

05.4;12

## Исследование нестационарных процессов в $YBaCuO$ пленках методом низкотемпературной растровой электронной микроскопии

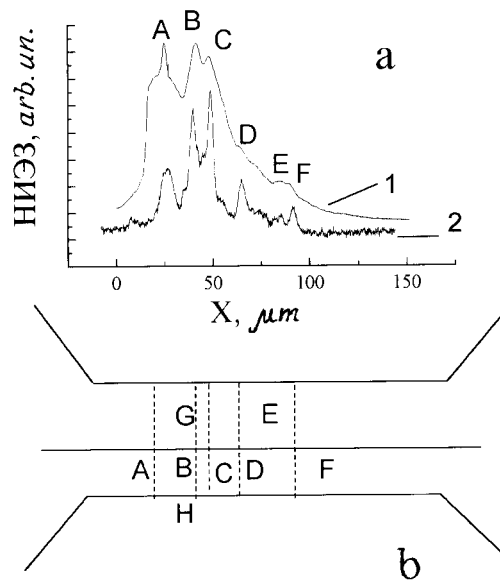
© В.А. Соловьев, М.Э. Гаевский, С.Г. Конников,  
Р.А. Сурис, А.В. Бобыль

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, С.-Петербург  
С.-Петербургский государственный технический университет

Поступило в Редакцию 17 июля 1997 г.

Обнаружено влияние неоднородности ВТСП-пленок на ее временные характеристики при локальном воздействии импульсами электронного зонда. Представленная методика НТРЭМ с временным разрешением является первым шагом в этом направлении. Впервые проведены локальные исследования влияния слабых связей при переключении из сверхпроводящего в нормальное состояние и наоборот при локальном разогреве электронным зондом с временным разрешением 1 ns. Показано, что для пленки  $YBa_2Cu_3O_{7-x}$  толщиной 400 nm при  $T = 80$  K время тепловой диффузии составляет величину от 400 до 600 ns, зависящую от параметров участков пленки и подложки, прилегающих к исследуемой точке.

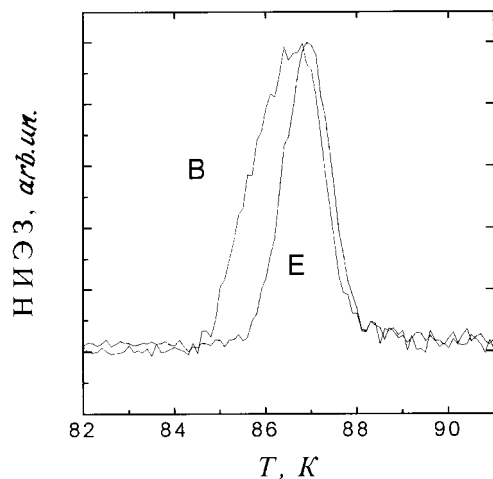
Методики определения термодинамических параметров ВТСП-пленок на подложках (термосопротивление интерфейса пленка-подложка, коэффициента диффузии тепла, констант электрон-фононного взаимодействия и т.д.) являются, как правило, нелокальными и основаны на исследованиях интегрального отклика на внешнее импульсное воздействие всего изучаемого образца. Для этого, например, используются импульсы пропускаемого тока, лазерная засветка, СВЧ-облучение [1–5]. Для ВТСП-материалов характерна сильная пространственная неоднородность различных характеристик. В частности, в работах [6–8] было показано, что вблизи  $T_c$  механизм токопротекания и низкочастотного шума  $YBa_2Cu_3O_7$  пленок определяется главным образом пространственным распределением ее микроструктуры. Поскольку тепловое сопротивление и коэффициент диффузии тепла являются локальными характеристиками пленки, сильно зависят и от материала подложки, и



**Рис. 1.** *a* — зависимость сигнала НИЭЗ от координаты при сканировании электронного луча вдоль мостика, температура разогрева  $\Delta T = 10$  К — кривая 1,  $\Delta T = 1$  К — кривая 2. *b* — схематический рисунок микромостика с обозначением точек измерения температурных и временных характеристик. Положение микротрещин, появившихся после термоциклирования, указано пунктирными линиями; показана линия, вдоль которой сканировался электронный луч.

от толщин пленки и качества интерфейса пленка–подложка, и от структурного совершенства и состава пленки, то очевидно, что использование нелокальных методов приведет к значительным погрешностям значений этих параметров и соответствующих констант электрон-фононного взаимодействия.

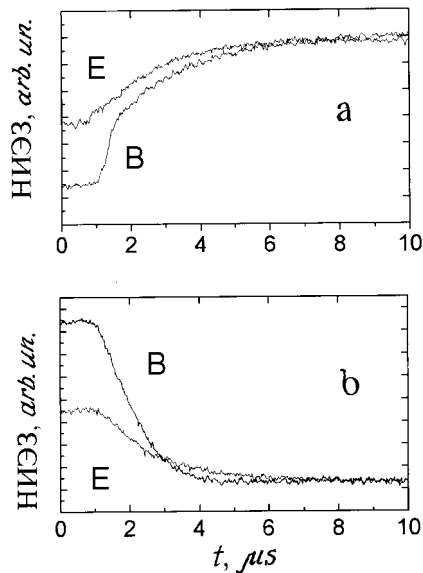
Целью данной работы является разработка методики локальных (с пространственным разрешением  $1\text{--}2\ \mu\text{m}$ ) исследований нестационарных процессов (с временным разрешением  $1\ \text{ns}$ ) структур на основе ВТСП-пленок. Интерес к таким исследованиям может быть связан также с необходимостью разработки различных быстродействующих приборов криоэлектроники на основе ВТСП-пленок, временные характеристики и деградация которых определяются процессами теплопередачи.



**Рис. 2.** Температурные зависимости сигнала НИЭЗ для области с микротрещиной в точке *B* на рис. 1 (кривая *B*) и для бездефектной области в точке *E* (кривая *E*).

Первые результаты, описанные ниже, показывают, что поставленным требованиям удовлетворяет методика низкотемпературной растровой электронной микроскопии (НТРЭМ) [6–10]. Этот метод основан на регистрации напряжения, индуцированного электронным зондом (НИЭЗ), возникающего на контактах ВТСП-микромостика, при локальном облучении его сфокусированным пучком электронов с энергией 5–20 keV.

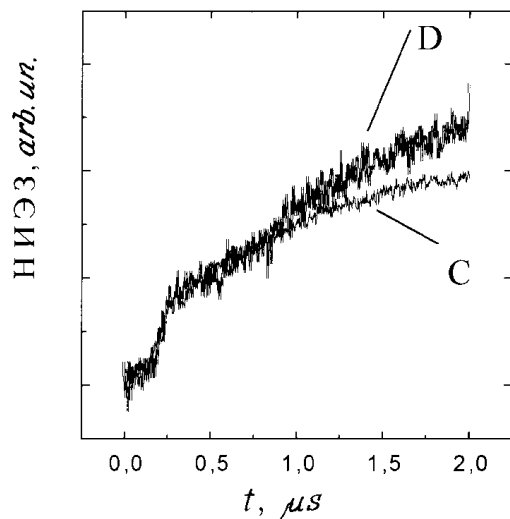
В данной работе представлены результаты исследований  $YBa_2Cu_3O_7$  пленок методом НТРЭМ как в стационарном, так и в импульсном режимах возбуждения их электронным зондом. Данные режимы использовались для обнаружения пространственной неоднородности электрофизических свойств и для исследования временных констант характерных участков образца. Методика была реализована на растровом электронном микроскопе CamScan Series 4–88 DV 100, оборудованном системой охлаждения образцов в диапазоне 77–300 К (Oxford Instruments), модулятором электронного зонда, а также малошумящим усилителем сигнала НИЭЗ. Пространственное разрешение метода было  $\sim 1\mu\text{m}$ , временное разрешение ограничивалось полосой пропускания модулятора и составляло величину 1–2 ns. Исследования проводились на пленках



**Рис. 3.** Временные зависимости сигнала НИЭЗ для двух характерных точек мостика: *a* — при включении зонда, *b* — при выключении зонда.

$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$  толщиной  $0.4\text{--}0.5\ \mu\text{m}$ , полученных методом магнетронного напыления на подложку  $\text{MgO}$  [10]. Результаты рентгеноструктурного анализа и спектроскопии комбинационного рассеяния показали высокую степень ориентации пленки с направлением кристаллографической оси  $c$  перпендикулярно подложке. На пленках методом стандартной фотолитографии были сформированы микромостики  $100 \times 500\ \mu\text{m}$ . Полученные структуры переходили в сверхпроводящее состояние при  $T_c = 87\ \text{K}$ , ширина перехода составляла  $\Delta T_c = 0.7\ \text{K}$ .

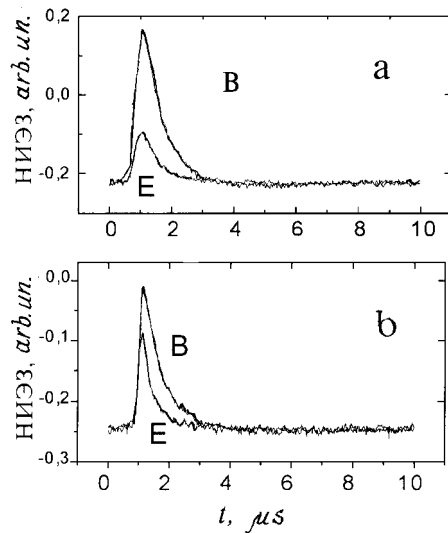
Непосредственно после изготовления образцы обладали высокой пространственной однородностью  $T_c$  ( $< 0.3\ \text{K}$ ) и плотности тока, однако после 10-кратного термоциклирования (от  $300$  до  $77\ \text{K}$ ) неоднородность токопротекания значительно возросла. В частности, в стационарном режиме НТРЭМ при температурах  $T < T_c$  обнаружались токовые сгущения, пространственное распределение которых соответствует максимумам сигнала НИЭЗ, показанного на рис. 1, для случая сканирования электронным зондом вдоль образца. При исследовании морфологии



**Рис. 4.** Нормированные временные зависимости сигнала НИЭЗ для точки *C*, в которой наблюдается максимального НИЭЗ сигнал, и удаленной от нее на  $15 \mu m$  точки *D*.

образца в режиме вторичных электронов были обнаружены микротрещины, положение которых коррелировало с положением соответствующих максимумов сигнала НИЭЗ. Исследования температурных и временных зависимостей сигнала НИЭЗ проводилось в различных точках вблизи одной микротрещины, пересекающей образец (точки *G*, *B*, *H* на рис. 1), в различных пространственно разнесенных микротрещинах (*A*, *B*, *C*, *D*, *F*) и в области (*E*), где эти трещины отсутствовали. Температурная зависимость сигнала в точке вблизи микротрещины *B* и в точке участка пленки *E* представлены на рис. 2. Вблизи микротрещины наблюдается значительное уширение пика сигнала НИЭЗ и смещение его максимума в более низкотемпературную область. Это свидетельствует о формировании на микротрещине слабой связи с существенно меньшим значением критической плотности тока по сравнению с бездефектной областью [8].

Относительно величины перегрева  $\Delta T$  заметим следующее. Как показано в работе [11], сигнал НИЭЗ  $S \sim jdV\Delta T$ , где  $j$  — плотность



**Рис. 5.** Зависимости сигнала НИЭЗ  $S(t)$  для двух различных длительностей импульсов электронного зонда:  $a$  — 400 ns,  $b$  — 200 ns.

тока смещения,  $dV$  — разогреваемый объем пленки,  $\Delta T$  — температура разогрева. В работах [1–5] внешнему воздействию подвергалась вся площадь образца ( $\sim 100 \times 100 \mu\text{m}^2$  и более), что позволяло для получения достаточного уровня сигнала использовать сравнительно небольшую плотность энергии возбуждения и температура повышалась не более 0.05 К. Для достижения высокой локальности измерений необходимо повышать плотности мощности и плотность тока зонда. Кроме того, благоприятной для повышения уровня сигнала, была сравнительно большая толщина пленок, оптимизированная на минимальную величину поверхностного сопротивления на сверхвысоких частотах. Так как максимальная толщина пленок ограничена технологическими трудностями их получения, а плотность тока не может превышать критического значения  $j_c$  (в нашем случае  $j_c = 5 \cdot 10^5 \text{ A/cm}^2$  при 77 К), то единственным способом повышения уровня сигнала остается увеличение температуры разогрева. В данной работе  $\Delta T$  варьировалось от 0.5 до 10 К.

Характерное поведение сигналов НИЭЗ при включении и выключении зонда показаны на рис. 3, *a* и *b* соответственно. В точках, расположенных вблизи слабых связей, наблюдается быстрое нарастание сигнала НИЭЗ в первые 100–400 ns, что соответствует переходу слабой связи из сверхпроводящего в нормальное состояние. Далее, после перехода наблюдается участок, связанный с распространением тепла по подложке и пленке. Так как коэффициент диффузии тепла в MgO подложке более чем на два порядка больше, чем в  $YBa_2Cu_3O_7$  пленке, то распространение тепла по пленке определяется в первую очередь тепловыми характеристиками подложки и тепловым сопротивлением интерфейса пленка–подложка. Относительно последнего заметим, что эксперимент проводится при достаточно высоких температурах 80–90 K и баллистическим разлетом фононов можно пренебречь, что, учитывая также относительно большую толщину пленки, позволяет в дальнейшем считать его большим. При  $\Delta T \sim 10$  K и значении тока смещения  $0.9j_c$  распространение тепла по подложке происходит за  $\sim 1.5 \mu s$ . После установления стационарного распределения температуры по подложке происходит диффузия тепла в пленку, что соответствует экспоненциальному участку  $S \sim \exp(t/t_D)$  на рис. 3, *a*. Характерные времена диффузии тепла при включении зонда (рис. 3, *b*)  $t_D = 900$  ns, в то время как при выключении  $t_D = 600$  ns. Такое отличие объясняется зависимостью скорости неравновесных фононов от температуры, наблюдавшейся в работе [2], а также различием распределений температуры в начале соответствующих процессов релаксации. Из-за сильного разогрева пленки электронным зондом и  $\delta$ -образного его распределения процесс включения происходит в среднем при более высокой температуре, что и обуславливает увеличение  $t_D$  в 1.5 раза.

При анализе формы временных зависимостей  $S(t)$  необходимо учитывать влияние соседних участков. На рис. 1 при высоком уровне возбуждения пленки наблюдается сильное перекрытие отдельных максимумов. Методика учета такого влияния соседних участков в стационарном режиме регистрации НИЭЗ сигнала приведена в работе [7,9]. В данной работе обнаруживается проявление такого влияния на формы временных зависимостей  $S(t)$ . Для кривой на рис. 3, соответствующей точке *E*, наблюдаются отклонения от экспоненциальной формы при  $t > 1.5 \mu s$  и увеличение эффективного  $t_{D^{eff}}$  до 1700 ns, что вызвано влиянием *B* и *C* участков. Действительно, по мере удаления от точки падения электронного луча температура разогрева уменьшается и вклад соответствующих участков в интегральный сигнал снижается. Поэтому,

когда луч попадает в области  $B, C$ , имеющие высокий уровень сигналов, вкладом в сигнал от удаленных участков  $D, F$ , имеющих низкий уровень сигнала, можно пренебречь. С другой стороны, при падении луча в точки  $D, E, F$  наблюдается искажение сигнала в момент времени, когда тепловая волна доходит до слабых связей  $B, C$  (рис. 4). Наблюдаемый эффект сильно зависит от времени и уровня возбуждения. При уменьшении времени возбуждающего импульса в точке  $E$  наблюдается уменьшение  $t_{D^{eff}}$ . При времени возбуждения  $t = 200$  ns влияние соседних точек не наблюдалось и  $t_{D^{eff}}$  достигает минимального значения  $t_D = 400$  ns (рис. 5), что согласуется с величиной, полученной для толстых  $YBa_2Cu_3O_{7-x}$  пленок в [5]. В точках  $B, C$   $t_D$  не зависело от продолжительности импульса. Это можно объяснить тем, что соседние области со слабыми связями переходят в нормальное состояние за время  $< 1.5$   $\mu$ s.

Сопоставляя данные, представленные на рис. 1 и 4, можно оценить коэффициент диффузии тепла в полужонке. Из рис. 1 видно, что расстояние от точки  $D$  до ближайшей слабой связи точки  $C$ , соответствующей высокому уровню сигнала,  $x = 15$   $\mu$ m, а из рис. 4 следует, что тепловая волна доходит до этого участка за время  $t_1 = 700$  ns. Как показали дополнительные измерения, время  $t_1$  линейно зависит от расстояния между точкой, облучаемой зондом и областью с высоким уровнем сигнала НИЭЗ (точки  $B$  и  $C$ ). Оценка коэффициента тепловой диффузии дает величину  $D \sim x^2/t_1 = 3.6$   $K/cm^2$ , что хорошо согласуется с величиной коэффициента тепловой диффузии MgO подложки  $D = 6.2$   $K/cm^2$  [1].

Таким образом, в данной работе обнаружено влияние неоднородности ВТСП-пленок на ее локальные временные характеристики при воздействии импульсами электронного зонда. Представленная методика НТРЭМ с временным разрешением является первым шагом в этом направлении. Впервые проведены локальные исследования влияния слабых связей при переключении из сверхпроводящего в нормальное состояние и наоборот, вызванные локальным разогревом электронным зондом, с временным разрешением 1 ns. Показано, что для пленки  $YBa_2Cu_3O_{7-x}$  толщиной 400 nm при  $T = 80$  K время тепловой диффузии составляет величину от 400 до 600 ns, зависящую от параметров участков пленки и подложки, прилегающих к исследуемой точке.

Работа выполнена в рамках Российской государственной научной программы "Сверхпроводимость", проект № 96071.



## Список литературы

- [1] *Sergeev A.V., Semenov A.D., Kouminov P., Trifonov V., Goghidze I.G., Karasik B.S., Gol'tsman G.N., Gershenson E.M.* // Phys. Rev. B. 1994. V. 49. N 13. P. 9091–9096.
- [2] *Гершензон Е.М., Гогидзе И.Г., Гольцман Г.Н., Семенов А.Д., Сергеев А.В.* // Письма в ЖТФ. 1991. Т. 17. В. 22. С. 6–10.
- [3] *Peralta S.B., Chen Z.H., Mandelis A.* // Appl. Phys. A. 1991. V. 52. P. 289–294.
- [4] *Robl K., Schlaffer G., Oprea C., Brunner B., Kus O., Prettl W., Renk K.F., Lengfellner H.* // Physica C. 1995. V. 249. N 3–4. P. 333–338.
- [5] *Ngo Phong L., Shih I.* // J. Appl. Phys. 1993. V. 74. N 12. P. 7414–7421.
- [6] *Gross R., Koelle D.* // Rep. Prog. Phys. 1994. V. 57. P. 651–736.
- [7] *Соловьев В.А., Гаевский М.Е., Шанцев Д.В., Конников С.Г.* // Изв. РАН, Сер. физ. 1996. V. 60. № 2. P. 32–40.
- [8] *Bobyl A.V., Gaevski M.E., Karmanenko S.F., Khrebtov I.A., Leonov V.N., Shantsev D.V., Solov'ev V.A., Suris R.A.* // Physica C. 1996. V. 266. N 1–2. P. 33–43.
- [9] *Bobyl A.V., Gaevski M.E., Konnikov S.G., Shantsev D.V., Solov'ev V.A., Suris R.A.* // Scanning Microscopy. 1996. V. 10. N 3.
- [10] *Karmanenko S.F., Davydov V.Yu., Belousov M.V., Chakalov R.A., Dzijuba G.O., Il'in R.N., Kozyrev A.B., Liholetov Y.V., Njakshev K.F., Serencov I.T., Vendic O.G.* // Supercond. Sci. Technol. 1993. V. 6. P. 23–29.
- [11] *Umansky V.E., Solov'ev S.A., Konnikov S.G., Karmanenko S.F., Kosogov O.V.* // Mater. Lett. 1990. P. 417–419.