4 до 7 К. При более высоких температурах этот эффект

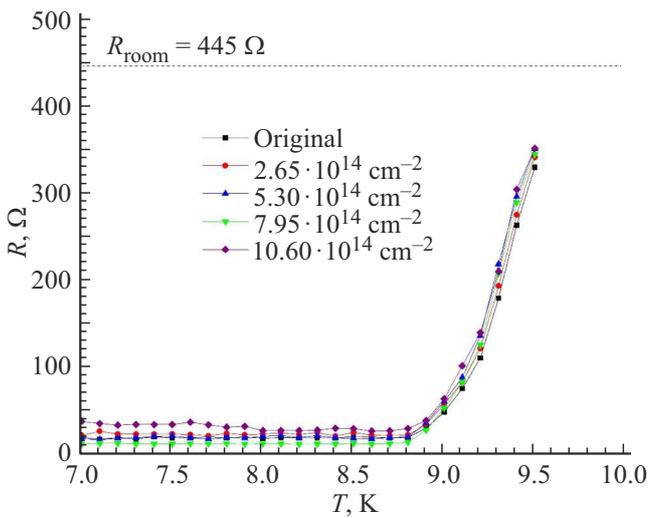


Рис. 5. Зависимости электрического сопротивления образцов шириной $20\mu\text{m}$ от температуры при различных флюенсах ионного облучения, построенные на основе ВАХ.

значимо не проявляется. Предположительно, это связано с приближением к T_c и уширенным переходом по температуре, характерным для сверхпроводников II рода.

Также на основе снятых ВАХ построены зависимости электрического сопротивления образцов микропостов шириной $20\mu\text{m}$ от температуры (рис. 5). Величина измерительного тока соответствовала $100\mu\text{A}$.

Сравнение зависимостей $R(T)$, построенных для различных значений флюенсов на рис. 5 показывает, что в диапазоне от нуля до $13.25 \cdot 10^{14} \text{cm}^{-2}$ критическая температура и ширина сверхпроводящего перехода существенно не изменяется.

Поскольку NbN относится к сверхпроводникам с s -волновым типом спаривания, для него применима теорема Андерсона [8]. Для изученного случая внесения дефектов в тонкую пленку под действием смешанного облучения приведем сравнение расчетных величин среднего расстояния между ионами со средним размером дефекта, образующегося под действием облучения от одного иона. Значение флюенса для расчета выбрано $F = 2.65 \cdot 10^{14} \text{cm}^{-2}$, так как при нем увеличение критического тока максимально.

Среднее расстояние между ионами при флюенсе $F = 2.65 \cdot 10^{14} \text{cm}^{-2}$ можно оценить по формуле

$$\Delta L \cong \frac{1}{\sqrt{F}} = 0.6 \text{ nm}. \quad (2)$$

Средний размер дефекта, образующегося от одного иона, можно оценить с использованием программы моделирования распространения ионов в твердом теле SRIM [9]. В программе учитываются все процессы взаимодействия заряженных частиц с атомами твердого тела, а также фиксируется не только акты первичного выбивания атомов решетки в результате взаимодействия

с ионами пучка, но и полная история всех событий, включая образование вторичных дефектов, в результате рассеяния первично выбитых атомов и атомов отдачи.

Для использованных ионов (в первую очередь, протонов) при энергиях 0.6 keV образуются только разряженные каскады атомных столкновений, состоящие из разнесенных в пространстве точечных дефектов [10]. Поэтому за размер дефекта L от одного иона можно принять среднее расстояние между несколькими точечными дефектами в рамках одного каскада атомных повреждений, инициированного одним ионом. Оценка L для использованных параметров облучения, толщины пленки NbN ее плотности, наличия массивной подложки из сапфира была выполнена с применением кода SRIM [9] в режиме отслеживания и записи на диск полного каскада атомных повреждений для числа вбрасываний ионов (метод Монте Карло) ~ 1 миллиона частиц. После проведения моделирования были выявлены вакансии в NbN подсистеме атомов азота (N) и вычислено среднее расстояние между данными вакансиями в рамках единичного каскада атомных столкновений. Полученная средняя величина расстояния между вакансиями для большого числа единичных каскадов составила $L \sim 6 \text{ nm}$, что примерно на порядок величины превышает среднее расстояние между ионами ΔL для изучаемого флюенса

$$\Delta L < L. \quad (3)$$

Соотношение (3) совместно с неизменностью T_c при данном флюенсе облучения (рис. 5) дает основание для проявления теоремы Андерсона.

Аналогичные оценки были выполнены для пленок YBCO, облученных ионами ксенона [11–13]. В цитируемых работах при выполнении условия (3) наблюдалось заметное уменьшение критической температуры T_c , поскольку теорема Андерсона для сверхпроводящего соединения YBCO не выполняется.

4. Заключение

Показано, что облучение пленки NbN смешанным ионным пучком энергии 0.6 keV и флюенсом $2.65 \cdot 10^{14} \text{cm}^{-2}$ увеличило прямой и обратный критические токи сверхпроводящего перехода без увеличения критической температуры. Таким образом, впервые получены результаты, в которых наблюдается повышение критических токов тонкопленочного NbN при малых флюенсах ($\sim 2.7 \cdot 10^{14} \text{cm}^{-2}$) смешанного ионного облучения.

Увеличение прямого критического тока перехода объясняется закреплением вихрей Абрикосова на созданных дефектах в NbN, в то время как данный флюенс смешанного облучения слишком мал для значимого изменения атомного состава в результате протекания процесса селективного замещения атомов азота на атомы кислорода. Отсутствие влияния такого облучения

на температуру сверхпроводящего перехода, несмотря на образование дефектов под действием облучения, что соответствует теореме Андерсона [8], справедливой для сверхпроводников с s -волновым типом спаривания, к которым относится NbN.

Полученные в работе результаты о повышении критических токов при малых флюенсах смешанного ионного облучения позиционируют используемый нами радиационно-индуцированный метод направленного преобразования свойств тонкопленочных материалов в ряду других радиационных методов изменения свойств сверхпроводящих материалов, ориентированных на создание дефектов, например, облучение нейтронами или тяжелыми ионами с большой энергией.

Благодарности

Авторы выражают глубокую благодарность Д.А. Савинову за неоценимую помощь и консультации в процессе работы над рукописью, которые привели к качественно новому осмыслению полученных экспериментальных результатов и существенно улучшили изложение материала.

Финансирование работы

Работа проведена в рамках выполнения государственного задания НИЦ „Курчатовский институт“.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] Б.А. Гурович, К.Е. Приходько, Л.В. Кутузов, Б.В. Гончаров, Д.А. Комаров, Е.М. Малиева. ФТТ **64**, 10, 1390 (2022).
- [2] B.A. Gurovich, K.E. Prikhodko, M.A. Tarkhov, A.G. Domantovsky, D.A. Komarov, B.V. Goncharov, E.A. Kuleshova. Micro Nanosyst. **7**, 3, 172 (2015).
- [3] К.Е. Приходько, Г.Ю. Голубев. ПЖТФ **49**, 17, 1 (2023).
- [4] А.В. Бодягин, Д.Ю. Водолазов. Тр. XXVIII Междунар. симпозиума „Нанозфизика и нанозлектроника“ **1**, 28 (2024).
- [5] M. Tinkham, J.U. Free, C.N. Lau, N. Markovic. Phys. Rev. B **68**, 134515 (2003).
- [6] М.А. Тархов, А.М. Мумляков, М.В. Шибалов, И.В. Трофимов, Н.В. Порохов, И.А. Филлипов, Ю.В. Ануфриев. Тр. XXVIII Междунар. симпозиума „Нанозфизика и нанозлектроника“ **1**, 138 (2024).
- [7] J. Yang, A. Kerman, E. Dauler, V. Anant, K.M. Rosifjord, K. Berggren. IEEE Transat. Appl. Supercond. **17**, 2, 581 (2007).
- [8] P.W. Anderson. Phys. Rev. Lett. **3**, 325 (1959).
- [9] J.F. Ziegler, J.P. Biersack, M.D. Zeigler. The Stopping and Range of Ions in Matter. SRIM Company, USA Chester Maryland (2008). 683 p.
- [10] Б. Келли. Радиационное повреждение твердых тел. Атомиздат, М. (1970). С. 235.

- [11] А.В. Антонов, Д.В. Мастеров, А.Н. Михайлов, С.В. Морозов, С.А. Павлов, А.Е. Парафин, Д.И. Тетельбаум, С.С. Уставщиков, П.А. Юнин, Д.А. Савинов. ФТТ **64**, 9, 1162 (2022).
- [12] А.В. Антонов, Д.В. Мастеров, А.Н. Михайлов, С.В. Морозов, С.А. Павлов, А.Е. Парафин, Д.И. Тетельбаум, С.С. Уставщиков, П.А. Юнин, Д.А. Савинов. ФТТ **65**, 907 (2023).
- [13] A.V. Antonov, D.V. Masterov, A.N. Mikhaylov, S.V. Morozov, S.A. Pavlov, A.E. Parafin, D.I. Tetelbaum, S.S. Ustavshchikov, P.A. Yunin, D.A. Savinov. Physica B **679**, 415764 (2024).

Редактор К.В. Емцев